

Caractérisation et simulation numérique du comportement de matériaux élastomériques lors de décompressions rapides

J. JARAVEL, S. CASTAGNET, J.C. GRANDIDIER, G. BENOIT, M. GUEGUEN

Institut Pprime - CNRS - Université de Poitiers – ENSMA (UPR3346) – Département Physique et Mécanique des Matériaux, ENSMA - Téléport 2, 1 avenue Clément Ader, BP 40109, F86961 FUTUROSCOPE

Résumé :

Des essais expérimentaux sous environnement gazeux sur des élastomères ont montré l'apparition d'endommagement dans ces matériaux lorsqu'ils sont soumis à des chutes rapides de pression. Ce type de sollicitation appelée décompression explosive conduit dans certains cas à l'endommagement de l'échantillon par apparition de cavités ou de fissures. Pour comprendre ce phénomène, une campagne d'essais est réalisée sur une machine de traction munie d'une enceinte permettant de coupler à des essais mécaniques une mise en pression de gaz (hydrogène ou dioxyde de carbone). Pour comprendre les phénomènes observés expérimentalement, une modélisation du comportement d'une sphère située dans un matériau hyperélastique est modélisée en prenant en compte la diffusion de gaz et la pression de celui-ci.

Abstract :

Elastomers exposed to high-pressure gas suffer from internal fracture when the high-pressure gas is rapidly decompressed. In some cases, this kind of sollicitation - referred to as explosive decompression - leads to cavity growth and blister fracture. To understand this phenomenon, a tensile machine is fitted with a pressure cell so that mechanical tests can be performed in gaseous environment (hydrogen or carbon dioxide). In order to understand explosive decompression failure, a simulation of the response of a hyperelastic hollow sphere under a coupled mechanical-diffusion load is proposed.

Mots clefs : élastomère, caoutchouc, hyperélasticité, endommagement, cavitation, diffusion de gaz, hydrogène, dioxyde de carbone

1 Introduction

Les élastomères sont utilisés dans de nombreuses applications industrielles fonctionnant sous haute pression de gaz et sur une gamme importante de températures. C'est notamment le cas des systèmes d'étanchéité des pompes servant à extraire et transporter du gaz dans les puits de forage et des réservoirs des futurs véhicules à hydrogène. L'étude de l'effet fragilisant de l'hydrogène sur le comportement mécanique des métaux ayant été mis en avant lors d'essais sous haute pression de gaz [1], Il est nécessaire d'étudier le comportement des élastomères en environnement gazeux pour pouvoir prédire leur tenue lors de fonctionnement sous haute pression. Plus particulièrement, certains élastomères subissent un endommagement lors de la suppression rapide d'une pression de gaz appliquée au préalable. Ce type de sollicitation qui conduit dans certains cas à l'apparition de cavités au sein des échantillons est appelé décompression explosive. Le but de cet article est, dans un premier temps, de présenter une expérience visant à quantifier d'un point de vue expérimental ce phénomène avec des essais de décompression d'élastomères saturés en gaz et, dans un deuxième temps, de présenter une modélisation en cours de développement de la réponse d'une cavité dans un milieu hyperélastique soumis à une décompression explosive.

Le phénomène de cavitation dans les élastomères a été mis en avant en 1959 par Gent [2] grâce au « Poker chip test » consistant à mettre en traction un cylindre en caoutchouc fixé entre deux cylindres métalliques pour générer une composante hydrostatique en son centre entraînant sous certaines conditions l'apparition d'une cavité au centre de celui-ci. Ce problème a été étudié et modélisé [3-7] mais relativement peu d'études ont été menées pour étudier l'impact d'une pression de gaz sur le comportement d'un élastomère [8-14]. Pour expliquer les phénomènes d'endommagement dans les élastomères, Gent et al. [8] supposent l'existence

d'un défaut initial dans le matériau qui va se développer si la dépression est supérieure à $5E/6$ avec E module d'Young du matériau. D'autres publications [11] supposent que l'endommagement observé est une fissure.

L'intérêt de l'étude expérimentale va être de vérifier expérimentalement les critères d'endommagement d'élastomères sous décompression explosive et notamment d'étudier si le critère de cavitation dépend uniquement du niveau de dépression et est donc indépendant de la vitesse de décompression. La modélisation d'une cavité dans un milieu hyperélastique va permettre d'étudier l'influence des propriétés mécanique et de diffusion sur le développement de la cavité pour aider à comprendre le phénomène de décompression explosive.

2 Etude expérimentale

2.1 Matériau

Un élastomère commercial (vinyltriméthoxysilane) est utilisé pour les essais en raison de sa transparence permettant un suivi spatial de l'endommagement des échantillons. Son module d'Young est de 1.6 MPa à l'ambiante.

2.2 Conditions d'essais

Les essais expérimentaux sont réalisés sur une machine de traction hydraulique Instron 8802 (figure 1) munie d'une enceinte sous pression permettant de coupler à un essai mécanique classique un essai jusqu'à 40 MPa de pression de gaz. Les gaz disponibles sont l'azote, l'hydrogène, et le dioxyde de carbone. Pour le dioxyde de carbone il faut veiller à avoir des décompressions suffisamment lentes pour éviter de créer des bouchons de CO_2 solide dans les canalisations du système de purge, le point triple de ce gaz étant à -56.6 °C et 0.51 MPa. L'enceinte a un diamètre de 150 mm pour une profondeur de 100 mm et un volume de 1.77 l pour éviter les risques d'explosion dans le cas d'une purge automatique. Cela implique une course maximale limitée pour les essais de traction.

Comme indiqué sur la figure 1, la chambre est refermée à l'aide d'une des deux portes pouvant tourner autour des colonnes de la machine de traction ce qui permet d'installer facilement les échantillons. Le système dispose d'une porte résistant à des pressions inférieures ou égales à 4 MPa et munie d'une vitre centrale de 40 mm de diamètre et d'une porte résistant à des pressions inférieures ou égales à 40 MPa et munie d'une vitre en saphir de 25 mm de diamètre et excentrée car initialement mise en place pour le suivi de fissure sur des éprouvettes de fissuration entaillées. La face arrière de l'enceinte dispose elle aussi d'une vitre en saphir centrée permettant de suivre à l'aide d'une caméra CCD munie d'un objectif l'endommagement de l'éprouvette pendant l'essai tout en éclairant celle-ci par la fenêtre opposée. Le piston mobile traverse l'enceinte par le bas. Une cellule de mesure de charge interne est installée entre le piston et l'axe pour supprimer de la mesure les frottements des joints d'étanchéité. Une circulation d'eau autour de cette cellule de charge assure le refroidissement de celle-ci. De plus, un système de compensation a été mis en place en imposant au dessous du piston mobile la même pression que dans la chambre pour équilibrer ce dernier. La surface d'application de cette pression de compensation qui arrive directement depuis la chambre par un tuyau n'étant pas exactement égale à la surface d'application de la pression sur le piston dans la chambre, le système est partiellement compensé. Cependant cet écart de compensation est connu et dépend uniquement de la pression dans la chambre ainsi que des surface de piston en contact avec le gaz. Un collier chauffant est aussi installé autour de la chambre pour permettre des essais en température. La régulation se fait cependant lentement étant donné l'inertie thermique de l'enceinte. Il est donc uniquement possible de faire un essai en ayant au préalable chauffé l'enceinte et stabilisé la température entre la température ambiante et 150 °C mais il n'est pas possible de faire subir à l'échantillon un chargement thermique complexe et rapide. Lors des essais en température, lorsque l'équilibre thermique est atteint, la précision au niveau de la température est de ± 0.1 °C. De plus, la machine est installée dans une pièce ventilée pour des raisons évidentes de sécurité vis-à-vis des gaz utilisés et les essais à température ambiante peuvent donc se faire d'un jour à l'autre à des températures différentes.

Lors d'un essai il est possible de piloter le déplacement ou l'effort imposé au mors mobile comme cela se fait sur une machine de traction classique. La mesure de l'effort se fait par la cellule de charge interne de 20 kN avec une précision de ± 10 N. Il est en plus possible d'imposer dans le cas de l'hydrogène un chargement complexe (rampe, cyclage,...) synchronisé avec les essais mécaniques et avec une précision de $\pm 1.10^{-2}$ MPa

lors des phases de stabilisation.

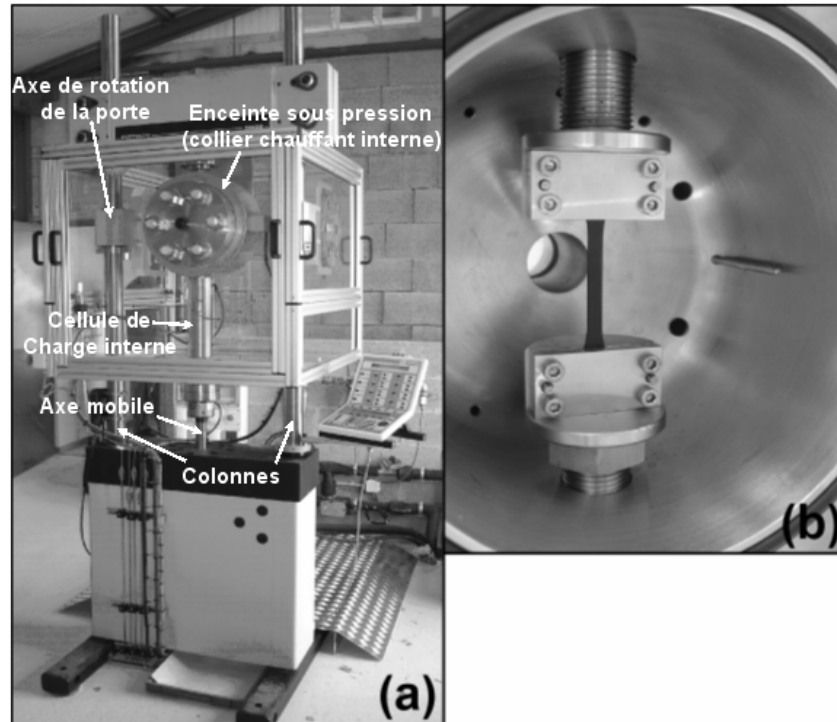


FIG. 1 – Machine de traction munie d’une enceinte (a) et fixation d’une éprouvette dans l’enceinte (b).

2.3 Protocole d’essai

Les éprouvette (figure 1) ont une épaisseur de 2 mm ce qui permet un temps de saturation en gaz estimé avec un calcul de plaque plane infinie de l’ordre de quelques heures lors des essais à haute pression d’hydrogène ou de dioxyde de carbone. Ce calcul est effectué en estimant la concentration dans une plaque plane semi-infinie d’épaisseur e avec une concentration à chacune de ses extrémités $C_{\infty H_2}$ exprimée en utilisant la solution analytique proposée par Crank [15] et donnée en équation 1. Cette équation permet de déterminer la concentration dans la plaque à un instant t en connaissant D , coefficient de diffusion d’hydrogène dans l’élastomère. Le changement de section centrale permet lorsque l’on effectue une traction avant la décompression explosive d’étudier l’effet du niveau de contrainte sur l’endommagement du matériau.

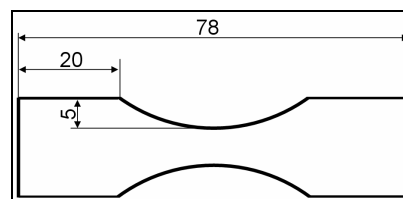


FIG. 1 - Dimension des éprouvettes (épaisseur 2 mm).

$$C(t) = C_{\infty H_2} \left(1 - \frac{8}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{(2n-1)^2} \exp\left(- (2n-1)^2 \pi^2 \frac{Dt}{e^2}\right) \right) \quad (1)$$

Les éprouvettes sont découpées dans des plaques de 2mm d’épaisseur réalisées en laissant sécher l’élastomère commercial placé entre deux plaques métalliques.

Un essai se compose d’une phase de purge avec trois remplissages de l’enceinte jusqu’à 1 MPa avec de l’azote (figure 2a) puis d’une phase de mise en pression avec de l’hydrogène ou du dioxyde de carbone (figure 2b) et un maintien de cette pression jusqu’à saturation de l’échantillon qui est fixé entre les mors de la machine de traction (figure 2c). L’enceinte est ensuite vidée de son gaz à une vitesse de décompression contrôlée et pouvant aller jusqu’à 90 MPa/min avec de l’hydrogène et jusqu’à 2 MPa/min avec du dioxyde de carbone (figure 2e). Ces essais peuvent s’accompagner pendant l’essai d’un chargement mécanique par l’intermédiaire de la machine de traction (figure 2d) et son terminés par trois purges à l’azote (figure 2f).

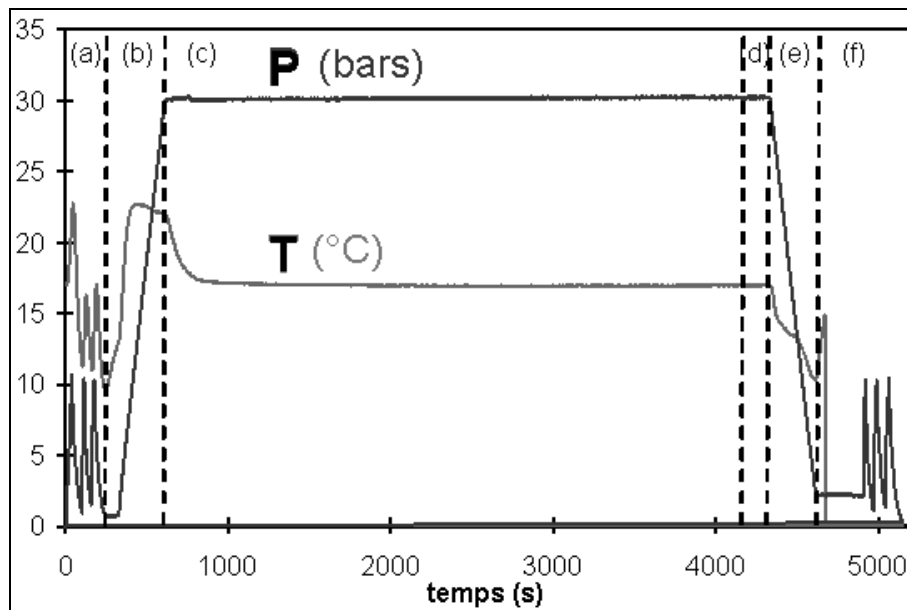


FIG. 2– Suivi de la pression et de la température lors d'un essai sous pression.

2.4 Effet de l'hydrogène sur l'endommagement d'un élastomère

Une campagne d'essais est en cours pour déterminer le comportement de l'élastomère étudié lors de décompressions explosives sous hydrogène ou dioxyde de carbone. La première étude consiste à déterminer sous quelles conditions et à quel instant un endommagement se produit lors d'une décompression explosive sous hydrogène. Pour cela, une étude paramétrique est en cours de réalisation sur les éprouvettes décrites ci-dessus (figure 2) en faisant varier le temps de saturation de l'échantillon, la vitesse de décompression, le niveau de pression imposé et le niveau de contraintes.

Les premiers essais ont permis de montrer l'influence de la vitesse de décompression après avoir mis les échantillons à saturer pendant une heure à la suite d'une montée en pression à 1 MPa/min jusqu'à 9 MPa.

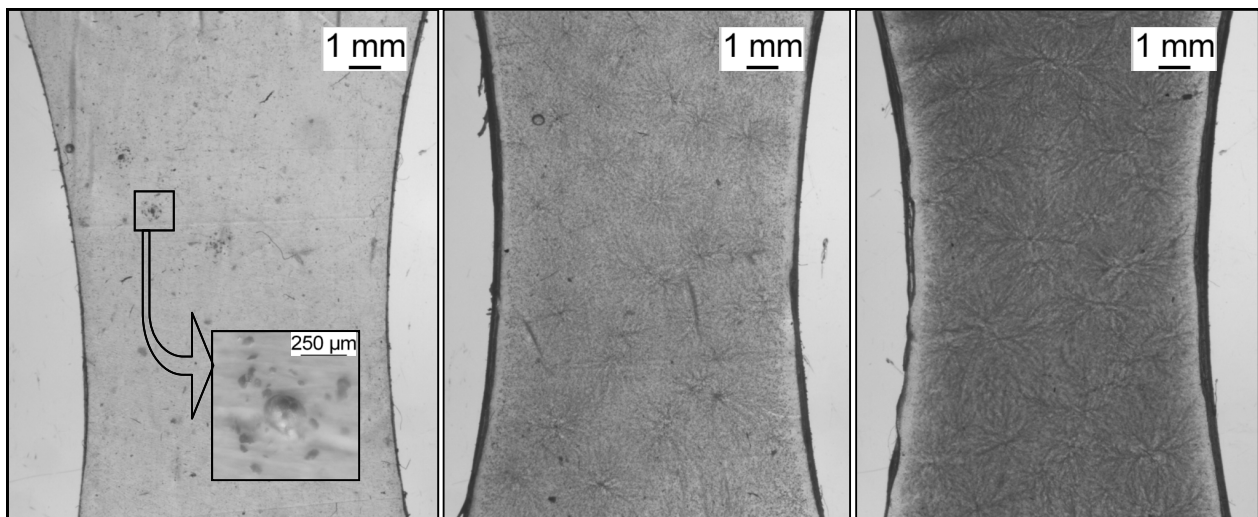


FIG. 3 - Effet de la vitesse de décompression sur l'endommagement d'un élastomère commercial. Décompression à 0.9 MPa/min à gauche, 9 MPa/min au centre, et 90 MPa/min à droite après saturation à 9 MPa d'hydrogène pendant une heure.

La figure 3 permet de visualiser l'apparition de cavités dans les échantillons lors de la décompression avec une densité de cavités qui augmente avec la vitesse de décompression. Cette figure permet aussi d'observer le développement des cavités qui s'opère à partir des premières cavités apparaissant dans l'échantillon et entraînant le développement de bulles satellites ce qui est en accord avec ce qui a déjà pu être observé [8].

3 Etude numérique

3.1 Description du modèle

Le modèle mis en place vise à décrire le comportement d'une cavité située dans un milieu hyperélastique infini soumis à un chargement couplant mécanique et diffusion pour simuler un essai expérimental de mise en pression avec saturation d'un échantillon puis décompression explosive. Pour cela un calcul bidimensionnel est mis en place en utilisant le code de calcul Abaqus®. On réalise un calcul couplé température-déplacement simulant la concentration de gaz avec une température, les équations de la diffusion de masse et de chaleur étant similaires. On considère une cavité sphérique située au centre d'une sphère ayant un comportement hyperélastique. Le comportement du matériau est implémenté en utilisant la subroutine UHYPER et en utilisant une densité d'énergie de déformation de type Mooney-Rivlin comme indiqué dans l'équation 2 avec C_{ij} et D_1 des constantes dépendant du matériau, I_1 , I_2 , et J , les trois invariants du tenseur des déformations.

$$w = C_{10}(I_1 - 3) + C_{01}(I_2 - 3) + C_{20}(I_1 - 3)^2 + \frac{1}{D_1}(I_3 - 1)^2 \quad (2)$$

La subroutine UMATHT est utilisée pour définir la diffusion de gaz dans le matériau qui se fait avec un flux de matière suivant chaque axe i fonction d'un coefficient de diffusion et du gradient de concentration à l'endroit considéré (équation 3).

$$flux(i) = -\alpha \left(\frac{\partial C}{\partial x_i} \right) \quad (3)$$

Un flux est aussi défini avec la subroutine dflux pour gérer les échanges de matière entre le matériau et la cavité dans laquelle on considère que le gaz suit la loi des gaz parfait (équation 4). Ce flux est fonction de la différence de pression entre la cavité et la matière, ces pressions étant calculées en utilisant la loi des gaz parfait dans la cavité et en utilisant la loi de Henry dans l'élastomère (équation 5).

$$flux = \beta(\Delta P) \quad (4)$$

$$Pression = \frac{Concentration}{solubilité} \quad (5)$$

La pression dans la cavité est aussi utilisée pour imposer un chargement mécanique de pression au modèle sur la cavité. De même, un chargement mécanique de pression est imposé à l'extérieur de la sphère étudiée en même temps qu'un chargement thermique, les deux étant liés par la loi de Henry (équation 4).

3.2 Premiers résultats

Des premiers calculs ont été réalisés pour modéliser la réponse de la cavité à une mise sous pression de gaz suivie d'un temps de saturation puis d'une phase de décompression.

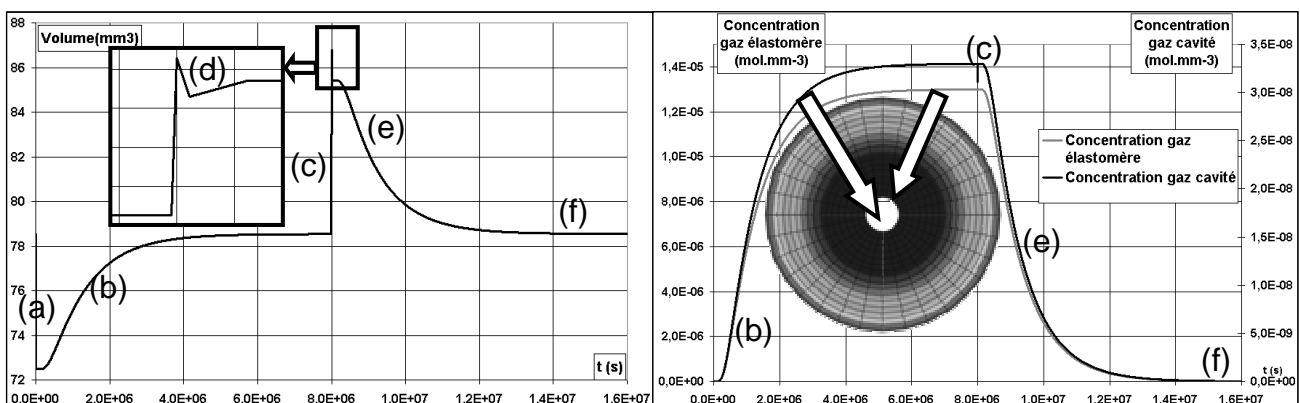


FIG. 4 - Suivi des dimensions de la cavité (à gauche) ainsi que de la concentration en gaz dans la cavité et dans l'élastomère (à droite) au cours du temps.

La figure 4 montre une phase de diminution de la taille de cavité lors de la mise sous pression mécanique (figure 4a) suivie d'une phase de remplissage progressif de la cavité (figure 4b). La phase de décompression se décompose en une phase de gonflement rapide de la cavité lors de la suppression de la pression mécanique à l'extérieur de la sphère (figure 4c), puis d'une phase de remplissage de la cavité dont la concentration en gaz a diminuée de part son augmentation rapide de taille (figure 4d). Ensuite, la cavité se vide de son gaz (figure 4e) pour revenir à l'état initial (figure 4f).

Le modèle proposé ne permet pas de conduire à un développement catastrophique de la cavité qui pourrait provenir d'une instabilité engendrée par les paramètres matériaux ou le couplage entre la mécanique et la diffusion. L'ajout d'un critère de rupture est donc nécessaire pour l'apparition de macro bulles à partir de cavités préexistantes.

4 Conclusion

Des essais expérimentaux sont en cours de réalisation pour comprendre les phénomènes d'endommagement se produisant lors de la décompression rapide d'élastomères soumis à de fortes pressions de gaz (hydrogène, dioxyde de carbone). Ces essais ont pour but de mettre au point un critère d'endommagement permettant de prédire le comportement d'élastomères lors de décompressions explosives. Pour aider à la compréhension des phénomènes observés expérimentalement, un modèle numérique visant à décrire le comportement d'une cavité située dans un milieu infini est mis en place en utilisant le code de calcul par éléments finis Abaqus®.

References

- [1] Viswanadham R.k., Green J.A.S., Montague W.G., Hydrogen embrittlement of an Fe-based amorphous metal, *Scripta Metallurgica* 10, 3, 229-230, 1976.
- [2] Gent A.N., Lindley P.B., Internal rupture of bonded rubber cylinders in tension, *Proceedings Of The Royal Society Of London Series A-Mathematical And Physical Sciences* 249, 1257, 195-205, 1959.
- [3] Dollhofer J., Chiche A., Muralidharan V., Creton C., Hui C.Y., Surface energy effects for cavity growth and nucleation in an incompressible neo-Hookean material - modeling and experiment, *Int. J. of Solids and Structures* 41, 22-23, 6111-6127, 2004.
- [4] Gent A.N., Tompkins D.A., Surface energy effects for small holes or particles in Elastomers, *J. Polym. Sci. Part A2* 7, 1483-1488, 1969.
- [5] Ball J.M. Discontinuous equilibrium solutions and cavitation in nonlinear elasticity, *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A* 306, 557-611, 1982.
- [6] Gent A.N., Elastic instabilities in rubber, *Int. J. of Non-Linear Mechanics* 40, 165-175, 2005.
- [7] Bucknall C.B., New criterion for craze initiation, *Polymer* 48, 1030-1041, 2007.
- [8] Gent A.N., Tompkins D.A., nucleation and growth of gas bubbles in Elastomers, *J. Of Applied Physics* 40, 2520-5, 1969.
- [9] Briscoe B.J., Liatsis D., Internal crack symmetry phenomena during gas-induced rupture of Elastomers, *Rubber Chemistry And Technology* 65, 350-73, 1992.
- [10] Briscoe B.J., Savvas T., Kelly C.T., Explosive decompression failure of rubber: a review of the origins of pneumatic stress induced rupture in elastomer, *Rubber Chemistry And Technology* 67, 384-416, 1994.
- [11] Stevenson A., Morgan G., Fracture of Elastomers by gas decompression, *Rubber Chemistry And Technology* 68, 197-211, 1995.
- [12] Embury P., high pressure gas testing of elastomer seals and a practical approach to designing for explosive decompression service, *Sealing Technology*, 6-11, 2004.
- [13] Li J., Mayau D., Song F., A constitutive model for cavitation and cavity growth in rubber-like materials under arbitrary triaxial loading, *Int. J. of Solids and Structures* 44, 6080-6100, 2007.
- [14] Yamabe J., Nishimura S., Influence of fillers on hydrogen penetration properties and blister fracture of rubber composites for O-ring exposed to high-pressure hydrogen gas, *Int. J. Of Hydrogen Energy* 34, 4, 1977-1989, 2009.
- [15] Crank J., *The mathematics of diffusion*, Clarendon, Oxford