



Université
de Toulouse

THÈSE

**En vue de l'obtention du
DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE**

Délivré par :

Institut National Polytechnique de Toulouse (INP Toulouse)

Discipline ou spécialité :

Génie Mécanique, Mécanique des Matériaux

Présentée et soutenue par :

Benjamin BONIFACE

le : 9 décembre 2010

Titre :

Modélisation thermo-mécanique et fiabilité des échangeurs réacteurs en
carbure de silicium

JURY

M. BERGHEAU Jean-Michel, Professeur des Universités, ENI Saint-Étienne
M. CHATEAUNEUF Alaa, Professeur des Universités, Polytech' Clermont-Ferrant
M. PENDOLA Maurice, Ingénieur en mécanique, Phimeca SA
M. CHEREAU Patrick, Ingénieur R&D, Boostec SA
M. CAPERAA Serge, Professeur des Universités, ENIT
M. DALVERNY Olivier, Maître de Conférences, ENIT

Ecole doctorale :

Mécanique, Energétique, Génie civil et Procédés (MEGeP)

Unité de recherche :

Laboratoire de Génie de Production, ENI de Tarbes

Directeur(s) de Thèse :

M. CAPERAA Serge

Rapporteurs :

M. BERGHEAU Jean-Michel
M. CHATEAUNEUF Alaa

Remerciements

Ce travail de thèse a été réalisé dans le cadre d'un financement CIFRE au sein de l'équipe R&D de l'entreprise Boostec SA et de l'équipe Mécanique des Matériaux, des Structures et des Procédés (M2SP) du Laboratoire Génie de Production (LGP) de l'Ecole Nationale d'Ingénieurs de Tarbes (ENIT). Je remercie Pierre DENY et Jérôme LAVENAC, directeurs successifs de Boostec SA, et Serge CAPERAA, mon directeur de thèse, pour m'avoir accueilli au sein de leur structure et équipe, et de m'avoir fait confiance pour mener à bien ces travaux.

Je tiens à remercier l'ensemble des membres de mon jury pour l'intérêt qu'ils portent à mon travail. Un grand merci à Alla CHATEAUNEUF (Professeur des Universités, Polytech' Clermont-Ferrand) et Jean-Michel BERGHEAU (Professeur des Universités, École Nationale d'Ingénieurs de Saint-Étienne) d'avoir accepté de rapporter mon mémoire de thèse, ainsi que Maurice PENDOLA (PDG, Phimeca SA) d'avoir accepté d'être membre du jury.

Un grand merci à Marc FERRATO et Patrick CHÉREAU, encadrants Boostec, ainsi que Serge CAPERAA et Olivier DALVERNY, encadrants ENIT, pour leur grande disponibilité, leur écoute, leur confiance et l'autonomie qu'il m'ont donné pendant ces trois années.

Je souhaiterais remercier l'ensemble des personnes de l'ENIT et du laboratoire LGP qui ont participé de près ou de loin à ce travail de thèse.

Un clin d'oeil aux « anciens » (Valou, Marina, Roberta, Zalux, Toufic, Frédéric, Ben, Polo) et aux « jeunes » (Vincent, Malik, Andrei, Arnaud, Adrien, Christian, Éric, Élodie... enfin tous quoi...) pour les frags, les matchs de foot, les soirées, les pauses cafés et parfois... les discussions constructives.

Une grande reconnaissance à ma famille et en particulier mes parents pour leur soutien sans faille dans tous les domaines.

Enfin, une pensée particulière pour Céline, ma demoiselle, et Maël, ma popiet', pour les concessions faites, le soutien et les grands moments de bonheur apportés durant cette thèse.

Table des matières

Introduction	17
1 L'intensification des procédés grâce aux échangeurs réacteurs	21
1.1 Les procédés de synthèse chimique : innovation au service de la productivité et de la sécurité	24
1.1.1 Les procédés de production classiques : réacteurs discontinus ou semi-continus	24
1.1.2 Les procédés innovants : réacteurs continus et intensifiés (ERI) . . .	28
1.1.3 L'industrie et les procédés continus intensifiés	34
1.1.4 Cinétique chimique : définition et modélisation	36
1.2 Des échangeurs classiques à l'Échangeur Réacteur Intensifié	38
1.2.1 L'ERI à plaques de référence : l'« Open Plate Reactor »	38
1.2.2 L'échangeur réacteur de première génération	39
1.2.3 L'ERI de dernière génération	42
1.3 Le carbure de silicium pour les ERI	45
1.3.1 Le carbure de silicium : une céramique technique thermo-mécanique	45
1.3.2 Propriétés chimiques, thermiques et mécaniques du SiC	49
1.3.3 Traitement statistique de la rupture	51
1.4 Bilan et objectifs de l'étude	54
2 Modélisation thermo-chimique et thermo-mécanique de l'échangeur réacteur	55
2.1 Modélisation thermo-chimique	60

2.1.1	Enjeux et nécessité d'un code de calcul spécifique	60
2.1.2	Le code de calcul ModER	65
2.1.3	Validation et mise en oeuvre du code de calcul ModER	72
2.1.4	Conclusion sur ModER	82
2.2	Modélisation thermo-mécanique	82
2.2.1	Enjeux et objectifs de la modélisation thermo-mécanique de l'ERI .	82
2.2.2	Description du modèle éléments finis	83
2.2.3	Probabilité de rupture et post-traitement	88
2.2.4	Détermination des efforts de serrage	92
2.2.5	Couplage thermo-mécanique lors du fonctionnement	95
2.2.6	Conclusion sur la modélisation thermo-mécanique	98
2.3	Conclusion	98
3	Méthodes fiabilistes pour l'étude l'échangeur réacteur	101
3.1	Concepts de bases de la fiabilité des structures	106
3.1.1	Introduction à la conception fiabiliste	106
3.1.2	Le concept de l'espace standard	111
3.1.3	Recherche du point de conception	115
3.1.4	Résolution du problème fiabiliste	118
3.1.5	Optimisation fiabiliste grâce aux facteurs d'importance	122
3.2	La fiabilité en mécanique des structures	124
3.2.1	Enjeux du couplage mécano-fiabiliste	124
3.2.2	Les méthodes par simulation	125
3.2.3	Substitution par méta-modèle	130
3.3	Conclusion	140
4	Étude de fiabilité de l'échangeur réacteur	143
4.1	Outils numériques pour le calcul mécano-fiabiliste	147
4.1.1	Revue des codes de calculs fiabilistes	147

4.1.2	Implémentation du krigeage	148
4.1.3	Implémentation de la méthode AK-MCS	153
4.2	Fiabilité thermo-chimique	155
4.2.1	Définition des modes de défaillances et fonctions d'état limite . . .	156
4.2.2	Étude de sensibilité aux paramètres de la fonction de performance .	157
4.2.3	Choix des variables aléatoires pour l'étude fiabiliste	159
4.2.4	Résolution directe par méthode FORM	160
4.2.5	Résolution indirecte par SRQ et Monte Carlo	163
4.2.6	Résolution indirecte par méthode AK-MCS	164
4.2.7	Analyse et conclusion	168
4.3	Fiabilité mécanique	168
4.3.1	Définition des modes de défaillances et fonctions d'état limite . . .	169
4.3.2	Étude de sensibilité aux paramètres de la fonction de performance .	170
4.3.3	Choix des variables aléatoires pour l'étude fiabiliste	171
4.3.4	Résolution directe par méthode FORM	172
4.3.5	Résolution indirecte par SRQ et Monte Carlo	173
4.3.6	Résolution indirecte par méthode AK-MCS	175
4.3.7	Analyse et conclusion	176
4.4	Conclusion	177
	Conclusion générale	179

Table des figures

1.1	Principe de fonctionnement du procédé discontinu ou batch [Trambouze 03]	24
1.2	Illustration des réacteurs batchs à refroidissement interne par serpentins (a) et externe par échangeur thermique (b) [Trambouze 03]	26
1.3	Principe de fonctionnement d'un réacteur tubulaire [Trambouze 03]	29
1.4	Schématisation d'un échangeur réacteur à plaque	30
1.5	Organisation du projet INPAC	35
1.6	Schéma énergétique réactionnel	37
1.7	Schéma de principe de l'OPR	39
1.8	Exemple d'insert PEEK de la plaque réactionnelle de l'OPR	40
1.9	Schéma de fonctionnement (a) et photo de mise en oeuvre (b) de l'ERI_v1 de Boostec	40
1.10	Schéma d'une plaque procédé de l'ERI_v1	41
1.11	Assemblage par brasage de la plaque procédé de l'ERI_v2	43
1.12	Description de la plaque utilité	44
1.13	Schéma (a) et photo (b) de l'ERI_v2 complet	45
1.14	Lot de SiC cru après compactage	47
1.15	Découpe (a) et post-usinage (b) d'une plaque procédé en cru	47
1.16	Étapes constituant le frittage	48
2.1	Schématisation des différents transferts thermiques dans un ERI	61
2.2	Équilibre thermique du fluide procédé et paramétrage du canal	62
2.3	Échangeur de chaleur à fines plaques aluminium brasées [Sargousse 99]	63

2.4	Principe de zonage pour le calcul thermo-chimique dans l'OPR [Elgue 04] .	64
2.5	Algorithme principal de ModER	66
2.6	Discrétisation du canal pour l'intégration par différences finies du problème thermo-chimique	68
2.7	Surfaces d'application des conditions limites de convection d'une plaque de l'ERI	70
2.8	Courbes d'évolution de la température (a) et des écarts numérique/analytique (b) le long du canal pour plusieurs discrétisations (cas 1)	73
2.9	Courbe d'évolution de l'estimateur des moindres carrés avec la discrétisation (cas 1)	74
2.10	Courbes d'évolution de la température (a) et des écarts numérique/analytique (b) le long du canal pour plusieurs discrétisations (cas 2)	75
2.11	Courbe d'évolution de l'estimateur des moindres carrés avec la discrétisation (cas 2)	76
2.12	L'ERI mono-plaque sur le banc d'essai thermique	77
2.13	Position des thermocouples dans la plaque procédé	78
2.14	Évolution de l'estimateur de convergence avec les itérations	79
2.15	Comparaison des résultats numériques et expérimentaux pour les configurations 1 (a) et 2 (b)	79
2.16	Évolution de l'estimateur de convergence pour l'exemple thermo-chimique .	80
2.17	Évolution de la température (a) et de la densité du flux (b) le long du canal à l'état d'équilibre	80
2.18	Évolution de la vitesse réactionnelle (a) et des débits massiques (b) le long du canal à l'état d'équilibre	81
2.19	Maillage des plaques procédé (a), utilité (b) et de fermeture (c) du modèle éléments finis	84
2.20	Positionnement des joints sur la plaque utilité	85
2.21	Exemple d'effet de Mullins observé sur un élastomère silicone [Meunier 07]	86
2.22	Exemple de mise en oeuvre des éléments de joints	87
2.23	Courbes d'évolution de la force en fonction de l'écrasement pour des essais de compression sur joints toriques	88

2.24	Noeuds de référence pour l'application des efforts de serrage	89
2.25	Modèle thermo-mécanique éléments finis complet de l'ERI	89
2.26	Schéma d'essai de rupture équibiaxial selon l'ASTM [ASTM 04]	90
2.27	Points expérimentaux et régression linéaire pour l'identification des paramètres de la loi de Weibull	91
2.28	Numérotation des boulons de serrage d'un empilement	92
2.29	Répartition de la pression de contact sur la plaque procédé (<i>MPa</i>)	93
2.30	Pression de contact sur la plaque procédé (<i>MPa</i>)	94
2.31	Contraintes maximales principales sur la plaque procédé (<i>MPa</i>)	95
2.32	Champ de température appliqué à la plaque procédé (<i>°C</i>)	96
2.33	Contraintes principales maximales dans la plaque procédé soumise à un chargement thermique (<i>MPa</i>)	96
2.34	Pression de contact sur la plaque procédé (<i>MPa</i>)	97
2.35	Contraintes minimales principale dans la plaque procédé (<i>MPa</i>)	97
2.36	Architecture numérique de l'ensemble des modèles thermo-chimique et thermo- mécanique de l'ERI	99
3.1	Exemple de domaine de sûreté et de défaillance pour deux variables aléa- toires $X = \{X_1, X_2\}$	109
3.2	Représentation de l'indice de fiabilité de Rjanitzyne-Cornell	110
3.3	Représentation du principe de transformation isoprobabiliste	111
3.4	Illustration de la transformation isoprobabiliste et de la définition de l'indice de fiabilité d'Hasofer-Lind	115
3.5	Illustration de la méthode de simulation de Monté Carlo dans l'espace standard	119
3.6	Illustration des approximations FORM (a) et SORM (b)	121
3.7	Principe du couplage mécano-fiabiliste [Micol 07]	125
3.8	Illustration de la méthode de tirages d'importance centrée au point de conception	127
3.9	Illustration de la méthode de simulation par conditionnement selon une hypersphère de rayon β	128

3.10	Illustration d'interpolation par krigeage avec intervalle de confiance sur une fonction $y = f(x)$ quelconque	137
3.11	Algorithme de résolution par la méthode AK-MCS	140
4.1	Représentation du processus d'analyse variographique	150
4.2	Représentation du processus d'interpolation par krigeage développé	151
4.3	Illustration d'un exemple d'identification du semi-variogramme	152
4.4	Illustration d'un exemple d'interpolation par krigeage	152
4.5	Illustration des résultats obtenus avec l'AK-MCS sur une fonction de performance explicite	155
4.6	Élasticités des paramètres des fonctions de performance $G_1(a)$ et $G_2(b)$ autour du point moyen de fonctionnement	158
4.7	Facteurs d'importance des variables pour les fonctions $G_1(a)$ et $G_2(b)$	161
4.8	Élasticités de l'indice de fiabilité par rapport aux moyennes des variables pour les fonctions $G_1(a)$ et $G_2(b)$	162
4.9	Élasticités de l'indice de fiabilité aux écart-types des variables pour les fonctions $G_1(a)$ et $G_2(b)$	162
4.10	Estimation par krigeage d'une population de Monte Carlo dans l'espace standard et selon différents plans du système pour la fonction G_1	165
4.11	Estimation par krigeage d'une population de Monte Carlo dans l'espace standard et selon différents plans du système pour la fonction G_2	166
4.12	Élasticités de l'indice de fiabilité par rapport aux moyennes des variables pour les fonctions $G_1(a)$ et $G_2(b)$	167
4.13	Élasticités de l'indice de fiabilité aux écart-types des variables pour les fonctions $G_1(a)$ et $G_2(b)$	167
4.14	Élasticités de la fonction de performance G_3 par rapport aux paramètres du modèle	171
4.15	Facteurs d'importance des variables pour la fonction de performance G_3	173
4.16	Élasticités de l'indice de fiabilité aux moyennes (a) et écart-types (b) des variables pour la fonction de performance G_3	174
4.17	Représentation de la population de Monte Carlo de la méthode AK-MCS dans l'espace standard pour la fonction G_3	175

4.18 Évolution de l'estimateur de défaillance au cours des itérations de l'AK-MCS pour la fonction G_3	176
--	-----

Liste des tableaux

1.1	Comparaison des performances pour différents types d'échangeurs [Trambouze 03]	31
1.2	Coefficients de dilatation thermique du SiC en fonction de la température .	50
1.3	Capacité calorifique massique du SiC en fonction de la température	50
2.1	Débits d'entrée et de sortie des différents éléments	81
2.2	Répartition de l'effort global de serrage par boulon	93
4.1	Sensibilités des fonctions de performances thermo-chimiques autour du point moyen de fonctionnement	158
4.2	Paramètres des distributions normales des variables aléatoires du modèle thermo-chimique (débits en $kg.h^{-1}$ et températures en $^{\circ}C$)	160
4.3	Coordonnées du point de conception pour la fonction de performance G_1 .	160
4.4	Coordonnées du point de conception pour la fonction de performance G_2 .	160
4.5	Indice de fiabilité et probabilité de défaillance pour les fonctions d'état G_1 et G_2	161
4.6	Coordonnées du point de conception pour les fonctions de performance G_1 et G_2	163
4.7	Probabilités de défaillance estimées par simulations de Monte Carlo sur les SRQ centrées au point P^* pour les fonctions d'état G_1 et G_2	164
4.8	Estimation de la probabilité de défaillance par la méthode AK-MCS pour les fonctions G_1 et G_2	164
4.9	Comparaison des points de conceptions trouvés par FORM et AK-MCS pour les fonctions G_1 et G_2	165
4.10	Points de conception identifiés sur les surfaces de réponse par krigeage de l'AK-MCS pour les fonctions G_1 et G_2	166

4.11	Sensibilités et élasticités de la fonction de performance mécanique G_3 autour du point moyen de fonctionnement	170
4.12	Coordonnées du point de calcul dans des conditions défavorables de 20 % .	171
4.13	Paramètres des distributions normales des variables aléatoires de la fonction G_3	172
4.14	Coordonnées du point de conception pour la fonction de performance G_3 .	173
4.15	Indice de fiabilité et probabilité de défaillance pour la fonction d'état G_3 .	173
4.16	Sensibilités de l'indice de fiabilité aux paramètres des variables pour la fonction de performance G_3	174
4.17	Coordonnées du point de conception pour la fonction de performance G_3 .	174
4.18	Estimation de la probabilité de défaillance par Monte Carlo sur SRQ pour la fonction G_3	175
4.19	Estimation de la probabilité de défaillance par la méthode AK-MCS pour la fonction G_3	175

Introduction

Dans le secteur industriel de la chimie, et en particulier celui de la chimie fine, le concept d'intensification des procédés est apparu au milieu des années 80. L'idée principale est de réduire le volume des installations tout en assurant une production au moins égale à celle des procédés classiques. Depuis une vingtaine d'années, de nouveaux procédés font leur apparition dans les laboratoires. Aujourd'hui, certains d'entre eux sont en phase d'industrialisation, étape nécessitant une adaptation aux nouvelles contraintes imposées par le monde de l'industrie, comme des volumes de production plus importants et un niveau de sécurité élevé.

Plusieurs axes de développement ont été abordés pour intensifier les procédés, mais le passage d'un procédé discontinu à un procédé continu ainsi que l'augmentation de l'efficacité thermique semblent être des points communs à toutes les propositions. En fait, cette efficacité thermique permet de contrôler la température de réaction et ainsi de limiter le risque d'emballement thermique, point critique de la sécurité de ce type de procédé. Elle permet aussi d'augmenter significativement la concentration des réactifs, ce qui accélère la réaction et diminue le volume réactionnel et, par conséquent, celui de l'installation.

Parmi les outils proposés pour intensifier les procédés de fabrication, les équipements se sont naturellement tournés vers les échangeurs de chaleur classiques, bien connus du monde industriel, pour les adapter aux contraintes du secteur de la chimie. Ainsi, l'entreprise Boostec SA développe un échangeur réacteur intensifié (ERI) inspiré des échangeurs de chaleur à plaques. Il est composé de plusieurs plaques empilées, parcourues par le fluide réactionnel d'une part, et le fluide caloporteur d'autre part. L'intérêt principal de cet échangeur est l'utilisation du carbure de silicium comme matériau majeur, dont les propriétés thermiques et chimiques le rendent plus intéressant que les métaux ou verres habituellement utilisés.

La mise en oeuvre de l'ERI de première génération a permis de mettre en avant deux principales limites de ce réacteur. La première est la rupture d'une des plaques en carbure de silicium lors du montage et du serrage, due à la fragilité de ce matériau. La seconde est

l'apparition de fuites lors de la mise en pression du système. L'une comme l'autre n'est pas acceptable puisque les produits utilisés sont très concentrés et souvent hautement nocifs pour les personnes et l'environnement. La nouvelle génération d'ERI, objet de ces travaux, doit être optimisée pour garantir un niveau de fiabilité satisfaisant par rapport à ces événements.

Afin d'optimiser la conception de l'ERI nouvelle génération, il est intéressant d'utiliser des outils numériques permettant de simuler le comportement du système. Dans cette optique, deux objectifs principaux ont été définis :

- développer un modèle thermo-mécanique permettant de simuler le comportement de l'ensemble de l'ERI, afin d'optimiser les paramètres de conception et de mise en oeuvre pour garantir la réalisation de synthèses chimiques en toute sécurité.
- utiliser le modèle thermo-mécanique développé dans une étude de fiabilité, afin d'estimer la probabilité de défaillance du système et d'orienter les décisions pour une optimisation fiabiliste globale.

La démarche suivie pour atteindre ces objectifs est décrite dans les quatre chapitres de cet ouvrage :

- *chapitre 1 : L'intensification des procédés grâce aux échangeurs réacteurs*

Ce premier chapitre bibliographique expose en détail le contexte et les enjeux actuels de l'industrie de la chimie fine, définissant les origines et avancées dans le domaine de l'intensification des procédés. L'objectif est de mettre en avant les enjeux sécuritaires présents autour des nouveaux procédés et réacteurs utilisés, démontrant ainsi la nécessité et l'importance des travaux menés sur l'échangeur réacteur intensifié. Les bases du calcul des cinétiques chimiques y seront aussi décrites.

La suite concerne la description des ERI de Boostec, avec comme base de comparaison un échangeur réacteur de référence, l'« Open Plate Reactor ». Ce descriptif revient en détail sur les limites de la première version, mais aussi sur ses hautes performances thermiques justifiant le développement d'une nouvelle version conservant les bonnes propriétés de la première.

Enfin la dernière partie du chapitre s'attarde sur le matériau central de l'étude, le carbure de silicium. Ses origines et son procédé de fabrication sont décrits ainsi que ses propriétés mécaniques, thermiques et chimiques, pour finir par l'approche statistique de la rupture

associée à ce matériau.

– *chapitre 2 : Modélisation thermo-chimique et thermo-mécanique de l'échangeur réacteur*

Un premier objectif étant de réaliser une modélisation thermo-mécanique de l'ERI, il est impératif d'avoir une répartition des températures dans les plaques comme condition limite du problème. Or, le comportement thermique des plaques dépend de la réaction chimique et des conditions de mise en oeuvre. Il est donc nécessaire de réaliser un calcul thermo-chimique préalable au calcul thermo-mécanique. Comme aucune solution numérique satisfaisante n'est disponible, un code spécifique, nommé ModER, a été développé dans le but de modéliser le comportement thermo-chimique du système. La première partie de ce chapitre expose le développement et la validation ce code. La mise en oeuvre expérimentale de l'ERI en comportement échangeur pur a permis la validation du code. Enfin une réaction d'oxydo-réduction exothermique a été modélisée et les résultats utilisés pour la modélisation thermo-mécanique.

La seconde partie de ce chapitre concerne le développement du modèle thermo-mécanique de l'échangeur réacteur, dont l'objectif est de déterminer les zones et niveaux de contraintes et déplacements des plaques constitutives en général, et des plaques en carbure de silicium en particulier, pour déterminer les risques de rupture ou de fuites. Les différents modèles permettent de déterminer les efforts de serrage optimaux de chaque boulon nécessaires pour éviter les fuites de fluide tout en garantissant l'intégrité physique des plaques.

– *chapitre 3 : Méthodes fiabilistes pour l'étude de l'échangeur réacteur*

Ce chapitre a pour objectif de mettre en place une démarche d'analyse pour l'étude fiabiliste de l'ERI. Dans un premier temps nous exposons les bases d'une étude fiabiliste, définissant les concepts d'espace standard, de point de conception et d'indice de fiabilité. Les principaux algorithmes et approches de résolutions y sont décrits.

Dans un second temps, nous exposons les particularités et enjeux du couplage mécano-fiabiliste, ainsi que les différentes solutions existantes pour résoudre. Une série d'algorithmes est sélectionnée afin de l'appliquer aux modèles thermo-chimique et thermo-mécanique de l'ERI. Elle se compose d'une approximation de premier ordre (FORM), d'une estimation par simulations de Monte Carlo sur une surface de réponse quadratique (SRQ-MC) et d'une méthode inovente, l'« Active learning combining Krigin and Monte Carlo Simulations » (AK-MCS).

– *chapitre 4 : Méthodes fiabilistes pour l'étude l'échangeur réacteur*

L'objectif de ce dernier chapitre est d'exposer l'analyse fiabiliste de l'échangeur réacteur réalisée pour plusieurs modes de défaillance. Les trois méthodes fiabilistes précédemment sélectionnées sont appliquées pour résoudre chacun des problèmes : approximation par FORM, simulation de Monte Carlo sur surface de réponse quadratique optimisée (SRQ-MC), et l'AK-MCS. Cette dernière méthode a nécessité le développement d'un code spécifique réalisant une interpolation par krigeage et un enrichissement de plan d'expérience grâce à un critère de pertinence.

Finalement les probabilités de défaillance et indices de fiabilité sont calculés pour chaque fonction d'état limite. De plus, l'analyse des élasticités de l'indice de fiabilité par rapport aux paramètres des variables aléatoires permet de proposer une stratégie d'optimisation de la fiabilité du système.

Chapitre 1

L'intensification des procédés grâce aux échangeurs réacteurs

Sommaire

1.1 Les procédés de synthèse chimique : innovation au service de la productivité et de la sécurité	24
1.1.1 Les procédés de production classiques : réacteurs discontinus ou semi-continus	24
1.1.2 Les procédés innovants : réacteurs continus et intensifiés (ERI)	28
1.1.3 L'industrie et les procédés continus intensifiés	34
1.1.4 Cinétique chimique : définition et modélisation	36
1.2 Des échangeurs classiques à l'Échangeur Réacteur Intensifié	38
1.2.1 L'ERI à plaques de référence : l'« Open Plate Reactor »	38
1.2.2 L'échangeur réacteur de première génération	39
1.2.3 L'ERI de dernière génération	42
1.3 Le carbure de silicium pour les ERI	45
1.3.1 Le carbure de silicium : une céramique technique thermo-mécanique	45
1.3.2 Propriétés chimiques, thermiques et mécaniques du SiC	49
1.3.3 Traitement statistique de la rupture	51
1.4 Bilan et objectifs de l'étude	54

Table des notations

Par ordre d'apparition :

U	coefficient d'échange thermique global
h_{reac}	coefficient de convection du fluide réactif
e	épaisseur de la paroi
λ	coefficient de conduction thermique du matériau de la paroi
h_{calo}	coefficient de convection du fluide caloporteur
Ω	surface d'échange thermique
V_r	volume réactionnel
dV_r	variation de volume réactionnel
t	base de temps
dt	variation de temps
ζ_i	coefficient stoechiométrique associé à l'élément i
ξ	avancement de la réaction
$d\xi$	variation d'avancement de réaction
r	vitesse réactionnelle instantanée
T	température du fluide
C_i	concentration de l'élément i
α_i	ordre partiel de l'élément i
k_0	facteur pré-exponentiel
E_a	énergie d'activation
R	constante universelle des gaz parfaits
ΔH_r	enthalpie réactionnelle
dH	exothermie
K_{IC}	ténacité du matériau
σ	contrainte mécanique
$\Phi(\sigma)$	fonction densité d'activation des défauts sous le chargement σ
V_m	volume de matériau
dV_m	volume unitaire de matériau
k	nombre de défauts dans le matériau

$P_k(V_m)$	probabilité d'activer k défauts dans un volume V_m
ω	module de Weibull
V_0	volume caractéristique
σ_0	contrainte caractéristique
σ_u	contrainte ultime ou seuil
$P_r(V_m, \sigma)$	probabilité de rupture d'un volume V_m sous un chargement σ
σ_{max}	contrainte maximale constatée
V_{eff}	volume effectif
η	résistance caractéristique
$\bar{\sigma}_r$	contrainte moyenne à la rupture
$\Gamma(.)$	fonction Gamma d'Euler

Dans ce chapitre bibliographique, nous décrirons dans un premier temps le contexte de l'étude et l'évolution actuelle des procédés chimiques vers les procédés intensifiés. Dans un deuxième temps, nous présenterons les deux versions d'échangeur réacteur conçues par la société Boostec, ainsi que leurs avantages et leurs limites. Dans un troisième temps, nous présenterons le matériau « carbure de silicium », avec ses intérêts et ses limites pour cette application. Nous évoquerons notamment son comportement thermique et mécanique, et chimique. Enfin nous conclurons sur les objectifs de ces travaux.

1.1 Les procédés de synthèse chimique : innovation au service de la productivité et de la sécurité

1.1.1 Les procédés de production classiques : réacteurs discontinus ou semi-continus

Les réacteurs discontinus (ou batch) sont les plus anciens, les plus simples à mettre en oeuvre et, par conséquent, les plus utilisés aujourd'hui dans l'industrie chimique. Le principe consiste à mélanger les réactifs et solvants dans une cuve (réacteur), de porter l'ensemble aux conditions opératoires adéquates et de laisser réagir le temps nécessaire à l'obtention du taux de conversion voulu (figure 1.1). Les étapes du procédé peuvent donc se décrire ainsi :

1. chargement des réactifs et solvants dans le réacteur,
2. mise en température et pression,
3. déroulement de la réaction,
4. remise en condition initiale de température et de pression,
5. vidange des produits.

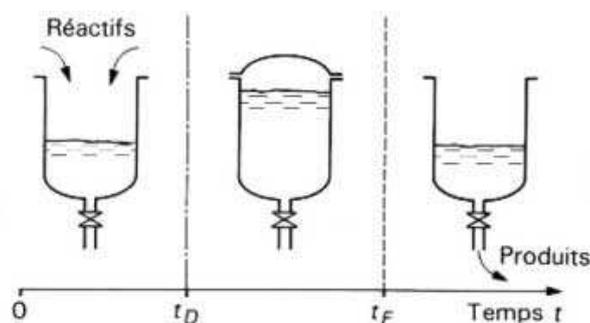


FIGURE 1.1 – Principe de fonctionnement du procédé discontinu ou batch [Trambouze 03]

Les étapes 1 et 5, purement mécaniques, sont indépendantes des autres et, par conséquent, peuvent être optimisées facilement. Les étapes 2, 3 et 4, quant à elles, sont souvent partiellement confondues. C'est là qu'on identifie la première limitation de ce procédé : un facteur d'utilisation généralement faible, environ $\frac{1}{8}$. Le facteur d'utilisation est défini comme le rapport entre le temps effectif de réaction (production : étape 3) et le temps d'occupation total du réacteur (étapes 1 à 5).

Par contre, les avantages de ce procédé résident dans la simplicité de mise en oeuvre, la sobriété de ses appareillages et surtout dans sa polyvalence et sa flexibilité [Shelat 04]. En effet, ce procédé pouvant être appliqué à différentes réactions, il est possible d'utiliser un même dispositif pour deux synthèses différentes à condition d'insérer une étape de nettoyage. D'autre part, le temps de séjour, défini comme le temps passé par le mélange dans le réacteur, n'est pas contraint. Il est donc adaptable à différentes réactions. C'est sans doute pour cela que depuis longtemps, et encore aujourd'hui, le procédé discontinu est à l'origine de 50% de la production chimique mondiale [Stitt 02, Phillips 97].

1.1.1.1 Échanges thermiques

Les échanges thermiques sont un point clé des performances d'un réacteur en général, et des réacteurs discontinus en particulier. Ce sont eux qui permettent l'obtention et le maintien de la température nécessaire au déroulement efficace et sécurisé de la réaction.

Le coefficient d'échange thermique global U , exprimé en $W.m^{-2}.K^{-1}$, associé au rapport de la surface d'échange et du volume réactionnel $\frac{\Omega}{V_r}$ en $m^2.m^{-3}$, détermine l'efficacité thermique du réacteur. L'objectif est de maximiser U en minimisant $\frac{\Omega}{V_r}$ dans le but de diminuer le temps des étapes 2 et 4, mais aussi de garantir le maintien de la température cible des réactifs au cours de réactions exo/endothermiques. Le coefficient U s'exprime selon l'équation 1.1.

$$\frac{1}{U} = \frac{1}{h_{reac}} + \frac{e}{\lambda} + \frac{1}{h_{calo}} \quad (1.1)$$

Avec,

- h_{reac} : le coefficient de convection du fluide réactif en $W.m^{-2}.K^{-1}$
- e : l'épaisseur de la paroi en m
- λ : le coefficient de conduction du matériau de la paroi en $W.m^{-1}.K^{-1}$
- h_{calo} : le coefficient de convection du fluide caloporteur en $W.m^{-2}.K^{-1}$

Alors que les coefficients h_{calo} et $\frac{e}{\lambda}$ sont optimisés par conception et indépendants de la réaction, le coefficient h_{reac} est souvent le facteur limitant dans l'optimisation de l'échange

global. Il dépend des propriétés intrinsèques du fluide réactif (variable au cours de la réaction) et de son écoulement à proximité de la paroi d'échange.

D'une manière générale, l'optimisation de l'échange thermique se résume à l'optimisation de l'écoulement du fluide réactif et à l'augmentation de la surface d'échange, à volume constant. Il existe deux types de solution technique pour gérer la température du système : les systèmes internes et externes.

Parmi les systèmes internes, on trouve les réacteurs à double enveloppe. L'échange se fait via la paroi du réacteur dans laquelle s'écoule un fluide caloporteur. Cette solution permet d'atteindre un coefficient d'échange global maximal de $350 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ [Trambouze 03]. Le rapport $\frac{Q}{V_r}$ est quant-à lui limité par la géométrie du réacteur : de 4,6 à $1,4 \text{ m}^2.\text{m}^{-3}$ pour des réacteurs de 1 à 40 m^3 .

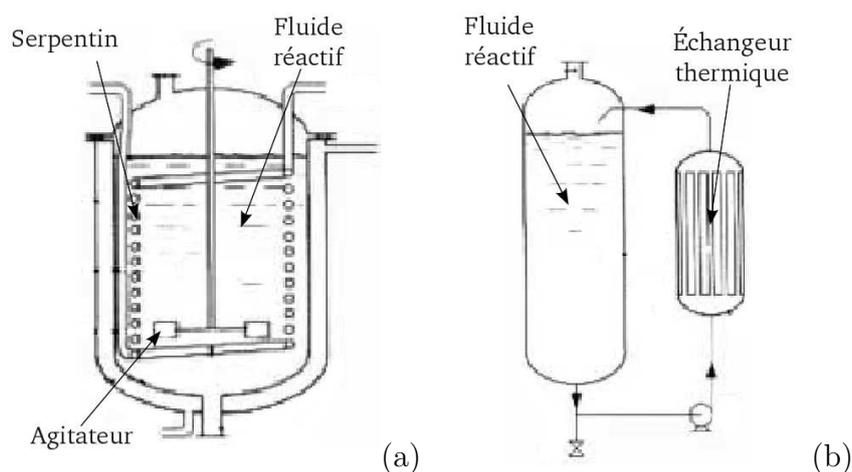


FIGURE 1.2 – Illustration des réacteurs batchs à refroidissement interne par serpentins (a) et externe par échangeur thermique (b) [Trambouze 03]

D'autres réacteurs comportent un serpentin, parcouru par le fluide caloporteur, directement plongé dans le fluide réactif (figure 1.2a). Ce système permet d'augmenter le coefficient global d'échange thermique jusqu'à $800 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$, mais la surface d'échange reste équivalente au système précédent, car elle est limitée par l'encombrement dû au système d'agitation.

Il est clair que l'échange thermique des systèmes internes est rapidement limité. Pour augmenter cette propriété, il est possible d'externaliser le système. Ainsi, la réaction chimique se déroule dans la cuve alors que le contrôle de la température est assuré par un échangeur thermique externe (figure 1.2b). Naturellement, la technologie utilisée dans ce module s'inspire des échangeurs thermiques classiques. Ce principe permet d'optimiser à la fois l'écoulement du fluide réactionnel, mais aussi les dimensions de la surface d'échange.

Grâce à ce principe, on atteint facilement des coefficients de transfert de $1000 W.m^{-2}.K^{-1}$ et un rapport de $10 m^2.m^{-3}$. Ce type d'installation permet de diminuer les temps de chauffe/refroidissement d'un cycle de synthèse chimique (étapes 2 et 4) d'un facteur 15 environ, parfois même plus.

1.1.1.2 Mélange

Le réacteur batch parfait suppose l'homogénéité des propriétés du fluide en tout point du volume et à tout instant de la réaction. Pour s'approcher de ces conditions, divers principes d'agitateur peuvent être mis en place. Néanmoins, il est difficile d'éviter la création de zone morte, de variation de température et de concentration de réactifs, d'autant plus que le problème s'accroît avec la taille des installations et le type de réacteur. Ainsi, même si un réacteur à module de refroidissement externe comporte une forte capacité d'échange thermique, la réaction se déroule séparément, et donc, la température et le transfert de matière ne peuvent être homogènes [Stitt 02].

L'autre rôle du mélangeur est, dans le cas des réacteurs à refroidissement interne, la création et le maintien d'un régime d'écoulement cohérent à proximité des surfaces d'échange thermique. C'est lui qui garantit un h_{reac} suffisant.

1.1.1.3 Sécurité et environnement

L'emballement thermique d'une réaction chimique est le risque majeur de toute installation [Laurent 03]. Le scénario est simple : un événement provoque un déséquilibre thermique du procédé, l'exothermie de la réaction devient supérieure à la capacité de refroidissement, ce qui accélère la réaction et augmente d'autant l'exothermie, et ainsi de suite jusqu'à consommation totale des réactifs [Eissen 03]. Le problème est que l'augmentation de température peut activer d'autres réactions elles aussi exothermiques, avec production de composés non contrôlés et dangereux, ou provoquer la décomposition des éléments. Ceci risque d'augmenter la pression du système et de provoquer une explosion. Les conséquences sont évidentes : pertes humaines, destruction d'installations industrielles et résidentielles, et pollution de l'environnement [Stoessel 93].

Dans le cas des procédés discontinus, l'événement critique peut être un défaut d'homogénéité de température ou de concentration, provoquant une augmentation locale de température, ou un défaut temporaire du système de refroidissement ou du mélangeur. Bien que tous les procédés chimiques soient sujets à l'emballement thermique, les gros volumes utilisés dans les procédés discontinus sont un facteur aggravant [Hendershot 00].

Pour pallier au risque d'emballement thermique, une première solution est la dilution des réactifs qui amène une baisse de la cinétique de réaction, augmentant par là-même la capacité thermique du système. Néanmoins, à quantité produite constante, le volume réactionnel augmente, et avec lui le facteur d'aggravation cité plus haut. Un autre inconvénient est l'ajout d'étapes de séparation des produits de la réaction en bout de chaîne.

Dans le cas de réactions très exothermiques, il est possible d'utiliser un procédé semi-continu dont le principe réside dans l'ajout progressif du second réactif tout au long de la réaction [Singh 93, Ubrich 99]. Si cette solution permet d'augmenter le contrôle de la réaction, elle garde les propriétés d'échange thermique et de mélange des procédés discontinus, et implique de nouvelles difficultés comme la sélectivité des réactions.

Face à l'augmentation de la demande de production chimique du marché économique et des contraintes sécuritaires et environnementales, les industriels se tournent aujourd'hui vers un nouveau mode de fonctionnement intégrant de nouveaux procédés continus intensifiés.

1.1.2 Les procédés innovants : réacteurs continus et intensifiés (ERI)

1.1.2.1 Réacteurs continus à écoulement piston

L'autre grande famille de réacteurs est celle des réacteurs continus. Le principe, comme son nom l'indique, est d'alimenter en permanence le réacteur en réactifs, alors que les produits sont évacués à la même vitesse. On a égalité entre le débit massique global d'entrée et de sortie.

Parmi ces réacteurs, on distingue deux cas : les réacteurs homogènes et les réacteurs à écoulement piston. Dans le cas des réacteurs homogènes, les propriétés du fluide (température, concentration, pression...) sont identiques en tous points, ce qui implique une agitation parfaite sur l'ensemble du volume. Les équipements utilisés pour la mise en oeuvre de ces réacteurs sont comparables à ceux des réacteurs discontinus. Par conséquent, les avantages et limitations sont identiques.

Les réacteurs continus à écoulement piston se différencient radicalement des procédés décrits jusqu'à présent. Le fluide réactif (ou fluide procédé) s'écoule dans un ou plusieurs canaux. La réaction a lieu le temps que le fluide parcourt toute la longueur du canal alors que les échanges thermiques sont assurés par l'écoulement du fluide caloporteur (ou fluide utilité) de l'autre côté de la paroi. L'écoulement piston correspond à l'hypothèse selon laquelle toutes les espèces avancent à la même vitesse le long du canal. Dans ce cas,

un volume dV_r parcourant le canal pendant un temps t se comporte exactement comme un volume dV_r parfaitement agité dans un réacteur discontinu pendant un temps t identique. L'intérêt pour le contrôle, la prédiction et la modélisation des réactions est évident, puisqu'il permet d'utiliser les connaissances et le savoir faire accumulé dans le cadre de l'étude des cinétiques des réacteurs discontinus. Cette hypothèse dépend principalement du type d'écoulement, et peut être vérifiée en mesurant la durée du temps de séjour (DTS) de différentes espèces chimiques dans le réacteur [Villermux 94].

L'exemple le plus intuitif de mise en oeuvre des procédés continus à écoulement piston est le réacteur tubulaire (figure 1.3). Il est composé d'un tube dans lequel circule le fluide procédé et d'une double enveloppe dans laquelle circule le fluide caloporteur. Ce réacteur, souvent utilisé en phase gazeuse, n'est pas le plus efficace en terme d'échange thermique mais représente un premier pas vers les procédés continus [Trambouze 03].

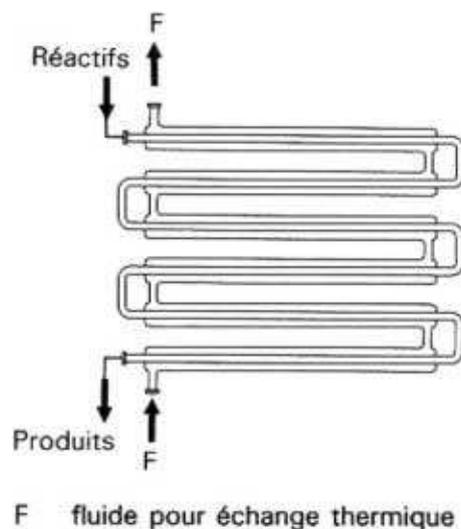


FIGURE 1.3 – Principe de fonctionnement d'un réacteur tubulaire [Trambouze 03]

Aux réacteurs continus tubulaires ont succédé les réacteurs compacts, qui ont ouvert de nouvelles perspectives en terme d'intensification des procédés. Les réacteurs basés sur les technologies d'échangeurs de chaleur, les échangeurs réacteurs, dont le concept part de la volonté d'augmenter significativement l'efficacité thermique en rapprochant au maximum la zone de réaction de la zone d'échange thermique [Anxionnaz 08, Ferrouillat 06]. Ainsi, comme illustré sur la figure 1.4, les Échangeurs Réacteurs Intensifiés (ERI) sont comparables aux échangeurs de chaleur à plaques, avec le fluide procédé circulant dans un ou plusieurs canaux à l'intérieur d'une plaque, et le fluide utilité dans une autre. Les plaques sont empilées de manière à ce qu'une plaque procédé soit encadrée par deux plaques utilité, le transfert de chaleur se faisant donc à travers la structure des plaques.

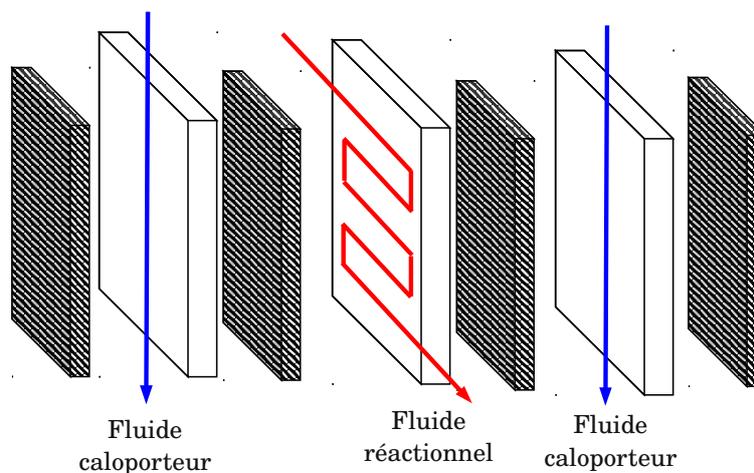


FIGURE 1.4 – Schématisation d'un échangeur réacteur à plaque

Enfin, les procédés continus à écoulement piston semblent proposer des possibilités intéressantes pour l'intensification des procédés. Pour cela ils font l'objet de cette étude, et le terme de « procédés continus » fera dorénavant référence aux « procédés continus à écoulement piston ».

1.1.2.2 Concept d'intensification des procédés de synthèse chimique

Le concept d'intensification des procédés de synthèse chimique est né du constat réalisé par Colin Ramshaw sur la taille et le coût toujours plus grands des installations industrielles. Il préconise donc le remplacement des unités de production par des appareils rotatifs plus compacts et plus simples à entretenir [Ramshaw 83]. Ces dispositifs exploitent l'effet de la force centrifuge pour optimiser le transfert de matière mais aussi pour la séparation de deux phases dans un système réactif. Ces appareils sont les premiers classés dans la catégorie des procédés intensifiés.

La première définition de l'intensification des procédés a été proposée en 1995 par Ramshaw comme étant « une stratégie d'action et de développement, dans le but de réduire de manière significative la taille d'un procédé tout en conservant la même capacité de production » [Ramshaw 95]. Intensifier un procédé de synthèse chimique correspond donc à réduire la taille d'une installation tout en optimisant le coût (énergie et maintenance), la productivité et la sécurité.

Deux stratégies d'intensification sont possibles. La première méthode consiste à réaliser plusieurs opérations dans une même unité et à réutiliser l'énergie de refroidissement en bout de ligne pour chauffer l'entrée. La seconde méthode consiste à développer des réacteurs ou autres équipements dédiés, comme les échangeurs réacteurs intensifiés. L'inten-

sification des procédés est un axe de recherche très actif dans le domaine de la chimie [Tsouris 03, Walpot 03].

L'intensification des échangeurs réacteurs se fait via trois propriétés : les échanges thermiques, le transfert de matière et la cinétique réactionnelle.

1.1.2.3 Intensification des échanges thermiques

Comme dans le cas des réacteurs discontinus, la performance d'un ERI dépend du coefficient d'échange global U et du rapport entre la surface d'échange et le volume procédé $\frac{\Omega}{V_r}$. Dans le cadre de l'intensification des procédés, on définit un nouveau facteur nommé « facteur d'intensification » comme le produit du coefficient d'échange global et du rapport surfaces/volume : $U \frac{\Omega}{V_r}$. Ainsi, il est possible de comparer les réacteurs entre eux du point de vue de l'intensification.

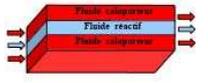
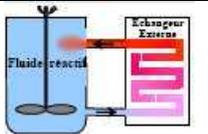
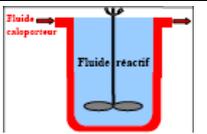
Appareils	ERI	Réacteur tubulaire	Réacteur batch à échangeur externe	Réacteur batch
Schéma du principe				
Échange global U ($W.m^{-2}.K^{-1}$)	5000	500	1000	400
Compacité $\frac{\Omega}{V}$ ($m^2.m^{-3}$)	800	400	10	2,5
Facteur d'intensification $U \cdot \frac{\Omega}{V}$ ($kW.m^{-3}.K^{-1}$)	4000	200	10	1

TABLE 1.1 – Comparaison des performances pour différents types d'échangeurs [Trambouze 03]

Le tableau 1.1 présente un comparatif de l'efficacité de différents types de réacteurs. Le facteur d'intensification thermique d'un ERI est 4000 fois plus important que celui d'un réacteur discontinu en raison du rapport $\frac{\Omega}{V_r}$ lié au concept même des ERI, mais aussi au coefficient global de conductivité thermique U de l'ordre de $5000 W.m^{-2}.K^{-1}$. De la même manière que pour les échangeurs discontinus, ce coefficient dépend de la combinaison du coefficient de convection côté fluide caloporteur, des propriétés et de la géométrie de la structure, et du coefficient de convection côté fluide procédé. Si les deux

premiers paramètres dépendent seulement de la conception, le troisième est contraint par la réaction elle-même. En effet, il est évident que le régime turbulent voire transitoire de l'écoulement est nécessaire à l'obtention d'un coefficient de convection suffisant, et par conséquent, impose une vitesse d'écoulement minimale. Néanmoins, la réaction impose un temps de séjour minimal pour l'obtention du taux de conversion voulu. La première difficulté de mise en oeuvre des ERI est ici mise en avant : allier régime d'écoulement turbulent et temps de séjour minimal tout en conservant une taille de réacteur raisonnable [Anxionnaz 09].

1.1.2.4 Intensification du transfert de matière et du mélange

L'agitation optimale du fluide procédé au sein du réacteur est nécessaire à la garantie de l'hypothèse d'écoulement piston. Sans cela, le comportement de la réaction devient imprévisible, il peut y avoir création de zones mortes ou rétention de réactifs, et donc baisse de productivité ou augmentation du risque d'emballement. Pour assurer un mélange et un transfert de matière suffisants, plusieurs solutions existent : maintenir un régime turbulent dans tout le réacteur, ce qui implique une vitesse de fluide minimale et des contraintes sur le temps de séjour ; assurer le mélange par l'ajout de perturbateurs statiques type plots ou mousses pour perturber l'écoulement [Bennani 08] ; adapter la géométrie du canal pour abaisser la limite laminaire/turbulent [Anxionnaz 09].

Dans l'optique d'un mélange optimal tout comme dans le cas du transfert thermique, la maîtrise du régime d'écoulement du fluide procédé est primordiale, ce qui est pris en compte lors de la conception des réacteurs grâce notamment à des géométries de canaux adaptées.

1.1.2.5 Intensification de la cinétique réactionnelle

La garantie d'un écoulement piston et d'un mélange efficace, associé à une grande efficacité thermique, permet de mettre en oeuvre des réactions dans des conditions opératoires inaccessibles par les réacteurs discontinus :

- température réactionnelle : l'efficacité thermique associée aux petits volumes permet d'augmenter la température réactionnelle tout en la contrôlant plus précisément. Par conséquent, il est possible d'augmenter la sélectivité, la cinétique et la productivité des réactions, tout en garantissant un niveau de sécurité équivalent voire meilleur.
- concentrations des réactifs : la maîtrise de la température permet de limiter l'intérêt du solvant utilisé comme tampon thermique et limiteur de cinétique en procédés disconti-

nus. Il est donc possible de travailler à concentrations plus élevées, et ainsi d'augmenter la cinétique réactionnelle.

- pression interne : le concept même des ERI, associé aux petits volumes réactionnels, permet d'envisager la pressurisation du système (délicate dans le cas des réacteurs discontinus). Ainsi, il est possible de travailler dans de nouvelles gammes de conditions opératoires et de repousser certaines contraintes physiques comme la température d'ébullition par exemple.

D'une manière générale, les ERI ouvrent de nouvelles possibilités en matière de conditions opératoires, ce qui permet, dans un premier temps, d'augmenter la cinétique des réactions et donc de diminuer le temps de séjour nécessaire à l'obtention du taux de conversion. Ainsi, lorsque le temps de séjour se compte en heures dans un réacteur discontinu, il se compte en minutes voir même en secondes dans un ERI [Lomel 06]. Dans un second temps, les ERI permettent d'envisager l'industrialisation de certaines réactions aux conditions opératoires exotiques, jusqu'à présent réservées aux laboratoires.

1.1.2.6 Intensification et sécurité

Le premier argument en faveur de la sécurité des procédés intensifiés est la taille des installations. Un réacteur intensifié met en oeuvre un volume restreint de composés chimiques en même temps. Ainsi, si un problème survient (une explosion par exemple), il ne concerne que ce volume. Ceci limite fortement le risque comparativement aux procédés discontinus [Stankiewicz 02].

En combinant un volume de produit restreint et un transfert thermique intensifié, il est possible de limiter, voire même de supprimer dans certains cas, l'utilisation de solvants ou autres composés dangereux. Un autre avantage concerne la diminution ou la suppression des étapes de post-traitement de type séparation en bout de chaîne, souvent coûteuses en énergie et place, et qui augmentent le risque global du procédé.

Enfin, la réalisation de plusieurs étapes de synthèse en même temps dans le même réacteur multi-fonctionnel évite le transfert et le stockage des produits intermédiaires pouvant être instables et dangereux.

Les procédés intensifiés et en particulier les échangeurs réacteurs intensifiés semblent très prometteurs quant-au remplacement des procédés classiques de production. Les gains sont nombreux : productivité, coût de fonctionnement, contrôle et sécurité. Néanmoins, des limites apparaissent lors de la mise en oeuvre industrielle, comme évoqué dans la partie suivante.

1.1.3 L'industrie et les procédés continus intensifiés

1.1.3.1 Les enjeux de l'industrialisation des ERI

Malgré les avancées évidentes en terme de productivité et de sécurité apportées par les procédés intensifiés, il reste nombre de problématiques à résoudre avant de voir ces procédés s'imposer. Bien que les limites et inconvénients des procédés discontinus soient clairs, ils restent la référence industrielle. Leur maîtrise et le savoir-faire accumulé sont les raisons principales de la réticence des industriels à la mise en place de nouveaux procédés [Tsouris 03]. D'autre part, les stratégies de développement industriel s'orientent plus vers la diversification des gammes de produits plutôt que vers l'optimisation des procédés de fabrication. Ce type de développement à court terme se justifie par la visibilité des retombés économiques et retours sur investissement [Stankiewicz 02]. Dans ce cadre, la polyvalence des réacteurs discontinus est un avantage [Shelat 04].

L'intensification des procédés, quant à elle, demande un effort de mutation des concepts philosophiques de l'industrie. Elle nécessite une longue phase de recherche pour choisir et adapter les nouvelles installations, et définir de nouvelles méthodes et procédures de mise en oeuvre. Cela implique un investissement lourd, et aujourd'hui, aucun modèle économique ne permet de prévoir et quantifier de manière claire et sûre le retour sur investissement.

Si aujourd'hui le paysage des équipements est relativement étoffé, le manque d'outils périphériques est flagrant. En effet, bien que plusieurs exemples de mise en oeuvre de l'intensification existent, il n'est pas encore possible d'extraire des règles de conception ou de pratique communes [Ramshaw 01]. Les outils de modélisation ou d'optimisation, ou les systèmes de contrôle dédiés sont eux aussi quasi inexistantes. Enfin, même si les équipements sont mis en oeuvre en laboratoire, les équipementiers doivent concevoir des solutions prêtes à l'emploi et simples d'utilisation, tout en restant polyvalentes.

Les échangeurs réacteurs intensifiés, ainsi que, d'une manière générale, les procédé intensifiés, représentent une rupture technologique. Ils doivent encore évoluer pour s'adapter aux besoins des industriels. Ce transfert technologique doit se faire en lien étroit entre les laboratoires de recherche, les équipementiers et les industriels.

1.1.3.2 Le projet INPAC

Le projet INPAC (INtensification du Procédé de fabrication d'Anti-Cancéreux) a pour objectif le développement de nouvelles pratiques de production des médicaments anti-cancéreux. L'idée directrice est de répondre aux contraintes industrielles par l'innovation

technologique. Dans cette optique, le projet INPAC s'inscrit dans une démarche d'intensification et de développement de nouveaux procédés de synthèse vers une chimie verte, en favorisant, par un passage aux procédés continus, les aspects de productivité tout en offrant des garanties accrues de sécurité et de respect de l'environnement. L'originalité du projet repose sur l'utilisation conjointe de micro-technologies et d'un matériau innovant, le carbure de silicium, qui va permettre de s'affranchir des principales contraintes de production liées à la chimie pharmaceutique : milieux fortement corrosifs, capacité d'échange thermique limitée, etc... Ainsi, la mise en place du projet, du concept à l'industrialisation, est assurée par un partenariat ambitieux et complémentaire d'universitaires d'une part, impliqués dans le domaine du procédé, du génie chimique mais aussi de la modélisation et la micro-fluidique, et d'autre part des acteurs fabricants d'éléments micro-structurés intégrant des matériaux innovants issus du domaine des céramiques associés à des grands comptes industriels potentiels permettant l'application de ces technologies dans le domaine de la chimie pharmaceutique. Ce regroupement de compétences doit permettre le développement et la promotion dans le secteur de la chimie pharmaceutique d'équipements multi-fonctionnels innovants afin de relever le challenge de l'intensification de procédés, identifié par le Ministère de l'Industrie comme technologie clé 2010, aux côtés du thème des micro-technologies (N°22). Ce projet a démarré en 2006, pour une durée initialement prévue de 4 ans.

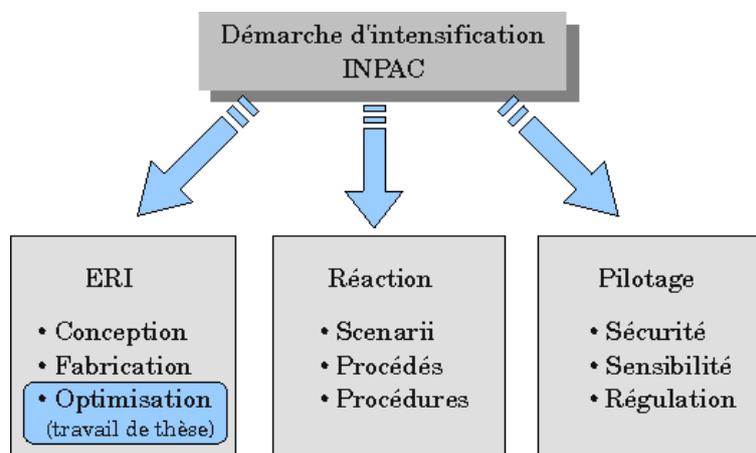


FIGURE 1.5 – Organisation du projet INPAC

Ainsi, comme le montre la figure 1.5, le projet est constitué de trois groupes de travail. L'industriel pharmaceutique, associé au laboratoire de génie chimique, sont en charge de la mise au point de la réaction chimique et de son transfert vers un procédé intensifié, à l'image des travaux précédemment réalisés par Benaissa [Benaissa 06]. Un autre aspect du projet est le contrôle et la régulation du procédé en contexte industriel, pris en charge par un laboratoire spécialisé, au travers du développement et de la mise en place d'outils et de

méthodes de mesure, mais aussi de méthodes d'analyse du système de production. Enfin le rôle de l'équipementier est de concevoir un échangeur-réacteur en carbure de silicium, intégrant les développements et contraintes proposés par les laboratoires partenaires et l'industriel. En particulier, l'échangeur doit intégrer une géométrie de canal développée spécialement pour optimiser le mélange et l'échange thermique du fluide réactif. Cette géométrie a été développée par Anxionnaz au sein du LGC [Anxionnaz 09]. De plus, l'échangeur doit maximiser l'échange thermique entre le fluide réactionnel et le fluide caloporteur, principal intérêt des ERI, tout en garantissant l'étanchéité et l'intégrité du système. Le carbure de silicium est un matériau très intéressant pour cette application en raison de sa conductivité thermique élevée et de sa neutralité chimique, mais son comportement fragile impose la maîtrise de la conception de l'ERI d'un point de vue thermo-mécanique. Cet aspect est essentiel, d'autant que l'application finale de production d'anti-cancéreux met en oeuvre des produits extrêmement corrosifs et néfastes pour les hommes et l'environnement.

On touche ici l'objet des travaux présentés dans cet ouvrage : la modélisation thermo-mécanique de l'ERI et sa fiabilité face à la variabilité des conditions d'utilisations visant à la maîtrise mécanique du système, dans un contexte où, jusqu'à présent, seuls les aspects chimiques et thermiques importaient.

1.1.4 Cinétique chimique : définition et modélisation

La cinétique chimique est l'analyse de l'évolution d'une réaction au cours du temps [Schweich 01, Villiermaux 93]. Le point de départ de cette analyse est l'équation 1.2 qui traduit l'équilibre chimique au cours de la réaction.



A et B sont les réactifs et C et D les produits. Les valeurs ζ_i sont les coefficients stoechiométriques, entiers naturels de valeur minimale et traduisant la conservation des masses. De là, on définit la concentration d'élément i à l'instant t par C_i (en mol.L^{-1}), et à l'instant $t + dt$ par $C_i + dC_i$. Si on exprime la variation de concentration normée par son coefficient stoechiométrique $\frac{dC_i}{\zeta_i}$, on montre que, par le principe de conservation des masses, les rapports des variations de concentrations sur les coefficients stoechiométriques des éléments sont égaux entre eux (équation 1.3).

$$\frac{dC_A}{\zeta_A} = \frac{dC_B}{\zeta_B} = -\frac{dC_C}{\zeta_C} = -\frac{dC_D}{\zeta_D} = d\xi \quad (1.3)$$

ξ est l'avancement de la réaction en $mol.L^{-1}$. Ainsi, si $\frac{d\xi}{dt} = r$ définit la vitesse de réaction en $mol.L^{-1}.s^{-1}$, les vitesses d'apparition (i.e. de consommation) des éléments chimiques s'écrivent $\zeta_i.r$, au signe près.

Dans le but de modéliser la vitesse de réaction d'un mélange, les chimistes ont adopté depuis le début du XX^{ième} siècle la relation d'Arrhénius. Ce modèle semi-empirique permet d'exprimer la vitesse d'une réaction en fonction de la température du milieu et de la concentration des réactifs (équation 1.4).

$$r = k_0 \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \prod_{i=1}^n C_i^{\alpha_i} \quad (1.4)$$

Avec,

- T : la température du fluide en K ,
- C_i : la concentration de l'élément i en $mol.L^{-1}$,
- α_i : l'ordre partiel de l'élément i ,
- k_0 : le facteur pré-exponentiel en $L^{\beta-1}.mol^{-(\beta-1)}.s^{-1}$,
- E_a : l'énergie d'activation de la réaction en $J.mol^{-1}$,
- R : la constante universelle des gaz parfaits en $J.mol^{-1}.K^{-1}$.

L'énergie d'activation E_a est une propriété intrinsèque de la réaction chimique. Elle définit l'énergie nécessaire à apporter au système pour initier la réaction (voir figure 1.6). Le facteur pré-exponentiel et les ordres partiels sont eux des coefficients empiriques déterminés de manière expérimentale.

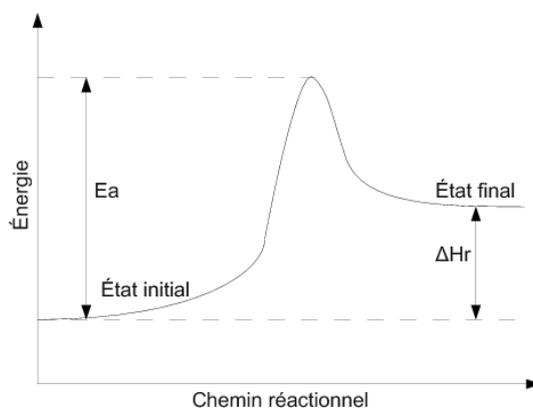


FIGURE 1.6 – Schéma énergétique réactionnel

Une réaction chimique est aussi caractérisée par son bilan thermique. Ainsi, on dira qu'elle est exothermique si le bilan est positif (i.e. la réaction génère de la chaleur), à contrario

on dira qu'elle est endothermique si le bilan est négatif (i.e. la réaction absorbe de la chaleur). L'enthalpie de réaction ΔH_r exprime la variation énergétique du système entre ses états d'équilibres initial et final (voir figure 1.6). C'est une propriété intrinsèque de la réaction exprimée en $J.mol^{-1}$. Sa valeur sera positive ou négative selon que la réaction est exo ou endothermique.

Connaissant la vitesse de réaction r à l'instant t , il est possible d'exprimer la variation instantanée d'enthalpie dH d'une réaction en $W.L^{-1}$ (équation 1.5). Cette expression dépend de la température et de la concentration, via la loi d'Arrhénius. La valeur de dH est donc variable au cours de la réaction.

$$dH = \Delta H_r r = \Delta H_r k_0 \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \prod_{i=1}^n C_i^{\alpha_i} \quad (1.5)$$

Les équations 1.4 et 1.5 permettent donc de modéliser l'état d'un système à un instant donné, en supposant que le milieu est homogène. Dans le cas des réacteurs discontinus, cela implique une agitation parfaite, et dans le cas des échangeurs continus, un écoulement piston pur. C'est ce dernier cas qui nous intéresse dans cette étude.

1.2 Des échangeurs classiques à l'Échangeur Réacteur Intensifié

Dans cette partie nous décrivons l'un des premiers échangeurs réacteurs à plaques, l'OPR (Open Plate Reactor), puis nous présentons le premier ERI conçu par Boostec. Pour finir, nous détaillons la composition et le fonctionnement de l'ERI de dernière génération faisant l'objet de cette étude.

1.2.1 L'ERI à plaques de référence : l'« Open Plate Reactor »

Alfa Laval¹ est un équipementier du secteur de la chimie, spécialisé autour de trois technologies : transfert de fluides, séparation et échange thermique. Fort de leur expérience dans le domaine du transfert de chaleur, ils ont adapté leur technologie pour proposer un des premiers échangeur réacteur à plaques, l'« Open Plate Reactor » ou OPR. Comme le montre la figure 1.7, cet échangeur réacteur est composé de trois plaques en acier inoxydable montées serré, dont l'étanchéité est garantie par des joints. La plaque du milieu est

1. <http://www.alfalaval.fr>

parcourue par le fluide chimique et constitue le lieu de la réaction. Le fluide caloporteur, chargé de contrôler la température du mélange chimique, circule dans les deux plaques extérieures.

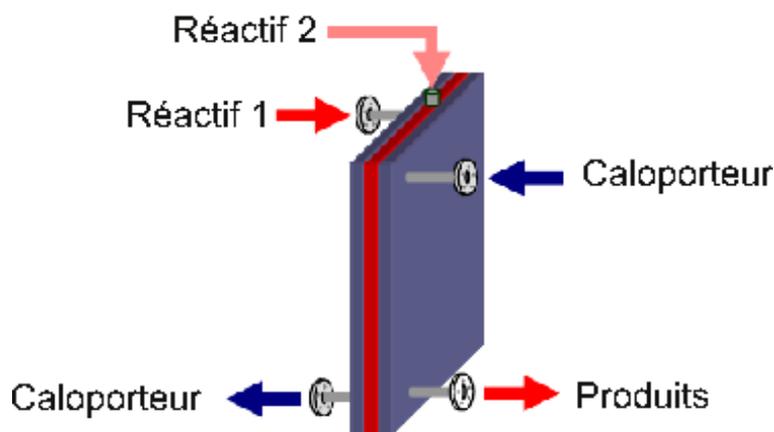


FIGURE 1.7 – Schéma de principe de l'OPR

La particularité de cet échangeur réacteur réside dans le fait qu'un insert en PEEK (Polyétheréthercétone : résistance aux produits corrosifs) a été ajouté dans la plaque centrale (figure 1.8). Cet insert tient un rôle d'agitateur statique, garantissant un bon transfert de matière et un écoulement piston, malgré les faibles vitesses d'écoulement. En effet, la taille réduite de ce système impose un faible débit, nécessaire à l'obtention du taux de conversion souhaité. Le coefficient de transfert thermique global de cet échangeur réacteur est de l'ordre de $2500 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ [Prat 05, Benaissa 06], et le facteur d'intensification vaut $1000 \text{ kW.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$. Il se situe donc à mi-chemin entre les échangeurs tubulaires ($500 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$) et les ERI à plaques classiques ($5000 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$). Ces caractéristiques, associées aux matériaux utilisés, lui permettent de réaliser des réactions fortement exothermiques en milieux relativement corrosifs.

1.2.2 L'échangeur réacteur de première génération

Boostec SA² est spécialisée dans le frittage et le brasage de grandes pièces techniques et de structures aérospatiales en carbure de silicium, telles que les télescopes spatiaux. De part sa maîtrise de la mise en oeuvre de ce matériau, Boostec s'est engagée dans la conception d'un échangeur réacteur intensifié, au travers du projet INPAC.

La première génération d'ERI, que nous nommerons ERI_v1, est inspirée des échangeurs de chaleurs à plaques. Comme décrit sur la figure 1.9, l'échangeur est composé de 7 plaques

2. <http://www.boostec.com>

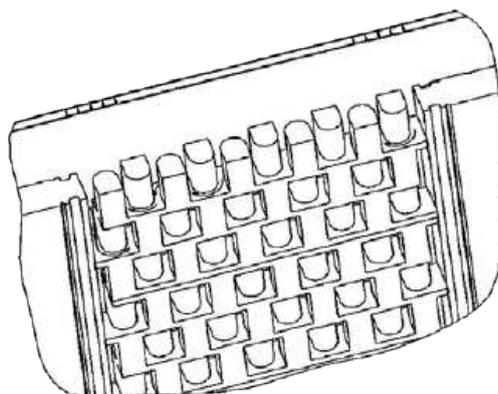


FIGURE 1.8 – Exemple d'insert PEEK de la plaque réactionnelle de l'OPR

en carbure de silicium de $8 \times 118 \times 320 \text{ mm}$. Les 3 plaques procédés, dans lesquelles s'écoule le fluide réactif, sont positionnées entre 4 plaques utilités, dans lesquelles circule le fluide caloporteur. Ainsi le transfert thermique se fait de part et d'autre de chaque plaque procédée, vers les plaques utilités qui l'entourent. Cet empilement de 7 plaques en carbure de silicium est fermé par 2 plaques en acier inoxydable, et monté serré par 12 boulons. L'étanchéité entre les plaques est assurée par des joints toriques.

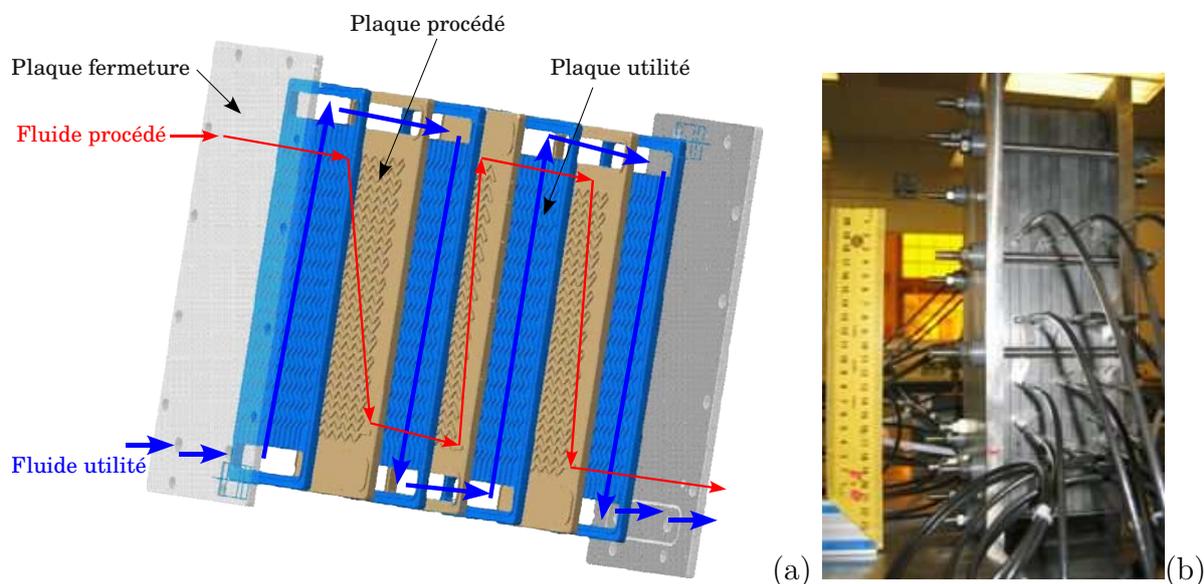


FIGURE 1.9 – Schéma de fonctionnement (a) et photo de mise en oeuvre (b) de l'ERI_v1 de Boostec

La figure 1.10 montre la géométrie du canal usiné dans les plaques procédés. C'est un canal unique de section $3,89 \text{ mm}^2$ et de longueur $3,04 \text{ m}$. Sa forme en zigzag, issue de précédents travaux [Anxionnaz 09], permet d'avoir un temps de séjour de l'ordre de la minute sur une plaque (selon le débit), mais surtout d'assurer un mélange suffisant, et ainsi de garantir un

écoulement piston et un bon transfert thermique, malgré l'écoulement laminaire du fluide. Notons que le canal, usiné sur une face de la plaque, est refermé lorsque la plaque utilisée attenante est positionnée puis serrée. Les points d'injections disposés le long du canal (cf figure 1.10) peuvent, selon le besoin, être utilisés pour injecter des réactifs secondaires à un certain moment de la réaction, ou accueillir des thermocouples permettant de mesurer directement la température du fluide procédé.

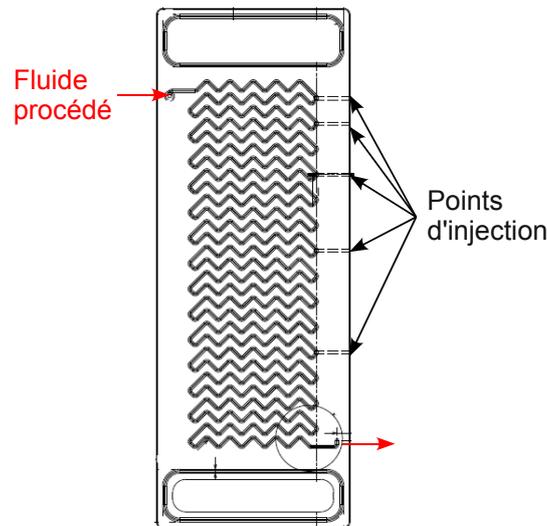


FIGURE 1.10 – Schéma d'une plaque procédé de l'ERI_v1

En ce qui concerne ses performances thermiques, cet ERI a été testé en échangeur de chaleur pur (eau chaude / eau froide) dans les mêmes conditions que l'échangeur d'Alfa-Laval. Les mesures ont montré que l'ERI_v1 a un coefficient global d'échange de $7000 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$, ce qui, en terme de facteur d'intensification, correspond à $14000 \text{ kW.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$. Ceci le place au dessus des ERI classiques, notamment en raison des propriétés thermiques du SiC. De plus, plusieurs réactions fortement exothermiques ont été mises en oeuvre, avec entre autres la réaction d'hydrosilylation menée par Elgue et al. [Elgue 08]. Ils montrent que la mise en oeuvre de cette réaction dans l'ERI_v1 réduit le temps de séjour de 5-6 heures à 20 minutes, améliore la sélectivité, réduit la quantité de catalyseur, et permet de supprimer l'étape de dévolatilisation post-réaction. Ainsi, d'un point de vue thermo-chimique, l'ERI_v1 est un très bon prototype, permettant la mise en oeuvre de réaction exothermiques intensifiées, en milieu fortement corrosif.

En ce qui concerne le comportement mécanique, il a été montré lors des essais que la pression des fluides, autant utilité que procédé, ne pouvait dépasser 4 à 5 bars sans qu'apparaissent de fuites. Ce paramètre est très contraignant car il limite l'utilisation de fluides visqueux, ou l'ajout de plaques supplémentaires en raison de la perte de charge engendrée. Une étude interne précédant ces travaux a montré que l'étape de serrage pouvait s'avérer

délicate. En effet, le module d'Young élevé du SiC associé à son comportement fragile induit des concentrations de contraintes dans les zones de contacts SiC/SiC. Ceci est accentué par les défauts de planéité des surfaces en contact, et ce même après l'étape de rectification. En pratique, il est arrivé que des plaques cassent lors de la mise en contact au cours du serrage.

Pour conclure, les résultats obtenus avec l'ERI_v1 ont poussé Boostec à concevoir un nouvel échangeur réacteur, avec pour objectif de repousser ses limites mécaniques tout en maintenant ses performances thermiques. Le travail de modélisation présenté dans cet ouvrage vient donc en support de cette conception mais apporte aussi des outils et méthodes pour la conception des ERI futurs.

1.2.3 L'ERI de dernière génération

Le concept du nouvel ERI reste celui d'un échangeur à plaques, pour lequel les plaques procédés sont en carbure de silicium qui garantit une bonne conduction thermique et une excellente résistance à la corrosion. La géométrie du canal procédé reste elle aussi identique, seule la longueur totale change et vaut $2,40\text{ m}$. Les deux innovations majeures sont l'utilisation du brasage dans la fabrication des plaques procédés, et l'utilisation d'un autre matériau pour les plaques utilités.

En ce qui concerne les plaques procédés, elles mesurent $140 \times 320\text{ mm}$ et se décomposent en 2 parties (cf figure 1.11) : d'une part une plaque de 8 mm d'épaisseur sur laquelle est usiné le canal, d'autre part une plaque « couvercle » de 6 mm d'épaisseur. Ces 2 parties sont assemblées par brasage, procédé déjà utilisé et éprouvé dans l'assemblage de pièces de télescopes spatiaux. L'ensemble comporte 2 trous d'entrée/sortie du fluide chimique.

Les plaques utilités, quant-à elles, sont conçues en acier inoxydable. Mesurant $20 \times 176 \times 356\text{ mm}$, elles comportent un évidement de $100 \times 240\text{ mm}$ permettant le passage du fluide caloporteur directement en contact avec les plaques procédés attenantes (cf figure 1.12). Un orifice permet le passage du fluide réactionnel d'une plaque procédé à l'autre, au travers de la plaque utilité. Deux joints toriques sont disposés aux entrée/sortie du passage, de part et d'autre de la plaque, assurant l'étanchéité du circuit procédé. De la même manière, un couple de joints est disposé sur le pourtour de l'évidement, pour assurer l'étanchéité du circuit utilité. Il est à noter que la position du joint procédé à l'intérieur de la zone d'étanchéité du joint utilité est en faveur de la sécurité car, si une fuite procédé survient, le fluide se répandrait dans le circuit de refroidissement et non à l'extérieur de l'ERI.

Le prototype complet (figure 1.13) est constitué de 5 plaques procédés, 6 plaques utilités et 2 plaques de fermeture. Le serrage est assuré par 10 boulons et rondelles bellevilles. Il

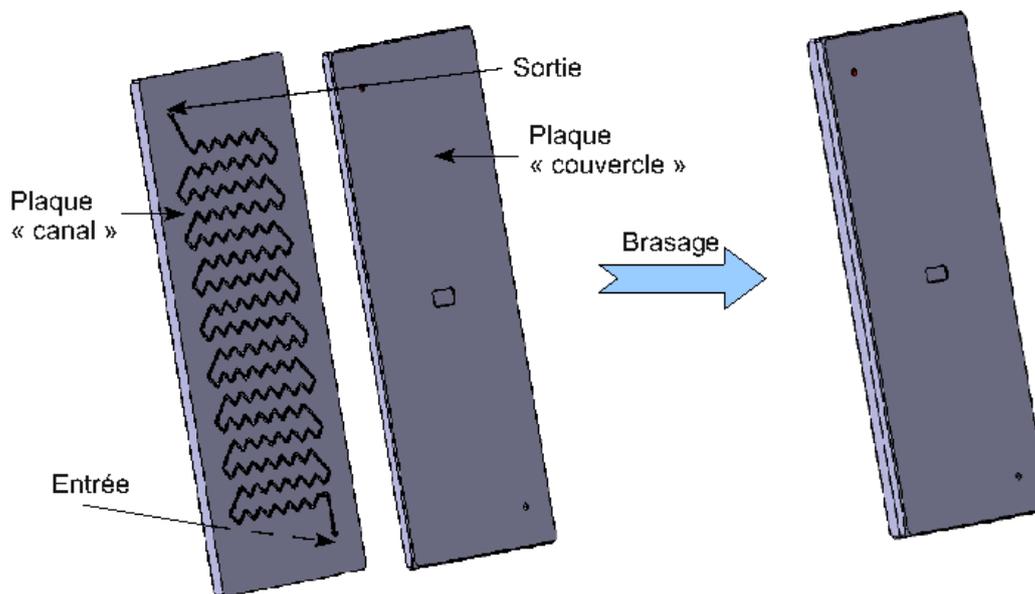


FIGURE 1.11 – Assemblage par brasage de la plaque procédé de l'ERI_v2

s'effectue par couple de vis opposées, jusqu'à écrasement des joints et mise en contact des plaques entre elles.

La simplification des géométries usinées sur les plaques en SiC (suppression des gorges de joints en particulier), l'augmentation de leurs épaisseurs (de 8 à 14 *mm*), mais surtout l'utilisation de plaques intermédiaires en matériau ductile, permettent de limiter fortement les risques de rupture fragile des plaques procédés lors du serrage. En effet, les plaques utilisés en acier limitent l'apparition de concentration de contrainte lors du contact SiC/acier, par une éventuelle accommodation plastique des zones de concentration de contraintes.

D'autre part, l'utilisation du brasage pour fermer le canal procédé dans la plaque SiC permet d'augmenter la tenue à la pression, passant de 5 à 40 *bar* dans le circuit procédé. Ceci présente un grand intérêt pour la sécurité mais aussi pour les possibilités de réalisation de réaction sous pression. La pression maximale admissible pour le circuit utilité n'est, quant à elle, pas changée.

D'un point de vue efficacité thermique, le coefficient d'échange global a été divisé par 2 par rapport à la version précédente. Ceci a été identifié comme le résultat de la géométrie de la plaque utilité, et en particulier l'évidement qui limite la vitesse de circulation du fluide caloporteur, et limite ainsi les conditions de convection en surface de la plaque procédé. L'ajout d'un insert dans cet espace a permis d'orienter le fluide et d'augmenter sa vitesse, optimisant ainsi le coefficient de convection et ramenant le coefficient global d'échange à

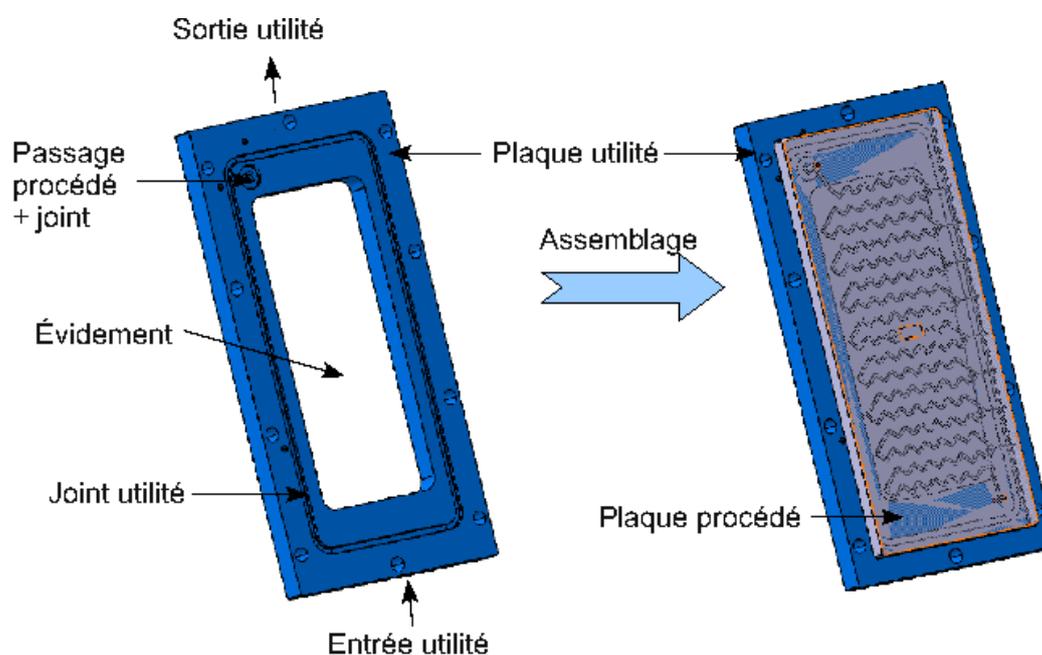


FIGURE 1.12 – Description de la plaque utilité

$7000 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$.

En ce qui concerne le comportement en fonctionnement, la mesure du temps de séjour caractéristique a confirmé l'écoulement piston. Par contre, l'utilisation d'acier inoxydable limite la résistance à la corrosion globale du système. En effet, si le fluide procédé n'était en contact qu'avec du SiC dans la version précédente, dans cette nouvelle version le fluide est en contact avec l'acier lors du passage d'une plaque procédé à l'autre. Des solutions techniques ont été proposées pour s'affranchir de cette limite dans la prochaine version de l'ERI.

Pour conclure, l'ERI_v2 résout les problèmes majeurs identifiés avec l'ERI_v1, tout en conservant ses performances générales. Il a été retenu pour réaliser le transfert de procédé de fabrication d'anti-cancéreux et, après optimisation et validation chimique en laboratoire, pour être installé et mis en service sur une chaîne de production industrielle.

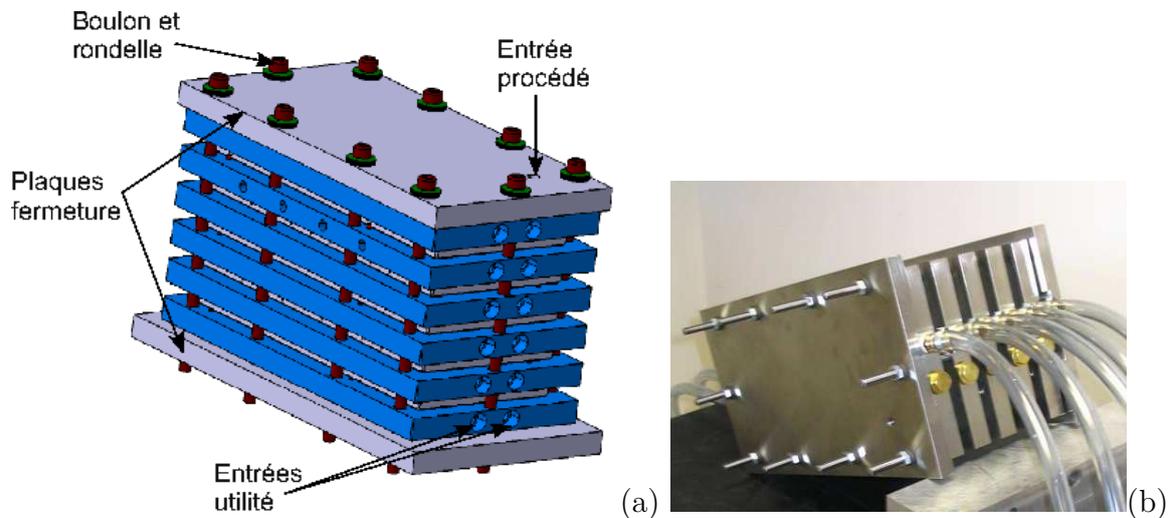


FIGURE 1.13 – Schéma (a) et photo (b) de l'ERI_v2 complet

1.3 Le carbure de silicium pour les ERI

1.3.1 Le carbure de silicium : une céramique technique thermo-mécanique

1.3.1.1 Définition des céramiques

Le mot céramique vient du grec *keramos* qui signifie argile, terre à potier, mais aussi du mot grec *kram* qui signifie cramer [Chermant 89]. On retrouve donc d'une part l'information sur la matière première, et d'autre part sur le procédé de fabrication. Nos ancêtres se sont rendus compte qu'en modelant l'argile humide, puis en la faisant sécher et cuire, l'objet obtenu avait des propriétés mécaniques et chimiques différentes, et, entre autres, n'était plus sensible à l'humidité. Cette dernière propriété lui a sûrement valu sa première utilisation, le transport de fluide.

À la question « qu'est ce qu'une céramique ? » il est difficile de répondre directement. En effet, on ne peut se contenter de définir les céramiques par leur composition, comme c'est le cas des métaux par exemple. En 1960, une série de conférences organisées par l'Institut de la Céramique Français, la Société Française de la Céramique et l'École Nationale Supérieure de Céramique Industrielle a permis de donner une définition intéressante, développée autour de trois aspects [Haussonne 05] :

- **la technologie céramique** : procédé consistant à modeler un objet constitué de poudre minérale, puis à le consolider par cuisson,
- **le matériau céramique** : solide artificiel composé de minéraux anhydres cristallisés obtenu par synthèse à haute température,

– **le produit céramique** : objet de matériau céramique obtenu par la technologie céramique. Parmi les céramiques, on peut définir trois catégories [Chermant 89, Haussonne 05] : les céramiques classiques, les céramiques réfractaires et les céramiques techniques. Les céramiques classiques, aussi connues sous le nom de céramiques aluminosilicates, sont composées principalement d'argile, voire de kaolin. Les céramiques réfractaires ont des propriétés thermiques, chimiques et mécaniques intéressantes, ce qui permet leur utilisation à haute température et principalement dans le secteur de la sidérurgie. Enfin, les céramiques techniques, ou céramiques nouvelles (car utilisées depuis la fin de la deuxième guerre mondiale), regroupent les céramiques utilisées pour leurs propriétés spécifiques autres que celles de réfractaires. On retrouve le carbure de silicium dans la catégorie des céramiques techniques mécaniques, car, grâce à sa dureté et à ses propriétés de frottement, il est souvent utilisé dans les roulements à billes, corps de pompes et autres pièces d'usures et bagues de frottement. Le SiC est aussi intéressant, entre autres, car il garde ses propriétés mécaniques à haute température.

Dans le cadre de cette étude, le carbure de silicium est utilisé pour ses propriétés de conduction thermique, d'inertie chimique et de propriétés mécaniques à températures élevées (200 °C et plus).

1.3.1.2 Le procédé de fabrication des plaques SiC

S'il existe plusieurs variantes dans la fabrication de pièces massives en carbure de silicium, nous nous contenterons ici de décrire le procédé utilisé pour la fabrication des plaques de l'ERI.

La première étape du procédé est la synthèse de la poudre de base, obtenue par le mélange de carbone (C) et de silice (SiO_2) porté à 2200 °C, selon l'équation réactionnelle 1.6. Ce procédé endothermique élaboré en 1893 par Acheson génère des cristaux de SiC solide et du gaz carbonique.



Sachant que les propriétés thermo-mécaniques des pièces finales dépendent de la pureté, de l'homogénéité et de la taille des particules de la poudre, il est nécessaire de la conditionner avant frittage. Ainsi, la deuxième étape consiste à broyer la poudre de SiC pour obtenir une granulométrie homogène de l'ordre de 50 μm , puis de lui ajouter un ensemble d'additifs organiques (moins de 1 % en masse) afin de rendre la poudre compactable et usinable avant frittage.

Le lot matière ainsi constitué (environ 800 kg) est compacté au moyen de presses hydrauliques (1400 bars), pour constituer des blocs mécaniquement stables (figure 1.14)

pouvant être découpés et usinés.



FIGURE 1.14 – Lot de SiC cru après compactage

L'étape suivante est la mise en forme de la pièce en cru. Dans le cas de la production des plaques de l'ERI, cela consiste à découper des tranches de SiC cru puis à les usiner pour obtenir la géométrie voulue (figure 1.15). Au cours de cette étape, il est important de prendre en compte les variations dimensionnelles dues au retrait de frittage. Pour cela, une série d'échantillons est prélevée du lot matière, puis frittée. Le retrait mesuré après cuisson (entre 9 et 12 %) est pris en compte pour la définition des plans des pièces en cru, et ainsi obtenir des dimensions précises après frittage.



(a)



(b)

FIGURE 1.15 – Découpe (a) et post-usinage (b) d'une plaque procédé en cru

Le traitement thermique de la pièce en cru, appelé aussi frittage, est l'étape qui confère au matériau toutes ses propriétés thermo-mécaniques. Le procédé consiste à porter la

pièce à haute température (2000 à 2200 °C) pendant un temps suffisant (1 à 2 semaines) dans un four sous atmosphère contrôlée. L'absence d'oxygène est indispensable pour éviter l'oxydation du carbone et du silicium à haute température. Durant le frittage, plusieurs mécanismes sont activés : évaporation/condensation, diffusion en surface, diffusion en volume et diffusion aux joints de grains [Chermant 89]. Ces mécanismes permettent la densification et la croissance des grains de SiC. La figure 1.16 résume de manière simplifiée les étapes du frittage. Alors que l'apparition des cous aux points de contact des grains est considérée comme quasi instantanée, l'étape initiale correspond à la croissance des cous intergranulaires. La densité de la pièce évolue alors de 60 à 65 % de la densité théorique (sans porosités). À la fin de cette étape, le réseau poreux est continu le long des joints de grains formés. Durant l'étape intermédiaire, les grains, tous de forme polyédrique, et les joints de grains évoluent jusqu'à fermeture des canaux poreux. Cette étape couvre la majeure partie du frittage et de la densification du matériau. En fin d'étape, la densité est de 90 à 95 %. Enfin l'étape finale correspond à la disparition quasi totale des porosités isolées aux sommés des joints de grains. La densité est alors comprise entre 99 et 100 %.

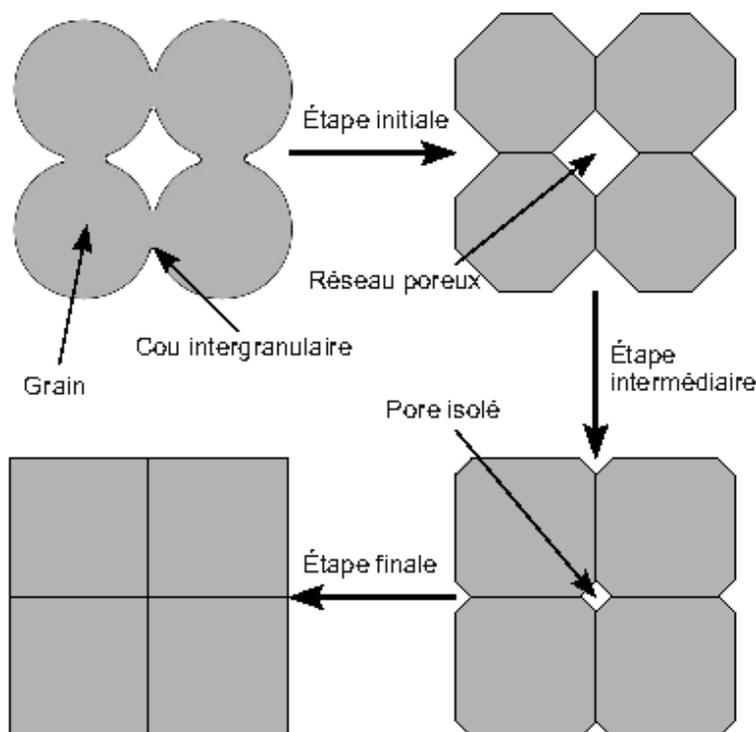


FIGURE 1.16 – Étapes constituant le frittage

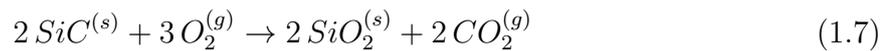
La pièce ainsi frittée nécessite une étape de finition. En effet, certaines surfaces doivent avoir une planéité et/ou un parallélisme suffisants pour assurer leur rôle mécanique. Par exemple, dans le cas de l'ERI, les plaques constituant la plaque procédé doivent être

rectifiées sur les deux faces pour, d'une part, assurer un contact réparti sur la plaque utilité, et, d'autre part, avoir de bonnes conditions de brasage. La rectification se fait au moyen de meules diamants, seul matériau plus dur que le SiC, permettant donc de l'usiner.

1.3.2 Propriétés chimiques, thermiques et mécaniques du SiC

1.3.2.1 Oxydation et inertie chimique

Dans le cas du carbure de silicium, on distingue deux types d'oxydation : l'oxydation passive et active [Chermant 89, Herdrich 05, Ogura 02]. L'oxydation passive se caractérise par la création d'une couche de silice SiO_2 solide en surface selon l'équation chimique 1.7.



Une fois cette couche formée, elle joue un rôle protecteur et bloque l'oxydation du matériau. Sous certaines conditions de pression (très inférieure à 1 bar) et de température (supérieure à 1400 °C), le SiO_2 devient instable et se vaporise sous forme SiO , passant ainsi à un mode d'oxydation active, et le matériau est consommé [Rold 09, Schneider 95]. Néanmoins, dans le cas d'utilisation qui nous concerne (pression supérieure à 1 bar et température maximale de 200 °C) le mode d'oxydation reste passif.

La couche d'oxyde passif joue aussi un rôle protecteur vis à vis d'autres composés chimiques, et en particulier des acides et bases types HF et KOH [Chermant 89], expliquant l'inertie chimique du carbure de silicium et son intérêt d'utilisation dans les milieux corrosifs.

1.3.2.2 Propriétés thermiques

Parmi les propriétés thermiques du carbure de silicium, on note tout d'abord sa bonne conductivité, propriété qui le rend particulièrement intéressant pour favoriser le transfert thermique. Sa conductivité, d'une valeur de $180 W.m^{-1}.K^{-1}$ à 25 °C, est bien supérieure à celle de l'acier inoxydable ($26 W.m^{-1}.K^{-1}$) et du verre ($1,2 W.m^{-1}.K^{-1}$), et proche de celle de l'aluminium ($237 W.m^{-1}.K^{-1}$). Notons que ce coefficient diminue avec la température : $68 W.m^{-1}.K^{-1}$ à 500 °C et $40 W.m^{-1}.K^{-1}$ à 1000 °C. Néanmoins, il sera considéré constant dans notre plage de température.

Sachant que le carbure de silicium produit ici est de structure polycristalline, son coefficient de dilatation thermique est isotrope [Haussonne 05]. Comme présenté dans le

tableau 1.2, sa valeur dépend de la température. Les faibles coefficients de conductivité et de dilatation thermiques du SiC expliquent sa bonne résistance au choc thermique [Boch 01].

Températures (C)	Coefficients ($10^{-6}K^{-1}$)
20-500	4, 0
20-1000	4, 6
20-1400	5, 2

TABLE 1.2 – Coefficients de dilatation thermique du SiC en fonction de la température

Températures (C)	Capacité calorifique ($W.kg^{-1}.K^{-1}$)
20	680
500	1040
1000	1180

TABLE 1.3 – Capacité calorifique massique du SiC en fonction de la température

Pour terminer la description des propriétés thermiques du carbure de silicium, notons que, bien qu'elle soit peu intéressante dans le cas de calcul en régime permanent, sa capacité calorifique (ou chaleur massique) est plutôt faible et devient limitante lors des régimes transitoires (tableau 1.3). En effet, d'un point de vue sécuritaire, lors d'un arrêt imprévu de la circulation des fluides dans l'ERI, le volume de fluide procédé continue à réagir et produit de la chaleur jusqu'à consommation des réactifs. Si le fluide utilisé n'évacue plus cette chaleur, c'est la capacité calorifique globale du système qui doit amortir la montée de température. Une faible capacité calorifique du matériau joue donc en défaveur du système. Une des solutions envisagées est d'utiliser des plaques utilités en aluminium, dont la chaleur massique plus élevée que l'acier augmenterait la capacité thermique globale de l'ERI.

1.3.2.3 Propriétés mécaniques

Dans le cas des céramiques en général et du carbure de silicium en particulier, le comportement mécanique peut se résumer en deux termes : dureté et fragilité [Boch 01]. Ces propriétés le rendent particulièrement intéressant mais aussi difficile à maîtriser. Par exemple sa dureté (22 GPa Vickers) lui confère une excellente résistance à l'usure, mais le rend difficile à usiner, et sa faible ténacité ($3,5\text{ MPa} \cdot \sqrt{m}$) le rend délicat à manipuler.

La fragilité du SiC a aussi pour origine l'absence de déformation plastique avant rupture. En d'autres termes, son comportement mécanique est purement élastique isotrope

[Haussonne 05]. Son module d'élasticité (ou module d'Young, de 420 GPa) et son coefficient de Poisson (0,17) suffisent à eux seuls pour décrire ce comportement.

La propagation de fissure est initiée lorsque le facteur d'intensité des contraintes (ou combinaison des FIC) en pointe de fissure dépasse la valeur de ténacité du matériau K_{IC} (ou facteur d'intensité critique). Dans le cas des céramiques, la rupture est souvent catastrophique, c'est à dire que la propagation de fissure est non contrôlée et provoque la rupture totale de la pièce. En l'absence de fissure, la rupture s'initie sur les défauts présents dans le volume ou sur les surfaces de la pièces. Ces défauts d'origine procédé, peuvent être des inclusions, des pores, des rayures d'usinages ou de rectification... Comme leur répartition et leur niveau de criticité est variable dans le volume du matériau, il est difficile d'utiliser un critère de rupture déterministe, ce qui amène à proposer une analyse statistique de la rupture des pièces en carbure de silicium [Boch 01, Haussonne 05].

1.3.3 Traitement statistique de la rupture

En pratique, lorsque plusieurs pièces identiques sont soumises à une charge jusqu'à rupture, les valeurs limites relevées observent une certaine dispersion. Dans le cas du carbure de silicium, et des céramiques en général, cette dispersion est relativement importante. En fait, cette dispersion est due à la répartition des défauts critiques dans le volume de la pièce et à la probabilité de trouver un de ces défauts dans une zone soumise à une contrainte élevée. Par conséquent, il est nécessaire de considérer le traitement statistique de la rupture du SiC afin de déterminer la probabilité de rupture ou de survie d'une pièce soumise à un chargement particulier [Boch 01, Ferrouillat 06].

1.3.3.1 Théorie du maillon le plus faible

Nous avons vu que la rupture d'une pièce en SiC s'opérait par propagation brutale d'un défaut. En d'autres termes, si un volume unitaire dV_m rompt, il entraîne la rupture totale de la pièce. C'est le principe du maillon le plus faible. Pour une pièce de volume V soumise à une contrainte σ uniforme, avec l'hypothèse que le matériau est isotrope et statistiquement homogène (i.e. le nombre et la taille des défauts sont uniformément répartis dans le volume V_m), la probabilité de trouver k défauts activés peut être modélisée par une loi de Poisson, selon l'équation 1.8.

$$P_k(V_m) = e^{-V_m \Phi(\sigma)} \frac{(V_m \Phi(\sigma))^k}{k!} \quad (1.8)$$

où la fonction $\Phi(\sigma)$ est la densité d'activation des défauts sous le chargement σ .

Par conséquent, la probabilité de n'activer aucun défaut, ou probabilité de survie, est :

$$P_{k=0}(V_m) = e^{-V_m \Phi(\sigma)} \quad (1.9)$$

1.3.3.2 Théorie de Weibull

Si plusieurs expressions ont été proposées pour représenter la densité $\Phi(\sigma)$ [Lamon 83, Stanley 73], la loi de Weibull s'avère être la plus adaptée pour représenter la rupture des céramiques [Haussonne 05]. L'idée est de modéliser $\Phi(\sigma)$ par une loi puissance, comme le décrit l'équation 1.10.

$$\Phi(\sigma) = \frac{1}{V_0} \left(\frac{\sigma - \sigma_u}{\sigma_0} \right)^\omega \quad (1.10)$$

Le paramètre ω est le module de Weibull, et caractérise la dispersion de $\Phi(\sigma)$. Il vaut environ 8 pour le SiC et 50 pour les métaux. V_0 et σ_0 sont des caractéristiques du matériau, et σ_u est une valeur seuil en dessous de laquelle la probabilité de rupture est nulle. Dans le cas des céramiques, on prend souvent $\sigma_u = 0$ car la probabilité de rupture par compression est négligeable par rapport à celle en traction. Ainsi, la probabilité de rupture d'une pièce de volume V_m soumise à un chargement uniforme σ se calcule via la relation 1.11.

$$P_r(V_m, \sigma) = 1 - e^{-\frac{V_m}{V_0} \left(\frac{\sigma}{\sigma_0} \right)^\omega} \quad (1.11)$$

1.3.3.3 Notion de volume effectif

L'équation 1.11 n'est valable que dans le cas d'un champ de contrainte uniforme, or, dans la majorité des cas, le champ de contrainte sur le volume étudié est variable. Ainsi, on utilise la notion de volume effectif, qui représente le volume d'une éprouvette qui serait soumise à un chargement uniforme égal à la contrainte maximale σ_{max} dans la pièce étudiée, et dont la probabilité de rupture est identique. Le volume effectif et sa probabilité de rupture se calculent suivant les relations 1.12 et 1.13.

$$V_{eff} = \int_{V_m} \left(\frac{\sigma}{\sigma_{max}} \right)^\omega dV_m \quad (1.12)$$

Rappelons que seules les contraintes positives sont retenues car $\sigma_u = 0$.

$$P_r(V_{eff}, \sigma_{max}) = 1 - e^{-\frac{V_{eff}}{V_0} \left(\frac{\sigma_{max}}{\sigma_0} \right)^\omega} \quad (1.13)$$

Notons aussi que le volume effectif ne dépend pas de la valeur mais seulement de la forme du champ de contrainte. Ainsi, dans un calcul mécanique linéaire, quelle que soit l'intensité du chargement, le volume effectif reste le même.

1.3.3.4 Mise en pratique

En pratique, on n'identifie pas directement les caractéristiques V_0 et σ_0 , mais on introduit la résistance caractéristique du matériau η et le volume effectif V_{eff} valables seulement pour la configuration d'essai choisie. Ces constantes, ajoutées au module ω , vont servir de référence pour calculer la probabilité de rupture d'une pièce quelconque. Alors que l'équation 1.14 donne l'expression de η , l'équation 1.15 exprime la probabilité de défaillance d'une nouvelle pièce soumise à un chargement quelconque, de contrainte maximale calculée σ'_{max} , de volume effectif V'_{eff} et de résistance caractéristique η' .

$$\eta = \sigma_0 \left(\frac{V_0}{V_{eff}} \right)^{\frac{1}{\omega}} \quad (1.14)$$

$$P_r(V'_{eff}, \sigma'_{max}) = 1 - e^{-\frac{V'_{eff}}{V_{eff}} \left(\frac{\sigma'_{max}}{\eta} \right)^\omega} \quad (1.15)$$

Les relations 1.16 et 1.17 permettent de calculer la résistance caractéristique η' et la contrainte moyenne à la rupture $\bar{\sigma}'_r$, Γ étant la fonction Gamma d'Euler.

$$\eta' = \eta \left(\frac{V_{eff}}{V'_{eff}} \right)^{\frac{1}{\omega}} \quad (1.16)$$

$$\bar{\sigma}'_r = \eta' \cdot \Gamma \left(1 + \frac{1}{\omega} \right) \quad (1.17)$$

Finalement, après avoir identifié les paramètres η et V_{eff} de l'essai et le module de Weibull ω du matériau, il faut effectuer le calcul mécanique de la pièce d'intérêt puis calculer le volume effectif correspondant V'_{eff} pour enfin accéder à sa probabilité de rupture. Ainsi, dans le cas d'un calcul mécanique par éléments finis, il faut mettre en place un post-traitement spécifique pour réaliser l'intégration du champ de contrainte nécessaire au calcul du volume effectif [Dortmans 90].

Pour caractériser son matériau, une campagne d'essai de rupture a été réalisée pour chaque lot matériau suivant la norme ASTM [ASTM 04]. La mise en pratique de cette campagne ainsi que le traitement des résultats sont détaillés dans la section 2.2.3.1.

1.4 Bilan et objectifs de l'étude

À travers cette première partie, nous avons pu constater que le secteur de la chimie et en particulier celui de l'industrie pharmaceutique est en train de modifier ses procédés de fabrication pour s'orienter vers des procédés continus et intensifiés. Ces nouveaux procédés apportent un gain important en terme de productivité, de sécurité et d'environnement. Pour effectuer cette mutation, les équipementiers commencent à concevoir et proposer des réacteurs intégrés, et en particulier des échangeurs réacteurs intensifiés.

Si l'utilisation du carbure de silicium dans un ERI apporte des avantages indéniables tels que l'efficacité thermique et la résistance à la corrosion, il en résulte aussi des difficultés de mise en oeuvre comme la rupture des plaques lors du serrage.

Dans le but d'aider à la prévision et donc à la conception des ERI, le premier objectif de ce travail sera de construire un modèle thermo-chimique puis thermo-mécanique représentant le comportement de l'assemblage. Dans un deuxième temps, nous nous attacherons à exploiter ces modèles dans un calcul fiabiliste, afin de prendre en compte la variabilité de certains paramètres d'entrée, et ainsi fiabiliser le système.

Chapitre 2

Modélisation thermo-chimique et thermo-mécanique de l'échangeur réacteur

Sommaire

2.1	Modélisation thermo-chimique	60
2.1.1	Enjeux et nécessité d'un code de calcul spécifique	60
2.1.2	Le code de calcul ModER	65
2.1.3	Validation et mise en oeuvre du code de calcul ModER	72
2.1.4	Conclusion sur ModER	82
2.2	Modélisation thermo-mécanique	82
2.2.1	Enjeux et objectifs de la modélisation thermo-mécanique de l'ERI	82
2.2.2	Description du modèle éléments finis	83
2.2.3	Probabilité de rupture et post-traitement	88
2.2.4	Détermination des efforts de serrage	92
2.2.5	Couplage thermo-mécanique lors du fonctionnement	95
2.2.6	Conclusion sur la modélisation thermo-mécanique	98
2.3	Conclusion	98

Table des notations

Par ordre d'apparition :

s	abscisse curviligne
ds	variation de s
dV_r	variation de volume réactionnel
$C(s)_i$	concentration de l'élément i à la position s
A	section du canal
$T(s)$	température du fluide procédé à la position s
$dT(s)$	variation de $T(s)$
dH	exothermie
r	vitesse réactionnelle instantanée
α_i	ordre partiel de l'élément i
k_0	facteur pré-exponentiel
E_a	énergie d'activation
R	constante universelle des gaz parfaits
ΔH_r	enthalpie réactionnelle
$F_T(s)$	densité de flux thermique à la position s
D_m	débit massique
C_p	capacité calorifique thermique
P_c	périmètre de la section du canal
$\{F_p\}_k$	vecteur densité de flux thermique proposé à l'itération k
$\{F_e\}_k$	vecteur densité de flux thermique à l'équilibre à l'itération k
$\{F_T\}$	vecteur densité de flux thermique final
$\{T\}_k$	vecteur température du fluide procédé à l'itération k
$\{T\}$	vecteur température final du fluide procédé
a	coefficient de convergence
E_{max}	critère de convergence
E_k	évaluation du critère E_{max} à l'itération k
G_0	coefficient global d'échange thermique initial
ρ	masse volumique du fluide

$u(s)$	une fonction de s
$u'(s)$	dérivée de la fonction $u(s)$
$f(s)$	une fonction de s
Δs	pas de la différence finie
$C_{i,j}$	concentration de l'élément i au point d'intégration j
T_j	température du fluide procédé au point d'intégration j
T_{in}	température d'entrée du fluide procédé
r_j	vitesse de la réaction au point d'intégration j
$F_{T,j}$	densité de flux thermique au point d'intégration j
$s_{injection}$	abscisse du point d'injection
Nu	nombre de Nusselt
Re	nombre de Reynolds
Pr	nombre de Prandtl
μ	viscosité du fluide
λ	conductivité thermique du fluide
L_c	longueur caractéristique
U_f	vitesse du fluide
h_c	coefficient de convection thermique local
$\{h_c\}$	vecteur des coefficients de convection thermique le long du canal
(x, y, z)	coordonnée cartésienne
$E(s)$	production interne de chaleur au point s
U	coefficient global d'échange thermique
τ	distance caractéristique
T_{stab}	température de stabilisation
s_{stab}	abscisse de stabilisation
m	nombre de discrétisations
EMC	estimateur des moindres carrés
T_k	température calculée au point k
T_{ref_k}	température de référence au point k
x	une variable

a_F, b_F, a_E, b_E des scalaires

Err erreur théorie / calcul

L longueur de canal

E module d'Young

ν coefficient de Poisson

F_l effort linéique

Δl écrasement du joint

F effort global de serrage

f_i effort de serrage du boulon i

ω module de Weibull

D diamètre de l'éprouvette

D_L diamètre de la bague support

D_S diamètre de la bague d'appui

σ_r contrainte à la rupture

P_s probabilité de survie

P_r probabilité de rupture

N nombre total d'éprouvettes

σ_{EF} contrainte calculée par éléments finis

σ_{maxEF} contrainte maximale calculée par éléments finis

V_{effEF} volume effectif du modèle éléments finis

V_i volume de l'élément i

$\sigma_I, \sigma_{II}, \sigma_{III}$ contraintes principales

L'échangeur réacteur est l'équipement central d'une ligne de production avec réaction chimique intensifiée. Il représente un produit de petite série à forte valeur ajoutée. Ainsi, l'utilisation d'outils de modélisation numérique est indispensable pour prévoir son comportement chimique et/ou mécanique et optimiser sa conception tout en limitant le coût de développement.

Les défaillances possibles de l'ERI ont été identifiées comme étant les fuites de fluide procédé ou utilité d'une part, et la rupture d'une plaque procédé en carbure de silicium d'autre part. Elles peuvent survenir lors du serrage et de la mise en contact des plaques pendant le montage, ou lors de l'utilisation de l'ERI, notamment en raison des contraintes thermiques dues à la réaction chimique. Ces conditions limites thermiques peuvent être à l'origine de contraintes mécaniques au sein des plaques procédés, siège de la réaction, ou engendrer des modifications de comportement des zones de contacts et du serrage, notamment à cause des différences de dilatation entre les matériaux constituant l'assemblage.

Les objectifs de cette partie axés sur la modélisation sont multiples :

- modéliser le comportement mécanique de l'ERI lors du serrage à froid pour identifier les zones et paramètres critiques liés à la rupture des plaques,
- modéliser et analyser le comportement thermo-mécanique de l'ERI lors de la mise en pression des circuits et de la réalisation d'une réaction chimique en régime permanent,
- optimiser les paramètres de conception et les conditions de serrage pour maximiser l'écrasement des joints, et donc l'étanchéité, et minimiser les contraintes de contact sur les plaques procédés.

Si la modélisation de l'ERI à froid nécessite seulement des données mécaniques telles que les propriétés des matériaux, les dimensions et les efforts de serrage, la modélisation de son comportement en service nécessite de connaître la répartition des températures dues à la réaction chimique. En effet, le comportement thermique de la réaction va dépendre des propriétés et conditions limites de la réaction chimique, et des conditions de mise en oeuvre du fluide utilité. Il existe aussi autant de conditions limites thermiques différentes que de réactions chimiques. De plus, ces conditions sont très variables selon que la réaction est exothermique ou endothermique. Ainsi, il n'est pas possible de se fixer une condition limite thermique globale représentative. À chaque réaction correspond une condition limite thermique, et donc une modélisation thermo-mécanique différente. Finalement, avant chaque modélisation thermo-mécanique, il est nécessaire de réaliser une modélisation thermo-chimique pour calculer la répartition de température dans la structure et l'utiliser comme condition limite du modèle thermo-mécanique.

La première partie de ce chapitre est consacrée à la présentation du code de calcul spécialement développé pour modéliser le comportement thermo-chimique de l'ERI soumis à

une réaction chimique. Nommé ModER pour « Modélisation d'Échangeurs Réacteurs », ce code permet de calculer la température en tout point de la plaque procédé, mais aussi plusieurs résultats chimiques tels que la température et les concentrations des composés le long du canal.

La seconde partie de ce chapitre présente les modélisations mécanique et thermo-mécanique de l'ERI et leur mise en oeuvre dans un but d'optimisation de la conception.

2.1 Modélisation thermo-chimique

2.1.1 Enjeux et nécessité d'un code de calcul spécifique

2.1.1.1 Définition du problème physique

Le problème physique que l'on souhaite modéliser dans cette partie est principalement un problème de transfert thermique, similaire à celui d'un échangeur de chaleur classique. D'un côté se trouve un fluide chaud, le fluide procédé, qui échange de la chaleur avec la structure au moyen d'un coefficient de convection. Cette chaleur est transmise à travers l'épaisseur de la structure par conduction thermique. Finalement cette chaleur est échangée avec le fluide froid, au moyen d'un nouveau coefficient de convection.

La particularité de ce problème est double. D'une part, la circulation du fluide procédé se fait dans un canal unique de section d'environ 4 mm^2 et de longueur d'environ $2,40 \text{ m}$, dont la géométrie est particulière, ce qui rend complexes les échanges thermiques dans la structure. D'autre part, le fluide procédé est le lieu d'une génération interne de chaleur, issue de l'exothermie de la réaction, qui dépend de la température et de la concentration des réactifs, eux-mêmes variables le long du canal.

La géométrie des canaux procédé et utilité implique un débit massique de fluide utilité, à priori, très supérieur à celui du fluide procédé, et par conséquent une faible variation de température du fluide utilité. Ceci permet de faire une hypothèse importante : la température du fluide utilité est constante sur toute la surface d'échange avec la plaque procédé. Grâce à cette hypothèse, on peut considérer que les plaques procédés sont thermiquement indépendantes. Par conséquent, il suffit de pouvoir modéliser une plaque pour modéliser l'ERI complet, par résolutions successives de l'équilibre thermique de chaque plaque constitutive. Ainsi, à partir de maintenant, la description du problème thermique se concentrera sur une seule plaque.

La figure 2.1 schématise les différents transferts thermiques qui ont lieu au sein de l'ERI. Deux types de transferts thermiques sont illustrés. Le transfert direct, majoritaire, est celui

qui voit la chaleur passer du fluide procédé au fluide utilité directement par conduction à travers la plaque en SiC. Le transfert indirect ne concerne que les parties du canal qui sont proches des bords de la plaque procédé. Dans ce cas, la chaleur passe du SiC à la plaque utilité via la surface de contact, puis au fluide utilité. Ce chemin ajoute une résistance thermique supplémentaire due au contact et à l'acier, dont le coefficient de conduction est faible. Il est donc mineur et négligeable par rapport au transfert direct. Par contre, le transfert entre les différentes parties du canal lui-même, représenté par l'interaction sur la figure 2.1, est non négligeable. Il est dû à la proximité de certaines parties du canal, conséquence de sa géométrie. Ainsi, l'approximation utilisée dans le cadre d'un échangeur classique qui consiste à utiliser un coefficient d'échange global entre le fluide chaud et le fluide froid en $W.m^{-2}.K^{-1}$ n'est pas admissible, car la densité de flux ne dépend pas seulement des températures des deux fluides mais aussi de la température du fluide procédé dans le canal à proximité. Il est nécessaire d'utiliser un autre moyen pour modéliser le comportement thermique de la structure, comme une intégration thermique par éléments finis au moyen d'un code de calcul dédié par exemple.

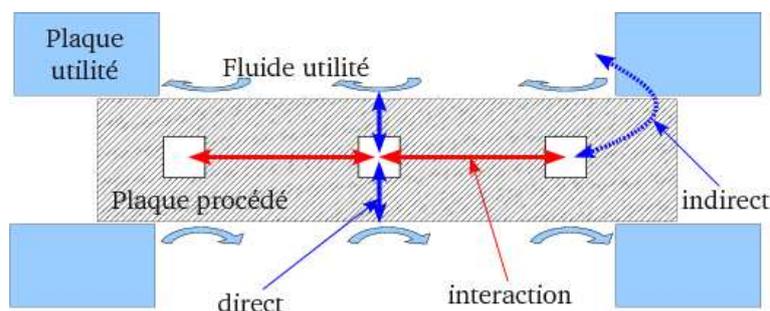


FIGURE 2.1 – Schématisation des différents transferts thermiques dans un ERI

Tout comme la structure, le fluide procédé qui circule dans le canal nécessite une analyse de son comportement thermique. Plaçons nous en un point se situant à une distance s de l'entrée du canal (figure 2.2). La variable s ainsi définie représente l'abscisse curviligne le long du canal, exprimée en millimètre et dont l'origine $s_0 = 0$ représente l'entrée de la plaque. En ce point, le fluide est à une température $T(s)$ et il est composé d'éléments chimiques de concentration $C(s)_i$. En faisant l'hypothèse d'un écoulement de type « piston » (section 1.1.2.1), tout volume $dV_r = A.ds$ circulant le long du canal se modélise comme le volume d'un réacteur discontinu parfaitement agité. L'exothermie de la réaction dH , ou enthalpie, exprimée en W , se calcule donc via la relation 2.1.

$$dH = \Delta H_r r A.ds = \Delta H_r k_0 e^{-\frac{E_a}{R.T(s)}} \prod_{i=1}^n C(s)_i^{\alpha_i} A.ds \quad (2.1)$$

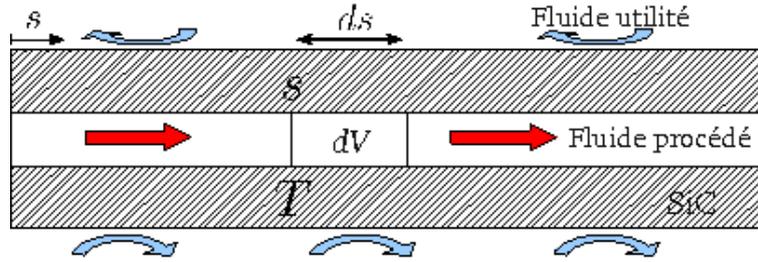


FIGURE 2.2 – Équilibre thermique du fluide procédé et paramétrage du canal

A étant la section du canal en m^2 et r la vitesse de réaction en $mol.L^{-1}.s^{-1}$ selon la relation d'Arrhénius (section 1.1.4).

L'énergie produite par la réaction est d'une part transmise à la structure par une densité de flux $F(s)$, et d'autre part transmise au fluide, provoquant une variation de température $dT(s)$. L'équilibre thermique ainsi défini est exprimé par l'équation 2.2.

$$dH = D_m C_p . dT(s) + F_T(s) P_c . ds \quad (2.2)$$

Avec,

- $F_T(s)$: la densité de flux échangée avec la structure au point d'abscisse s en $J.dm^{-2}.s^{-1}$
- D_m : le débit massique en $kg.s^{-1}$
- C_p : la capacité calorifique thermique du fluide en $J.kg^{-1}.K^{-1}$
- P_c : le périmètre du canal en m

Pour résoudre le problème posé par les équations 2.1 et 2.2, il est nécessaire de connaître la fonction $F_T(s)$, et donc d'avoir préalablement résolu le système thermique lié à la structure. Mais ce système dépend aussi de la température du fluide procédé. Il existe donc un couplage entre la thermique de la structure et la thermo-chimie du fluide procédé, couplage qui devra être pris en compte lors de la résolution du système.

2.1.1.2 Méthodes de calculs pour échangeurs réacteurs

Avant de se lancer dans la résolution du système différentiel précédemment posé, il est intéressant d'avoir un aperçu des différentes solutions déjà envisagées pour résoudre ce type de problème.

Il semble évident de commencer par les solutions permettant la modélisation des ERI comme des échangeurs de chaleur à plaques. Dans leur travail, Averous & al. [Averous 99]

décrivent ainsi la mise en équation de l'échange thermique opérant dans un échangeur de chaleur composé de fines plaques en aluminium brasées (figure 2.3). Le système est résolu par un solveur algébrique nommé DISCo, dont le développement est orienté procédé [Sargousse 99].

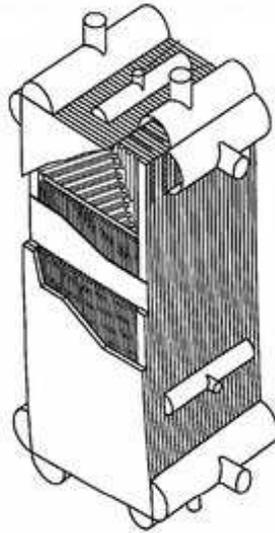


FIGURE 2.3 – Échangeur de chaleur à fines plaques aluminium brasées [Sargousse 99]

Dans les équations utilisées, le transfert thermique est modélisé par un coefficient d'échange global [Averous 99]. Cette approche est valable dans le cas où le transfert se fait directement d'un fluide à l'autre, normal à la plaque, et non dans son plan. Comme vu précédemment, cette hypothèse n'est pas valable dans notre cas puisqu'une partie des échanges se fait dans le plan de la plaque. De plus, ce modèle considère une circulation rectiligne des fluides d'un bout à l'autre des plaques, ce qui ne correspond pas à notre configuration car la géométrie du canal procédé est particulière. Enfin, ce modèle ne prend pas en compte la génération interne de chaleur due à la réaction.

Finalement, si le logiciel de calcul présenté dans cet article, distribué commercialement sous le nom de ProSec[®], semble très intéressant pour modéliser et optimiser un échangeur de chaleur à plaque, il n'est pas adapté à notre problème.

De son côté, le travail exposé dans l'article de Elgue & al. [Elgue 04] s'attache à modéliser le comportement thermo-chimique d'une réaction d'oxydation dans l'OPR (section 1.2.1). Le principe du modèle, présenté sur la figure 2.4, consiste à découper les plaques en plusieurs zones. Chaque zone de la plaque procédé est assimilée à un réacteur discontinu, qui est le lieu d'une génération de chaleur due à la réaction et d'un échange de chaleur avec les zones qui l'entourent. Chaque zone se voit donc affecter un coefficient d'échange local incluant l'effet de la convection et de la conduction.

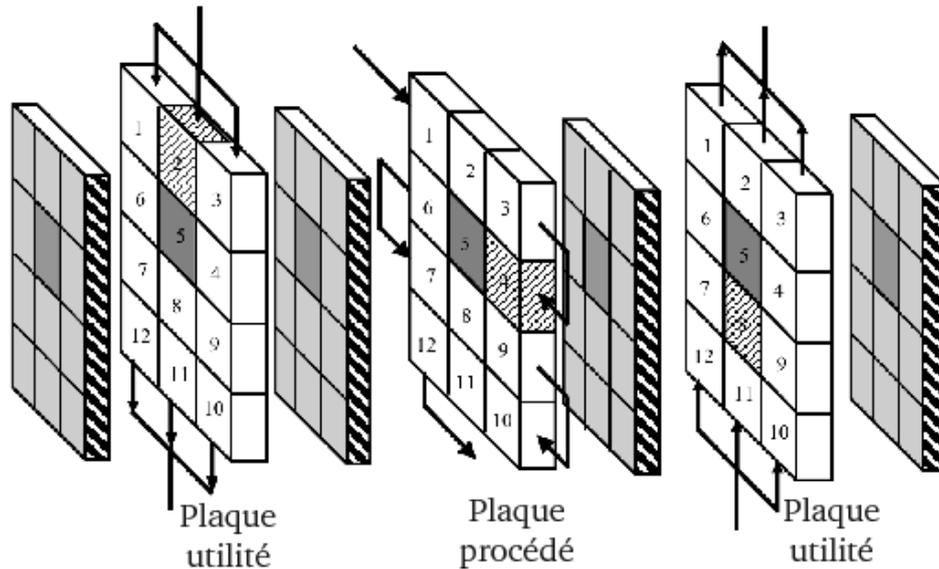


FIGURE 2.4 – Principe de zonage pour le calcul thermo-chimique dans l'OPR [Elgue 04]

Pour évaluer les différents coefficients de transfert à utiliser, un essai en configuration d'échangeur thermique pur (fluide chaud/froid) est réalisé. Les mesures de températures des fluides en différents points permettent de calibrer les coefficients d'échanges locaux. Cette méthode permet de prendre en compte les échanges d'interaction, mais dans le cas d'un échange sans réaction. L'utilisation de ces coefficients lors d'une génération interne de chaleur demeure contestable.

La résolution des équations différentielles est faite au moyen du solveur DISCO, et les résultats obtenus semblent validés par les essais expérimentaux [Elgue 04].

La principale limitation de cette méthode, outre l'approximation des transferts thermiques dans la structure, est le besoin de caractériser ces coefficients sur l'ERI avant de pouvoir le modéliser. Si cette méthode reste intéressante pour optimiser les conditions opératoires d'un procédé, elle perd son intérêt pour la prédiction et l'optimisation d'un ERI en conception.

Une autre approche consiste à utiliser des outils classiques de modélisation numérique comme les éléments finis ou les volumes finis. Par exemple, Scheinder & al. [Schneider 05] utilisent un code de calcul CFD (Computational Fluid Dynamics) pour modéliser le comportement thermo-chimique d'une réaction rapide se déroulant à l'intérieur d'un micro-réacteur. Ce modèle est ensuite utilisé pour identifier les paramètres de la cinétique de réaction. De plus, une modélisation par éléments finis permet aux auteurs de connaître les limites thermo-mécaniques du micro-réacteur.

L'utilisation d'un code de calcul CFD ou d'un code de calcul multiphysique, associant

modèle Eulérien pour le fluide et modèle Lagrangien pour la structure, semble être la méthode la plus adaptée pour modéliser au mieux à la fois le comportement thermique de la structure et le comportement thermo-chimique du fluide. Néanmoins, dans le cas de l'ERI, les dimensions du canal et de la plaque procédé sont telles que le maillage nécessaire engendrerait une taille de système trop importante. En effet, dans ses travaux, Anxionnaz [Anxionnaz 09] montre qu'un maillage composé de 6.10^5 éléments est nécessaire afin de modéliser précisément l'écoulement au sein d'une des 17 portions du canal de la plaque procédé.

2.1.1.3 Conclusion

La mise en équation du problème physique a permis de mettre en avant la nécessité de résoudre l'équilibre thermique de la structure d'une part, et du système thermo-chimique lié au fluide procédé d'autre part. De plus, il a été montré qu'il existe un couplage entre ces deux phénomènes.

Pour les différentes raisons que nous venons d'exposer, les solutions mises en place jusqu'à présent par d'autres auteurs ne sont pas applicables pour l'ERI, justifiant ainsi le développement d'une nouvelle méthode pour réaliser ce calcul.

Cette nouvelle méthode doit être capable d'intégrer le problème thermo-chimique le long du canal, de résoudre le problème thermique de la structure dans son intégralité, et de prendre en compte le couplage entre ces deux parties. Enfin, le calcul doit aussi donner une cartographie des températures dans la plaque procédé, dans le but de pouvoir directement les utiliser comme conditions aux limites pour le calcul thermo-mécanique de l'ERI complet.

2.1.2 Le code de calcul ModER

Afin de prédire le comportement thermo-chimique de la structure de l'ERI, un code spécifique, nommé ModER pour « Modélisation d'Échangeur Réacteur », a été développé. Ce code écrit en Python peut se décomposer en 3 parties : l'algorithme principal en charge de la recherche de l'équilibre, le modèle d'intégration thermo-chimique lié au fluide procédé et le modèle d'intégration thermique lié à la plaque.

2.1.2.1 Principe et algorithme général

La mise en équation du problème effectuée dans la section 2.1.1.1 montre qu'il se décompose en deux parties. D'une part, il faut résoudre le système thermique lié à la structure,

c'est à dire à la plaque procédé, système complexe en raison des échanges transverses dus à l'interaction entre les différentes parties du canal. Ce système est résolu par un modèle éléments finis. D'autre part, le système thermo-chimique lié au fluide procédé est résolu par un algorithme basé sur la méthode des différences finies. L'énergie échangée par le fluide procédé et la structure via la surface du canal est quantifiée par la fonction densité de flux $F_T(s)$, exprimée en $W.m^{-2}$. Elle est le lien entre les deux parties du système. L'objectif de l'algorithme principal de ModER est donc de trouver $F_T(s)$ satisfaisant à la fois l'équilibre thermique de la plaque et l'équilibre thermo-chimique du fluide.

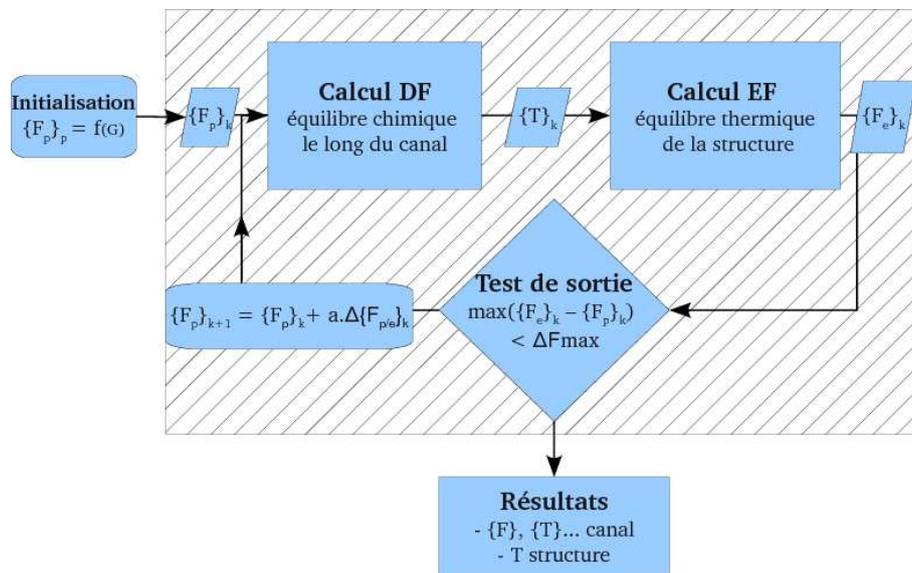


FIGURE 2.5 – Algorithme principal de ModER

La figure 2.5 détaille le fonctionnement de l'algorithme de recherche de $F_T(s)$. Soit $\{F_p\}_k$ un vecteur densité de flux proposé à l'itération k représentant les valeurs de $F_T(s)$ le long du canal, utilisé comme conditions limites dans l'intégration thermo-chimique. La température du fluide le long du canal $\{T\}_k$, résultat de cette intégration, est à son tour utilisée comme condition limite dans le calcul thermique de la structure, via le modèle éléments finis. Le résultat de cette intégration est la densité de flux $\{F_e\}_k$ satisfaisant l'équilibre thermique de la structure. Si le vecteur proposé $\{F_p\}_k$ et le vecteur calculé $\{F_e\}_k$ sont identiques, alors la solution a convergé, le système global est équilibré. Sinon, un nouveau vecteur $\{F_p\}_{k+1}$ est proposé suivant l'expression 2.3, où a est le coefficient de convergence. Par défaut $a = 0,5$, ce qui revient à faire la moyenne des vecteurs $\{F_p\}_k$ et $\{F_e\}_k$.

$$\{F_p\}_{k+1} = \{F_p\}_k + a \left(\{F_e\}_k - \{F_p\}_k \right) \quad (2.3)$$

Même si nous n'avons pas démontré mathématiquement que cette méthode garantit la

convergence de l'algorithme, il s'avère que, dans la pratique, tous les modèles simulés jusqu'à présent ont convergé.

L'estimateur de convergence choisi est l'écart absolu maximal entre les vecteurs densité de flux proposé et équilibré $E_k = \max(\{F_e\}_k - \{F_p\}_k)$. La valeur seuil E_{max} en dessous de laquelle les vecteurs sont considérés identiques, et donc pour laquelle l'algorithme a convergé et l'équilibre a été trouvé, est le critère exprimée en $W.m^{-2}$.

Le point de départ de l'algorithme peut être de différentes formes. Il est soit directement renseigné par une valeur arbitraire du vecteur de départ $\{F_p\}_0$, soit indirectement calculé à partir d'un coefficient d'échange global G_0 physiquement réaliste. Dans ce dernier cas, l'algorithme effectue un premier calcul de l'équilibre thermo-chimique en utilisant G_0 pour évaluer $\{F_p\}_0$ selon la relation $\{F_p\}_0 = (\{T\}_0 - T_u \mathbf{1}) G_0$, avec T_u la température du fluide utilité et $\mathbf{1}$ le vecteur unité. Enfin, il est possible de ne renseigner aucun point de départ. Dans ce cas, l'algorithme fait d'abord appel au calcul thermique éléments finis en appliquant une température de fluide procédé telle que $\{T\} = T_u \mathbf{1} + \mathbf{1}$. Le vecteur flux obtenu en résultat est directement égal au vecteur des coefficients d'échanges locaux le long du canal $\{G\}_0$, sans prise en compte des interactions. Ce vecteur est ensuite utilisé comme point de départ selon une relation similaire au cas précédent.

2.1.2.2 Intégration thermo-chimique par la méthode des différences finies

Dans la boucle de calcul de l'algorithme de ModER, la première étape consiste à intégrer les équations du problème thermo-chimique le long du canal. Dans notre cas, l'ensemble des équations 2.4 et 2.5 forme le système à résoudre.

$$\frac{dT(s)}{ds} = \frac{\Delta H_r Ar(T(s), C(s)_i) - P_c F_T(s)}{D_m C_p} \quad (2.4)$$

$$\frac{dC(s)_i}{ds} = \frac{\rho A \zeta_i r(T(s), C(s)_i)}{D_m} \quad (2.5)$$

ρ désignant la masse volumique exprimée en $kg.m^{-3}$.

Ce système différentiel est unidimensionnel et du premier ordre. Le nombre d'équation dépend du nombre d'éléments chimiques en réaction, mais leur forme peut s'écrire $u'(s) = f(s)$, dont seules les conditions limites $u(0) = u_0$ sont connues (température et concentrations d'entrée).

Parmi les méthodes d'intégration numérique, la méthode des différences finies est adaptée à ce type de système, qui par la formule de Taylor par exemple, permet d'écrire l'approx-

imation 2.6 [Leveque 07].

$$u'(s) = \frac{u(s + \Delta s) - u(s - \Delta s)}{2\Delta s} \quad (2.6)$$

Cette approximation permet d'intégrer des systèmes dont on connaît les conditions limites aux deux extrémités, ce qui n'est pas notre cas puisque l'on ne dispose que de la condition d'entrée $u(0) = u_0$. Pour pallier à cette difficulté, nous utilisons la forme décentrée à droite de l'approximation, exprimée par la relation 2.7.

$$u'(s) = \frac{u(s + \Delta s) - u(s)}{\Delta s} \quad (2.7)$$

Il est aussi possible d'écrire la relation 2.8, qui donne une approximation de la valeur de u au point suivant $s + \Delta s$ en fonction de sa valeur et de sa dérivée au point actuel s . En d'autres termes, cette approximation revient à considérer la variation de u au point s comme étant constante sur l'intervalle $[s; s + \Delta s]$.

$$u(s + \Delta s) = u(s) + \Delta s \cdot u'(s) \quad (2.8)$$

Avant de mettre en oeuvre la méthode d'intégration, le canal doit être discrétisé en m parties égales, de longueur Δs , comme décrit sur la figure 2.6. Les inconnues en chaque point j sont la concentration de chaque élément chimique $C_{i,j}$ et la température du fluide T_j .

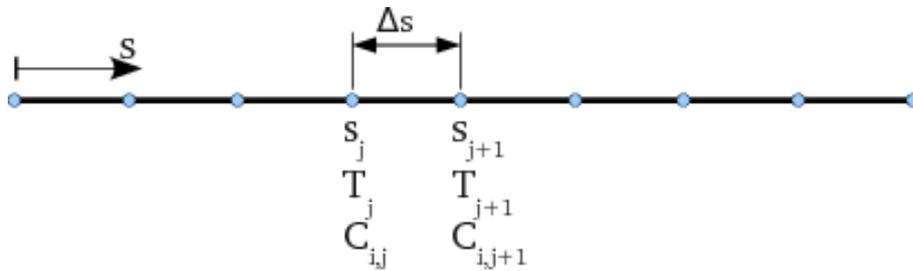


FIGURE 2.6 – Discrétisation du canal pour l'intégration par différences finies du problème thermo-chimique

Une fois le canal discrétisé, il s'agit de calculer la température et les concentrations des produits en chaque point de manière itérative, suivant les équations d'évolution 2.9, pour j variant de 0 à m . Les conditions limites nécessaires sont les concentrations et la température d'entrée du fluide, mais aussi le vecteur $\{F\}$ représentatif de la fonction densité de flux

le long du canal. $F_{j+\frac{1}{2}}$ est la valeur interpolée de cette fonction au point $s_{j+\frac{1}{2}} = s_j + \frac{1}{2}\Delta s$.

$$\begin{cases} r_j = k_0 e^{-\frac{E_a}{R.T_j}} \prod_{i=1}^n C_{i,j}^{\alpha_i} \\ T_{j+1} = T_j + \frac{\sum_{i=1}^n \Delta H_r A r_j - P_c F_{T,j+\frac{1}{2}}}{D_m C_p} \Delta s \\ C_{i,j+1} = C_{i,j} + \frac{\rho A \zeta_i r_j}{D_m} \end{cases} \quad (2.9)$$

Dans le cas où plusieurs réactions sont en concurrence, il est nécessaire de calculer la vitesse de chaque réaction, puis de sommer les enthalpies pour calculer la variation de température. De même pour le calcul de la concentration des différents éléments, la variation de concentration d'un élément est égale à la somme des variations dues à chaque réaction.

La modélisation d'un ou plusieurs points d'injection est aussi possible. Dans ce cas là, il faut, à l'abscisse souhaitée $s_{injection}$, recalculer les concentrations et la température pour prendre en compte le mélange, mais aussi sommer les débits.

Cette méthode permet de calculer la température du fluide ainsi que la concentration de tous ses constituants le long du canal, mais aussi la vitesse des différentes réactions. La température $\{T\}$ est ensuite transmise au modèle éléments finis pour être utilisée comme condition limite dans le calcul de l'équilibre thermique de la structure.

2.1.2.3 Intégration thermique par la méthode des éléments finis

La deuxième étape de l'algorithme de ModER est le calcul de l'équilibre thermique de la plaque procédé parcourue par le fluide à la température $\{T\}$ précédemment calculée. Le problème ainsi posé est résolu au moyen d'un modèle éléments finis thermique linéaire, utilisant le logiciel de calcul Abaqus[®] [Zienkiewicz 00, Abaqus 09]. L'objectif est d'évaluer les flux thermiques et les températures en tout point de la pièce, et en particulier la densité de flux thermique $\{F_T\}$ échangée entre le fluide et la structure le long du canal.

La première hypothèse prise en compte dans le modèle est la symétrie de la géométrie de la plaque ainsi que des conditions limites dans l'épaisseur. Cela se traduit par des conditions d'écoulement et une température du fluide identique sur chacune des deux surfaces d'échange. Le modèle n'est donc physiquement constitué que d'une demi-épaisseur de plaque. De plus, comme l'épaisseur de la demi-plaque (7 mm) est petite par rapport aux deux autres dimensions (140 × 320 mm), le modèle est construit avec des éléments de coques thermiques.

Comme illustré par la figure 2.7, les conditions limites sont appliquées sur la surface du

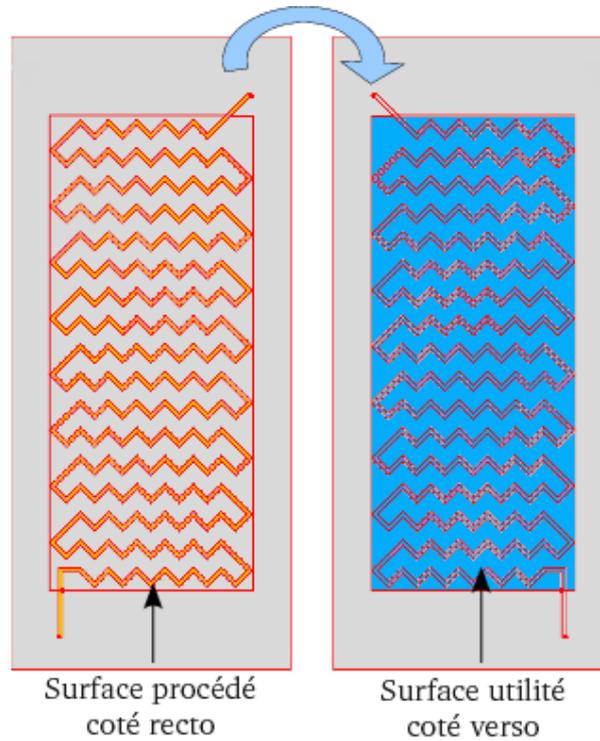


FIGURE 2.7 – Surfaces d'application des conditions limites de convection d'une plaque de l'ERI

canal procédé et la surface en contact avec le fluide utilité. Ces conditions limites sont de type convection, c'est à dire qu'elles représentent un échange convectif d'un fluide sur une surface. Il faut donc, pour chacune d'elle, renseigner la température et le coefficient de convection.

Suivant les équations de la mécanique des fluides, le coefficient de convection est estimé à partir de l'équation 2.10, qui dépend du nombre de Nusselt Nu [Rohsenow 98]. Ce nombre se calcule différemment selon le régime d'écoulement, lui même caractérisé par les nombres de Reynolds Re et de Prandtl Pr (équations 2.11 et 2.12).

$$h_c = \frac{\lambda}{L_c} Nu \quad (2.10)$$

$$Re = \frac{U_f L_c \rho}{\mu} \quad (2.11)$$

$$Pr = \frac{C_p \mu}{\lambda} \quad (2.12)$$

Avec,

μ	: viscosité du fluide ($kg.m^{-1}.s^{-1}$)
C_p	: chaleur spécifique massique ($J.kg^{-1}.K^{-1}$)
λ	: conductivité thermique du fluide ($W.m^{-1}.K^{-1}$)
L_c	: longueur caractéristique (m)
U_f	: vitesse du fluide ($m.s^{-1}$)
ρ	: masse volumique du fluide ($kg.m^{-3}$)

Comme le débit du fluide utilité est estimé suffisamment grand par rapport à celui du fluide procédé, la variation de température sur la surface utilité est suffisamment faible pour être considérée constante. De plus, si on estime l'écoulement uniforme, le coefficient de convection est lui aussi constant. Par exemple, si la température du fluide utilité est de $20^\circ C$, alors le nombre de Reynolds est calculé à 272, ce qui implique un écoulement laminaire puisque $Re < 2300$. Dans ce cas, les abaques donnent $5,597 < Nu < 8,235$, selon la configuration retenue, et le coefficient de convection calculé par la relation 2.10 est $838 < h_c < 1315 W.m^{-2}.K^{-1}$ [Rohsenow 98].

Concernant le fluide procédé, la température a été préalablement estimée par l'intégration thermo-chimique et transmise sous forme d'un vecteur $\{T\}$. Sachant que cette température est variable le long du canal, le coefficient de convection l'est aussi, puisqu'il dépend des propriétés physiques du fluide elles mêmes variant avec la température. D'après les travaux d'Anxionnaz [Anxionnaz 09], un Re de l'ordre de 800 associé à cette géométrie de canal implique un écoulement semblable à celui d'un écoulement turbulent. Ainsi, il est possible d'utiliser une relation empirique telle que celle proposée par Colburn (équation 2.13) pour calculer le nombre de Nusselt, et donc le coefficient de convection local. Ces coefficients sont calculés par ModER et transmis au modèle éléments finis de la même manière que $\{T\}$, par un vecteur $\{h_c\}$.

$$Nu = 0,024.Re^{0,8}Pr^{0,33} \quad (2.13)$$

Les valeurs des vecteurs $\{T\}$ et $\{h_c\}$ sont interpolées et distribuées le long du canal au moyen d'une routine écrite en FORTRAN. Cette routine doit d'abord convertir les coordonnées curvilignes s en coordonnées cartésiennes (x, y, z) , puis affecter les valeurs interpolées aux différents noeuds constituant la surface du canal.

La résolution est réalisée en externe par le calculateur Abaqus[®]. Le code ModER est mis en attente jusqu'à l'obtention du résultat.

Une fois le calcul effectué, une routine écrite en Python permet d'extraire la densité de flux F_T le long du canal. Les coordonnées cartésiennes (x, y, z) sont converties en coordonnées curvilignes s et le vecteur $\{F_T\}$ ainsi reconstitué est renvoyé à ModER.

2.1.3 Validation et mise en oeuvre du code de calcul ModER

Après avoir détaillé le fonctionnement du code ModER développé pour la modélisation thermo-chimique de l'ERI, nous allons exposer les validations analytiques et expérimentales réalisées, puis présenter un exemple concret de mise en oeuvre du code pour la modélisation de l'ERI soumis à une réaction exothermique.

2.1.3.1 Validation analytique de l'intégration thermo-chimique

Comme vu précédemment, l'algorithme ModER fait appel à deux types d'intégration. Si la méthode des éléments finis utilisée pour intégrer le modèle thermique de la structure est classique et relativement éprouvée pour les calculs de type thermique en régime permanent, l'intégration par différences finies (DF) appliquée au problème thermo-chimique est quant à elle originale. L'objectif du travail présenté ici est de comparer les résultats de résolutions faites par l'intégration DF de ModER avec ceux de modèles analytiques correspondants.

Les cas à modéliser doivent être suffisamment simple pour être intégrable analytiquement, mais aussi prendre en compte une variation d'échange thermique avec la structure et de génération interne de chaleur, s'approchant ainsi d'un cas réel.

Cas 1 Le premier exemple choisi est celui d'un échange thermique modélisé par un coefficient de transfert global U , associé à une production de chaleur interne constante E , qui représente l'exothermie d'une réaction. Notons que le coefficient U permet de remplacer l'intégration EF par le calcul simple de $F_T(s) = U(T(s) - T_u)$, et que, selon l'hypothèse déjà énoncée, la température du fluide utilité T_u est considérée constante. Cette configuration nous permet d'écrire l'équation 2.14 issue d'un modèle classique d'échangeur de chaleur, à laquelle on ajoute le terme $EA.ds$ de génération interne. L'équation différentielle correspondante est exprimée par la relation 2.15.

$$EA.ds - U(T(s) - T_u)P_c.ds = D_m C_p.dT \quad (2.14)$$

$$D_m C_p \frac{dT(s)}{ds} + UP_c T(s) - (UP_c T_u + EA) = 0 \quad (2.15)$$

La solution analytique de cette équation différentielle est exprimée par la relation 2.16, dans laquelle T_{in} la température d'entrée du fluide procédé.

$$T(s) = T_u + \frac{EA}{UP_c} + \left[(T_{in} - T_u) - \frac{EA}{UP_c} \right] e^{-\frac{UP_c}{D_m C_p} s} \quad (2.16)$$

Quelles que soient les valeurs numériques, la température tend asymptotiquement vers $T_{stab} = T_u + \frac{EA}{UP_c}$, dont la distance caractéristique est $\tau = \frac{D_m C_p}{UP_c}$. On estime donc la température stabilisée (à 95%) à $s_{stab} = 3\tau$.

L'application numérique est effectuée pour de l'eau, dont la température d'entrée est $T_{in} = 50^\circ C$, le débit massique $D_m = 5 \text{ kg.h}^{-1}$, et la chaleur massique $C_p = 4180 \text{ W.kg}^{-1}.K^{-1}$ à $50^\circ C$. Le canal, identique à celui de l'ERI, est de section $A = 4 \text{ mm}^2$, de périmètre $P_c = 8 \text{ mm}$ et de longueur $L = 2400 \text{ mm}$. Le coefficient d'échange thermique global est $U = 1300 \text{ W.m}^{-2}.K^{-1}$, calculé selon des valeurs représentatives des coefficients de convection utilité et procédé, de l'épaisseur et de la conductivité du SiC. L'exothermie est fixée à $E = 100.10^6 \text{ W.m}^{-3}$, valeur représentative d'une réaction fortement exothermique. Enfin la température du fluide utilité est fixée à $T_u = 20^\circ C$. Dans ces conditions, la température asymptotique calculée $T_{stab} = 58,3^\circ C$ est considérée atteinte à $s_{stab} = 1669 \text{ mm}$, c'est à dire avant la sortie de l'ERI.

La figure 2.8a permet de comparer la température le long du canal calculée par ModER à la fonction de référence 2.16, et ce pour différentes discrétisations m . De plus, la figure 2.8b montre les écarts absolus avec la référence le long du canal. Pour une faible discrétisation $m = 10$, la différences passe par un maximum de $0,82^\circ C$. Lorsque m prend les valeurs 50 puis 100 (raffinement de la discrétisation du canal), l'écart maximal diminue respectivement à $0,14$ puis $0,01^\circ C$.

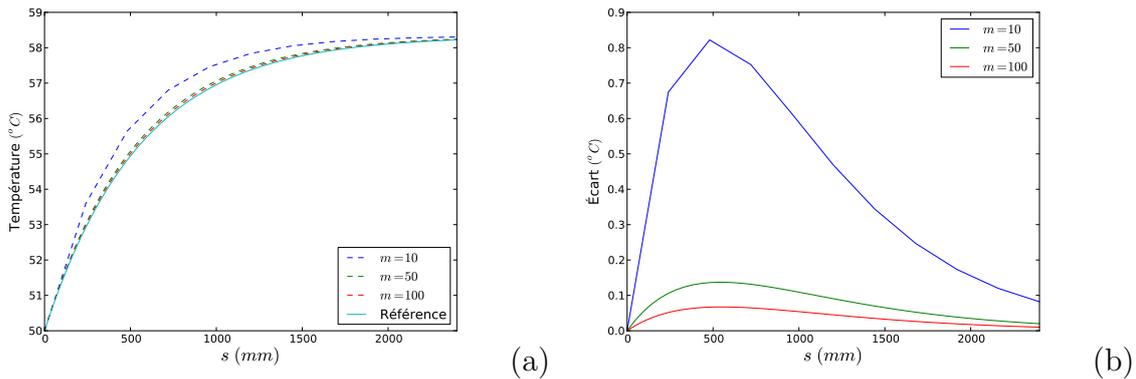


FIGURE 2.8 – Courbes d'évolution de la température (a) et des écarts numérique/analytique (b) le long du canal pour plusieurs discrétisations (cas 1)

En définissant l'estimateur des moindres carrés (EMC) comme la moyenne des carrés des différences entre résultats numériques T_{num_k} et valeurs de référence T_{ref_k} (équation 2.17), et ce pour plusieurs valeurs de discrétisation (m allant de 10 à 100), il est possible de caractériser l'influence de m sur l'erreur du calcul numérique. Ainsi, la figure 2.9 trace l'évolution de l' EMC en fonction de m et permet de conclure que l'erreur diminue quand

la discrétisation augmente, c'est à dire que la méthode de calcul est convergente.

$$EMC = \frac{1}{m+1} \sum_{k=0}^{m+1} (T_{num_k} - T_{ref_k})^2 \quad (2.17)$$

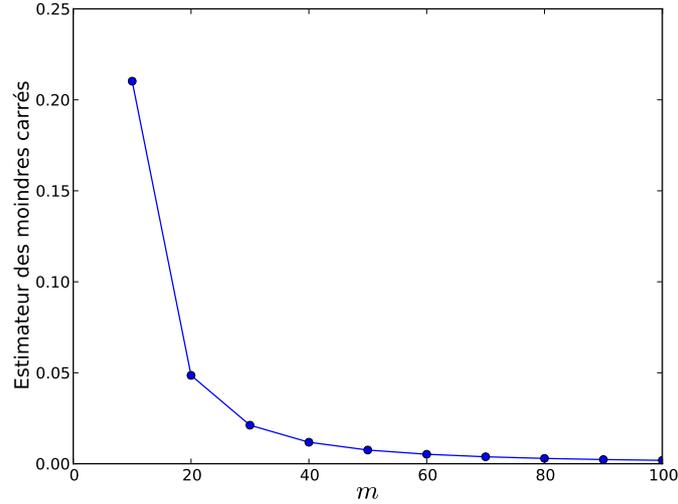


FIGURE 2.9 – Courbe d'évolution de l'estimateur des moindres carrés avec la discrétisation (cas 1)

Cas 2 Afin d'approcher plus précisément les conditions réelles de modélisation, on se propose de considérer un nouvel exemple dans lequel l'exothermie $E(s)$ ainsi que la densité de flux $F(s)$ sont dépendantes de s . À partir de la nouvelle équation d'équilibre 2.18, on obtient la forme générale de la solution analytique 2.19.

$$E(s) A \cdot ds - F_T(s) P_c \cdot ds = D_m C_p \cdot dT \quad (2.18)$$

$$T(s) = T_{in} + \frac{A}{D_m C_p} \int E(s) ds - \frac{P}{D_m C_p} \int F_T(s) ds \quad (2.19)$$

Dans le cas de fonctions linéaires définies par 2.20 et 2.21, la solution analytique est donnée par la relation 2.22.

$$F(s) = a_F \cdot s + b_F \quad (2.20)$$

$$E(s) = a_E \cdot s + b_E \quad (2.21)$$

$$T(s) = T_{in} + \frac{1}{D_m C_p} \left[\frac{(a_E A - a_F P_c)}{2} x^2 + (b_E A + b_F P_c) x \right] \quad (2.22)$$

Pour l'application numérique, les paramètres choisis sont les suivants : $a_F = 25 \cdot 10^{-3}$, $b_F = 0$, $a_E = -42 \cdot 10^{-3}$ et $b_E = 100$. Les résultats présentés sur la figure 2.10 montrent un écart absolu croissant de manière linéaire avec s quel que soit m . Cela s'explique par l'approximation de la différence finie décentrée qui, associée à une exothermie linéaire décroissante et un pas de discrétisation constant, engendre une erreur systématique identique à chaque pas d'intégration. Dans le cas où $E(s)$ est linéaire comme dans cet exemple, l'erreur sur la température pour un pas d'intégration est constante et égale à $Err = -\frac{a_E AL^2}{2m^2 D_m C_p}$. Sur l'ensemble du domaine d'intégration, l'erreur se cumule et suit la fonction $-\frac{a_E AL}{2m D_m C_p} \cdot s$, qui est linéaire et croissante puisque $a_E < 0$. D'après l'expression de Err , l'erreur diminue quand m augmente, ce que l'on observe bien sur la figure 2.10b.

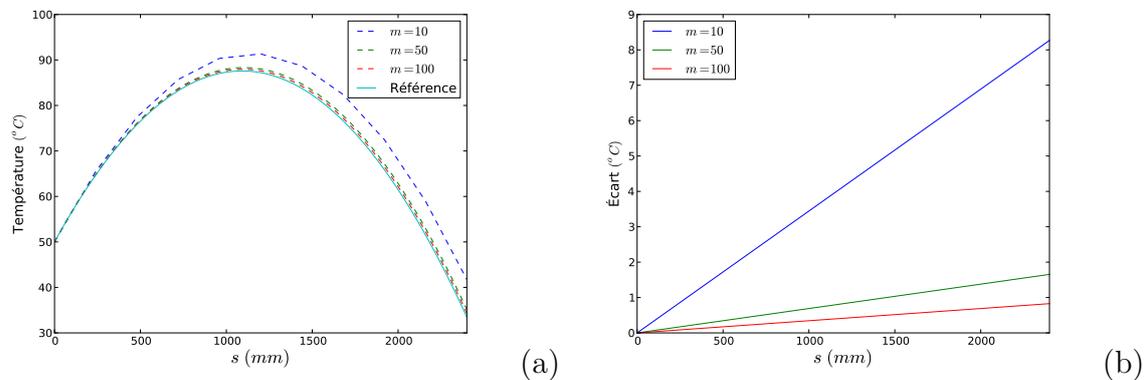


FIGURE 2.10 – Courbes d'évolution de la température (a) et des écarts numérique/analytique (b) le long du canal pour plusieurs discrétisations (cas 2)

Comme dans le cas précédent, la valeur de l' EMC tend vers zéro quand m augmente (figure 2.11). Cela confirme la convergence de l'algorithme avec m .

En conclusion, les deux cas analytiques présentés permettent de valider la méthode d'intégration mise en oeuvre dans le calcul thermo-chimique de ModER. De plus, l'algorithme est bien convergent avec la discrétisation, ce qui assure une erreur négligeable lorsque m est grand. Même si le temps de calcul augmente avec m , il demeure raisonnable. Par exemple, pour $m = 2400$ (soit un pas d'intégration de 1 mm), il est de 0,22 s sur un processeur cadensé à 2 GHz, avec un écart maximal de 0,003°C dans le cas 1 et 0,03°C dans le cas 2.

2.1.3.2 Validation expérimentale en mode « échangeur de chaleur »

L'étape suivante consiste à valider de manière expérimentale l'algorithme complet de ModER, associant l'intégration DF à l'intégration EF de l'échange thermique de la plaque pour la recherche de la densité de flux d'équilibre $F_T(s)$. Le système choisi est celui d'un

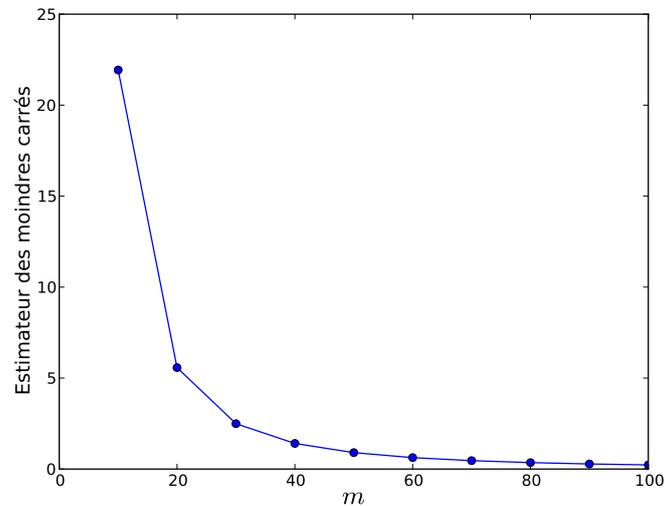


FIGURE 2.11 – Courbe d'évolution de l'estimateur des moindres carrés avec la discrétisation (cas 2)

ERI composé d'une unique plaque procédé, de deux plaques utilités et deux plaques de fermetures, en fonctionnement échangeur de chaleur pur, c'est à dire sans réaction chimique, et donc sans exothermie. Les essais ont été menés à la Maison Européenne des Procédés Innovants¹ (MEPI) à Toulouse par l'équipe du Laboratoire de Génie Chimique (LGC) de Toulouse.

La figure 2.12 montre l'ERI mono-plaque monté sur le banc d'essai. Des thermocouples placés aux entrées et sorties des différents circuits permettent de relever les températures entrée/sortie des fluides procédé et utilité. Huit thermocouples sont positionnés dans les orifices prévus à cet effet (voir figure 2.13). Ces thermocouples permettent de mesurer la température de la plaque, 2 mm en dessous du canal procédé. Du côté du calcul, ces températures seront extraites du modèle éléments finis.

Deux jeux de conditions opératoires ont été évalués. Dans les deux cas, le fluide utilité est de l'eau dont le débit est fixé à 185 kg.h^{-1} , la température d'entrée à 17°C , et le coefficient de convection estimé à $1600 \text{ W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$. Comme mentionné dans la section 2.1.2.3, la température et le coefficient de convection du fluide utilité sont considérés constant sur toute la surface d'échange. Côté procédé, le fluide est aussi de l'eau dont les conditions d'entrée sont $5,04 \text{ kg.h}^{-1}$ et $64,5^\circ\text{C}$ pour l'essai 1 et $5,53 \text{ kg.h}^{-1}$ et $49,1^\circ\text{C}$ pour l'essai 2. Pour le modèle éléments finis, le coefficient de convection du fluide procédé est calculé selon la relation de Colburn déjà énoncée dans la section 2.1.2.3 (équation 2.13).

1. <http://www.mepi.fr>

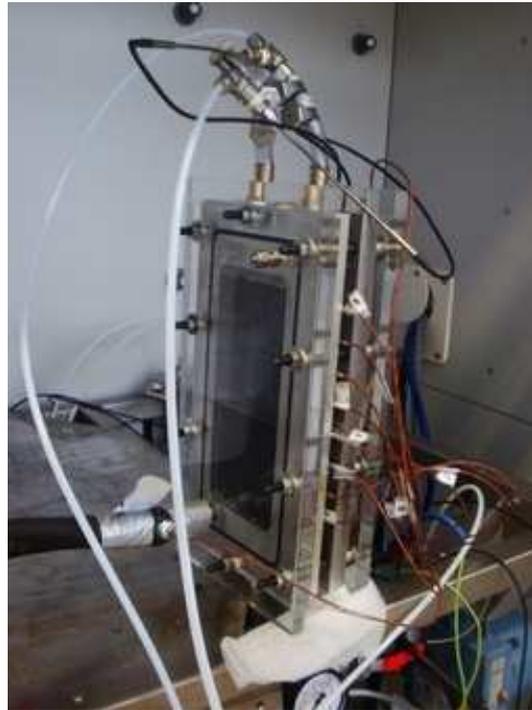


FIGURE 2.12 – L'ERI mono-plaque sur le banc d'essai thermique

Le calcul numérique réalisé par ModER converge en 6 itérations et 62 s pour le cas 1, et 7 itérations et 75 s pour le cas 2, avec dans les deux cas un critère de convergence de 1 mW.mm^{-2} . La figure 2.14 représente l'évolution de l'estimateur de convergence avec les itérations et confirme le caractère convergent de l'algorithme de ModER.

D'après les résultats expérimentaux, la différence de température utilité entre l'entrée et la sortie n'excède pas $1,5^\circ\text{C}$. Cela confirme l'hypothèse selon laquelle la température du fluide utilité est constante (section 2.1.2.3).

La figure 2.15 regroupe les résultats expérimentaux et numériques pour les comparer. La différence numérique/expérimental de la température de sortie du fluide procédé est de $+1,0^\circ\text{C}$ pour le cas 1 et de $+0,5^\circ\text{C}$ pour le cas 2. La tendance de la courbe de température calculée est similaire aux températures mesurées dans la plaque. Par contre, il est important de noter la différence non négligeable entre les deux premières températures de plaque mesurées et calculées. Par exemple, pour la première, l'écart est de $6,3^\circ\text{C}$ pour le cas 1 et $3,5^\circ\text{C}$ pour le cas 2. Sachant que l'intégration thermo-chimique a été précédemment validée, il semble plus raisonnable de remettre en cause les mesures expérimentales ou la représentativité du modèle éléments finis. En plus de l'erreur systématique due à l'appareil de mesure, les conditions de mise en oeuvre des thermocouples peuvent générer des écarts. Dans notre cas, l'utilisation d'une goutte d'huile en bout de thermocouple permet d'assurer le contact avec la structure, mais il peut en résulter une sous-estimation

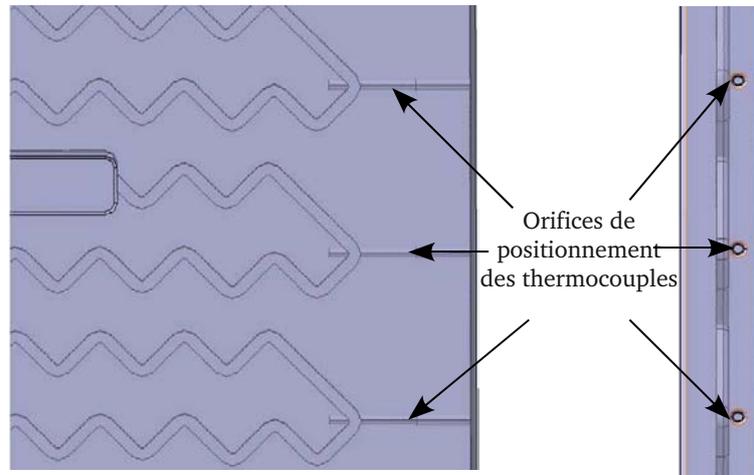


FIGURE 2.13 – Position des thermocouples dans la plaque procédée

de la température. De plus, il n'est pas évident que le thermocouple soit positionné sur une iso-valeur de température, condition nécessaire à l'évaluation précise d'une température. Le modèle thermique éléments finis quant à lui ne prend pas en compte les orifices des thermocouples pouvant générer une perturbation locale du flux thermique et, par conséquent, du champ de températures. De plus, l'utilisation d'éléments de coques thermiques peut être responsable d'une approximation excessive. L'évolution vers un modèle 3D complet pourrait permettre de diminuer cet écart, au prix d'une taille de modèle, et donc d'un besoin de ressource, beaucoup plus important.

La confrontation du calcul numérique aux deux essais expérimentaux a permis de confirmer la convergence de l'algorithme de ModER dans la recherche de la densité de flux d'équilibre, mais aussi sa capacité à modéliser le comportement thermique global de l'ERI. Une validation thermo-chimique mettant en jeu une réaction exothermique connue aurait été plus intéressante, mais n'ayant pas la maîtrise de la mise en oeuvre expérimentale de l'ERI, cette confrontation n'a pas été possible. De plus, il n'est pas encore possible de modéliser la réaction de synthèse du projet INPAC car, comme cette réaction est en développement, ses constantes cinétiques ne sont pas encore connues.

2.1.3.3 Modélisation d'une réaction exothermique dans l'ERI

Dans cette section, nous allons tester les capacités du code ModER pour la modélisation d'un cas thermo-chimique complet, c'est à dire avec réaction exothermique.

Pour ce cas de calcul, la réaction choisie est l'oxydation du thiosulfate de sodium par le peroxyde d'hydrogène dont le schéma réactionnel est exprimé par 2.23. Cette réaction produit du trithionate de sodium, du sulfate de sodium et de l'eau. Les propriétés

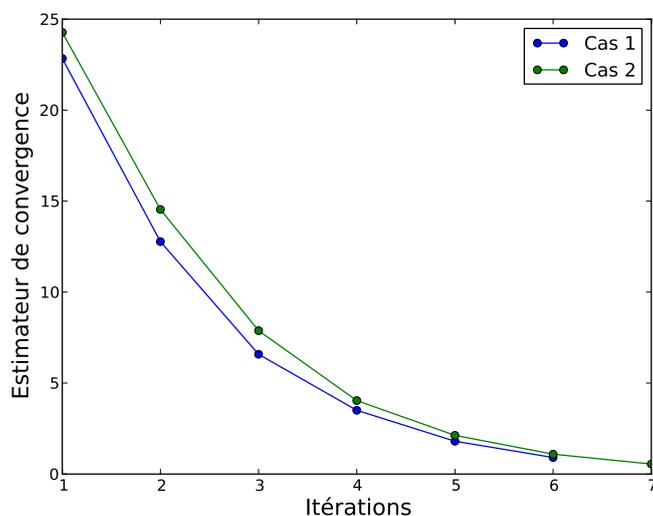


FIGURE 2.14 – Évolution de l'estimateur de convergence avec les itérations

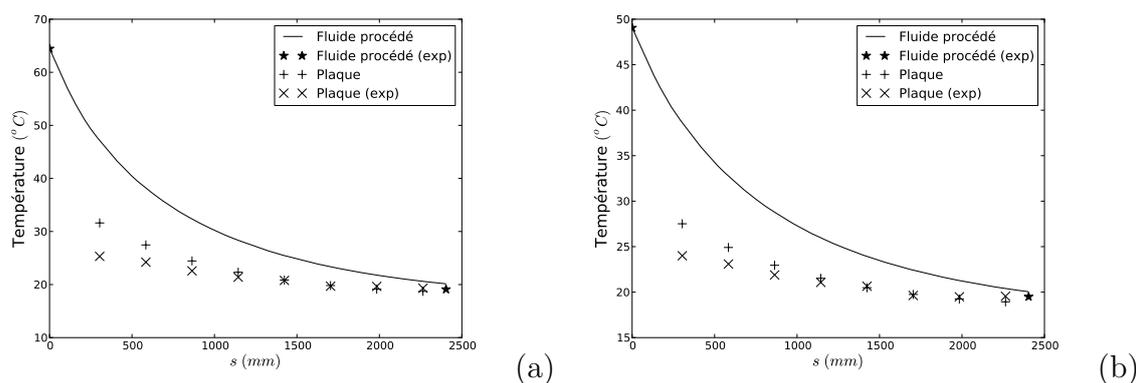
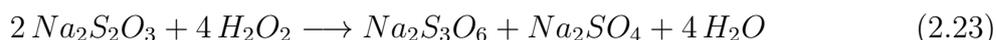


FIGURE 2.15 – Comparaison des résultats numériques et expérimentaux pour les configurations 1 (a) et 2 (b)

cinétiques de cette réaction sont $E_a = 6,82 \cdot 10^4 \text{ J.mol}^{-1}$, $k_0 = 2,0 \cdot 10^{10} \text{ L.mol}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ et $\Delta H_r = 5,862 \cdot 10^5 \text{ J.mol}^{-1}$ [Lin 81], ce qui en fait une réaction fortement exothermique.



Concernant les conditions limites, le fluide procédé est injecté à une température de 50°C et un débit massique total de $4,62 \text{ kg.h}^{-1}$. Le thiosulfate de sodium et le peroxyde d'hydrogène le composent à 4,1 et 9,0 % massique, le reste étant de l'eau. La température du fluide utilité est fixée à 40°C et son coefficient de convection à $1600 \text{ W.m}^{-2} \cdot \text{K}^{-1}$. Le coefficient de convection du fluide procédé sera lui calculé à partir de la relation de Colburn 2.13 comme précédemment. Enfin le critère de convergence est fixé à $1,0 \text{ mW.mm}^{-2}$.

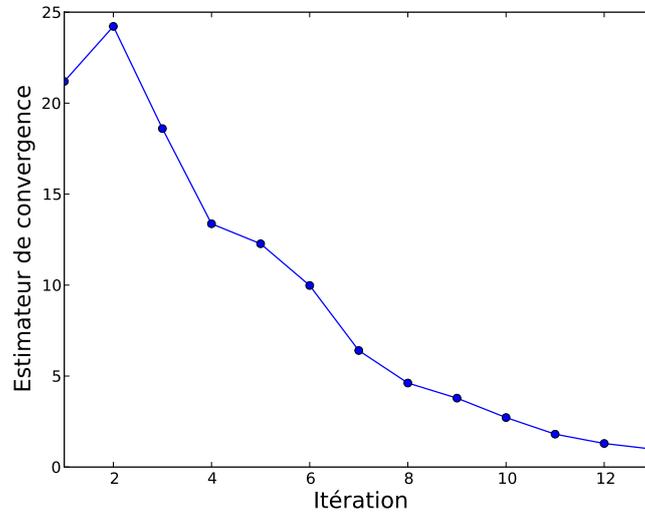


FIGURE 2.16 – Évolution de l'estimateur de convergence pour l'exemple thermo-chimique

Dans ces conditions, l'algorithme converge en 13 itérations et 162 s, comme le montre la figure 2.16.

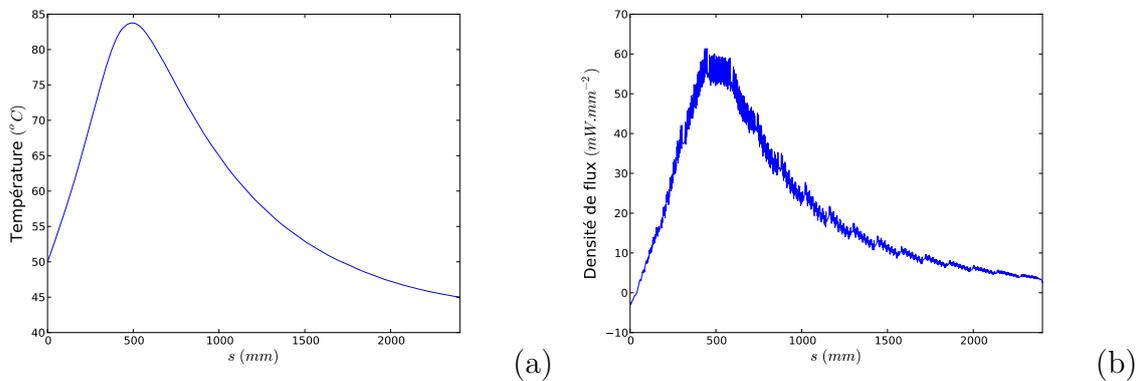


FIGURE 2.17 – Évolution de la température (a) et de la densité du flux (b) le long du canal à l'état d'équilibre

À l'état d'équilibre, la température du fluide procédé présente un pic de $83,8^{\circ}C$ à $s = 490\text{ mm}$ (figure 2.17a). Il est intéressant de noter qu'en début de canal, la densité de flux est quasiment nulle voire même négative, ce qui signifie que le fluide procédé reçoit de la chaleur du système (figure 2.17b). Ceci s'explique par la proximité du point chaud et la prédominance des interactions face au transfert thermique direct dans cette zone. L'évolution de la réaction chimique, exposée par la figure 2.18a, explique la présence du pic de température en début du réacteur puisque la vitesse réactionnelle, et donc l'exothermie,

est à son maximum $0,31 \text{ mol.L}^{-1}.\text{s}^{-1}$ à $s = 330 \text{ mm}$. La raréfaction des réactifs due à cette consommation rapide provoque ensuite une chute de la vitesse réactionnelle, ce qui explique que, peu après, le flux thermique devienne prépondérant par rapport à l'exothermie, et que la température du fluide baisse. L'analyse de l'évolution des débits massiques des différents composés permet de confirmer la rapide consommation des réactifs, puis la stabilisation de leur quantité en milieu de réacteur (figure 2.18b). Enfin, les débits massiques calculés en sortie de réacteur, résumés dans le tableau 2.1, permettent de calculer un rendement de 85 %.

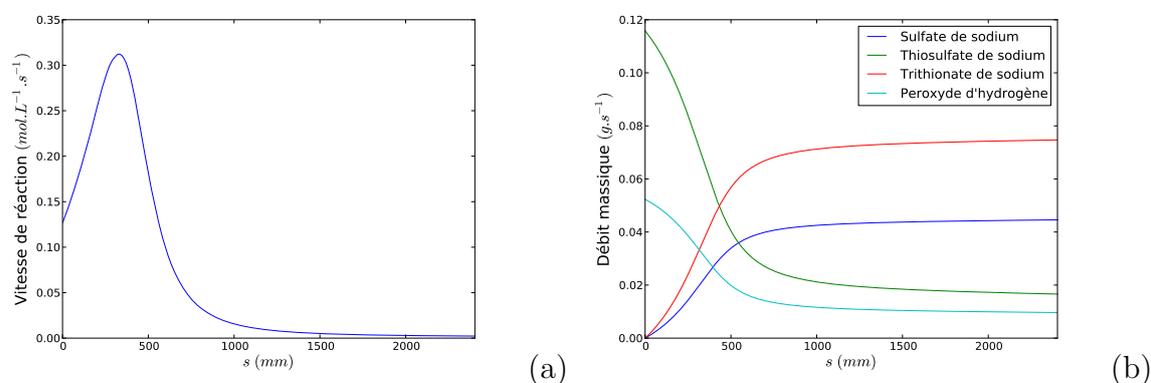


FIGURE 2.18 – Évolution de la vitesse réactionnelle (a) et des débits massiques (b) le long du canal à l'état d'équilibre

Éléments	Débit d'entrée ($\text{mg}.\text{s}^{-1}$)	Débit de sortie ($\text{mg}.\text{s}^{-1}$)
Peroxyde d'hydrogène	52,3	9,6
Thiosulfate de sodium	115,8	16,6
Trithionate de sodium	0	74,7
Sulfate de sodium	0	44,6

TABLE 2.1 – Débits d'entrée et de sortie des différents éléments

En plus des résultats thermo-chimique, le calcul permet de donner la cartographie de la température dans toute la structure du réacteur, via le fichier résultat du calcul éléments finis à la dernière itération. Cette cartographie sera utilisée pour le calcul thermo-mécanique.

2.1.4 Conclusion sur ModER

Le développement du code spécialisé ModER a été motivé par la nécessité de prédire le comportement thermique de la structure d'un ERI, lui-même dépendant du comportement thermo-chimique du fluide réactionnel injecté. Le traitement séparé des équilibres thermo-chimique du fluide et thermique de la structure permet soit de faire varier la réaction chimique sans avoir à modifier le modèle thermique, soit de changer l'ERI, via un nouveau modèle éléments finis, sans avoir à modifier le modèle thermo-chimique. Le code ModER permet de simuler plusieurs réactions chimiques en concurrence, ainsi que plusieurs points d'injections le long du canal. Bien qu'il ait été développé pour calculer la répartition de la température dans la structure, il s'avère aussi intéressant pour les résultats thermo-chimiques qu'il produit. En effet, ModER pourrait par exemple être utilisé pour identifier les paramètres cinétiques d'une réaction chimique [Schneider 05].

Plusieurs cas de calcul ont permis, d'une part, de valider l'intégration thermo-chimique par comparaison avec les solutions analytiques associées et, d'autre part, de valider la méthode de calcul globale par comparaison avec des essais en fonctionnement échangeur pur. Néanmoins, il serait intéressant de pouvoir poursuivre la validation par la comparaison d'un cas expérimental complet d'ERI soumis à une réaction thermo-chimique.

Finalement, ModER est opérationnel pour la modélisation thermo-chimique de l'ERI, et les résultats thermiques liés à la structure peuvent être utilisés comme conditions limites d'un modèle thermo-mécanique.

2.2 Modélisation thermo-mécanique

2.2.1 Enjeux et objectifs de la modélisation thermo-mécanique de l'ERI

Lors d'une précédente étude, les essais expérimentaux effectués sur l'ERI_v1 ont démontré les capacités thermiques et thermo-chimiques de ce nouveau type d'échangeur réacteur, et mis en avant les principales limites de cette première version [Duperrioux 07]. Ce concept d'empilement de plaques, dont des joints toriques assurent l'étanchéité, implique un risque de fuite lors de la mise en pression des circuits. La première solution envisagée était d'augmenter l'effort de serrage, au risque d'engendrer des ruptures fragiles au sein des plaques en carbure de silicium. Même si, dans la nouvelle version de l'ERI, l'utilisation de plaques utilité en acier permet de les limiter, les contraintes de contact dues au

serrage restent les principales causes responsables de la rupture des plaques SiC. Pour cela, le serrage s'effectue actuellement jusqu'à la simple mise en contact des plaques, ce qui correspond à l'écrasement maximal souhaité des joints [Simrit 09]. Lors de la mise en pression du fluide utilité, on observe des fuites aux alentours de $0,5 \text{ MPa}$.

Le premier objectif de ce travail est de déterminer les efforts de serrages optimaux à appliquer sur chaque boulon, permettant de garantir l'étanchéité du système au-delà de $0,5 \text{ MPa}$ tout en limitant les risques de rupture des plaques en carbure de silicium.

Lors de la mise en fonctionnement de l'ERI, la réaction chimique impose un gradient de température variable dans la plaque procédé. D'un point de vue mécanique, un gradient thermique peut engendrer un champ de contrainte non nul. Ainsi, le deuxième objectif est de calculer le champ de contrainte dans la plaque procédé induit par le passage d'une réaction chimique. Il est évident qu'il existe autant de cas de charge que de réaction chimique et de conditions opératoires. L'étude sera donc menée pour le cas particulier de la réaction exothermique décrite dans la section 2.1.3.3, la méthode resterait applicable pour d'autres réactions.

Enfin, même si les gradients de température et leur impact sur les champs de contraintes dans les plaques utilité et de fermeture sont négligeables, la dilatation thermique globale des plaques induit une modification des efforts de serrage et, par conséquent, des contraintes dans les plaques. Pour cela, le troisième et dernier objectif de l'étude est d'étudier l'impact de la température sur le montage complet de l'ERI.

2.2.2 Description du modèle éléments finis

D'un point de vue mécanique, la particularité de l'ERI est l'empilement des 5 plaques en matériaux différents. Cet empilement met en jeu plusieurs contacts sur de larges surfaces, et ces plaques sont liées par des joints qui transmettent des efforts supplémentaires aux zones de contact joint/plaque. Le serrage est assuré par 10 boulons positionnés sur le pourtour des plaques de fermeture.

Le modèle doit donc prendre en compte le comportement mécanique des plaques et les contacts entre elles, l'impact du comportement mécanique des joints et l'application des efforts de serrage des boulons sur les plaques de fermeture.

2.2.2.1 Comportement mécanique des plaques

L'ERI est composé de 5 plaques, dont 1 plaque procédé en carbure de silicium, 2 plaques utilité et 2 plaques de fermeture en acier inoxydable 316L. Le comportement mécanique

des plaques est considéré élastique isotrope, avec un module d'Young $E = 210 \text{ GPa}$ et un coefficient de Poisson $\nu = 0,3$ pour l'acier, et $E = 420 \text{ GPa}$ et $\nu = 0,17$ pour le SiC.

Concernant les géométries, les gorges de joints et les trous de passage des boulons de serrage dans les plaques utilité sont négligés, ainsi que les trous de passage des fluides dans toutes les plaques. De même le canal de circulation du fluide procédé dans la plaque SiC est négligé, ce qui revient à considérer la plaque pleine. Même si cette dernière hypothèse est contestable, elle se justifie par le besoin d'un modèle relativement léger dans un premier temps, dans le but de valider l'approche.

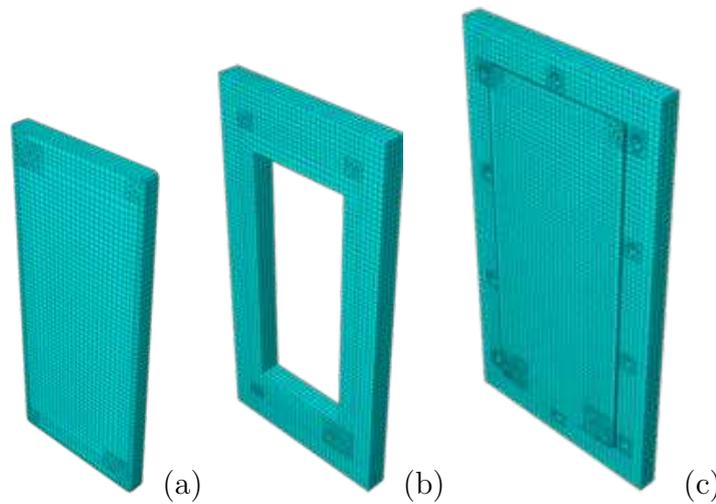


FIGURE 2.19 – Maillage des plaques procédé (a), utilité (b) et de fermeture (c) du modèle éléments finis

Les plaques sont modélisées par des éléments 3D linéaires, préférés aux élément coques (figure 2.19). Les raisons principales de ce choix sont la nécessité d'accéder aux contraintes et dilatations dans le sens travers des plaques, et la possibilité d'affecter un gradient de température issue du calcul thermo-chimique dans l'épaisseur de la plaque procédé. De plus, des éléments linéaires sont préconisés pour la gestion des contacts complexes [Abaqus 09].

Enfin les conditions d'interaction de contact entre chaque plaque sont modélisées. Les 4 contacts définis sont considérés parfaits, sans prise en compte des efforts de frottement.

2.2.2.2 Caractérisation et représentation des joints

Les joints utilisés dans le montage de l'ERI sont des joints à base de fluoroélastomère, offrant un bon comportement à température élevée et une bonne résistance aux produits chimiques corrosifs. Ces joints sont de forme torique de diamètre 4 mm , et sont positionnés

dans des gorges de profondeur $3,2\text{ mm}$. L'écrasement maximal de $0,8\text{ mm}$ est considéré atteint lors du premier serrage. L'assemblage comporte au total 4 grands joints et 4 petits joints. Comme le montre la figure 2.20, les grands joints assurent l'étanchéité du fluide utilité alors que les petits assurent celle du fluide procédé.

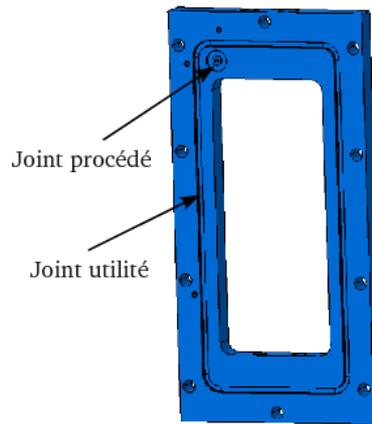


FIGURE 2.20 – Positionnement des joints sur la plaque utilité

Le comportement mécanique des élastomères en général est élastique non linéaire et caractérisé, entre autre, par l'effet de Mullins qui traduit la perte de rigidité du matériau suite à un cyclage en contrainte. La perte de raideur survient en pratique lors de premier cycle et n'évolue pas tant que la contrainte appliquée reste inférieure ou égale à celle du premier cycle (figure 2.21). Plusieurs modèle comme celui de Ogden et Roxburgh [Ogden 99] permettent de caractériser l'effet de Mullins [Meunier 07].

Néanmoins, dans notre cas, l'intérêt n'est pas de modéliser le comportement de l'élastomère mais celui du joint, et de son impact sur le comportement mécanique de l'ensemble de l'empilement. Pour cela, des éléments de joints 3D linéiques sont utilisés (figure 2.22) [Abaqus 09]. Ces éléments permettent de modéliser l'effort de réaction du joint en fonction de l'écrasement. Les degrés de liberté de ces éléments sont liés aux plaques avec lesquelles ils sont en contact.

Le comportement des éléments de joints est piloté par une courbe caractéristique donnant la force linéique de réaction du joint F_l en fonction de l'écrasement Δl . Pour caractériser ce comportement, une campagne d'essais de compression a été réalisées sur plusieurs joints toriques identiques. Un premier chargement est effectué jusqu'à un écrasement maximal de $0,8\text{ mm}$, ce qui représente le serrage initial et maximal des plaques jusqu'à mise en contact. Cela permet d'écarter l'effet de Mullins sur les cycles suivants et de représenter le comportement réel des joints lors de l'utilisation de l'ERI. Les joints sont caractérisés lors du chargement suivant et les résultats sont présentés sur la figure 2.23. Une série de

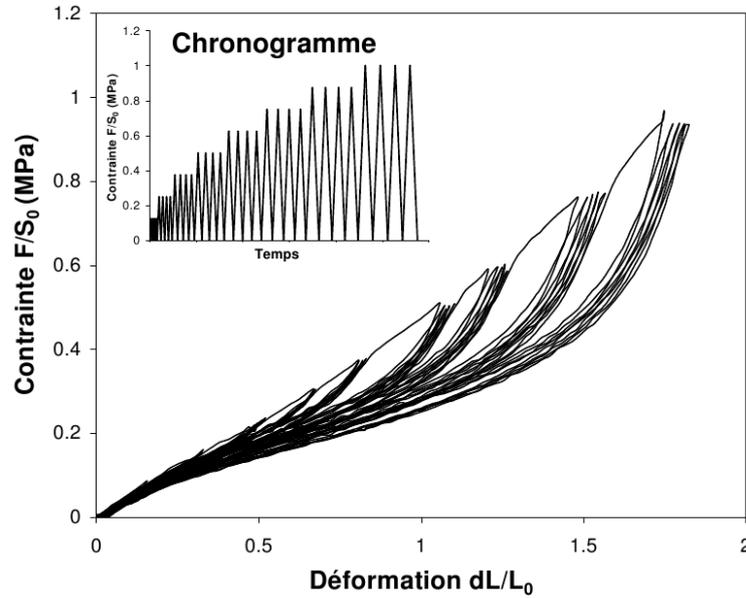


FIGURE 2.21 – Exemple d'effet de Mullins observé sur un élastomère silicone [Meunier 07]

points moyens a été calculée à partir de ces résultats, pour être utilisée comme courbe de comportement des éléments joints.

D'après la documentation du fournisseur, la fonction d'étanchéité est garantie pour un écrasement du joint entre 10 et 20 % de son diamètre initial, ce qui correspond dans notre cas à un déplacement compris entre 0,4 et 0,8 mm [Simrit 09]. Sachant que l'écrasement maximal est limitée à 0,8 mm par la profondeur des gorges, c'est la limite inférieure de 0,4 mm qui est à prendre en compte pour définir le critère d'étanchéité : $\Delta l > 0,4 \text{ mm}$.

2.2.2.3 Application des conditions limites et chargements

L'ensemble de l'ERI est soumis à deux types de chargement, un chargement mécanique et un chargement thermique correspondant pour le premier au serrage des boulons et à la pression des fluides, et pour le second à l'exothermie de la réaction chimique. Le champ de température de la plaque procédé est préalablement calculé par ModER puis directement appliqué au modèle si les maillages sont identiques, ou sinon suite à une interpolation permettant le recallage des deux grilles. Dans le cas présent, comme le modèle ModER est à base de coques alors que le modèle mécanique est à base de briques, un script écrit en Python a été développé pour prendre en charge le report des températures calculées aux points d'interpolation des éléments coques (modèle thermo-chimique) vers les noeuds du modèle 3D solide (modèle thermo-mécanique). Pour les autres plaques, la température en fonctionnement est considérée constante dans toute la structure et égale à la température

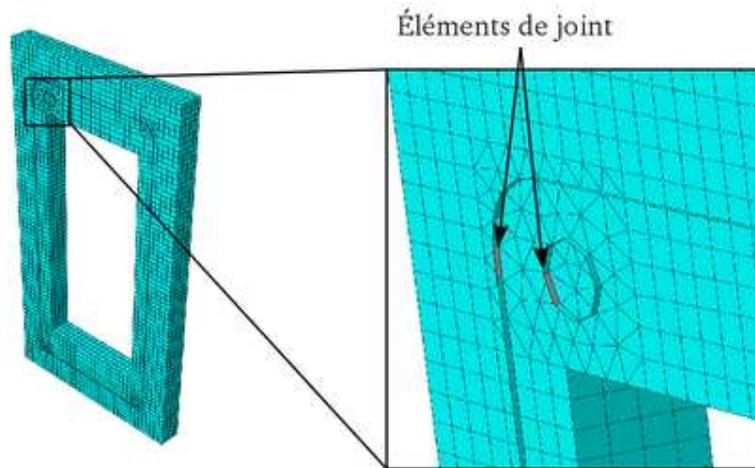


FIGURE 2.22 – Exemple de mise en oeuvre des éléments de joints

du fluide utilisé.

Concernant le chargement mécanique, les boulons ne sont pas physiquement modélisés mais leur action est traduite par les efforts appliqués sur les plaques de fermeture. Pour ce faire, un noeud de référence est défini pour chaque trou de chaque plaque de fermeture. Ce noeud « maître » est couplé aux noeuds situés sur l'arête du trou correspondant, comme le montre la figure 2.24. Ces noeuds référents sont numérotés de 1 à 20, avec les 10 premiers noeuds appartenant à la plaque du haut et les 10 derniers à la plaque du bas. Selon le principe d'équilibre mécanique, l'effort ponctuel f_i appliqué au noeud i est directement opposé à celui appliqué à son vis à vis $i + 10$. L'effort global de serrage F appliqué à la structure se définit selon la relation 2.24.

$$F = \sum_{i=1}^{10} f_i = -\sum_{i=10}^{20} f_i \quad (2.24)$$

2.2.2.4 Conclusion

Finalement le modèle mécanique de l'ERI, tel qu'il est présenté dans la figure 2.25, nécessite des ressources relativement importantes puisqu'il est composé de 60088 éléments et 81216 noeuds. La taille du système est de 219096 degrés de liberté ce qui, associé aux non linéarités dues à la propriété des joints et à la gestion des contacts, représente un temps de calcul compris entre 1 et 5 *min* selon les cas de charge, sur un ordinateur à 4 processeurs parallélisés cadencés à 2 *GHz* et 4 *Go* de mémoire vive. Si ce temps de calcul paraît court pour un modèle mécanique complexe, il peut s'avérer problématique pour une analyse fiabiliste utilisant une méthode par simulations.

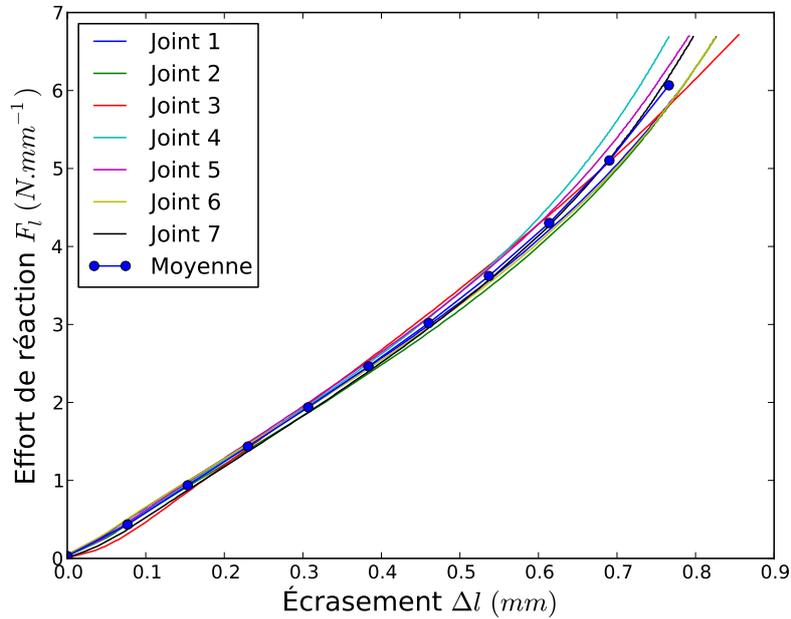


FIGURE 2.23 – Courbes d'évolution de la force en fonction de l'écrasement pour des essais de compression sur joints toriques

2.2.3 Probabilité de rupture et post-traitement

Comme exposé dans la section 1.3.3, la rupture de la plaque en carbure de silicium ne peut être traitée de manière déterministe. L'analyse statistique de la rupture nécessite l'identification des paramètres de la loi de rupture du SiC dans un premier temps, et le post-traitement des résultats des différents calculs mécaniques dans un second temps.

2.2.3.1 Identification des paramètres de la loi de rupture du SiC

Avant de pouvoir déterminer la probabilité de rupture de la plaque en carbure de silicium soumise à un champ de contrainte, il est nécessaire de caractériser le matériau, et en particulier d'identifier le module de Weibull ω lié au lot de matière, la contrainte caractéristique η et le volume effectif V_{eff} liés à l'essai de référence. Pour cela, 33 éprouvettes circulaires de diamètre $D = 66 \text{ mm}$ et d'épaisseur $e = 4 \text{ mm}$ ont été soumises à un essai de rupture équibiaxial selon la norme ASTM [ASTM 04]. Comme décrit sur la figure 2.26, lors de cet essai, l'éprouvette est positionnée au centre d'une bague support de diamètre $D_L = 60 \text{ mm}$ et soumise à un effort F au travers d'une bague d'appui de diamètre $D_S = 12 \text{ mm}$. Le résultat de cette campagne est une série de 33 contraintes à la rupture, notées σ_i avec i variant de 1 à 33, et classées par valeurs croissantes.

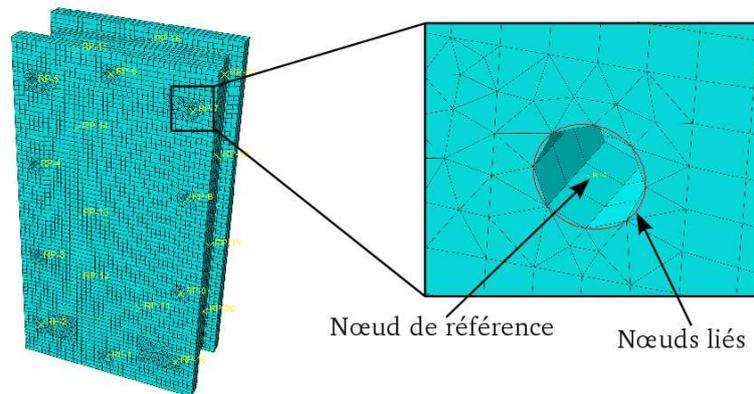


FIGURE 2.24 – Nœuds de référence pour l'application des efforts de serrage

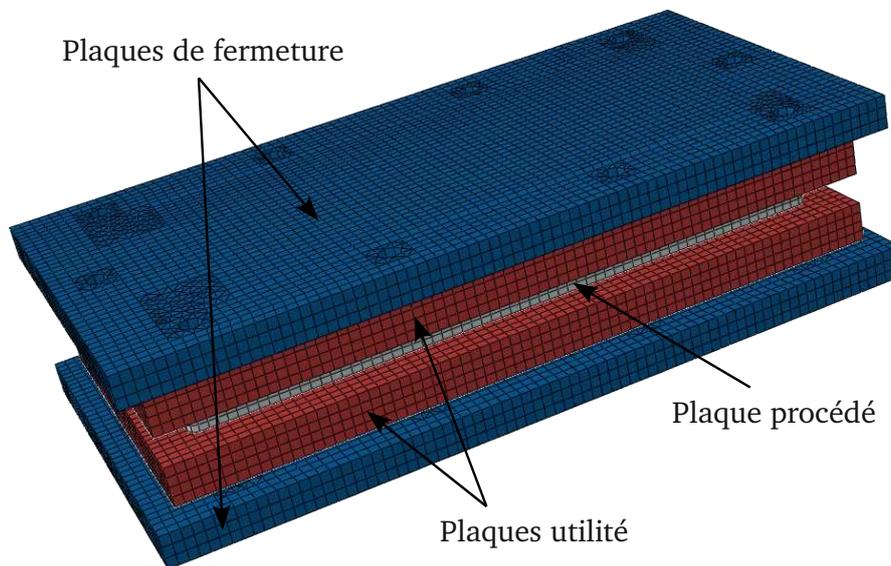


FIGURE 2.25 – Modèle thermo-mécanique éléments finis complet de l'ERI

En considérant que le comportement à la rupture du SiC suit une loi de Weibull, la probabilité de survie d'une éprouvette peut s'exprimer par la relation 2.25. En appliquant deux fois le logarithme à cette équation, on obtient la relation 2.26 de forme linéaire par rapport à $\ln(\sigma_r)$, et dont le coefficient directeur est égal à ω .

$$P_s = e^{-\frac{V_{eff}}{V_0} \left(\frac{\sigma_r}{\sigma_0}\right)^\omega} \quad (2.25)$$

$$\ln\left(\ln\left(\frac{1}{P_s}\right)\right) = \omega \ln(\sigma_r) - \omega \ln(\eta) \quad (2.26)$$

Pour tracer le graphique correspondant, il est nécessaire d'estimer la probabilité de survie

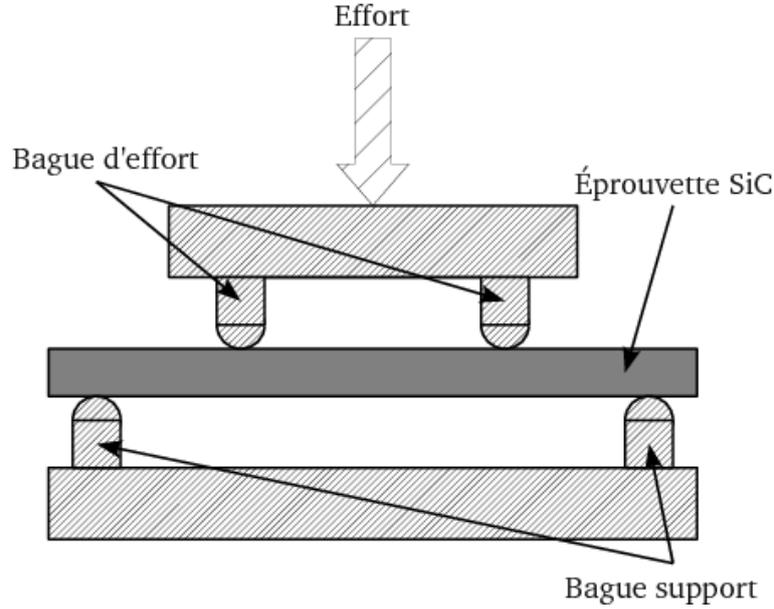


FIGURE 2.26 – Schéma d'essai de rupture équiaxial selon l'ASTM [ASTM 04]

$P_{s,i}$ pour chaque niveau de contrainte σ_i . Pour cela, plusieurs expressions existent comme celle de la valeur moyenne ou de la valeur médiane. L'expression 2.27 est retenue car elle est peu biaisée lorsque le nombre d'échantillons est supérieur à 20 [Boch 01, Haussonne 05].

$$P_{s,i} = 1 + \left(i - \frac{0,5}{N}\right) \quad (2.27)$$

Il est maintenant possible de tracer le graphique 2.27 et de réaliser la régression linéaire. Le module de Weibull et la contrainte caractéristique sont déduites, $\omega = 9,48$ et $\eta = 455 \text{ MPa}$. Le volume effectif est calculé selon la relation 2.28, $V_{eff} = 3681 \text{ mm}^3$ [ASTM 04].

$$V_{eff} = \frac{\pi}{2} D_L \left[\frac{e}{2(\omega + 1)} \right] \left[1 + \frac{44(1 + \nu)}{3(1 + \omega)} \frac{5 + \omega}{2 + \omega} \left(\frac{D_S - D_L}{D_S D} \right)^2 \left(\frac{2D^2(1 + \nu) + (D_S - D_L)^2(1 - \nu)}{(3 + \nu)(1 + 3\nu)} \right) \right] \quad (2.28)$$

Les caractéristiques du matériau pour cet essai de référence seront utilisées pour le calcul de la probabilité de survie ou de rupture d'autres pièces composées du même lot matière.

2.2.3.2 Calcul de la probabilité de rupture

Les valeurs de ω , η et V_{eff} étant connues pour l'essai de référence, la probabilité de rupture d'une pièce quelconque peut être calculée par la relation 2.29. Pour l'appliquer à

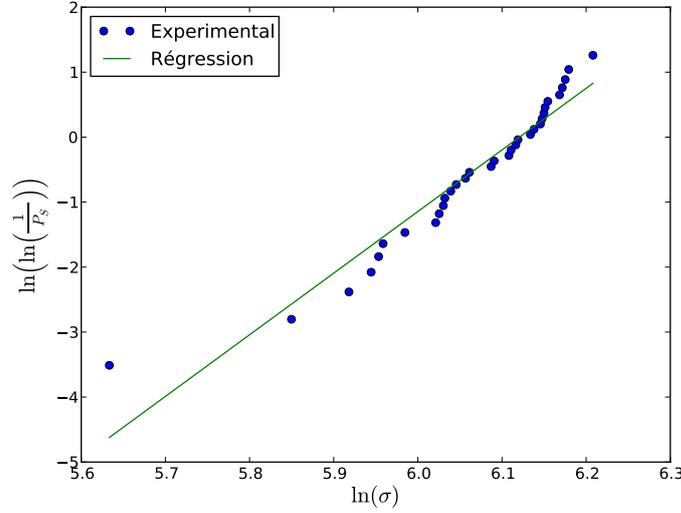


FIGURE 2.27 – Points expérimentaux et régression linéaire pour l’identification des paramètres de la loi de Weibull

la plaque procédé, il est donc nécessaire de relever la contrainte maximale calculée par le modèle éléments finis dans cette plaque, mais aussi de calculer son volume effectif selon la relation 2.30, où σ_{EF} est le champ de contrainte calculé par le modèle.

$$P_r = 1 - e^{-\frac{V_{eff_{EF}}}{V_{eff}} \left(\frac{\sigma_{max_{EF}}}{\eta} \right)^\omega} \quad (2.29)$$

$$V_{eff_{EF}} = \int \left(\frac{\sigma_{EF}}{\sigma_{max_{EF}}} \right)^\omega dV \quad (2.30)$$

Le calcul même de l’intégrale 2.30 fait l’objet de développement spécifique, pour le post-traitement de calculs éléments finis [Dortmans 90]. Dans notre cas, la contrainte au centroïde est considérée constante dans tout l’élément. L’intégration revient à sommer les volumes effectifs de chaque élément du modèle. Pour notre matériau, seules les contraintes principales de traction seulement doivent être prises en compte, ce qui donne l’équation 2.31 pour le calcul de $V_{eff_{EF}}$, avec N_{EF} le nombre d’éléments du modèle et V_i le volume de l’élément i .

$$V_{eff_{EF}} = \sum_{i=1}^{N_{EF}} \left[\left(\frac{|\sigma_{I_i}| + \sigma_{I_i}}{2\sigma_{I_{max}}} \right)^\omega + \left(\frac{|\sigma_{II_i}| + \sigma_{II_i}}{2\sigma_{I_{max}}} \right)^\omega + \left(\frac{|\sigma_{III_i}| + \sigma_{III_i}}{2\sigma_{I_{max}}} \right)^\omega \right] V_i \quad (2.31)$$

Le calcul de ce volume effectif et de la probabilité de rupture associée à la pièce est réalisé par un script de post-traitement éléments finis écrit en Python.

2.2.4 Détermination des efforts de serrage

Jusqu'à présent, pour éviter la rupture de la plaque procédé comme dans le cas de l'ERI_v1, les efforts de serrages sont ramenés au minimum. La procédure préconise un serrage au contact, c'est à dire que la simple mise en contact des surfaces des plaques est la limite de serrage. L'objectif de cette partie du travail est de calculer l'effort global F et les efforts f_i répartis sur chaque boulon garantissant à la fois l'étanchéité du système à $0,5 MPa$ et plus, et l'intégrité de la plaque procédé. Pour cela, les boulons sont numérotés de 1 à 10 comme le montre la figure 2.28.

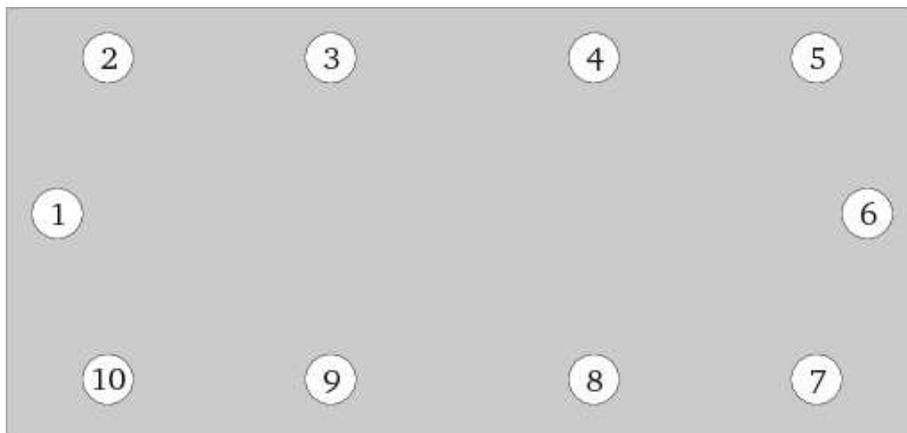


FIGURE 2.28 – Numérotation des boulons de serrage d'un empilement

2.2.4.1 Calcul des efforts à $0,5 MPa$

L'assemblage complet de l'ERI est composé de 8 joints en tout, avec un petit joint et un grand joint entre chaque plaque. Lors du serrage au contact, ces joints sont écrasés à leur maximum $0,8 mm$, et le contact ne transmet aucun effort. Par conséquent, l'effort global de serrage est dû simplement aux joints, qui se comportent comme quatre ressorts en série, la raideur de chaque ressort représentant celle d'un petit et d'un grand joint en parallèle. Ayant préalablement caractérisé le comportement linéique des joints, il est possible de calculer l'écrasement et l'effort global, $\Delta l_g = 3,2 mm$ et $F = 5690 N$. Pour garantir l'étanchéité, il faut ajouter à l'effort global la force permettant de compenser la pression du fluide sur les plaques, soit $19132 N$. Pour s'assurer d'une compression moyenne des joints de $0,8 mm$, il faut donc appliquer un effort global de $24823 N$. Par contre, pour avoir une compression uniforme des joints, il faut appliquer des efforts locaux f_i différents sur chaque boulon. C'est pour déterminer cette répartition que le modèle éléments finis est utilisé.

Pour calculer les efforts locaux nécessaires à l'écrasement uniforme des joints sous une pression de $0,5\text{ MPa}$, le modèle est piloté en déplacement. Ainsi, un déplacement de $3,2\text{ mm}$ dans la direction de serrage est appliqué aux noeuds de référence 1 à 10, les noeuds en vis à vis étant bloqués dans la direction considérée.

Boulons	Ratio en %
1	11,4
2	1,6
3	17,6
4	17,5
5	1,9
6	11,4
7	1,6
8	17,6
9	17,5
10	1,9

TABLE 2.2 – Répartition de l'effort global de serrage par boulon

La force globale calculée est de 25005 N , ce qui est proche du calcul théorique et permet de valider le calcul numérique. La répartition des efforts locaux sur chaque boulon est présentée dans le tableau 2.2 sous forme de ratio par rapport à l'effort global. D'après ces résultats, les couples de boulons (1, 6), (2, 7), (3, 8), (4, 9) et (5, 10) ont des efforts de serrages identiques deux à deux, ce qui caractérise une certaine symétrie de serrage du système.

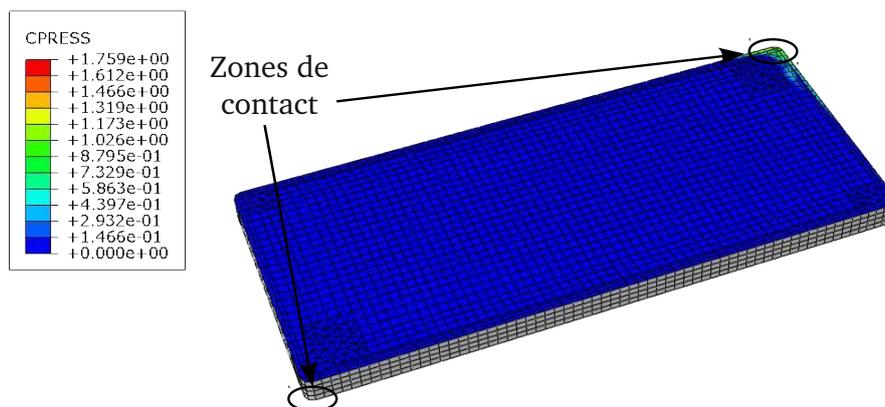


FIGURE 2.29 – Répartition de la pression de contact sur la plaque procédée (MPa)

Enfin, comme le montre la figure 2.29, il apparaît une zone de contact entre la plaque procédée et les plaques utilité. Ces zones ponctuelles, situées sur deux coins opposés, montrent qu'il y a une légère rotation de la plaque. Ceci s'explique par la dissymétrie du

positionnement des joints procédés (petits joints) de part et d'autre de la plaque. Malgré ces contacts, les contraintes maximales de traction et de compression sont faibles, respectivement $1,9$ et $3,4$ MPa , et la probabilité de rupture est quasi nulle. Pour finir, alors que l'écrasement minimum des joints garantissant l'étanchéité est de $0,4$ mm , l'état moyen d'écrasement des joints du modèle est de $0,796$ mm , avec un minimum de $0,787$ mm . Le critère d'étanchéité est donc respecté.

2.2.4.2 Calcul des contraintes lors du serrage à vide

Maintenant que l'effort de serrage global ainsi que les efforts locaux sont calculés, il est important de vérifier que lorsque l'ERI n'est pas en service, c'est à dire qu'il n'y a pas de pression de fluide, les contraintes subies par la plaque SiC sont acceptables. Pour cela, les conditions limites de déplacement sont remplacées par les forces ponctuelles précédemment calculées, représentant ainsi le serrage des plaques par les boulons. De plus, la pression appliquée sur les surfaces des plaques, représentant la pression du fluide, est ramenée à zéro.

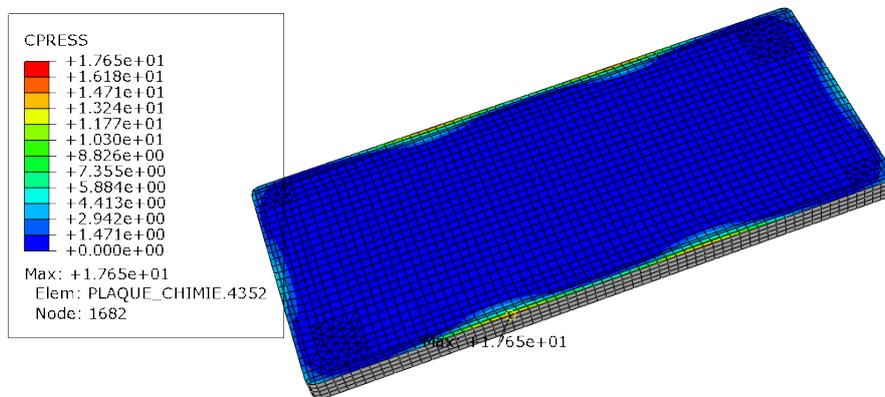


FIGURE 2.30 – Pression de contact sur la plaque procédé (MPa)

La figure 2.30 donne la répartition des pressions de contact sur la plaque procédé. De valeur maximale $17,7$ MPa , cette pression est localisée en bordure de plaque, seules parties en contact avec les plaques utilité.

Comme illustré par la figure 2.31, la contrainte maximale de traction dans la plaque procédé est de $1,5$ MPa , alors que la compression maximale est de $15,7$ MPa . Après post-traitement du champ de contrainte total, la probabilité de rupture de la plaque SiC reste quasi nulle, ce qui valide le choix des efforts de serrage calculés.

Enfin, la contrainte maximale de Von Mises relevée dans les autres plaques en acier inoxydable ne dépasse pas 45 MPa , ce qui reste dans le domaine élastique du comportement

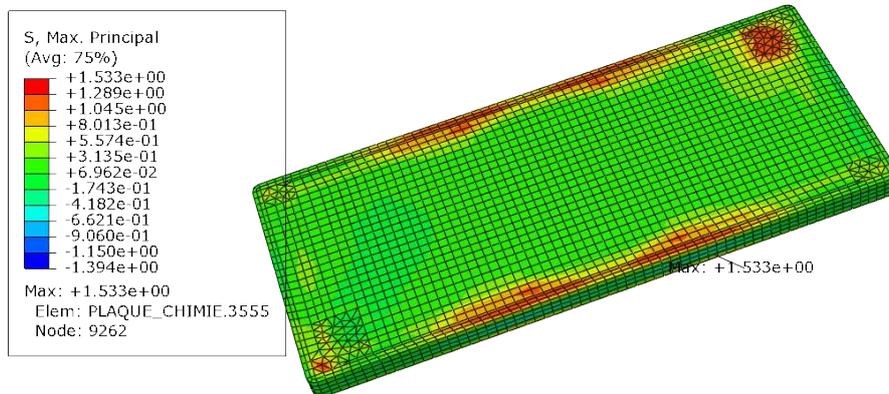


FIGURE 2.31 – Contraintes maximales principales sur la plaque procédé (MPa)

de ce matériau.

2.2.5 Couplage thermo-mécanique lors du fonctionnement

Lors de son fonctionnement, l'ERI est soumis, en plus des efforts de serrage, à un champ de températures non uniforme, induit par les échanges thermiques entre le fluide procédé et le fluide utilité. Les gradients thermiques les plus importants se situant dans la plaque procédé, le premier calcul a pour objectif de déterminer le champ de contraintes dans cette plaque, considérée libre de toute contrainte extérieure. Dans un second calcul, la plaque procédé est remise dans son contexte, au centre de l'ERI, pour prendre en compte l'impact global du chargement thermique sur l'ERI, et ses conséquences sur la probabilité de rupture de la plaque en SiC. Le champ de température pris en compte est celui calculé par ModER dans le cas de la réaction d'oxydation exothermique présentée dans la section 2.1.3.3.

2.2.5.1 Chargement thermique sur la plaque procédé

Le modèle thermo-mécanique présenté dans cette partie représente la plaque procédé seule, libre de toute contrainte mécanique extérieure. Le chargement est seulement thermique, et le champ de température préalablement calculé par ModER est interpolé aux différents noeuds de la structure, au moyen d'un script écrit en Python (figure 2.32).

Le principal résultat, présenté dans la figure 2.33, est la répartition des contraintes principales maximales dans la plaque. La contrainte maximale de traction de $6,6 MPa$ et la contrainte maximale de compression de $4,5 MPa$ restent faible, ce qui s'explique par le

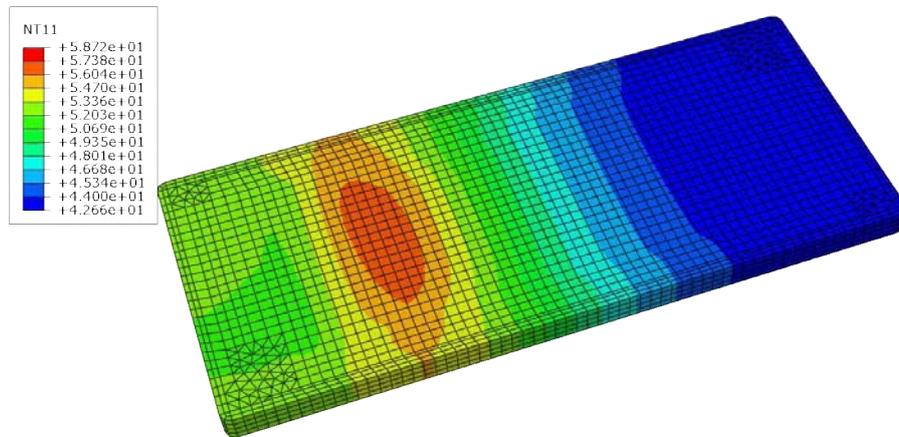


FIGURE 2.32 – Champ de température appliqué à la plaque procédé ($^{\circ}C$)

faible gradient thermique dû à la forte conductivité du SiC. Là encore, le calcul de la probabilité de rupture donne un résultat quasi nul.

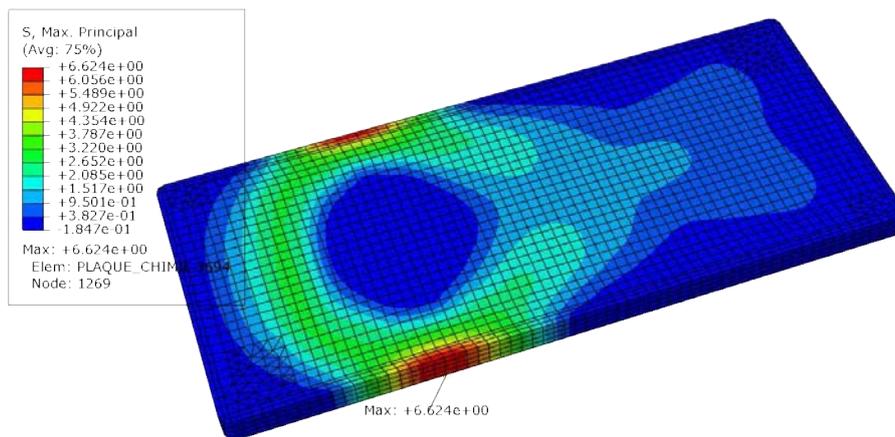


FIGURE 2.33 – Contraintes principales maximales dans la plaque procédé soumise à un chargement thermique (MPa)

2.2.5.2 Chargement thermique sur l'ERI complet

Outre le champ de température imposé à la plaque procédé par la réaction chimique, l'ERI est soumis à une variation de température entre le moment du serrage des boulons et son utilisation. Cette variation de température implique une dilatation des plaques et, par réaction des boulons de serrage, une augmentation des pressions de contact. L'objectif de ce modèle est donc de calculer les contraintes engendrées par cette variation de température.

Le modèle représente l'ensemble de l'ERI. Il prend en compte un coefficient de dilatation

de $4.10^{-6}K^{-1}$ pour le SiC et $12.10^{-6}K^{-1}$ pour l'acier. Le serrage est effectué à température ambiante $20^{\circ}C$ de manière uniforme comme défini dans la section 2.2.4. Lors de la montée en température, les noeuds de référence sont bloqués dans la direction de serrage, ce qui équivaut à considérer les boulons infiniment rigides. Cette hypothèse sévère place le modèle dans un cas défavorable. Par hypothèse, les températures des plaques utilité et de fermeture sont considérées égales à la température du fluide utilité avec lequel elles sont majoritairement en contact, soit $40^{\circ}C$.

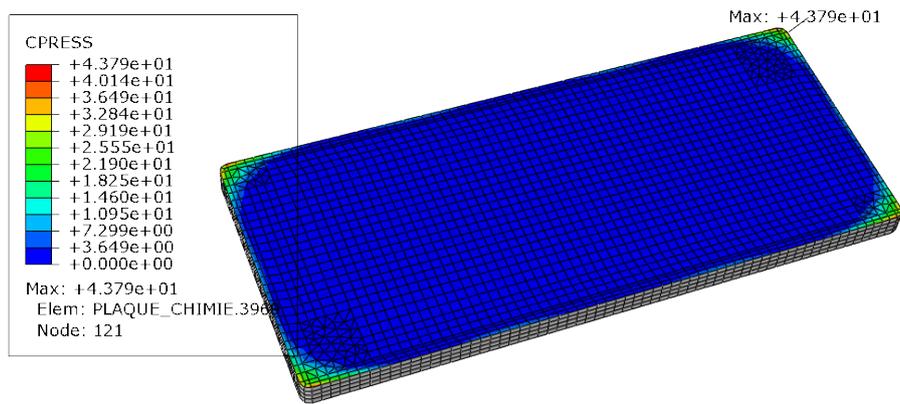


FIGURE 2.34 – Pression de contact sur la plaque procédée (MPa)

Les résultats présentés dans la figure 2.34 montrent que les pressions de contact s'accroissent sur les coins de la plaque procédée, avec un maximum de $43,8 MPa$. Ceci implique une augmentation des contraintes de compression à $41,7 MPa$ (figure 2.35), qui restent malgré tout faibles pour le carbure de silicium. Les contraintes de traction sont faibles avec un maximum de $3,7 MPa$, et la probabilité de rupture est toujours quasi nulle.

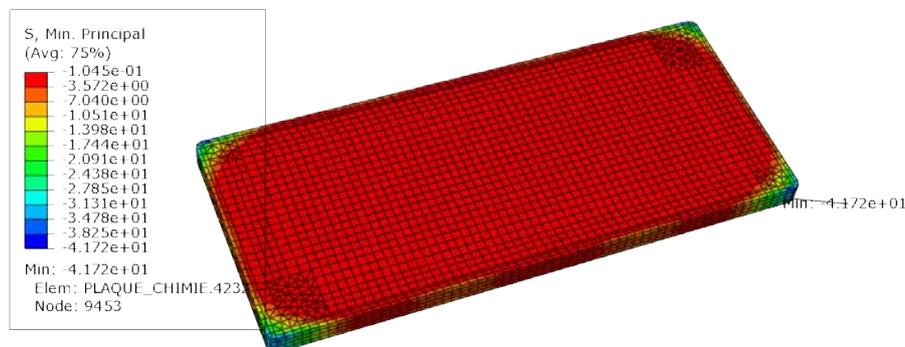


FIGURE 2.35 – Contraintes minimales principale dans la plaque procédée (MPa)

La contrainte maximale de Von Mises relevée dans les plaques en aciers est de $102 MPa$, ce qui reste acceptable pour ce matériau.

2.2.6 Conclusion sur la modélisation thermo-mécanique

Le modèle éléments finis thermo-mécanique ainsi que la démarche employée permettent de calculer les efforts de serrages optimaux pour garantir l'étanchéité de l'ERI et l'intégrité de la plaque SiC. Ces outils permettent aussi de prendre en compte l'impact de la variation de température imposée par le procédé sur la mécanique du système. Ils peuvent aussi être mis en oeuvre dans le but d'optimiser le serrage dans le cas de procédé dont la thermique est plus sévère, et ainsi fiabiliser le système.

2.3 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présentés les modèles thermo-chimique et thermo-mécanique développés pour l'ERI. Ces modèles ont nécessité le développement d'un code spécialisé nommé ModER, permettant de simuler le comportement thermo-chimique d'un procédé de synthèse au sein des plaques du réacteur. Une série de scripts permet de faire le lien entre le modèle thermo-chimique et le modèle thermo-mécanique, en affectant les résultats du premier comme conditions limites du second, mais aussi de réaliser le post-traitement des résultats afin de calculer, entre autres, la probabilité de rupture des plaques en SiC. L'architecture numérique développée et présentée sur la figure 2.36 permet de réaliser les calculs thermo-chimique et thermo-mécanique de manière indépendante, mais aussi de les enchaîner de manière automatique dans une procédure globale de modélisation thermo-chimique/thermo-mécanique.

Plusieurs résultats sont issus de la mise en oeuvre de ces modèles. D'une part, ils ont permis de calculer l'effort optimal global ainsi que les efforts optimaux à appliquer à chaque boulon afin de garantir à la fois l'intégrité des plaques en SiC et l'étanchéité du système. D'autre part, ils ont permis de démontrer que les contraintes internes des plaques SiC restent faibles même lorsque le réacteur est soumis à une réaction fortement exothermique, c'est à dire que la probabilité de rupture est négligeable.

D'une manière plus générale, les développements présentés dans ce chapitre offrent un outil intéressant pour le développement et l'optimisation des futurs ERI, permettant, par exemple, d'adapter la conception ou les préconisations de mise en oeuvre de l'ERI à une réaction particulière.

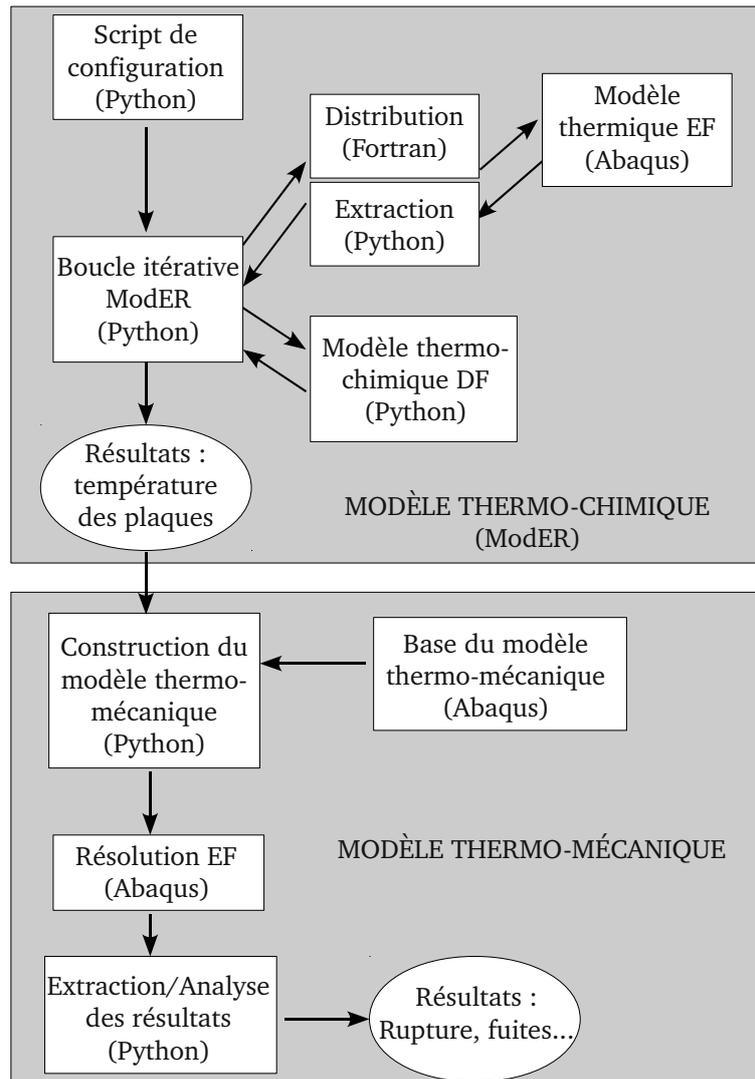


FIGURE 2.36 – Architecture numérique de l'ensemble des modèles thermo-chimique et thermo-mécanique de l'ERI

Chapitre 3

Méthodes fiabilistes pour l'étude l'échangeur réacteur

Sommaire

3.1	Concepts de bases de la fiabilité des structures	106
3.1.1	Introduction à la conception fiabiliste	106
3.1.2	Le concept de l'espace standard	111
3.1.3	Recherche du point de conception	115
3.1.4	Résolution du problème fiabiliste	118
3.1.5	Optimisation fiabiliste grâce aux facteurs d'importance	122
3.2	La fiabilité en mécanique des structures	124
3.2.1	Enjeux du couplage mécano-fiabiliste	124
3.2.2	Les méthodes par simulation	125
3.2.3	Substitution par méta-modèle	130
3.3	Conclusion	140

Table des notations

Par ordre d'apparition :

R_s	résistance
S	sollicitation
ϑ	facteur de sécurité
X_i	$i^{\text{ème}}$ variable aléatoire physique du vecteur X
x_i	réalisation de la variable aléatoire X_i
X	vecteur aléatoire physique
x	réalisation du vecteur aléatoire X
U_i	$i^{\text{ème}}$ variable aléatoire standard du vecteur U
u_i	réalisation de la variable aléatoire U_i
U	vecteur aléatoire standard
u	réalisation du vecteur aléatoire U
n	dimension des vecteurs aléatoires X et U , taille du système
$G(\cdot)$	fonction de performance dans l'espace physique
$H(\cdot)$	fonction de performance dans l'espace standard
$f_X(\cdot)$	densité de probabilité conjointe de X
$F_X(\cdot)$	fonction de répartition de X
P_f	probabilité de défaillance
\hat{P}_f	approximation de P_f
μ_X	moyenne de X
σ_X	écart-type de X
β, β_{HL}	indice de fiabilité d'Hasofer-Lind
β_{RC}	indice de fiabilité de Rjanitzyne-Cornell
$\Phi(\cdot)$	fonction de répartition d'une variable gaussienne de moyenne nulle et d'écart-type unitaire
$T(\cdot)$	transformation isoprobabiliste
R	matrice de corrélation
$\rho_{i,j}$	coefficient de corrélation des variables X_i et X_j
$E[X]$	espérance mathématique de X

$Var [X]$	variance de X
$\hat{U}, \hat{R}, \hat{u}_i, \hat{\rho}_{ij}$	valeurs intermédiaires lors de la transformation de Nataf
P^*	point de défaillance le plus probable ou point de conception
u^*	coordonnées standards de P^*
x^*	coordonnées physique de P^*
x^T	transposée de x
l	vecteur des multiplicateurs de Lagrange
$L(.)$	fonction de Lagrange
$u^{(k)}$	$k^{ième}$ point d'une série de points
d	vecteur direction
δ	vecteur des pas d'avancement
$\frac{\partial f(x)}{\partial x_i}$	opérateur de dérivée partielle
$\nabla f(x) _a$	gradient de $f(.)$ au point a
$\ x\ $	norme euclidienne de x
I_f	indicateur de défaillance
COV	coefficient de variation
κ_i	$i^{ième}$ courbure de l'état limite
α	vecteur des cosinus directeurs
α_{phys}	vecteur des sensibilité de l'indice de fiabilité par rapport aux variables physiques
J	matrice Jacobienne
γ	vecteur des paramètres des lois de distribution
ξ	vecteur des sensibilité de l'indice de fiabilité par rapport aux paramètres des variables aléatoires
ε	vecteur des élasticités de l'indice de fiabilité par rapport aux paramètres des variables aléatoires
$h(.)$	fonction de densité d'importance
N	taille de population
K	ensemble constituant le domaine de défaillance
K_i	ensembles intermédiaires
E	un ensemble
\bar{E}	ensemble complémentaire de E

$\mathbb{P}[\cdot]$	opérateur de probabilité d'occurrence d'un évènement
$\mathbb{P}[A B]$	probabilité de l'évènement A sachant B
r	rayon aléatoire
g_i	un réel
c_i, c_{ij}	coefficients d'interpolation
$\hat{H}(u)$	approximation de $H(u)$
c	vecteur des coefficients d'interpolation
Z	matrice d'expériences
H_e	vecteur d'expériences
n_s	taille du système à identifier
n_e	nombre d'expériences
L^2	coefficient de régression
\bar{L}^2	coefficient de régression modifié
ε_r	erreur d'approximation
Q^2	coefficient de détermination
$x^{(i)}$	$i^{\text{ème}}$ point d'observation
$x^{(0)}$	point non échantillonné
$\hat{y}(x^{(0)})$	estimation au point $x^{(0)}$
v	vecteur des poids d'interpolation
\hat{v}	estimation du vecteur des poids d'interpolation
Y	vecteur des observations
$y(x)$	fonction objectif
$Y(x)$	processus gaussien
$\mu(x)$	partie déterministe de $Y(x)$
$\delta(x)$	partie stochastique de $Y(x)$
ς	vecteur des coefficient de tendance
h	distance entre points d'expérience
$\gamma(h)$	semi-variogramme
$\hat{\gamma}(h)$	semi-variogramme expérimental
θ	portée du variogramme

σ	pallier du variogramme
w	vecteur de tendance
p	taille du vecteur de tendance
W	matrice de tendance
γ	vecteur des semi-variances
Γ	matrice des semi-variances
$N(h)$	ensemble des couples de points d'expériences distants de h
$ N(h) $	nombre de couples de $N(h)$
$\sigma_k^2(x)$	variance de krigeage au point x
$U(.)$	fonction de pertinence

Les modèles développés dans le chapitre 2 permettent de simuler le comportement thermo-chimique du procédé et le comportement thermo-mécanique de la structure de l'ERI. Il est ainsi possible de prédire de manière déterministe la température du fluide procédé le long du canal et le rendement de la synthèse chimique, mais aussi la probabilité de rupture des plaques SiC et la valeur d'écrasement des joints.

Comme exposé dans le chapitre 1, l'échangeur réacteur a un rôle central dans le procédé de fabrication, ce qui rend la maîtrise de sa mise en oeuvre indispensable afin de garantir la sécurité de l'installation. Dans ce contexte apparaissent les termes « fiabilité » et « optimisation mécano-fiabiliste », concepts associés à la prise en compte de la variabilité des conditions de mise en oeuvre dans les prédictions thermo-chimique et thermo-mécanique du comportement de l'ERI.

Ce chapitre bibliographique a pour objectifs, dans un premier temps, de définir les termes de « fiabilité » et « étude fiabiliste » en exposant les concepts fondamentaux et méthodes de résolution de base et, dans un second temps, de décrire les enjeux de l'étude mécano-fiabiliste ainsi que les méthodes spécifiques associées à ce type de problème. Pour finir, cette étude permettra de proposer une démarche de résolution adaptée à l'étude de fiabilité de l'ERI, et en particulier aux modèles numériques développés.

3.1 Concepts de bases de la fiabilité des structures

3.1.1 Introduction à la conception fiabiliste

3.1.1.1 Fiabilité des systèmes

La fiabilité d'un système peut se définir comme son aptitude à remplir sa fonction dans des conditions données et pendant un temps donné. Elle fait partie d'un concept plus large, la sûreté de fonctionnement, qui regroupe la fiabilité de l'objet, sa maintenabilité (aptitude à être maintenu ou rétabli dans le but d'accomplir sa fonction), sa disponibilité (aptitude à remplir son rôle à un moment donné), et son niveau de sécurité (en rapport aux risques humains, matériels et environnementaux encourus) [Lemaire 05]. Ainsi, on définit la défaillance d'un système comme son incapacité à accomplir son rôle à un instant donné, ce qui est la conséquence de l'occurrence d'un ou plusieurs modes de défaillance, définis comme les scénarios possibles amenant à cette défaillance.

L'étude de fiabilité consiste à évaluer la probabilité d'occurrence d'un des modes de défaillance et à déterminer si le risque est acceptable. Ce risque est souvent défini comme le

produit de la probabilité d'occurrence et de la gravité des conséquences. Dès lors que la limite de risque acceptable est actée, si la gravité augmente, alors la probabilité de défaillance doit diminuer. Ainsi, à titre d'exemple, la probabilité de défaillance des structures marines est estimée entre 10^{-2} et 10^{-4} , alors que celle des composants nucléaires varie entre 10^{-7} et 10^{-12} [Lemaire 05].

Pour le concepteur, la probabilité de défaillance à elle seule ne suffit pas. Il a besoin d'autres informations lui permettant de faire évoluer l'objet, dans le but d'augmenter ou de diminuer cette probabilité. Ainsi, l'étude de fiabilité produit un certain nombre d'indicateurs comme l'indice de fiabilité, les facteurs d'importances, les élasticités, les sensibilités... qui permettent de faire des choix dans la stratégie d'optimisation du produit.

La conception ou l'optimisation d'un produit peut se faire selon différentes approches. Les approches par expérience se basent sur des essais statistiques, des données d'exploitations, ou encore des retours d'expériences analogues pour estimer la fiabilité et orienter la conception. Ces approches nécessitent donc un certain nombre d'objets produits pour constituer une base suffisante à une étude statistique. Par conséquent, elles sont plus adaptées aux productions de moyennes et grandes séries. Pour les produits à forte valeur ajoutée, le dimensionnement peut se faire par une approche déterministe, faisant intervenir un facteur de sécurité, ou par une approche probabiliste, prenant en compte la variabilité des paramètres de conception.

L'ERI étant un produit de très petite série et à forte valeur ajoutée, sa conception peut se faire au moyen des modèles déterministes développés dans le chapitre 2, soit en appliquant un facteur de sécurité, soit en propageant l'incertitude sur paramètres du modèle déterministe. Ces deux approches sont décrites dans les sections suivantes.

3.1.1.2 Modélisation déterministe et facteur de sécurité

Dans le cas des objets de petites séries, à forte valeur ajoutée, le dimensionnement est souvent déterministe de type « résistance - sollicitation ». La première étape d'un tel dimensionnement est le développement d'un modèle analytique ou numérique de sollicitation de l'objet S . Si R est le modèle de résistance associé à l'objet, il est simple de poser 3.1 comme critère de conception.

$$R_s > S \quad (3.1)$$

La limite de cette méthode provient de l'imprécision du modèle sensé représenter le phénomène physique d'une part, et de l'aléa qui entache ses paramètres d'autre part. Si on considère que le modèle représente le comportement physique du phénomène de manière

précise dans l'ensemble du domaine étudié, alors c'est la variabilité des paramètres qui rend cette conception dangereuse. En effet, dans le cas d'une conception optimisée, c'est à dire que $R = S$ avec chaque paramètre considéré déterministe de valeur moyenne, la probabilité de défaillance est de 0,5. Une pièce sur deux ne respecte pas le critère, ce qui n'est pas acceptable.

Pour prendre en compte l'incertitude sur les paramètres du modèle, les concepteurs utilisent un facteur de sécurité k , souvent compris entre 1 et 10, pour définir un nouveau critère tel que :

$$R_s > \vartheta.S \quad (3.2)$$

Ce facteur de sécurité est sensé prendre en compte de manière simple l'impact de l'aléa des paramètres sur le résultat du modèle. En fait, il cache surtout l'incapacité de prendre en compte la variabilité des paramètres dans le modèle. Ces facteurs de sécurité sont construits grâce à l'expérience des personnes, les observations et essais réalisés, et l'intuition et le savoir faire des experts. Le problème réside dans le fait que ces facteurs sont souvent généralisés à d'autres modèles plus ou moins proches du modèle pour lequel ils ont été développés. Cela implique dans le meilleur des cas un sur-dimensionnement, ou pire, un sous-dimensionnement du système étudié.

3.1.1.3 Propagation de l'incertitude dans un modèle déterministe

La conception fiabiliste écarte l'utilisation des facteurs de sécurité et s'attache à prendre en compte l'incertitude de chaque variable dans le modèle déterministe. Si $X = \{X_1, \dots, X_n\}$ est le vecteur des n variables aléatoires du système, et $x = \{x_1, \dots, x_n\}$ une réalisation de X , le critère de « résistance - sollicitation » 3.1 peut se réécrire sous la forme :

$$G(x) = R_s(x) - S(x) > 0 \quad (3.3)$$

où $G(\cdot)$ est la fonction de performance du système. La figure 3.1 définit le domaine de défaillance $G(x) < 0$, le domaine de sûreté $G(x) > 0$ et la fonction d'état limite $G(x) = 0$.

En définissant la densité de probabilité conjointe de X par $f_X(x)$, la probabilité de défaillance P_f s'écrit :

$$P_f = \int_{G(x) < 0} f_X(x) dx \quad (3.4)$$

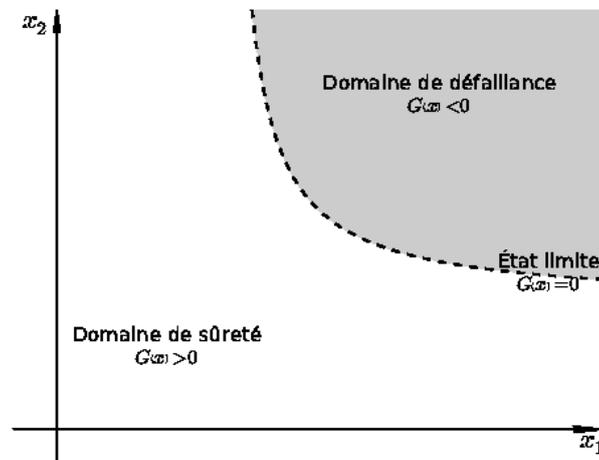


FIGURE 3.1 – Exemple de domaine de sûreté et de défaillance pour deux variables aléatoires $X = \{X_1, X_2\}$

Cet exercice devient rapidement compliqué voire impossible lorsque la taille de X augmente et que $G(x)$ devient complexe.

Si l'on considère que R et S sont définis par des lois normales de moyennes μ_R et μ_S et d'écart-types σ_R et σ_S , alors la variable aléatoire G issue de la relation 3.3 est aussi une variable aléatoire normale de moyenne $\mu_G = \mu_R - \mu_S$ et d'écart-type $\sigma_G = \sqrt{\sigma_R^2 + \sigma_S^2}$. Dans ce cadre, Rjanitzyne [Rjanitzyne 59] puis Cornell [Cornell 69] sont les premiers à proposer une définition de l'indice de fiabilité β_{RC} comme étant le coefficient de variation de G , selon la relation 3.5. Cet indice, de valeur positive de quelques unités, représente le nombre d'écart-types séparant le domaine de défaillance de la moyenne de G (figure 3.2).

$$\beta_{RC} = \frac{\mu_G}{\sigma_G} = \frac{\mu_R - \mu_S}{\sqrt{\sigma_R^2 + \sigma_S^2}} \quad (3.5)$$

Cet indice est plus facile à manipuler et plus représentatif que P_f , ce qui le rendra populaire. Il peut se calculer simplement par la relation 3.6 où Φ est la fonction de répartition d'une variable gaussienne de moyenne nulle et d'écart-type unitaire, $N(0, 1)$.

$$P_f = \Phi(-\beta) \quad (3.6)$$

Néanmoins cette définition n'est valable que dans le cas où la fonction de performance $G(X)$ est une combinaison linéaire des X_i , elles-mêmes définies comme variables gaussiennes. Pour pallier à ces limites, Hasofer et Lind [Hasofer 74] proposent de redéfinir cet

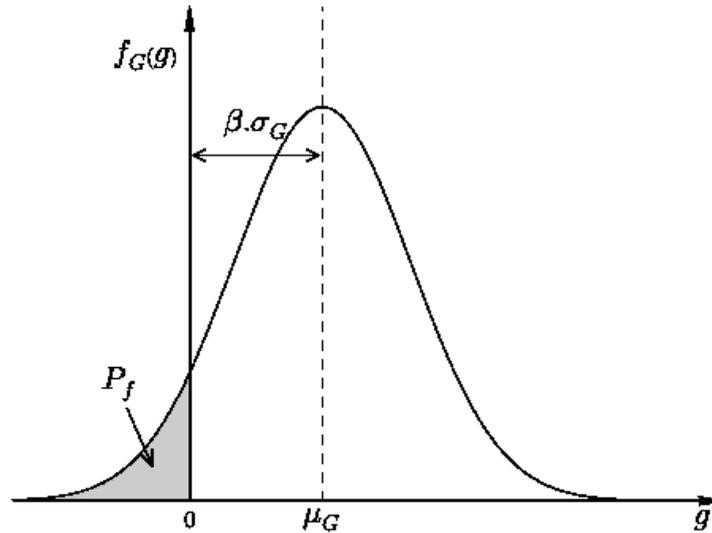


FIGURE 3.2 – Représentation de l'indice de fiabilité de Rjanitzyne-Cornell

indice non pas dans l'espace des variables physiques mais dans un espace standard, dans lequel les variables sont représentées par des variables aléatoires normales de moyennes nulles, d'écart-types unitaires et décorrélées.

Bien qu'elle soit plus coûteuse en calculs que l'approche déterministe, l'approche mécano-fiabiliste permet d'obtenir des informations statistiques plus pertinentes sur le comportement du produit. Au vu des enjeux sécuritaires d'un réacteur chimique (section 1.1), cette approche a été retenue pour réaliser la conception et l'optimisation de l'ERI. Les fonctions de performance seront définies à partir des modèles thermo-chimiques et thermo-mécaniques développés dans le chapitre 2. Les modes de défaillance concerneront principalement l'aspect sécurité du module, avec la température maximale admissible du fluide procédé, la rupture d'une des paques en SiC et l'apparition de fuites de fluides. Le nombre de variables aléatoires envisagé est de 3 pour le modèle mécanique et de 7 pour le modèle thermo-chimique. Elles sont l'effort de serrage, la pression du fluide utilité et la raideur des joints pour la partie mécanique, et les débits d'entrée des réactifs, les températures d'entrée des fluides, le coefficient de convection utilité et la conductivité du SiC pour la partie procédé. La définition complète des modes de défaillance et fonctions de performance associées ainsi que des variables aléatoires est réalisée lors de l'étude fiabiliste, au chapitre 4.

3.1.2 Le concept de l'espace standard

La définition de l'espace standard part du principe qu'il est plus simple de manipuler des variables gaussiennes de moyennes nulles, d'écart-types unitaires et décorrélées que des variables physiques hétérogènes. Ainsi, on définit une transformation T permettant de passer de l'espace physique à l'espace normé centré réduit et décorrélé précédemment défini. Cette transformation dépend de X , et par conséquent du problème posé, et elle doit être bijective. Une fois la transformation déterminée, il est nécessaire de redéfinir les variables aléatoires X_i et la fonction de performance $G(X)$ dans le nouvel espace par :

$$u_i = T(x_i) \quad (3.7)$$

$$H(u_i) = G(T^{-1}(u_i)) \quad (3.8)$$

U_i est la variable aléatoire normale centrée représentant X_i dans l'espace standard, et u_i une réalisation de cette variable. $H(\cdot)$ est la fonction d'état limite équivalente à $G(\cdot)$ dans l'espace standard.

Il existe plusieurs types de transformations, toutes isoprobabilistes, c'est à dire qu'elles préservent l'information probabiliste selon l'équation 3.9, dans laquelle F_{X_i} est la distribution marginale de la variable X_i et Φ la distribution normale centrée réduite. Le fonctionnement des transformations isoprobabilistes est illustré par la figure 3.3.

$$F_{X_i}(x_i) = \Phi(u_i) \quad (3.9)$$

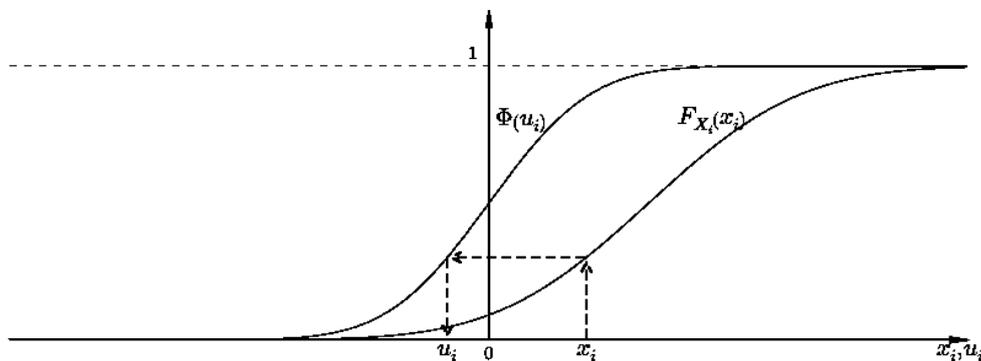


FIGURE 3.3 – Représentation du principe de transformation isoprobabiliste

Les trois méthodes les plus visitées pour réaliser la transformation sont celles d'Hasofer-Lind, de Rosenblatt et de Nataf. Le choix de l'une ou l'autre se fait en fonction des

informations disponibles sur les variables aléatoires : l'information statistique complète ou partielle, la normalité de leur distribution, et leur interdépendance.

3.1.2.1 Transformation de Hasofer-Lind

La transformation de Hasofer-Lind est applicable dans le seul cas de variables normales corrélées [Hasofer 74]. Elle s'exprime par la relation :

$$U = C^{-1}D^{-1}(X - \mu_X) \quad (3.10)$$

C étant la matrice issue de la décomposition de Cholesky de la matrice de corrélation $R = CC^T$, $D = \text{diag}([\sigma_{X_i}])$, avec $[\sigma_{X_i}]$ la matrice des écart-types, et μ_X désignant le vecteur des moyennes de X .

La transformation isoprobabiliste définie par Hasofer-Lind peut s'étendre aux cas où les variables ne sont pas Gaussiennes, à condition qu'elles soient décorrélées. Comme les variables sont indépendantes, la transformation se fait variable par variable selon l'équation 3.11, directement issue de l'équation 3.9.

$$u_i = \Phi^{-1}(F_{X_i}(x_i)) \quad (3.11)$$

3.1.2.2 Transformation de Rosenblatt

Lorsqu'une information statistique complète est disponible, c'est à dire que les distributions de chaque variable aléatoire mais aussi la distribution conjointe est connue, alors la transformation de Rosenblatt est applicable [Rosenblatt 52], et s'écrit :

$$\begin{aligned} u_1 &= \Phi^{-1}(F_{X_1}(x_1)) \\ u_2 &= \Phi^{-1}(F_{X_2}(x_2|x_1)) \\ &\vdots \\ u_i &= \Phi^{-1}(F_{X_i}(x_i|x_1, \dots, x_{i-1})) \end{aligned} \quad (3.12)$$

où $F_{X_i}(x_i|x_1, \dots, x_{i-1})$ est la distribution conditionnelle de x_i sachant x_1, \dots, x_{i-1} .

La forme générale de cette transformation est séduisante mais elle comporte deux limitations. D'une part il est indispensable de connaître la distribution conjointe des variables, ce qui est une information riche et généralement non disponible. D'autre part, comme il n'y a pas de définition de l'ordre d'application sur les variables aléatoires, il existe

$n!$ transformations différentes, n étant le nombre de variables aléatoires. Cela pose donc un problème d'unicité de la transformation, propriété indispensable pour la définition de l'indice de fiabilité d'Hasofer-Lind.

3.1.2.3 Transformation de Nataf

Pour terminer, la transformation de Nataf est finalement celle qui s'adapte au plus grand nombre de cas puisqu'elle s'utilise pour n'importe quel ensemble de variables aléatoires X dont les distributions marginales $F_{X_i}(x_i)$ sont connues. Concernant l'interdépendance des variables, contrairement à la transformation de Rosenblatt, seule la matrice de corrélation $R = [\rho_{ij}]$ est nécessaire [Nataf 62].

Dans un premier temps, la transformation de Nataf consiste à passer les variables de l'espace physique dans un espace intermédiaire centré normé réduit mais pas décorrélé. On obtient la relation :

$$\hat{u}_i = \Phi^{-1}(F_{X_i}(x_i)) \quad (3.13)$$

Il reste à décorréler les variables intermédiaires \hat{u}_i . Si $\hat{R} = [\hat{\rho}_{ij}]$ est la matrice de corrélation des variables \hat{U}_i , alors on montre que la densité conjointe de probabilité $f_X(x)$ peut s'écrire :

$$f_X(x) = \varphi_n(\hat{U}, \hat{R}) \frac{f_{X_1}(x_1) \cdots f_{X_n}(x_n)}{\varphi(\hat{u}_1) \cdots \varphi(\hat{u}_n)} \quad (3.14)$$

expression dans laquelle les $f_{X_i}(x_i)$ sont les densités marginales de probabilité, φ la densité de probabilité normale centrée réduite et φ_n la densité de probabilité multi-normale centrée réduite de corrélation \hat{R} et de dimension n .

Finalement la transformation T peut s'écrire :

$$u_i = T_i(x) = \sum \Gamma_{ij} \Phi^{-1}(F_{X_j}(x_j)) \quad (3.15)$$

avec $\Gamma_{ij} = C^{-1}$ l'inverse de la matrice triangulaire inférieure de la décomposition de Cholesky de \hat{R} .

Le calcul des coefficients de corrélation $\hat{\rho}_{ij}$ est réalisé par la relation 3.16, issue de la définition du coefficient de corrélation ρ_{ij} et des relations 3.13 et 3.14.

$$\begin{aligned}
\rho_{ij} &= E \left[\frac{X_i - \mu_i}{\sigma_i} \frac{X_j - \mu_j}{\sigma_j} \right] \\
&= \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{x_i - \mu_i}{\sigma_i} \right) \left(\frac{x_j - \mu_j}{\sigma_j} \right) f_{X_i, X_j}(x_i, x_j) . dx_i . dx_j \\
&= \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \left(\frac{F_{X_i}^{-1}(\Phi^{-1}(\hat{u}_i)) - \mu_i}{\sigma_i} \right) \left(\frac{F_{X_j}^{-1}(\Phi^{-1}(\hat{u}_j)) - \mu_j}{\sigma_j} \right) \varphi_2(\hat{u}_i, \hat{u}_j, \hat{\rho}_{ij}) . d\hat{u}_i . d\hat{u}_j
\end{aligned} \tag{3.16}$$

μ_i et σ_i sont la moyennes et l'écart-type de la variable X_i , et φ_2 est la distribution binomiale centrée réduite corrélée.

D'après Lemaire [Lemaire 05], l'estimation des coefficients de corrélations $\hat{\rho}_{ij}$ via la relation 3.16 peut s'avérer délicate car les lois marginales doivent être continues et strictement positives, mais surtout car la valeur de $\hat{\rho}_{ij}$ doit être comprise entre -1 et 1 , ce qui n'est pas toujours le cas. Des auteurs ont donc développé des relations semi-empiriques liant $\hat{\rho}_{ij}$ et ρ_{ij} par leur rapport $f = \frac{\hat{\rho}_{ij}}{\rho_{ij}}$. Ces relations dépendent des lois marginales et sont disponibles dans l'ouvrage de Lemaire [Lemaire 05].

3.1.2.4 Point de conception et indice d'Hasofer-Lind

La transformation de l'ensemble des variables aléatoires X et de la fonction de performance associée $G(x)$ de l'espace physique vers l'espace standard en U et $H(u)$ est maintenant définie, et peut être représentée par la figure 3.4. Il est important de noter que la forme de $H(u)$, et surtout de l'état limite $H(u) = 0$, dépend de la forme initiale de $G(x)$ et de la forme de la transformation. En particulier la forme linéaire de $G(x) = 0$ n'implique pas forcément la forme linéaire de $H(u) = 0$, en d'autres termes T peut être non-linéaire.

Dans l'espace standard, on définit le point de conception P^* comme le point de défaillance le plus probable, c'est à dire le point de coordonnées $u^* = \{u_1^*, \dots, u_n^*\}^T$ le plus proche de l'origine O de l'espace et appartenant à la zone de défaillance (équation 3.17).

$$u^* = \underset{H(u) \leq 0}{\operatorname{argmin}} (u^T u) \tag{3.17}$$

Dans ces conditions l'indice d'Hasofer-Lind β_{HL} est défini unique et invariant, et il est égal à la distance entre l'origine O et le point de conception P^* , selon l'équation 3.18.

$$\beta_{HL} = \sqrt{u^{*T} u^*} = \min_{H(u) \leq 0} (\sqrt{u^T u}) \tag{3.18}$$

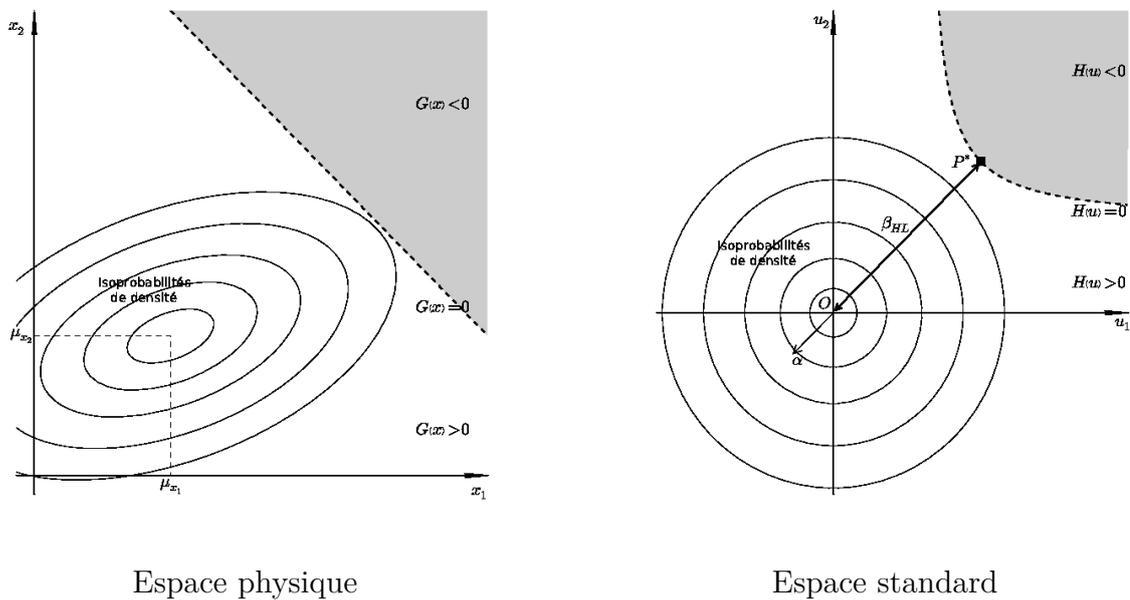


FIGURE 3.4 – Illustration de la transformation isoprobabiliste et de la définition de l'indice de fiabilité d'Hasofer-Lind

Le point de conception et l'indice de fiabilité ainsi définis ont une place importante dans l'étude de fiabilité, c'est pourquoi, dans la suite de ce travail, l'utilisation de l'indice de fiabilité noté β fera référence à l'indice de fiabilité d'Hasofer-Lind β_{HL} .

3.1.3 Recherche du point de conception

Les coordonnées du point de conception sont une information centrale de l'étude de fiabilité. Dans certains cas simples il est possible de les déterminer analytiquement, mais dans la majorité des cas ce calcul n'est pas possible. C'est pour résoudre ce problème que les méthodes numériques et en particulier les algorithmes d'optimisation sont mis en oeuvre.

3.1.3.1 Un problème d'optimisation sous contraintes

La recherche du point de conception peut être vue comme un problème de minimisation de la distance OP^* tout en garantissant l'appartenance de P^* au domaine de défaillance. D'un point de vue mathématique, la relation 3.17 répond au problème.

Si on considère que l'indice de fiabilité du problème est strictement positif, c'est à dire que l'origine de l'espace O est dans le domaine de sûreté, alors il paraît évident que le point de défaillance le plus probable se trouve à la limite des deux domaines. Ainsi, la

contrainte d'inégalité $H(u) \leq 0$ peut être changée en contrainte d'égalité $H(u) = 0$, et le problème reformulé à l'aide d'une fonction de Lagrange telle que :

$$L(u, l) = u^T u + lH(u) \quad (3.19)$$

l est le multiplicateur de Lagrange, défini non nul si la contrainte $H(u)$ est active. Le problème revient à trouver (u^*, l^*) tel que $L(u, l)$ soit stationnaire. La solution est atteinte si les conditions de Kuhn-Tucker sont respectées :

$$\begin{aligned} \frac{\partial L(u, l)}{\partial u_i} &= 0 \\ \frac{\partial L(u, l)}{\partial \lambda} &= 0 \end{aligned} \quad (3.20)$$

En notant que $\frac{\partial(u^T u)}{\partial u_i} = 2.u_i$, cela revient à écrire :

$$\begin{aligned} 2.u_i + l \frac{\partial H(u)}{\partial u_i} &= 0 \\ H(u) &= 0 \end{aligned} \quad (3.21)$$

3.1.3.2 Revue des algorithmes d'optimisation applicables

Pour résoudre le problème précédemment posé il est naturel de se tourner vers les algorithmes d'optimisation numérique. Les problèmes d'optimisation ne sont pas spécifiques à la fiabilité, et un grand nombre de méthodes existent. La base de fonctionnement de ces algorithmes reste la même. L'objectif est de construire une série de points $u^{(k)}$, partant d'un point initial $u^{(0)}$ arbitrairement choisi, et ainsi de calculer le point suivant $u^{(k+1)}$ s'approchant de la solution selon l'équation :

$$u^{(k+1)} = u^{(k)} + \delta^{(k)} d^{(k)} \quad (3.22)$$

où $d^{(k)}$ est la direction d'avance et $\delta^{(k)}$ le pas.

Les méthodes se différencient par le choix de ces deux paramètres, selon les informations calculées aux alentours du point actuel et des points précédents. Ces méthodes peuvent se classer en quatre catégories [Haftka 91, Lemaire 05] :

- les méthodes d'ordre 0 qui n'utilisent que les valeurs de la fonction $H(\cdot)$ aux points $u^{(k)}$. On peut citer les méthodes de dichotomie, du simplexe ou de Nelder et Mead. Ces méthodes ne sont utilisées que dans les cas où les dérivées partielles de la fonction, et

à fortiori les dérivées secondes, ne sont pas accessibles. En effet, le nombre d'itérations est souvent rédhibitoire par rapport aux autres méthodes.

- les méthodes d'ordre 1 qui utilisent le gradient de la fonction pour calculer le point suivant, avec comme exemple la méthode du gradient projeté et son adaptation au problème fiabiliste, la méthode d'Hasofer-Lind-Rackwitz-Fiessler.
- les méthodes d'ordre 2 qui, en plus du gradient, utilisent le Hessien de la fonction. Notons par exemple la méthode de Newton ou le SQP (Sequential Quadratic Programming).
- les méthodes hybrides qui, comme leur nom l'indique, sont intermédiaires entre les méthodes d'ordre 1 et 2 dans le sens où elles utilisent le gradient et une estimation du Hessien. Ce dernier est approché dans un premier temps, puis converge avec les itérations. Parmi ces méthodes on note le BFGS de Broyden-Fletcher-Goldfarb-Shanno, ou encore l'algorithme d'Abdo et Rackwitz.

Parmi ces méthodes, celle d'Hasofer-Lind-Rackwitz-Fiessler (HLRF) fût initialement développée par Hasofer et Lind [Hasofer 74] pour la recherche du point de conception, mais n'était valable que pour des variables aléatoires normales. Elle a ensuite été étendue aux variables non-normales par Rackwitz et Fiessler. Cet algorithme est une adaptation de la méthode du gradient projeté, et son expression finale s'écrit :

$$u^{(k+1)} = u^{(k)} + \delta^{(k)} \left(\frac{u^{(k)T} \cdot \alpha^{(k)} - H(u^{(k)})}{\|\nabla H(u)|_{u^{(k)}}\|} \cdot \alpha^{(k)} - u^{(k)} \right) \quad (3.23)$$

avec $\nabla H(u)|_{u^{(k)}}$ le vecteur gradient de $H(u)$ au point $u^{(k)}$, $\alpha^{(k)}$ le vecteur des cosinus directeurs défini comme le vecteur de longueur unitaire de même direction que le gradient $\nabla H(u)|_{u^{(k)}}$:

$$\alpha^{(k)} = \frac{\nabla H(u)|_{u^{(k)}}}{\|\nabla H(u)|_{u^{(k)}}\|} \quad (3.24)$$

Dans sa définition initiale, le HLRF utilise un pas $\delta^{(k)}$ égal à 1, ce qui ne garantit pas sa convergence. Pour pallier à ce problème, Zhang et Der Kuirghian [Zhang 97] proposent la fonction « mérite » 3.25 à minimiser pour trouver le pas optimal et garantir la convergence inconditionnelle de l'algorithme :

$$\Psi(u) = \frac{1}{2} \|u\|^2 + c \cdot |H(u)| \quad (3.25)$$

où c est une constante choisie telle que $c < \frac{\|u\|}{\|\nabla H(u)\|}$.

L'algorithme ainsi optimisé se nomme l'iHLRF (improved Hasofer-Lind-Rackwitz-Fiessler).

De son côté, l'algorithme SQP est reconnu comme des plus efficace et robuste, et tout à fait applicable aux problèmes d'optimisation sous contrainte comme la recherche du point de conception. Cette efficacité en terme d'itérations est due à l'utilisation du Hessien de la fonction $H(u)$ en chaque point $u^{(k)}$. Par contre, le calcul du Hessien peut augmenter considérablement le temps de calcul.

À mi chemin entre l'iHLRF et le SQP se trouve l'algorithme d'Abdo-Rackwitz [Abdo 90]. Cet algorithme est en fait une adaptation du SQP au problème de recherche du point de conception, dans lequel le Hessien est approximé. Même si cet algorithme n'est pas inconditionnellement convergent, il est possible d'imposer un contrôle du pas qui le rend globalement convergent. Finalement l'algorithme d'Abdo-Rackwitz s'avère performant, en particulier pour un nombre important de variables, et converge un peu moins vite que le SQP.

Finalement le problème de recherche du point de conception est alimenté par plusieurs propositions d'algorithmes de résolution, qu'il faut choisir en fonction des caractéristiques du système étudié [Hamed 99, Haukaas 03, Mohamed 98]. Une comparaison des méthodes est proposée dans plusieurs ouvrages [Lemaire 05, Liu 91].

Dans le cas de l'ERI, le temps d'appel à l'une ou l'autre des fonctions de performance étant d'environ 5 minutes, il est envisageable d'effectuer une recherche de point de conception par l'algorithme d'Abdo-Rackwitz [Abdo 90].

3.1.4 Résolution du problème fiabiliste

La résolution du problème fiabiliste consiste principalement à calculer la probabilité de défaillance P_f , résultat de l'intégration 3.4. Pour réaliser cette intégration, il existe deux catégories de méthodes de base : les méthodes par simulation et par approximation.

3.1.4.1 Résolution par simulations de Monte Carlo

La méthode de résolution par simulation de Monté Carlo est la plus intuitive puisqu'elle consiste, de manière très imagée, à réaliser un grand nombre de pièces (combinaisons de variables) puis à compter le nombre d'entre elles qui ne respectent pas le critère (figure 3.5). Le rapport du nombre de pièces défaillantes sur le nombre de pièces totales représente une estimation de la probabilité de défaillance qui tend vers la valeur exacte quand le nombre de pièces tend vers l'infini (théorie des grands nombres).

D'un point de vue numérique, le vecteur aléatoire X (ou U dans l'espace standard), représentant les combinaisons aléatoires de variables de base, est échantillonné de manière

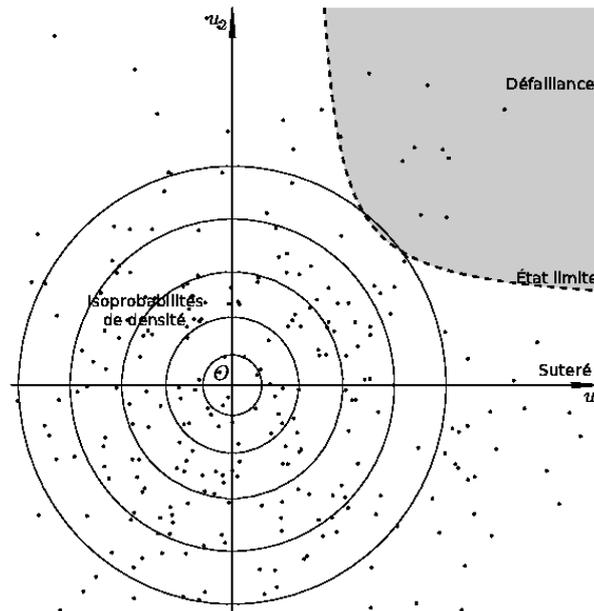


FIGURE 3.5 – Illustration de la méthode de simulation de Monté Carlo dans l'espace standard

aléatoire suivant la fonction de densité de probabilité conjointe f_X (ou Φ_n). Les N combinaisons sont ensuite évaluées par la fonction de performance $G(x)$ (ou $H(u)$) et permettent de construire l'indicateur de défaillance :

$$I_f = \begin{cases} 1 & \text{si } G(x) \leq 0 \\ 0 & \text{si } G(x) > 0 \end{cases} \quad (3.26)$$

L'espérance mathématique de cet indicateur constitue une estimation non biaisée de la probabilité de défaillance :

$$P_f = E[I_f] \simeq \hat{P}_f = \frac{1}{N} \sum_{r=1}^N I_f^{(r)} \quad (3.27)$$

avec r le rang du tirage.

La variance de cette estimation \hat{P}_f peut se calculer par la relation :

$$\sigma_{\hat{P}_f}^2 = \frac{P_f(1 - P_f)}{N} \quad (3.28)$$

Habituellement, le coefficient de variation de \hat{P}_f défini comme $COV = \frac{\sigma_{\hat{P}_f}}{\hat{P}_f}$ est utilisé comme critère de convergence puisqu'il représente l'erreur relative de l'estimation. Ainsi, si l'ordre de grandeur de la probabilité de défaillance est connue, pour un coefficient de variation souhaité il est possible de calculer le nombre de simulation minimum par :

$$N > \frac{1}{COV^2} \left(\frac{1}{P_f} - 1 \right) \quad (3.29)$$

Par exemple, pour une probabilité de défaillance de l'ordre de 10^{-3} et un coefficient de variation de 0,05, le nombre d'estimations nécessaires est de 400000 minimum. Plus généralement, une estimation d'une probabilité de 10^{-n} demande entre 10^{n+2} et 10^{n+3} simulations.

L'estimateur de Monté Carlo fait office de référence dans le domaine du calcul fiabiliste, mais le grand nombre de simulations nécessaires à sa mise en oeuvre le rend inapplicable dès que le temps d'appel à la fonction de performance dépasse la seconde. Cet algorithme ne peut raisonnablement pas être directement appliqué aux fonctions de performance de l'ERI. Il existe cependant des développements de méthodes alternatives visant à diminuer la variance de l'estimation à nombre de simulations constant. Ces méthodes sont présentées dans la section 3.2.

3.1.4.2 Approximations du premier et second ordre (FORM/SORM)

Les méthodes de résolution FORM et SORM ont pour principe d'approximer la fonction d'état limite du problème par un hyperplan ou une surface quadratique, en s'appuyant sur la localisation du point de conception P^* (figure 3.6).

La méthode FORM (First Order Reliability Method) approxime la fonction d'état limite par un hyperplan passant par le point de conception et orthogonal au vecteur des cosinus directeurs α [Haukaas 03]. Sachant que dans l'espace standard la loi de distribution conjointe est axisymétrique, la probabilité de défaillance peut se calculer via la distribution normale centrée réduite Φ et l'indice de fiabilité d'Hasofer-Lind selon :

$$P_{f_{FORM}} = \Phi(-\beta) = 1 - \Phi(\beta) \quad (3.30)$$

La méthode SORM (Second Order Reliability Method) quant à elle approxime l'état limite par une surface quadratique. Cette surface nécessite le calcul des courbures de l'état limite au point de conception, obtenues à partir du développement de Taylor à l'ordre deux de la fonction d'état limite. L'intégration sur la surface de défaillance délimitée par cette

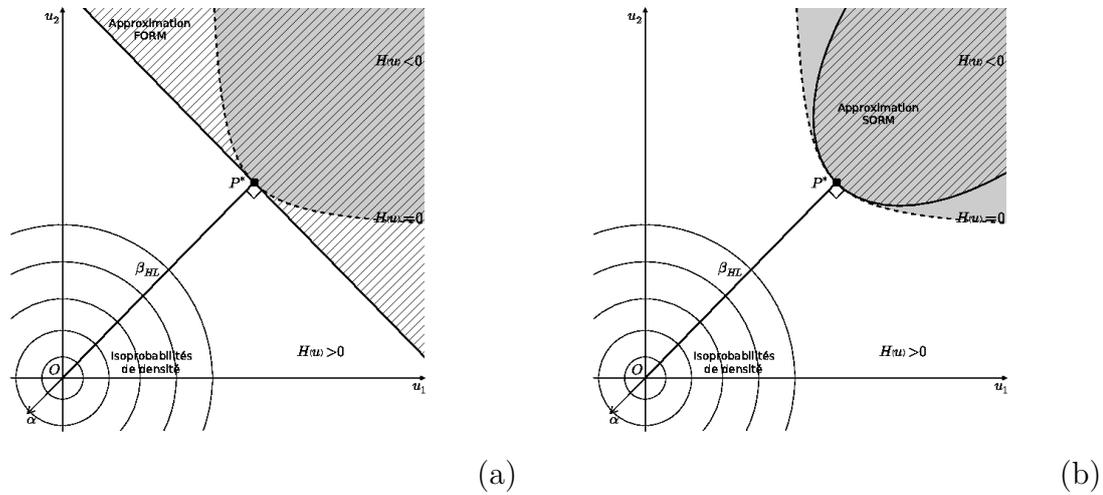


FIGURE 3.6 – Illustration des approximations FORM (a) et SORM (b)

fonction s'obtient principalement selon deux méthodes : la méthode de Breitung et la méthode de Tvedt.

Breitung réalise une approximation asymptotique, ce qui permet d'exprimer la probabilité de défaillance selon :

$$P_{f_{Breitung}} \simeq \Phi(-\beta) \prod_{i=1}^{n-1} (1 + \beta \kappa_i)^{-\frac{1}{2}} \quad (3.31)$$

où les termes κ_i sont les courbures de l'état limite au point de conception. Cette approximation est valable lorsque $\beta \rightarrow \infty$, en pratique quand $\beta > 3$.

Tvedt quant à lui propose une formulation exacte de l'intégration du domaine de défaillance quadratique utilisable pour de faibles valeurs de β :

$$P_{f_{Tvedt}} = \frac{1}{2} - \frac{1}{\pi} \int_0^{\infty} \sin \left(\beta t + \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{n-1} \tan^{-1}(\kappa_i t) \right) \left(\prod_{i=1}^{n-1} (1 + \kappa_i^2 t^2) \right)^{-\frac{1}{4}} \frac{e^{-\frac{t^2}{2}}}{t} dt \quad (3.32)$$

La précision des approximations de type FORM/SORM dépend de la forme de la fonction d'état limite dans l'espace standard. Si elle est linéaire ou faiblement non-linéaire, la méthode FORM fournira une bonne estimation, alors que si elle est non linéaire, la méthode SORM sera plus adaptée. Ces méthodes, et en particulier FORM, sont souvent critiquées mais restent un point de référence en raison de leur simplicité de mise en oeuvre [Haukaas 03]. En effet, une fois le point de conception trouvé, FORM ne demande aucun effort de calcul supplémentaire pour calculer P_f . Par contre, pour SORM, il est nécessaire

de calculer les courbures au point de conception, ce qui peut s'avérer délicat, surtout si on utilise la méthode des différences finies.

En ce qui concerne l'étude fiabiliste de l'ERI, si la recherche du point de conception converge, il sera possible d'effectuer une approximation FORM sans appel supplémentaire aux fonctions de performance.

3.1.5 Optimisation fiabiliste grâce aux facteurs d'importance

L'indice de fiabilité β et la probabilité de défaillance P_f permettent de quantifier la fiabilité du système étudié, mais ces valeurs ne donnent aucune information sur l'impact des variables de conception prises séparément. Les facteurs d'importance regroupent l'ensemble des indicateurs permettant de quantifier l'impact de chaque variable sur la fiabilité et de comparer ces variables entre elles. Ils sont basés principalement sur les sensibilités de β par rapport aux variables et aux paramètres de leur loi de distribution.

3.1.5.1 Vecteur des cosinus directeurs et sensibilité aux variables

Comme défini précédemment, le vecteur des cosinus directeurs α est le vecteur unitaire défini comme :

$$\alpha_i = \frac{\nabla_i H(u)}{\|\nabla H(u)\|} \Big|_{u^*} \quad (3.33)$$

De plus, l'approximation de l'état limite selon FORM est :

$$H(u) = \alpha^T \cdot u + \beta = 0 \quad (3.34)$$

et donc :

$$\frac{\partial \beta}{\partial u_i} \Big|_{u^*} = -\alpha_i = \frac{u_i^*}{\|u^*\|} \quad (3.35)$$

Ainsi, la connaissance des coordonnées du point de conception suffit pour calculer les sensibilités de l'indice de fiabilité par rapport aux variables de l'espace standard $-\alpha_i$. De plus, comme le vecteur α est unitaire, la somme des carrés de ses composantes l'est aussi, soit $\sum_i \alpha_i^2 = 1$. Il est donc fréquent de prendre les $\alpha_i^2 = \left(\frac{u_i^*}{\|u^*\|}\right)^2$ comme facteurs d'importance permettant de comparer directement l'impact des variables aléatoires dans le calcul fiabiliste, et éventuellement de qualifier la pertinence de la prise en compte de la variable comme aléatoire plutôt que déterministe. Le signe des $-\alpha_i$ permet lui

de qualifier l'impact de la variable : « sollicitation » si $-\alpha_i < 0$ ou « résistance » si $-\alpha_i > 0$. Néanmoins ces facteurs d'importance sont à considérer avec précaution puisqu'ils représentent seulement l'impact des variables normées centrées réduites décorréelées. Si cet estimateur est satisfaisant dans le cas où les variables physiques sont indépendantes, il doit être corrigé dans le cas de variables dépendantes.

Pour calculer les sensibilités de l'indice de fiabilité aux variables physiques, il faut introduire la matrice Jacobienne J de la transformation isoprobabiliste T au point de conception dans l'espace physique x^* :

$$\frac{\partial \beta}{\partial x_i} = \sum_{j=1}^n \frac{\partial \beta}{\partial u_j} \cdot \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \Big|_{x^*} = - \sum_{j=1}^n \alpha_j \frac{\partial T_j(x)}{\partial x_i} \Big|_{x^*} = -J^T \alpha \quad (3.36)$$

Ainsi, les facteurs d'importance associés sont défini comme :

$$\alpha_{phys} = \frac{J^T \alpha}{\|J^T \alpha\|} \quad (3.37)$$

Finalement les sensibilités de β par rapport aux variables de conception donnent une information sur le poids de chaque variable, prise comme aléatoire, dans le calcul fiabiliste.

3.1.5.2 Sensibilités aux paramètres des variables aléatoires

Maintenant que le calcul fiabiliste est réalisé et que les variables aléatoires prises en compte sont justifiées, il faut déterminer quels sont les paramètres (moyennes, écarts-types...) de variables à modifier ou maîtriser pour optimiser la fiabilité du système. Pour cela, on calcule la sensibilité de l'indice de fiabilité par rapport au $i^{\text{ième}}$ paramètre des variables aléatoires selon :

$$\xi_i = \frac{\partial \beta}{\partial \gamma_i} = \sum_{j=1}^n \frac{\partial \beta}{\partial u_j} \frac{\partial u_j}{\partial \gamma_i} \Big|_{u^*} = \sum_{j=1}^n \frac{u_j^*}{\beta} \frac{\partial T_j(x, \gamma)}{\partial \gamma_i} \quad (3.38)$$

où γ est le vecteur des paramètres des lois de distribution, et en remarquant que $\frac{\partial \beta}{\partial u_j} = -\alpha_j = \frac{u_j^*}{\beta}$.

Ces indicateurs permettent de savoir quel serait l'impact de la modification d'un des paramètres des lois de distribution des variables, information indispensable à l'optimisation de la conception. Par contre, ils ne permettent pas de comparer directement le poids des paramètres entre eux. Pour cela, on introduit les élasticités, définies comme les sensibilités normalisées :

$$\varepsilon_i = \frac{\gamma_i}{\beta} \left. \frac{\partial \beta}{\partial \gamma_i} \right|_{u^*} \quad (3.39)$$

Finalement les sensibilités aux paramètres et les élasticités associées aux différentes contraintes extérieures (économiques, de procédé...) vont permettre au concepteur de faire des choix pour l'optimisation fiabiliste du système.

3.2 La fiabilité en mécanique des structures

3.2.1 Enjeux du couplage mécano-fiabiliste

Le couplage mécano-fiabiliste consiste à associer un modèle mécanique numérique à un algorithme fiabiliste, en vue d'optimiser une structure aux moyens des outils présentés dans la section précédente. La première étape consiste donc à développer un modèle numérique représentatif du phénomène physique étudié. Ce modèle est souvent déjà réalisé lors d'une précédente étape de dimensionnement déterministe du système mécanique. Par contre, pour son utilisation avec un algorithme fiabiliste, il faut s'assurer qu'il soit valable dans un domaine plus large que celui des points moyens de fonctionnement. En effet, le point de conception peut se trouver à plusieurs écarts-types de la moyenne, point qui n'est généralement pas étudié en conception mécanique classique.

Comme résumé sur la figure 3.7, le couplage mécano-fiabiliste nécessite des données concernant directement le modèle fiabiliste d'une part, c'est à dire les variables aléatoires X et leurs définitions (distributions et corrélations) et les paramètres de l'algorithme de résolution fiabiliste, et d'autre part le modèle numérique de calcul de la fonction de performance. Ce modèle, souvent construit à partir de la méthode des éléments finis, est associé à une interface lui permettant d'être piloté par l'algorithme fiabiliste. En d'autres termes, l'algorithme envoie un jeu de paramètres x au modèle, et reçoit en retour l'estimation déterministe $G(x)$ correspondante.

La difficulté principale du couplage mécano-fiabiliste vient du nombre important de calculs à effectuer et du temps d'évaluation de chacun d'eux. En effet, les modèles mécaniques issus de codes externes type éléments finis présentent un temps de résolution pouvant aller de quelques secondes à plusieurs heures, et ce pour un seul jeu de variables x . Une résolution par la méthode de Monte Carlo est ainsi à exclure dans la quasi totalité des cas. Même la recherche du point de conception pour les méthodes d'approximation peut s'avérer longue et difficile surtout pour les cas où la fonction de performance est fortement

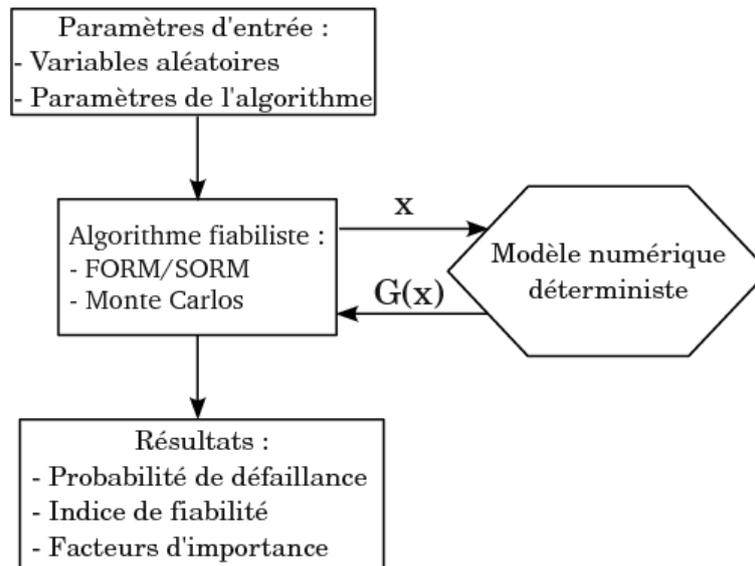


FIGURE 3.7 – Principe du couplage mécano-fiabiliste [Micol 07]

non linéaire. De plus, comme les codes de calcul utilisés sont souvent « fermés », la seule méthode de dérivation applicable est la méthode des différences finies, ce qui augmente le nombre d'appel à la fonction d'état et pose de nouvelles difficultés numériques (choix du pas, précision, virgule flottante...). Enfin, il est souvent conseillé de valider l'approximation de l'état limite par une méthode de simulation dérivée de Monte Carlo.

Le couplage mécano-fiabiliste fait l'objet de nombreux travaux théoriques sur les méthodes de résolution [Dubourg 10, Echard 10], mais aussi de mise en pratique, comme dans des problèmes mécaniques sur des structures composites [Dehmous 07], de thermo-mécaniques sur des composants d'électronique de puissance [Micol 07] ou encore de mécanique sur des éléments de structures [Pitti 10].

Pour conclure, l'enjeu principal du couplage mécano-fiabiliste est d'obtenir un maximum d'informations sur la fonction de performance et l'état limite associé en un minimum d'appels au modèle mécanique, afin de garantir une précision suffisante sur les résultats du calcul fiabiliste en évitant des coûts de calcul prohibitifs. Compte tenu de cet objectif, deux approches sont possibles : l'utilisation d'algorithmes de simulation limitant le nombre d'appels à la fonction de performance, ou l'utilisation des méta-modèles comme substitut.

3.2.2 Les méthodes par simulation

L'utilisation de la méthode de Monte Carlo directe amène à calculer un grand nombre de points dans l'espace de sûreté et peu dans l'espace de défaillance. Or, ce sont les points de l'espace de défaillance qui portent le plus d'informations. Ainsi, l'objectif des

méthodes dérivées présentées dans cette section est de maximiser le nombre de tirages dans l'espace défaillant, et par conséquent de diminuer la variance de l'estimateur, ou encore de diminuer le nombre de tirages à variance constante. Pour cela, il existe deux familles de méthodes : par tirages d'importance et par tirages conditionnés.

3.2.2.1 Simulations par tirages d'importance

Le principe des simulations par tirages d'importance consiste à biaiser la densité conjointe initiale des variables aléatoires au moyen d'une densité d'importance [Melchers 89, Lemaire 05]. En reprenant la définition de l'estimateur I_f selon l'équation 3.26, la probabilité de défaillance peut s'écrire :

$$P_f = \int I_f(u) \Phi_n(u) dx = \int I_f(u) \frac{\Phi_n(u)}{h(u)} h(u) dx \quad (3.40)$$

avec $h(u)$ la fonction densité d'importance ou densité de tirage autour du point de conception. L'estimation de la probabilité de défaillance s'écrit donc :

$$\hat{P}_f = \frac{1}{N} \sum_{r=1}^N I_f(u^{(r)}) \frac{\Phi_n(u^{(r)})}{h(u^{(r)})} \quad (3.41)$$

Les méthodes de simulation par tirages d'importance se différencient par le choix de la fonction $h(u)$. Comme illustré sur la figure 3.8, Melchers propose de définir $h(u)$ comme la fonction densité multi-normale réduite et centrée au point de conception P^* [Melchers 89]. Cela implique d'avoir réalisé au préalable une recherche de ce point, et permet d'écrire l'estimation de la probabilité de défaillance selon :

$$\hat{P}_f = \frac{1}{N} \sum_{r=1}^N \left[I_f(u^{(r)}) \exp\left(-u^{*T} u^{(r)} - \frac{\beta^2}{2}\right) \right] \quad (3.42)$$

Cette méthode donne des résultats satisfaisants à condition d'avoir correctement identifié le point de conception et à condition qu'il n'existe pas d'autres minimums locaux à proximité. Il est possible de faire varier l'écart-type ou la forme de la densité de probabilité à condition qu'elle soit contenue par la densité multi-normale de base.

D'autres auteurs proposent d'adapter la densité d'importance à la fonction de performance étudiée en se basant sur d'autres informations disponibles. Par exemple, Cannamela [Cannamela 08] utilise une prédiction par Processus Gaussiens (voir section 3.2.3.3) pour construire sa fonction de densité d'importance. Dubourg et Deheeger [Dubourg 10] proposent de généraliser la démarche aux méta-modèles à intervalle de confiance (Processus

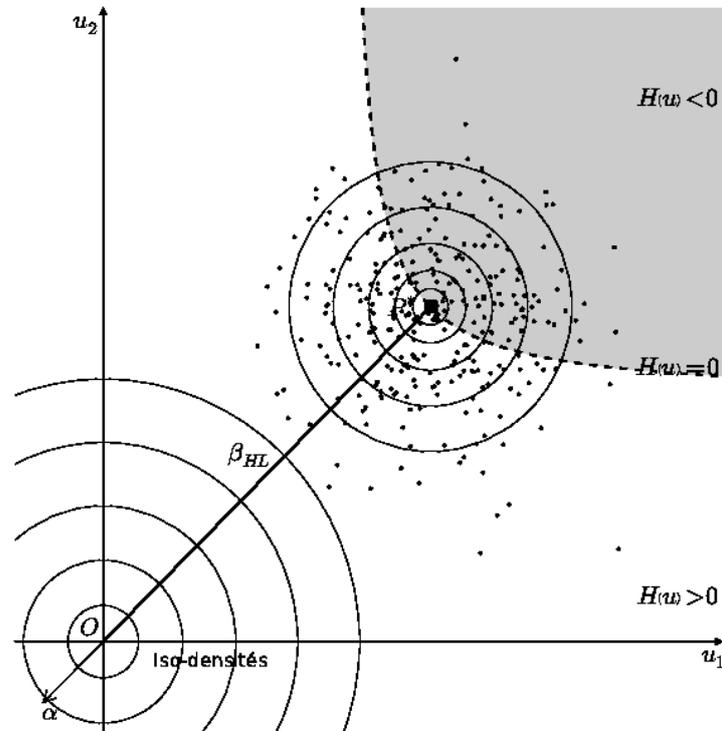


FIGURE 3.8 – Illustration de la méthode de tirages d'importance centrée au point de conception

Gaussiens et Support Vector Machine) et ainsi d'estimer la densité d'importance optimale à utiliser.

3.2.2.2 Simulation par tirages conditionnés

Le principe des méthodes de simulation par conditionnement est de définir un ensemble E contenu dans la zone de sûreté, et d'exclure tous les tirages tombant dans cette zone. De cette manière, comme pour les tirages d'importance, les points évalués sont favorisés dans le domaine de défaillance K . Si \bar{E} est le complément de E , la probabilité de défaillance se calcule donc par :

$$P_f = \mathbb{P}[K] = \mathbb{P}[K|E] \times \mathbb{P}[E] + \mathbb{P}[K|\bar{E}] \times \mathbb{P}[\bar{E}] = \mathbb{P}[K|\bar{E}] \times \mathbb{P}[\bar{E}] \quad (3.43)$$

car, sachant que E est dans le domaine de sûreté et que $K \cap E = \emptyset$, $\mathbb{P}[K|E] = 0$.

Les méthodes de simulation par conditionnement se différencient par le choix du ou des ensembles E . Par exemple, Yonezawa et al. [Yonezawa 99] proposent d'utiliser le point de conception ou plus précisément l'indice de fiabilité pour définir une hypersphère de rayon β centrée sur l'origine de l'espace standard comme ensemble de conditionnement E . Comme illustré sur la figure 3.9, les tirages suivent la densité multi-normale Φ_n dans l'espace standard et les tirages dans E sont ignorés. La probabilité de défaillance nécessite l'estimation de $\mathbb{P}[K|\bar{E}]$ d'une part et de $\mathbb{P}[\bar{E}]$ d'autre part. La fonction de répartition de la loi du χ^2 de dimension n est utilisée pour estimer précisément $\mathbb{P}[\bar{E}] = 1 - F_{\chi_n^2}(\beta^2)$. Si I est l'estimateur de défaillance conditionnelle défini selon 3.26, alors la seconde probabilité s'exprime $\hat{\mathbb{P}}[K|\bar{E}] = \frac{1}{N} \sum_{r=1}^N I^{(r)}$. Donc finalement l'estimation de la probabilité de défaillance se calcule selon :

$$\hat{P}_f = \left(1 - F_{\chi_n^2}(\beta^2)\right) \frac{1}{N} \sum_{r=1}^N I^{(r)} \quad (3.44)$$

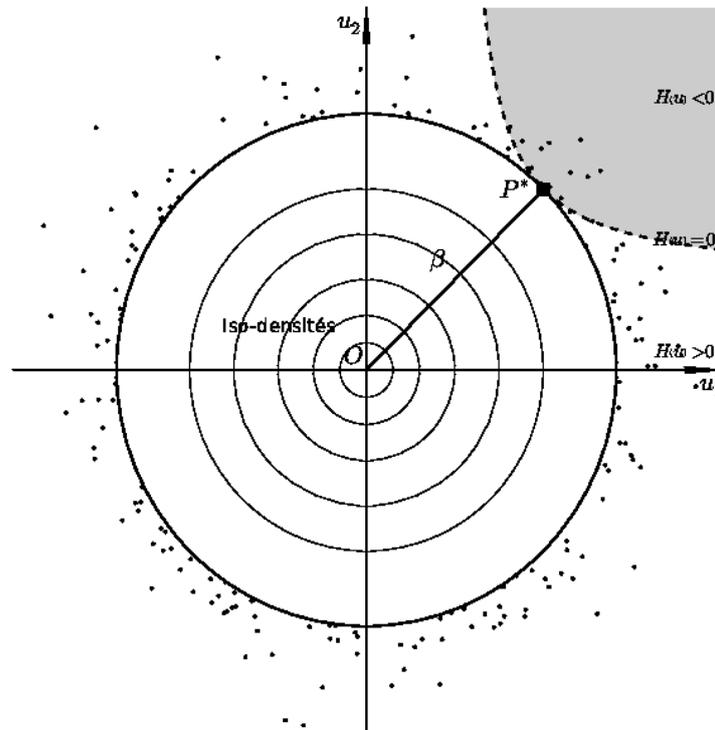


FIGURE 3.9 – Illustration de la méthode de simulation par conditionnement selon une hypersphère de rayon β

Dans la pratique, l'échantillonnage conditionné n'est pas effectué par tirages aléatoires suivant une loi multi-normale en excluant les échantillons compris dans E , mais par génération d'une direction aléatoire Δ_i uniforme sur l'hyper-sphère dans \mathbb{R}^n et d'un rayon aléatoire r distribué selon la loi de Rayleigh conditionné par $r > \beta$, ce qui est bien plus efficace, surtout quand β est grand.

Dans le cas où le point de conception n'est pas connu, il est possible d'utiliser cette méthode en choisissant un rayon différent, basé sur la connaissance des experts ou le savoir-faire du concepteur.

La méthode des Subset [Au 01] va plus loin dans le raisonnement du calcul par conditionnement. L'idée est de construire une série de domaines de défaillance K_i tels que $K_1 \supset K_2 \dots \supset K_m = K$, où K est le domaine de défaillance réel, et d'estimer la probabilité de défaillance finale par le produit de probabilités conditionnées :

$$P_f = \mathbb{P}[K_1] \prod_{i=2}^m \mathbb{P}[K_i|K_{i-1}] \quad (3.45)$$

Par cette méthode il est possible d'estimer des probabilités très petites, difficilement accessibles par la méthode de Monte Carlo, grâce au produit de probabilités d'ordre de grandeur raisonnable [Au 07].

Contrairement au conditionnement par hypersphère où elle est définie par une iso-valeur de densité de probabilité, la limite des zones conditionnées est définie par une iso-valeur g_i de la fonction de performance du système $G(x)$, ainsi les domaines sont décrits par $K_i = \{G(x) \leq g_i\}$. La méthode des Subset consiste donc à chercher de manière itérative une série de limites g_i telles que $\mathbb{P}[K_i|K_{i-1}]$ soit acceptable, jusqu'à ce que g_{i+1} soit inférieure à la limite de défaillance du système, soit $g_{i+1} < 0$. En pratique on choisit tous les $\mathbb{P}[K_i|K_{i-1}] = \alpha$ avec α de l'ordre de 0, 1. Ainsi la série d'iso-valeurs $g_1 > \dots > g_m = 0$ est construite, et la probabilité de défaillance estimée selon l'équation 3.45. La première itération est effectuée par simulation de Monte Carlo pour trouver la première valeur g_1 . Pour les itérations suivantes, les échantillons sont générés par l'algorithme de Metropolis-Hastings qui utilise les échantillons de l'itération précédente appartenant au domaine K_i comme germes.

Pour limiter le nombre d'itérations, la méthode i-Subset (improved Subset) permet d'utiliser une simulation conditionnée par hypersphère de diamètre β pour la première itération, et ainsi de prendre en compte une éventuelle information disponible sur le système pour rendre le calcul plus efficace.

Dans le même esprit, Dubourg et Deheeger [Dubourg 10] proposent de réaliser un tirage

conditionné par une iso-valeur définie suivant un méta-modèle à intervalle de confiance (Processus Gaussien ou Support Vector Machine). Cette méthode permet d'avoir une forme de surface limite proche de l'état limite réel, contrairement au conditionnement par hypersphère.

3.2.2.3 Conclusion

Les méthodes de calcul de la probabilité de défaillance par simulation d'importance ou conditionnée ainsi que leurs dérivées permettent de diminuer de manière significative la variance de l'estimateur I . Ainsi, le nombre de réalisations nécessaires à l'évaluation d'une probabilité de défaillance est bien inférieur à celui d'une estimation de Monte Carlo directe, et ce pour un même niveau de précision. De plus, il est possible d'évaluer de faibles probabilités, difficilement accessibles par la méthode de Monte Carlo.

Bien que ces méthodes diminuent le nombre d'appels à la fonction de performance du système, il reste de l'ordre de plusieurs milliers, ce qui n'est souvent pas réaliste pour un système mécanique modélisé par éléments finis. Pour cette raison, ces méthodes ne seront pas appliquées aux modèles thermo-chimique et thermo-mécanique de l'ERI.

Afin de diminuer encore le nombre d'appels au modèle numérique, il existe une autre approche, déjà utilisée dans le domaine de l'optimisation mécanique, qui consiste à substituer la fonction de performance d'origine par un modèle mathématique explicite dont le temps d'appel est négligeable. Une telle fonction est appelée méta-modèle et fait l'objet de la partie suivante.

3.2.3 Substitution par méta-modèle

3.2.3.1 Méta-modèles et fiabilité

L'objectif des méta-modèles en général et des surfaces de réponse en particulier est de remplacer un modèle numérique lourd par une fonction numérique explicite rapide à évaluer. Cette nouvelle fonction doit être représentative du modèle d'origine, au moins dans le domaine d'intérêt. En général, leur construction est faite à partir d'un nombre limité mais judicieusement choisi d'évaluations du modèle de base, constituant le plan d'expérience numérique.

La substitution par méta-modèle n'est pas une particularité de l'étude fiabiliste, elle est utilisée dans bien d'autres problèmes comme par exemple pour l'optimisation mécanique d'une structure [Hurtado 04, Laurenceau 08]. Par contre, alors que la zone d'intérêt d'une

étude d'optimisation est centrée sur le point moyen de fonctionnement, dans le cas d'une étude de fiabilité la zone d'intérêt est l'état limite de la fonction de performance, inconnue au départ et souvent éloignée du point moyen.

Bien qu'il soit possible de définir un méta-modèle dans l'espace physique, il est préférable de le définir dans l'espace standard. En effet, la transformation iso-probabiliste déforme l'espace, surtout si elle est effectuée sur des variables corrélées. Ainsi, un plan d'expérience défini optimal dans l'espace physique peut ne plus l'être dans l'espace standard, et en particulier deux points séparés d'une certaine distance dans l'espace physique peuvent être proches voire quasi confondus dans l'espace standard. C'est pourquoi le plan d'expérience est défini dans l'espace standard, les points du plan sont ensuite exprimés et évalués dans l'espace physique par le modèle mécanique, puis les résultats sont à nouveau transformés dans l'espace standard pour identifier le méta-modèle. La fonction d'approximation du modèle initial $H(u)$ est noté $\hat{H}(u)$.

On peut utiliser plusieurs types de plan d'expérience comme les plans dits déterministes (plans factoriels ou plans complets) ou les plans dits stochastiques (plans de Monte Carlo ou hypercubes latins sampling). Le choix du plan dépend principalement du méta-modèle visé et des informations disponibles concernant le système modélisé. Par exemple si le point de conception est connu, le plan d'expérience sera centré en ce point. Quoi qu'il en soit l'objectif reste le même, maximiser l'information obtenue par la réalisation du plan d'expérience tout en minimisant sa taille, c'est à dire le nombre d'appels au modèle de base.

Une fois le méta-modèle identifié, il est substitué au modèle de base pour l'étude de fiabilité. Il est donc possible d'y appliquer les méthodes de résolutions fiabilistes comme Monte Carlo, FORM et SORM, ou encore les dérivées de méthodes par simulation comme présentées dans la section 3.2.2.

Parmi les surfaces de réponses classiques on retrouve les polynômes et les réseaux de neurones. Il existe aussi des surfaces de réponses à intervalle de confiance comme la méthode des Machines à Vecteurs Supports (SVM) ou l'interpolation par krigeage présentée dans la section 3.2.3.3 [Goupy 99, Deheeger 08].

Certaines méthodes itératives utilisent des critères d'optimalité pour enrichir et affiner le plan d'expérience en choisissant les points susceptibles de contenir le plus d'information sur la fonction de performance, comme les surfaces de réponses adaptatives [Devictor 96]. Parmi ces méthodes on peut citer l'EGRA (Efficient Global Reliability Analysis) qui repose sur un critère d'enrichissement de Processus Gaussien [Bichon 08], ou SMART (Support vector Machin Algorithm for Reliability esTimation) qui permet l'enrichissement par

SVM [Deheeger 08], ou encore AK-MCS (Active learning method combining Kriging and Monte Carlo Simulation) associant l'interpolation par krigeage et la simulation de Monte Carlo pour enrichir le plan d'expérience du méta-modèle [Echard 10]. Enfin, certaines méthodes associent les méthodes de résolution fiabiliste aux méta-modèles comme par exemple ²SMART (Subsets by Support vector Machin Algorithm for Reliability esTimation) [Deheeger 08].

3.2.3.2 Surfaces de réponses polynomiales

L'utilisation d'une fonction polynomiale est une alternative simple pour substituer la fonction de performance du système. Bien qu'un ordre élevé du polynôme soit favorable à la bonne représentation du modèle, il implique aussi un grand nombre d'inconnues et donc d'expériences numériques. Dans une première approche, un polynôme d'ordre 2 est souvent satisfaisant. La fonction de substitution ainsi définie s'écrit :

$$H(x) \simeq \hat{H}(x) = c_0 + \sum_{i=1}^n c_i u_i + \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n c_{ij} u_i u_j \quad (3.46)$$

c_0 , c_i et c_{ij} étant des coefficients à déterminer. Pour résoudre le système il est donc nécessaire de construire un plan d'expérience d'une taille supérieure ou égale à $n_s = 1 + 2n + C_n^2$. Il est parfois possible de faire certaines hypothèses, basées sur la connaissance du système, comme négliger certains ou tous les termes croisés par exemple, ce qui ramène la taille du système à $n_s = 2n + 1$. Le système peut s'exprimer par :

$$H_e = Zc \quad (3.47)$$

avec c le vecteur colonne des paramètres inconnus de taille n_s , H_e le vecteur colonne des valeurs $H(u^{(r)})$, où r est l'indice du point d'expérience, et Z la matrice d'expériences constituée des n_e vecteurs lignes d'expérience $z^{(r)}$ dépendant de la forme du polynôme choisi. Par exemple pour une Surface de Réponse Quadratique (SRQ) $z^{(r)} = \{1, \dots, u_i^{(r)}, \dots, u_i^{(r)} u_j^{(r)}, \dots\}$ pour $i, j \in [1, \dots, n]$ de taille n_s .

La régression est un problème classique de minimisation pouvant être résolu par un algorithme de type Levenberg-Marquardt, et dont la fonction coût est souvent définie comme l'estimateur des moindres carrés :

$$\hat{c} = \operatorname{argmin} \left(\sum_{r=1}^{n_e} \left(\hat{H}(u^{(r)}) - H(u^{(r)}) \right)^2 \right) \quad (3.48)$$

Il est aussi possible d'associer des poids aux points d'expériences, comme par exemple $\frac{1}{H(u^{(r)})}$ donnant ainsi plus d'importance aux expériences proches de l'état limite [Lemaire 05].

Il existe deux principaux indicateurs pour quantifier la qualité de la surface de réponse [Goupy 99]. Le premier caractérise l'écart entre la surface de réponse et les points expérimentaux, c'est le coefficient de régression :

$$L^2 = 1 - \frac{\sum_{r=i}^{n_e} (\hat{H}(u^{(r)}) - H(u^{(r)}))^2}{\sum_{r=i}^{n_e} (E[H_e] - H(u^{(r)}))^2} \quad (3.49)$$

Ce coefficient est compris entre 0 et 1, et tend vers 1 avec la qualité de la régression. En général, une régression est estimée de qualité quand $R^2 > 0,9$. La limite de ce coefficient est qu'il augmente de manière artificielle quand le nombre d'expérience n_e augmente. Pour cela, un estimateur modifié est défini en prenant en compte le nombre de degrés de liberté $n_e - n_s$:

$$\bar{L}^2 = 1 - \frac{\frac{1}{n_e - n_s} \sum_{r=i}^{n_e} (\hat{H}(u^{(r)}) - H(u^{(r)}))^2}{\frac{1}{n_e - 1} \sum_{r=i}^{n_e} (E[H_e] - H(u^{(r)}))^2} \quad (3.50)$$

Le second indicateur caractérise la qualité prédictive de la SR en se basant sur le calcul des erreurs d'approximation après omission un à un des différents points d'expérience. L'erreur faite par la surface de réponse omettant le point $u^{(r)}$ s'exprime par :

$$\varepsilon_r = \frac{H(u^{(r)}) - \hat{H}(u^{(r)})}{(1 - \text{tr}(Z(Z^T Z)^{-1} Z^T))^2} \quad (3.51)$$

et le coefficient de détermination prédictif Q^2 s'obtient par analogie au L^2 à partir de l'erreur de prédiction 3.51, selon l'expression :

$$Q^2 = 1 - \frac{\sum_{r=i}^{n_e} \varepsilon_r^2}{\sum_{r=i}^{n_e} (E[H_e] - H(u^{(r)}))^2} \quad (3.52)$$

De la même manière qu'avec R^2 , la qualité de prédiction de la surface de réponse augmente quand Q^2 approche de la valeur 1.

Comme l'objectif des surfaces de réponses est de représenter la réponse du modèle dans la zone d'intérêt, il faut construire le plan d'expérience en conséquence. La zone d'intérêt dans l'étude de fiabilité étant l'état limite de la fonction, et en particulier les environs du point de conception, le plan d'expérience d'une surface de réponse polynomiale doit être centré en ce point. Or, il n'est pas connu au début de l'étude. Pour cela il est possible de réaliser une recherche de plan d'expérience optimal de manière itérative [Lemaire 05]. Après une première identification de la surface de réponse sur un plan d'expérience centré au point moyen, une recherche de point de conception est faite. Un nouveau plan est ensuite construit autour de ce point pour identifier une nouvelle surface de réponse, et une nouvelle recherche de point de conception est appliquée. Les itérations sont stoppées lorsque le point de conception est stabilisé et la dernière surface de réponse est utilisée pour appliquer les méthodes fiabilistes.

L'intérêt des surfaces de réponses polynomiales en général et des surfaces de réponse quadratiques (SRQ) en particulier est la simplicité de mise en oeuvre et l'accès direct aux dérivées. Ce type de surface de réponse est adapté aux systèmes à faible non linéarité car, dans le cas contraire, il faut augmenter l'ordre du polynôme et par conséquent la taille du plan d'expérience de manière excessive. En pratique il est rare d'aller au-delà de l'ordre 3, sauf si le concepteur a des informations spécifiques sur la forme de la fonction de performance. L'autre limite de la surface de réponse polynomiale est la rigidité de la forme de la fonction. En effet, pour certaines formes de fonction de performance il ne sera pas possible d'obtenir une approximation satisfaisante avec une SR polynomiale. Une alternative est l'utilisation des réseaux de neurones dont le principe ne sera pas détaillé dans ce mémoire, mais le lecteur pourra se référer à l'ouvrage de Sarzeaud pour plus de détail sur ce sujet [Sarzeaud 95].

3.2.3.3 Interpolation par krigeage

Le krigeage est une méthode prédictive imaginée dans les années 50 par Danie Krige, un ingénieur minier sud-africain. La méthode a ensuite été formalisée par le français Matheron dans les années 60 [Matheron 73]. Depuis elle est utilisée dans le domaine de la géostatistique pour prédire entre autres les taux de minerai contenus dans le sol à partir d'une série de relevés voisins.

Le krigeage est donc une méthode d'interpolation permettant d'estimer la valeur d'une fonction en un point $x^{(0)}$ non échantillonné, par une combinaison linéaire des observations aux points voisins $x^{(i)}$:

$$\hat{y}(x^{(0)}) = \sum_{i=1}^{n_v} v_i y(x^{(i)}) = v^T Y \quad (3.53)$$

avec v_i les poids appliqués aux points d'observation voisins, n_v le nombre de point voisins. On note $Y^T = \{y(x^{(0)}), \dots, y(x^{(n_v)})\}$ le vecteur des observations et $v^T = \{v_1, \dots, v_{n_v}\}$ les vecteurs des poids, choisis de manière à ce que l'estimation en $x^{(0)}$ soit non-biaisée et de variance minimale. Le krigeage est en fait la meilleure prévision linéaire sans biais ou BLUP (Best Linear Unbiased Predictor).

L'idée est de considérer la fonction $y(x)$ comme un processus gaussien $Y(x)$ décomposé selon :

$$Y(x) = \mu(x) + \delta(x) \quad (3.54)$$

où $\mu(x)$ est la structure déterministe de $Y(x)$ définissant son espérance, et $\delta(x)$ une fonction aléatoire stationnaire par hypothèse, d'espérance nulle et définie par une structure de dépendance connue. C'est cette structure de dépendance qu'il faut déterminer pour calculer les poids v_i , grâce à l'étude variographique consistant à estimer les paramètres du semi-variogramme, comme exposé dans la suite de cette partie.

Le type de krigeage est déterminé par la forme de la fonction $\mu(x)$. Le krigeage simple correspond à une espérance de processus constante et connue $\mu(x) = m$. Le krigeage ordinaire fait référence à l'hypothèse d'une espérance constante mais inconnue $\mu(x) = \mu$. Enfin d'une manière plus générale, la moyenne du processus peut suivre une combinaison linéaire de fonctions de la position x , $\mu(x) = \sum \zeta_j w_j(x)$, ce qui définit le krigeage universel. Dans ce cas, les ζ_j sont des coefficients inconnus, et les fonctions $w_j(x)$ sont déterminées par l'utilisateur. Par exemple, pour un krigeage à modèle de tendance linéaire et un vecteur de dimension 2 : $w_1(x) = 1$, $w_2(x) = x_1$ et $w_3(x) = x_2$. Sachant que l'espérance du processus est rarement connue à l'avance et que le krigeage ordinaire peut être vu comme un cas particulier du krigeage universel, la suite de la description se base donc sur ce dernier.

Avant de calculer les poids λ_i , il est nécessaire de déterminer la structure de dépendance de $\delta(x)$. La contrainte de stationnarité intrinsèque implique, pour tout accroissement $\delta(x+h) - \delta(x)$, une espérance nulle et une variance dépendant uniquement de h , ce qui se traduit par :

$$E[\delta(x+h) - \delta(x)] = 0 \quad (3.55)$$

$$Var[\delta(x+h) - \delta(x)] = 2\gamma(h) \quad (3.56)$$

Ainsi, $\gamma(h)$ est définie comme la demi variance de l'écart entre x et $x+h$, nommée

semi-variogramme. A noter que, quelle que soit la position, le semi-variogramme est invariant. C'est grâce à cette propriété qu'il est possible d'identifier le semi-variogramme d'un processus, en utilisant les observations disponibles et l'estimateur [Baillargeon 05] :

$$\hat{\gamma}(h) = \frac{1}{2|N(h)|} \sum_{N(h)} \left(y(x^{(i)}) - y(x^{(j)}) \right)^2 \quad (3.57)$$

avec $N(h) = \{(i, j) \text{ tel que } |x^{(i)} - x^{(j)}| = h\}$ et $|N(h)|$ le nombre de couples distincts de $N(h)$.

Le semi-variogramme expérimental est maintenant construit. L'étape suivante consiste à identifier les paramètres du modèle variographique. Ce modèle est choisi en fonction des connaissances disponibles sur le système étudié. Dans le domaine mécanique, il est fréquent d'utiliser le modèle exponentiel ou le modèle gaussien [Kaymaz 05], respectivement représentés par les expressions 3.58 et 3.59 :

$$\gamma(h) = \sigma \left(1 - e^{-\frac{3h}{\theta}} \right) \quad (3.58)$$

$$\gamma(h) = \sigma \left(1 - e^{-\frac{3h^2}{\theta^2}} \right) \quad (3.59)$$

Il faut donc résoudre un problème de régression pour identifier les paramètres σ et θ . En pratique, σ est le palier et correspond à la racine de la variance du processus $Y(x)$, et θ est la portée et correspond à la distance à partir de laquelle deux points sont indépendants.

Il existe d'autres méthodes que l'analyse variographique pour identifier les paramètres σ et θ . Par exemple, dans le script de calcul DACE, l'auteur identifie ces paramètres par une méthode basée sur une résolution de problème de maximum de vraisemblance [Lophaven 02].

Maintenant que la structure de dépendance est définie il est possible de réaliser l'estimation par krigeage au point $x^{(0)}$ en calculant les poids λ_i qui minimisent la variance de l'estimateur $Var[\hat{Y}(x^{(0)}) - Y(x^{(0)})]$ sous la contrainte $v^T F = w^T$ avec $v^T = \{v_1, \dots, v_{n_v}\}$, $w^T = \{w_1(x^{(0)}), \dots, w_p(x^{(0)})\}$ le vecteur des fonctions de tendance au point à estimer, et $W_{ij} = w_{j-1}(x^{(i)})$ la matrice $n_v \times p$ des fonctions de tendances aux points d'observation. La fonction à minimiser s'exprime par :

$$Var[\hat{Y}(x^{(0)}) - Y(x^{(0)})] = -v^T \Gamma v + 2v^T \gamma \quad (3.60)$$

avec $\gamma^T = \{\gamma(|x^{(0)} - x^{(1)}|), \dots, \gamma(|x^{(0)} - x^{(n_v)}|)\}$ le vecteur des semi-variances entre le

point à estimer et les points d'observation, et $\Gamma_{ij} = \gamma \left(|x^{(i)} - x^{(j)}| \right)$ la matrice $n_v \times n_v$ des semi-variances entre les points d'observation.

Ce problème de minimisation sous contrainte se résout par la méthode des coefficients de Lagrange, et le point minimum est [Baillargeon 05] :

$$\hat{v} = \Gamma^{-1} \left(\gamma + W \left(W^T \Gamma^{-1} W \right)^{-1} \left(w - W^T \Gamma^{-1} \gamma \right) \right) \quad (3.61)$$

Finalement l'estimation de $y(x^{(0)})$ est :

$$\hat{y}(x^{(0)}) = \left(\gamma + W \left(W^T \Gamma^{-1} W \right)^{-1} \left(w - W^T \Gamma^{-1} \gamma \right) \right)^T \Gamma^{-1} Y \quad (3.62)$$

et la variance de krigeage, aussi nommée MSE (Mean Squared Error) :

$$\sigma_k^2(x^{(0)}) = \gamma^T \Gamma^{-1} \gamma - \left(w - W^T \Gamma^{-1} \gamma \right)^T \left(W^T \Gamma^{-1} W \right)^{-1} \left(w - W^T \Gamma^{-1} \gamma \right) \quad (3.63)$$

Ce résultat est valable pour le krigeage universel en général et pour le krigeage ordinaire en particulier, c'est à dire quand $w = 1$ et $W^T = \{1, \dots, 1\}$.

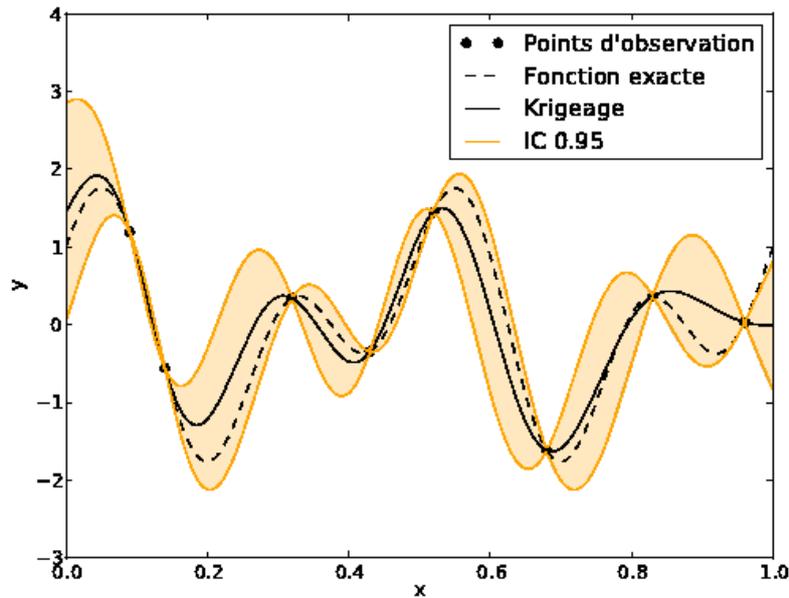


FIGURE 3.10 – Illustration d'interpolation par krigeage avec intervalle de confiance sur une fonction $y = f(x)$ quelconque

La première propriété du krigeage est qu'il réalise une interpolation exacte, c'est à dire

que l'estimation aux points d'observation est égale à la valeur observée. La seconde est le calcul de la variance aux points d'estimation, ce qui permet d'associer un intervalle de confiance à l'estimation comme illustré sur la figure 3.10. Cet intervalle de confiance est utilisé dans les méthodes basées sur le krigeage [Hurtado 04, Laurenceau 08].

Si le krigeage appliqué simplement à un plan d'expérience n'a pas plus d'intérêts qu'une SRQ, c'est lorsqu'il est couplé à une méthode d'apprentissage ou d'enrichissement de plan d'expérience qu'il prend tout son sens [Kaymaz 05]. Par exemple Bichon et al. [Bichon 08] proposent une méthode d'enrichissement du plan d'expérience grâce à un critère basé sur la variance de l'estimation, l'EGRA (Efficient Global Reliability Analysis). Ranjan et al. [Ranjan 08] utilisent le krigeage dans une méthode d'estimation des contours d'une fonction de performance. Finalement, dans la continuité de ces travaux, Echard et al. [Echard 10] associent la méthode de la simulation de Monte Carlo et le krigeage pour calculer la probabilité de défaillance avec un minimum d'appel à la fonction de performance.

3.2.3.4 Méthode par apprentissage AK-MCS

Dans la méthode d'apprentissage proposée par Bichon et al. [Bichon 08], l'objectif est d'affiner l'estimation de la fonction de performance dans la zone d'intérêt, c'est à dire l'état limite de la fonction. En d'autres termes, peu importe la valeur de la fonction tant qu'on sait définir précisément la limite entre la zone positive (zone de sûreté) et négative (zone de défaillance). Comme relevé par Echard et al. [Echard 10], cette méthode permet d'affiner l'état limite sur l'ensemble du domaine d'étude préalablement fixé. Or, il se peut que certaines parties ne soient pas intéressantes car statistiquement peu probables, d'où l'idée de concentrer l'effort d'enrichissement seulement dans les zones statistiquement intéressantes. Pour cela, au lieu de déterminer une zone d'étude de manière déterministe, ils proposent de se concentrer sur une population échantillonnée par simulations de Monte Carlo, au travers d'une méthode nommée AK-MCS pour « Active learning method combining Kriging and Monte Carlo Simulation ».

La méthode consiste à construire une population de Monte Carlo de N points suivant les distributions des variables aléatoires et de sélectionner un nombre initial n_{exp} de points pour être évalués par le modèle et constituer le premier plan d'expérience. Ce plan est ensuite utilisé comme base de krigeage, et pour estimer la fonction de performance $\hat{G}(x)$ ainsi que la variance de krigeage $\sigma_k^2(x)$ en tous points de la population de Monte Carlo.

Grâce au calcul des $\hat{G}(x)$ et des $\sigma_k^2(x)$ associées, il est possible de construire un critère permettant de classer les points de la population de Monte Carlo par ordre de pertinence,

pour l'enrichissement du plan d'expérience. Ce critère est défini comme le rapport entre l'estimation et l'écart-type de krigeage :

$$U(x) = \frac{|\hat{G}(x)|}{\sigma_k(x)} \quad (3.64)$$

$U(x)$ représente le nombre d'écart-types qui sépare l'estimateur de l'état limite au point x . Les points dont le critère est petit, typiquement inférieur à 2, se trouvent dans une zone où l'état limite est imprécisément défini par le krigeage. Le point qui minore la fonction $U(x)$ est donc ajouté au plan d'expérience pour être évalué par le modèle et utilisé dans un nouveau krigeage sur les points de la population de Monte Carlo.

L'enrichissement du plan d'expérience se poursuit jusqu'à ce que $U(x)$ soit suffisamment grand, c'est à dire que l'état limite soit défini précisément par le krigeage. Dans son article, l'auteur estime la précision suffisante quand $U(x) > 2$. Ensuite, la probabilité de défaillance peut être estimée par l'expression de Monte Carlo :

$$\hat{P}_f = \frac{1}{N} \sum_{r=1}^N I_f^{(r)} \quad (3.65)$$

et le coefficient de variation par :

$$COV_{\hat{P}_f} = \sqrt{\frac{1 - \hat{P}_f}{\hat{P}_f N}} \quad (3.66)$$

Si le coefficient de variation obtenu n'est pas satisfaisant, le nombre de points de la population de Monte Carlo est augmenté, et la procédure est reprise en partant du dernier plan d'expérience utilisé.

D'après l'auteur, la procédure de la méthode AK-MCS, reprise sur la figure 3.11, permet de limiter fortement le nombre d'appel à la fonction d'état tout en garantissant une précision équivalente à une simulation de Monte Carlo directe. La méthode a aussi été comparée à plusieurs autres associations de méta-modèles et méthodes de simulation avec la même conclusion [Echard 10]. Cette méthode paraît donc très intéressante pour calculer la probabilité de défaillance d'un système relativement lourd en temps de calcul, avec un nombre limité d'évaluations et une précision équivalente à une résolution directe par simulation.

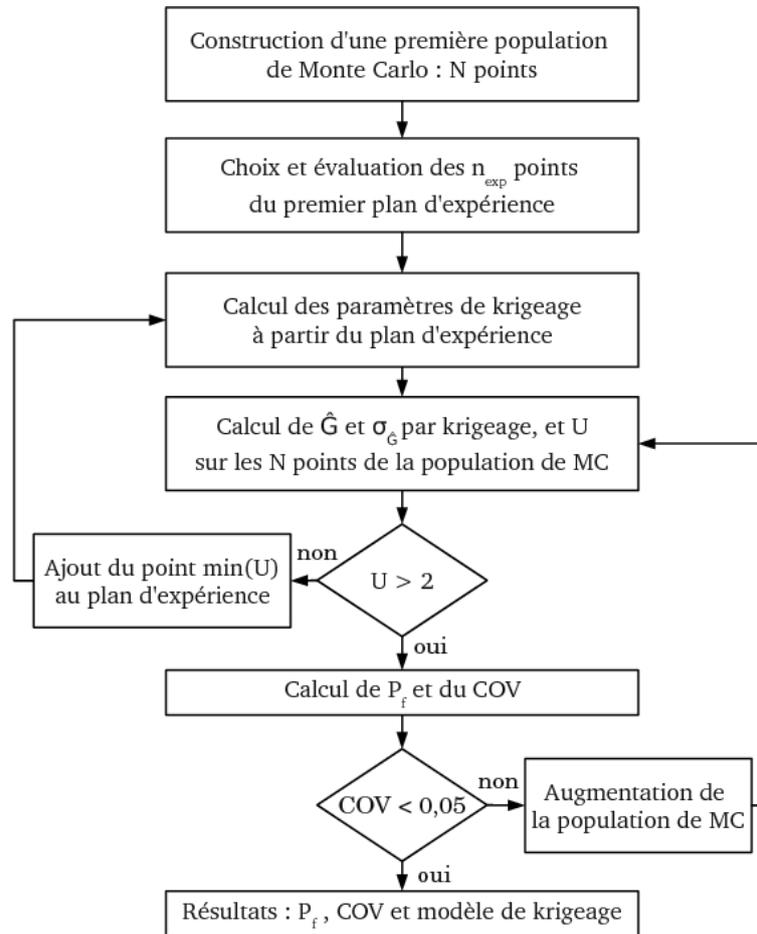


FIGURE 3.11 – Algorithme de résolution par la méthode AK-MCS

3.3 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons dans un premier temps présenté les concepts de base d'une étude fiabiliste ainsi que les résultats que l'on pouvait en attendre. Nous nous sommes ensuite focalisés sur l'application à la mécanique des structures et notamment sur les problèmes issus du couplage mécano-fiabiliste qui sont d'autant plus importants que le modèle fait appel à la méthode des éléments finis.

Dans ce cadre là, nous avons vu qu'un moyen pour conduire une étude de fiabilité performante dans un temps raisonnable était l'utilisation de méta-modèles construits notamment au moyen de méthode de krigeage et de la méthode AK-MCS. Compte tenu de ce travail bibliographique, nous avons pu déterminer une stratégie d'étude mécano-fiabiliste de l'ERI, utilisant de manière complémentaire les résolutions par la méthode FORM, par surface de réponse quadratique suivie de simulations de Monte Carlo, et par l'algorithme AK-MCS. Le développement de certains de ces algorithmes ainsi que leur application à

l'étude de l'ERI sont présentés dans le chapitre 4.

Chapitre 4

Étude de fiabilité de l'échangeur réacteur

Sommaire

4.1 Outils numériques pour le calcul mécano-fiabiliste	147
4.1.1 Revue des codes de calculs fiabilistes	147
4.1.2 Implémentation du krigeage	148
4.1.3 Implémentation de la méthode AK-MCS	153
4.2 Fiabilité thermo-chimique	155
4.2.1 Définition des modes de défaillances et fonctions d'état limite .	156
4.2.2 Étude de sensibilité aux paramètres de la fonction de performance	157
4.2.3 Choix des variables aléatoires pour l'étude fiabiliste	159
4.2.4 Résolution directe par méthode FORM	160
4.2.5 Résolution indirecte par SRQ et Monte Carlo	163
4.2.6 Résolution indirecte par méthode AK-MCS	164
4.2.7 Analyse et conclusion	168
4.3 Fiabilité mécanique	168
4.3.1 Définition des modes de défaillances et fonctions d'état limite .	169
4.3.2 Étude de sensibilité aux paramètres de la fonction de performance	170
4.3.3 Choix des variables aléatoires pour l'étude fiabiliste	171
4.3.4 Résolution directe par méthode FORM	172
4.3.5 Résolution indirecte par SRQ et Monte Carlo	173
4.3.6 Résolution indirecte par méthode AK-MCS	175
4.3.7 Analyse et conclusion	176
4.4 Conclusion	177

Table des notations

Par ordre d'apparition :

$Y(x)$	processus gaussien
$\mu(x)$	partie déterministe de $Y(x)$
$\delta(x)$	partie stochastique de $Y(x)$
$x^{(i)}$	$i^{\text{ème}}$ point d'observation
$x^{(0)}$	point non échantillonné
n_{exp}	nombre de points d'observation
$y^{(i)}$	évaluation du $i^{\text{ème}}$ point d'observation
h	distance entre points d'expériences
$N(h)$	ensemble des couples de points d'expériences distants de h
$ N(h) $	nombre de couples de $N(h)$
h_{max}	distance maximale prise en compte pour le semi-variogramme expérimental
$\gamma(h)$	semi-variogramme
$\hat{\gamma}(h)$	semi-variogramme expérimental
θ	portée du variogramme
σ	pallier du variogramme
w	vecteur de tendance
W	matrice de tendance
γ	vecteur des semi-variances
Γ	matrice des semi-variances
$\sigma_k^2(x)$	variance de krigeage au point x
$U(\cdot)$	fonction de pertinence
$y(x)$	fonction objectif
$\hat{y}(x)$	estimation au point x
v	vecteur des poids d'interpolation
n_{exp0}	nombre initial de points d'observation
N	taille de la population de Monte Carlo
Φ	fonction de répartition d'une variable gaussienne de moyenne nulle et d'écart-type unitaire

n	nombre de variables aléatoires
$U^{(i)}$	critère de pertinence du $i^{\text{ème}}$ point de la population de Monte Carlo
U_{min}	limite minimale du critère de pertinence
$G(.)$	fonction de performance dans l'espace physique
$H(.)$	fonction de performance dans l'espace standard
$\hat{H}(.)$	estimation de $H(.)$
P_f	probabilité de défaillance
\hat{P}_f	estimation de P_f
$COV_{\hat{P}_f}$	coefficient de variation de l'estimation de P_f
X_i	$i^{\text{ème}}$ variable aléatoire physique du vecteur X
μ_i	moyenne de la variable aléatoire X_i
σ_i	écart-type de la variable aléatoire X_i
x_i	réalisation de la variable aléatoire X_i
X	vecteur aléatoire physique
x	réalisation du vecteur aléatoire X
U_i	$i^{\text{ème}}$ variable aléatoire standard du vecteur U
u_i	réalisation de la variable aléatoire U_i
U	vecteur aléatoire standard
u	réalisation du vecteur aléatoire U
T	transformation isoprobabiliste
$T_{max}(x)$	évaluation de la température maximale au point x
$Dm_{sulf.}$	débit massique de sulfate de sodium
Dm_{eau}	débit massique d'eau
$Dm_{thio.}$	débit massique de thiosulfate de sodium
$Dm_{perox.}$	débit massique de peroxyde d'hydrogène
T_{in}	température d'entrée du fluide procédé
T_u	température du fluide utilité
h_c	coefficient de convection thermique
λ	conduction thermique du SiC
Δx_i	pas pour la différence finie

μ	vecteur des moyennes des variables aléatoires, point moyen de fonctionnement
$F_T(s)$	fonction densité de flux thermique
$F_{T\mu}$	vecteur densité de flux à l'équilibre au point moyen de fonctionnement
E	critère de convergence thermo-chimique
$\varepsilon_{j,i}$	élasticité de la fonction de performance G_j par rapport à la variable i
P^*	point de conception
e_{min}	écrasement minimal des joints du système
P_r	probabilité de rupture du SiC
F	effort global de serrage
P	pression du fluide utilité
F_l	effort linéique de réaction des joints
α	coefficient de raideur des joints
ω	module de Weibull
η	contrainte caractéristique

L'étude bibliographique du chapitre 3 a permis de déterminer un ensemble de méthodes applicables aux modèles thermo-chimique et thermo-mécanique de l'ERI afin de mener l'étude fiabiliste sur cet échangeur réacteur. L'ensemble de ces méthodes nécessite l'utilisation d'outils numériques spécialisés qui, pour certains, ont nécessité une phase de développement.

Dans ce dernier chapitre, nous commencerons par décrire la démarche de recherche et de choix du code de calcul fiabiliste utilisé, ainsi que le développement des algorithmes spécifiques comme l'AK-MCS. Les sections suivantes seront consacrées à l'étude fiabiliste du comportement thermo-chimique de l'ERI d'une part, et à l'étude fiabiliste de son comportement mécanique d'autre part, constituées de la définitions des fonctions de performance, du choix des variables aléatoires et de l'application des différentes méthodes fiabilistes.

4.1 Outils numériques pour le calcul mécano-fiabiliste

4.1.1 Revue des codes de calculs fiabilistes

Afin de conduire l'étude fiabiliste qui nous occupe, il est nécessaire d'utiliser un code de calcul disposant des algorithmes, ou du moins une partie des algorithmes fiabilistes. Le code à utiliser doit permettre le couplage aux modèles développés, c'est à dire au modèle thermo-chimique ModER et au modèle thermo-mécanique éléments finis de l'ERI. Il doit aussi être suffisamment souple pour permettre le développement de nouvelles méthodes complémentaires telle que l'AK-MCS.

Plusieurs codes de calcul permettant de résoudre des problèmes fiabilistes sont détaillés et comparés dans l'article de Pellissetti et Schueller [Pellissetti 06]. En général, tous ces codes ont les fonctionnalités de base telles que : plusieurs types de distributions de variables aléatoires, les transformations isoprobabilistes, plusieurs algorithmes de recherche du point de conception, les résolutions par approximation FORM/SORM, l'étude de sensibilité, les résolutions par simulations de base (Monte Carlo, simulations d'importance et conditionnelles), et la possibilité de coupler la résolution à une fonction de performance externe, calculée par un code type éléments finis par exemple.

Les codes de calcul peuvent se répartir en deux catégories : d'une part les codes orientés production, c'est à dire pour être utilisés directement par les entreprises, et d'autre part les codes orientés développement, plutôt utilisés pour le calcul et le développement scientifique.

Les codes orientés production sont souvent distribués sous licence propriétaire et comportent une interface graphique facilitant leur utilisation. Parmi eux citons PERMAS-RA [Gollwitzer 06] qui est un module du code de calcul éléments finis PERMAS, ou encore PROBAN [Tvedt 06] qui fait partie de la suite SESAM. Il existe aussi des plateformes indépendantes comme UNIPASS [Lin 06] ou PHIMECA-SOFT [Lemaire 06] permettant de construire une fonction de performance externe utilisant ainsi n'importe quel code de calcul mécanique.

Les codes à orientation scientifique sont quant-à-eux souvent distribués sous licence libre [GPL], ce qui est un avantage pour le développement scientifique. Une référence dans ce domaine est FERUM (Finite Element Reliability Using Matlab), initialement développé à Berkeley [Kiureghian 06], et maintenu à l'Institut Français de Mécanique Avancée [Lemaire 06]. Ce code ne comporte pas d'interface graphique et s'exécute dans l'environnement Matlab[®], ce qui impose l'acquisition d'une licence. Dans la même catégorie se retrouve le code OpenTurns [OpenTurns 09], développé depuis 2005 par les entreprises EDF, EADS et PHIMECA, qui compose une partie du noyau de calcul de PHIMECA-SOFT. Il se présente sous forme d'une bibliothèque C pilotée par une interface texte en Python. De plus, le langage Python est très souple d'utilisation et pourvu de nombreuses bibliothèques complémentaires et en particulier des bibliothèques de calcul scientifique.

Pour sa souplesse et sa liberté d'utilisation, le code de calcul OpenTurns est celui qui a été retenu pour effectuer les calculs fiabilistes sur les modèles thermo-chimiques et thermo-mécaniques des ERI.

4.1.2 Implémentation du krigeage

Dans l'objectif d'utiliser la méthode AK-MCS pour la résolution des problèmes fiabilistes, il est nécessaire d'utiliser un code de calcul permettant de réaliser une interpolation par krigeage. Parmi les codes de calculs disponibles, il existe des solutions telles que GSLIB (Geostatistical Software LIBrary) très populaire dans le monde de la géostatistique, ou encore HPGL (High Performance Geostatistics Library) qui a la particularité d'utiliser une interface Python. La limite des codes issues de la géostatistique est que la dimension du système étudié ne peut dépasser 3 (dimension de l'espace physique), ce qui est limitant pour le domaine de la mécanique.

Il existe aussi des codes plus généraux qui permettent de réaliser un krigeage quelle que soit la dimension du système et donc le domaine d'utilisation. Le code DACE semble être régulièrement utilisé et cité dans des articles de références [Kaymaz 05, Kleijnen 09]. De

la même manière que FERUM, ce code dépend de la plateforme Matlab®. Il n'est donc pas possible de l'utiliser dans cette étude. Un code de krigeage écrit en python a donc été développé.

Comme décrit au chapitre précédent, l'interpolation par krigeage est réalisée en deux étapes. Dans un premier temps il faut évaluer les paramètres σ et θ décrivant la structure de dépendance, au moyen de l'analyse variographique. Dans un second temps, pour chaque point à interpoler, les coefficients d'interpolation λ sont calculés, permettant ainsi l'estimation de la valeur et de la variance de la fonction en ce point.

4.1.2.1 Analyse variographique

Pour rappel, le semi-variogramme $\gamma(h)$ est défini comme la demi-variance de tout accroissement $\delta(x+h)$ de $\delta(x)$, avec $\delta(x)$ la partie stochastique du processus gaussien :

$$Y(x) = \mu(x) + \delta(x) \quad (4.1)$$

La construction du semi-variogramme expérimental se base sur le plan d'expérience, composé de n_{exp} points $x^{(i)}$ et des évaluations correspondantes $y^{(i)} = y(x^{(i)})$. La première action est de constituer les ensembles $N(h)$ de paires de points distants de h . En pratique, on regroupe plutôt les paires de points dont la distance est comprise dans un intervalle $h \pm \epsilon$. De plus, d'après Arnaud et Emery [Arnaud 00], le semi-variogramme expérimental n'étant plus fiable pour de grandes valeurs de h , il est préconisé de se limiter à la moitié de la distance maximale entre les points $x^{(i)}$:

$$h_{max} = \frac{1}{2} \max(|x^{(i)} - x^{(j)}|) \quad (4.2)$$

avec $i, j \in \{1, \dots, n_{exp}\}$.

Les points du semi-variogramme expérimental se construisent donc selon l'estimateur suivant :

$$\hat{\gamma}(h) = \frac{1}{2|N(h \pm \epsilon)|} \sum_{N(h \pm \epsilon)} \left(y(x^{(i)}) - y(x^{(j)}) \right)^2 \quad (4.3)$$

avec $N(h \pm \epsilon) = \{(i, j) \text{ tel que } |x^{(i)} - x^{(j)}| = h \pm \epsilon\}$ et $|N(h \pm \epsilon)|$ le nombre de couples distincts de $N(h \pm \epsilon)$. Enfin pour prendre en compte toutes les paires de points, il faut que l'ensemble des zones couvertes par les $h_k \pm \epsilon$ soit $[0, h_{max}]$. Pour cela, la tolérance ϵ est définie selon $\epsilon = \frac{h_{max}}{2l}$, avec l le nombre de points souhaités pour le semi-variogramme

expérimental. Les l points h_k se définissent donc par :

$$h_k = (2k - 1) \epsilon = (2k - 1) \frac{h_{max}}{2l} \quad (4.4)$$

Le semi-variogramme expérimental étant construit, il faut identifier les paramètres σ et θ de la forme analytique choisie $\gamma(h)$ (exponentielle ou gaussienne). Ce problème d'identification est résolu par minimisation de l'estimateur des moindres carrés, en utilisant l'algorithme de Levenberg-Marquardt. Une fois le semi-variogramme identifié $\gamma(h)$, il est utilisé pour l'estimation par krigeage des points non évalués. L'implémentation du processus d'analyse variographique est décrit sur la figure 4.1.

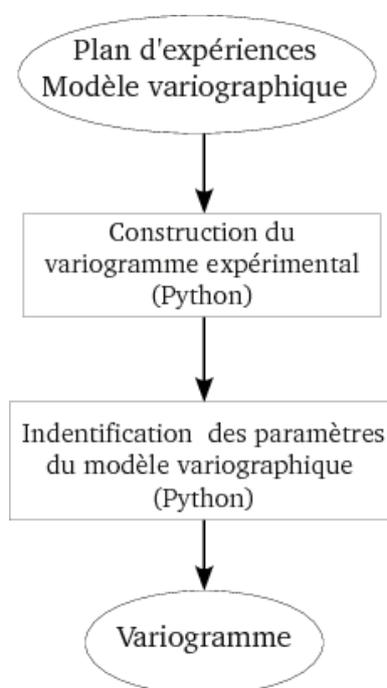


FIGURE 4.1 – Représentation du processus d'analyse variographique

Dans la description ci-dessus, le modèle est considéré isotrope, cet à dire que la structure de dépendance caractérisée par le semi-variogramme est indépendante de la direction. Il est aussi possible de considérer le krigeage anisotrope, dans ce cas il faut identifier un variogramme par direction observée. Dans ce travail, la structure de dépendance sera considérée isotrope.

4.1.2.2 Estimation par krigeage

Maintenant que le semi-variogramme est identifié, il est possible d'estimer la valeur de la fonction y au point $x^{(0)}$ non évalué, suivant la relation :

$$\hat{y}(x^{(0)}) = \left(\gamma + W (W^T \Gamma^{-1} W)^{-1} (w - W^T \Gamma^{-1} \gamma) \right)^T \Gamma^{-1} Y \quad (4.5)$$

ainsi que sa variance de krigeage :

$$\sigma_k^2(x^{(0)}) = \gamma^T \Gamma^{-1} \gamma - (w - W^T \Gamma^{-1} \gamma)^T (W^T \Gamma^{-1} W)^{-1} (w - W^T \Gamma^{-1} \gamma) \quad (4.6)$$

Pour cela il faut construire la matrice des fonctions de tendances des points d'expérience $W_{ij} = w_j(x^{(i)})$, le vecteur de tendance au point à estimer $w_i = w_i(x^{(0)})$, la matrice de demi-variance entre les points d'expérience $\Gamma_{ij} = \gamma(|x^{(i)} - x^{(j)}|)$, et le vecteur de demi-variance entre le point à estimer et les points d'expériences $\gamma_i = \gamma(|x^{(i)} - x^{(0)}|)$.

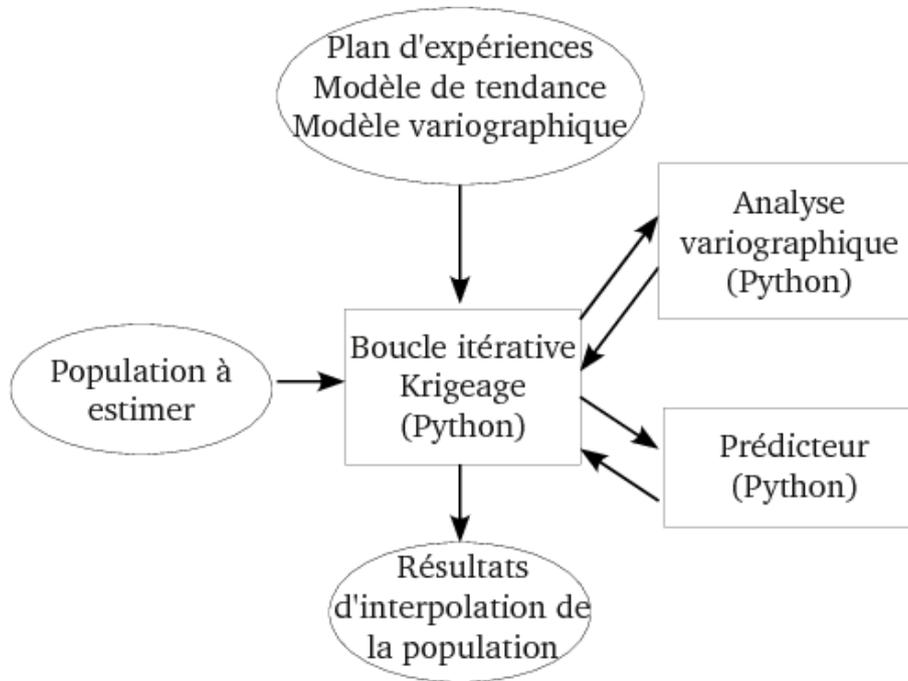


FIGURE 4.2 – Représentation du processus d'interpolation par krigeage développé

Il est intéressant de noter que pour l'évaluation d'une série de points, les matrices W , Γ^{-1} et $(W^T \Gamma^{-1} W)^{-1}$ sont à évaluer un seule fois, et l'effort de calcul revient à la construction des vecteurs w et γ , et à une série de produits matriciels. Finalement, l'algorithme d'interpolation par krigeage d'une population de points non échantillonnés peut se décrire comme sur la figure 4.2.

4.1.2.3 Exemple de mise en oeuvre

Pour illustrer la méthode on définit une fonction originale comme suit :

$$y(x) = x^3 + (x - 2)^2 + x + 2 \quad (4.7)$$

et un plan d'expérience composé de 7 points $x^{(i)} \in \{-3, -2, -1, 0, 1, 2, 3\}$.

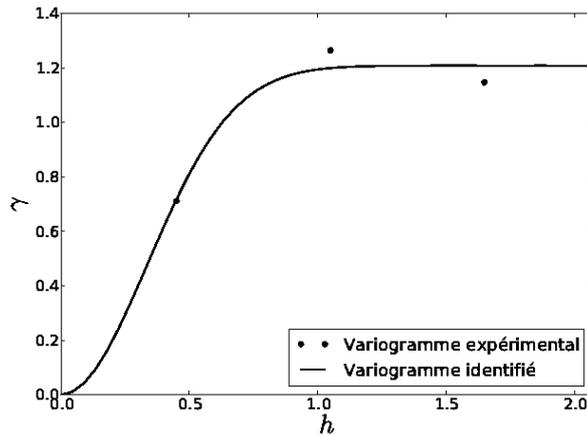


FIGURE 4.3 – Illustration d'un exemple d'identification du semi-variogramme

Dans ces conditions, les paramètres du semi-variogramme gaussien normé sont identifiés et valent $\sigma = 1,21$ et $\theta = 0,82$ (figure 4.3).

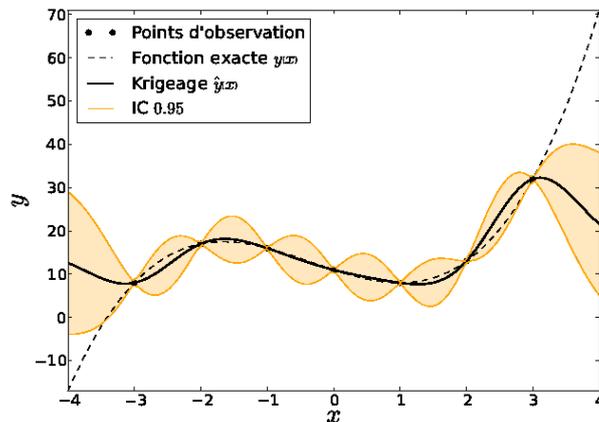


FIGURE 4.4 – Illustration d'un exemple d'interpolation par krigeage

L'interpolation par krigeage qui découle de ce variogramme et des points d'expérience est illustrée dans la figure 4.4. En plus de l'estimation $\hat{y}(x)$, il est possible de construire un intervalle de confiance (à 95% dans ce cas) grâce à l'évaluation de la variance de krigeage $\sigma_k(x)$. C'est cet intervalle qui est utilisé dans les méthodes numériques basées sur le krigeage. Dans le cas de l'AK-MCS, elle permet de déterminer le point le plus pertinent pour enrichir le plan d'expérience.

Il est intéressant de noter que l'estimation par krigeage n'est plus bonne lorsque l'on sort du domaine défini par le plan d'expérience, c'est à dire pour $x < -3$ et $x > 3$. Cela s'explique par le fait que x s'éloigne de la zone d'influence des points d'observation, et donc que les poids associés v tendent vers 0. Ainsi, l'estimation tend vers la moyenne du processus gaussien et la variance de krigeage vers la variance du même processus. Cette particularité est à prendre en compte lors de la détermination du domaine d'étude et du plan d'expérience, et en particulier du premier plan lors de la mise en oeuvre de la méthode AK-MCS.

4.1.3 Implémentation de la méthode AK-MCS

Comme mentionné dans le chapitre 3, la méthode AK-MCS est l'une des dernières méthodes proposées pour résoudre les problèmes fiabilistes. Pour cette raison elle est en cours de développement et n'est pas encore proposée dans les code de calculs fiabilistes, et en particulier OpenTurns. Un code spécifique écrit en python a donc été développé pour la mise en oeuvre de cette méthode dans le calcul de fiabilité des ERI.

Le script développé se base sur les objets du codes OpenTurns, pour l'implémentation des distributions marginales et de la distribution conjointe des variables aléatoires, ainsi que de la fonction de transformation isoprobabiliste associée. Le générateur de données aléatoires d'OpenTurns est aussi utilisé pour générer la population de Monte Carlo pour l'AK-MCS.

Pour réaliser un calcul, le script AK-MCS a besoin de la distribution conjointe des n variables aléatoires dans l'espace physique, de la fonction de performance, du nombre initial n_{exp0} de points du plan d'expérience, et de la taille N de la population de Monte Carlo. La première étape du script consiste à générer la population de Monte Carlo dans l'espace standard, c'est à dire pour une distribution multi-normale Φ_n . Ensuite n_{exp0} points sont tirés de manière aléatoire et uniforme parmi la population constituée, ce qui revient à un plan d'expérience de Monte Carlo. Ces points sont ensuite convertis dans l'espace physique et évalués par la fonction de performance.

Les informations sont maintenant suffisantes pour réaliser l'interpolation par krigeage sur les N points de la population de Monte Carlo. Le critère d'enrichissement $U^{(i)} = \frac{\hat{H}(T^{-1}(x^{(i)}))}{\hat{\sigma}_k(T^{-1}(x^{(i)}))}$ est calculé, et le point qui minore ce critère est ajouté au plan d'expérience pour un nouveau krigeage. Les itérations d'enrichissement se poursuivent jusqu'à ce que la valeur minimale de $U^{(i)}$ soit supérieure à 2. Dans ce cas, la probabilité de défaillance \hat{P}_f est estimée ainsi que le coefficient de variation associé $COV_{\hat{P}_f}$. Si ce dernier n'est pas

satisfaisant, c'est à dire inférieur à 0,05, la population de Monte Carlo est doublée et les itérations d'enrichissement reprennent.

Après avoir évalué les points du plan d'expérience initial, l'effort de calcul à chaque itération concerne d'une part l'évaluation du point ajouté au plan, et d'autre part l'évaluation par krigeage des N points de la population de Monte Carlo. Cette dernière étape revient à effectuer une série d'opérations matricielles pour chaque point de la population, et dont la taille est égale à la taille du plan d'expérience. Sachant que la valeur de N est souvent supérieure à 10^5 , cette étape peut devenir coûteuse en temps de calcul surtout quand la taille du plan d'expérience augmente. Pour cela, une stratégie de parallélisation a été mise en place dans le but de tirer avantage des processeurs disponibles sur les serveurs. Elle consiste à répartir les points de la population de Monte Carlo sur les m processeurs, divisant d'autant le temps de calcul pour cette étape de l'algorithme.

Dans leur description de la méthode, Echard et al. [Echard 10] utilisent un plan d'expérience de Monte Carlo comme plan initial. La limite de ce genre de plan réside dans le fait qu'il ne représente pas le domaine d'étude de manière optimale. D'après Jourdan et Franco [Jourdan 09], les plans d'expériences classiques type factoriel ou composite ne sont pas adaptés pour le krigeage. Pour ce type d'interpolation, les plans hypercubes latins sont satisfaisants et régulièrement utilisés. Ainsi, dans ce travail, l'AK-MCS sera initialisé par un plan LHS (Latin Hypercube Sampling).

Pour illustrer le travail effectué, une fonction de performance explicite est étudiée :

$$G(x_1, x_2) = -0,5x_1^2 + 1,5x_2^3 + 6 \quad (4.8)$$

Les variables aléatoires X_1 et X_2 sont définies normales centrées et d'écart-types unitaires. La taille du plan d'expérience initial LHS est de 10, la taille de la population de Monte Carlo est de 10000, et les critères $U > 2$ et $COV_{Pf} < 0,05$.

Le nombre d'appels à la fonction est de 32, soit 10 pour constituer le premier plan d'expérience et 22 itérations d'enrichissement. La probabilité de défaillance estimée est $\hat{P}_f = 6,14 \cdot 10^{-2}$ avec un coefficient de variation de 0,038.

La figure 4.5 illustre les résultats obtenus par la méthode AK-MCS. Le nuage de points représente les points de la population de Monte Carlo de la forme $x^{(i)} = \{x_1^{(i)}, x_2^{(i)}\}$. Les points sont définis positifs lorsque $G(x^{(i)}) > 0$, c'est à dire qu'ils sont dans le domaine de sûreté, et négatifs lorsque $G(x^{(i)}) \leq 0$, c'est à dire qu'ils sont dans le domaine de défaillance. Cette présentation permet de comparer l'état limite théorique et l'état limite trouvé par l'algorithme AK-MCS, et, dans le cas présent, de confirmer que la méthode

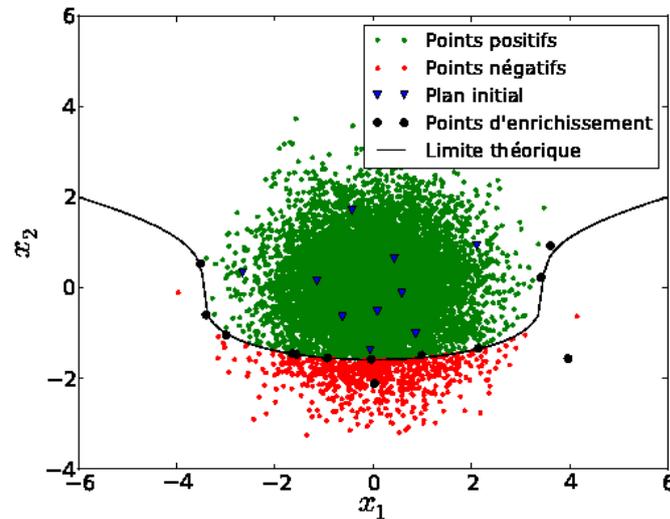


FIGURE 4.5 – Illustration des résultats obtenus avec l'AK-MCS sur une fonction de performance explicite

permet de retrouver la limite théorique. De plus, au cours des itérations, l'algorithme sélectionne bien des points proches de l'état limite, afin d'enrichir le plan d'expérience et de préciser l'estimation par krigeage dans cette zone. L'implémentation de l'AK-MCS est donc opérationnelle pour être mise en oeuvre dans un calcul mécano-fiabiliste.

4.2 Fiabilité thermo-chimique

Les outils mécano-fiabilistes définis dans la section précédente sont ici mis en oeuvre dans la réalisation d'une étude de fiabilité thermo-chimique de l'ERI. Cette étude se concentre sur la réaction d'oxydation présentée dans le chapitre 2, opérant au sein de l'échangeur en carbure de silicium. L'objectif est de quantifier la probabilité de défaillance du procédé, ainsi que de caractériser l'impact de l'incertitude de certains paramètres. L'information tirée de cette étude doit permettre l'identification des paramètres critiques afin de savoir quelles actions mener pour augmenter la fiabilité du procédé, autant du point de vue de la productivité que de la sécurité.

Après avoir présenté les outils de calcul de la fonction de performance et la limite de fonctionnement acceptable, une étude de sensibilité est menée pour motiver le choix des variables aléatoires du système. Le problème fiabiliste ainsi posé, la méthode d'approximation FORM est appliquée, suivie d'une méthode associant une surface de réponse quadratique adaptative et une simulation de Monte Carlo. Enfin, pour terminer, une

résolution utilisant la méthode AK-MCS sera mise en oeuvre afin de valider les résultats.

4.2.1 Définition des modes de défaillances et fonctions d'état limite

Le système étudié dans ce travail est un procédé de synthèse chimique, basé sur la réaction d'oxydation présentée dans le chapitre 2. Le procédé est modélisé en régime permanent par le code ModER. Les conditions limites de débits, températures et convection sont identiques à celles de l'exemple présenté section 2.1.3.3, c'est à dire la température d'entrée du fluide procédé vaut 50°C , les débits massiques d'entrée d'eau, de thiosulfate de sodium et de peroxyde d'hydrogène valent respectivement de 4,01, 0,189 et 0,416 $\text{kg}\cdot\text{h}^{-1}$, la température du fluide utilité de 40°C et son coefficient d'échange vaut $1600\text{ W}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$.

Concernant les modes de défaillance du système, deux types ont été retenus. Le premier concerne l'aspect sécurité du procédé, avec la température maximale du fluide chimique au sein du réacteur, et le second concerne son aspect productif, en considérant le rendement de la réaction, et plus précisément le débit massique du sulfate de sodium en sortie du réacteur.

Comme exposé dans le chapitre 1, le contrôle de la température d'une réaction chimique est primordiale. Si cette température passe au-dessus ou au-dessous de certains paliers, des réactions concurrentes peuvent s'activer et générer des produits parasites, provoquant dans le meilleur des cas une diminution du rendement, ou dans le pire des cas un emballement thermique critique à la sécurité de l'installation. Dans le cas présent, la température maximale considérée est de 100°C , température à laquelle le fluide composé en majorité d'eau entre en ébullition, provoquant ainsi le dysfonctionnement du procédé. La fonction d'état limite associée s'exprime en fonction de la température maximale calculée $T_{max}(x)$ par ModER selon l'équation 4.9, dans laquelle x est une réalisation du vecteur des variables aléatoires X , les autres paramètres étant considérés invariants.

$$G_1(x) = 100 - T_{max}(x) = 0 \quad (4.9)$$

Le second mode de défaillance concerne le rendement du système. En général, l'objectif d'une synthèse chimique est de produire une certaine masse de composé de manière régulière. Si on considère que la molécule ciblée est le sulfate de sodium, alors une baisse du débit de sortie Dm_{sulf} au delà d'une certaine limite représente la défaillance du système. En considérant de manière arbitraire que cette limite se situe à 5% de la valeur moyenne

($0,16 \text{ kg.h}^{-1}$), la fonction d'état limite s'écrit :

$$G_2(x) = Dm_{sulf.}(x) - (1 - 0,05) \cdot 0,16 = 0 \quad (4.10)$$

Maintenant que les deux modes de défaillances ainsi que les fonctions d'état limite correspondantes sont définies, l'étape suivante consiste à choisir et définir les paramètres à prendre en compte comme variables aléatoires du système.

4.2.2 Étude de sensibilité aux paramètres de la fonction de performance

Parmi l'ensemble des paramètres du modèle thermo-chimique de ModER, sept d'entre eux sont reconnus potentiellement influants sur la température du fluide procédé et le rendement. Ces paramètres sont : le débit massique d'entrée de l'eau Dm_{eau} , le débit massique d'entrée du thiosulfate de sodium $Dm_{thio.}$, le débit massique d'entrée du peroxyde d'hydrogène $Dm_{perox.}$, la température d'entrée du fluide procédé T_{in} , la température du fluide utilité T_u , le coefficient de convection du fluide utilité h_c et enfin la conductivité thermique du carbure de silicium λ .

Afin de réduire la taille du système à étudier, une étude de sensibilité autour de la moyenne de fonctionnement est menée pour comparer l'influence des paramètres sur les fonctions de performance G_1 et G_2 . Pour déterminer les sensibilités à chacun des paramètres x_i autour du point moyen de fonctionnement μ , la méthode des différences finies centrées est utilisée :

$$\left. \frac{\partial G_j(x)}{\partial x_i} \right|_{\mu} \approx \frac{G_j(\mu_i + \Delta x_i) - G_j(\mu_i - \Delta x_i)}{2\Delta x_i} \quad (4.11)$$

L'équation 4.11 fait intervenir un pas Δx_i pour chaque direction du système. Ce pas doit être choisi suffisamment petit pour tendre vers la valeur réelle de la dérivée mais assez grand pour percevoir une variation lors de l'estimation numérique. Ici, il est défini comme $\Delta x_i = \mu_i \cdot 10^{-3}$. Pour gagner en précision, le critère de convergence de ModER sur la fonction densité de flux $F_T(s)$ est défini par $E = 0,1 \text{ mW.mm}^{-2}$. De plus, pour limiter le nombre d'itérations, la densité de flux est initialisée à $F_{T\mu}$, la densité de flux d'équilibre au point moyen μ . L'étude nécessite donc 14 évaluations du modèle thermo-chimique, soit environ 1 heure de calcul sur un mono processeur. Les sensibilités de chaque fonction de performance aux différents paramètres sont exposés dans le tableau 4.1.

	Dm_{eau}	$Dm_{perox.}$	$Dm_{thio.}$	T_{in}	T_u	hc	λ
G_1	46,6	-295	-145	-2,98	-2,88	0,0	0,0
G_2	11,3	-3,38	-3,69	-9,07	-7,01	0,0	0,0

TABLE 4.1 – Sensibilités des fonctions de performances thermo-chimiques autour du point moyen de fonctionnement

Comme il n'est pas possible de comparer l'influence des paramètres par l'analyse directe des sensibilités, il est nécessaire d'évaluer les élasticités correspondantes $\varepsilon_{j,i} = \frac{\mu_i}{G_j(\mu)} \frac{\partial G_j(x)}{\partial x_i} \Big|_{\mu}$. Ainsi, les figures 4.6a et 4.6b permettent de hiérarchiser directement l'importance des paramètres pour les fonctions de performance G_1 et G_2 .

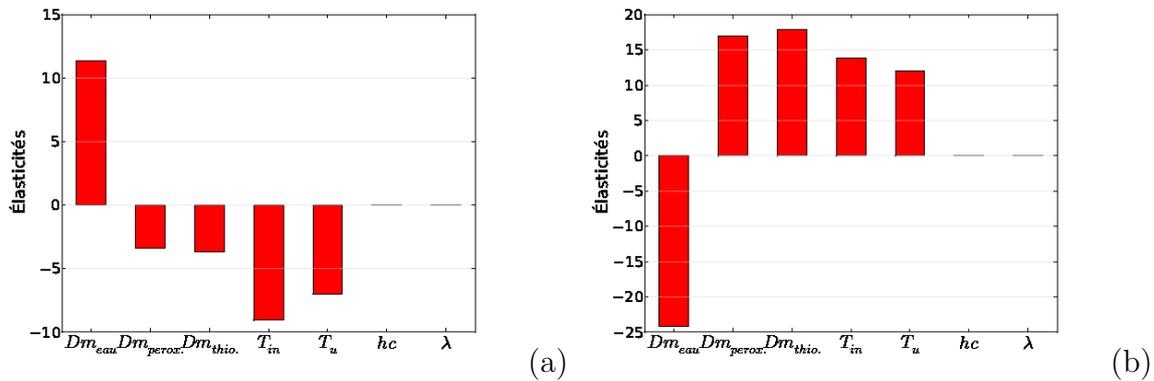


FIGURE 4.6 – Élasticités des paramètres des fonctions de performance G_1 (a) et G_2 (b) autour du point moyen de fonctionnement

L'analyse des élasticités montre la prépondérance du débit d'eau Dm_{eau} par rapport aux autres paramètres. Bien que d'élasticité plus faible, les sensibilités des deux autres débits $Dm_{thio.}$ et $Dm_{perox.}$ ainsi que des températures T_{in} et T_u ne sont pas négligeables. Par contre, il est intéressant de noter que les sensibilités aux paramètres hc et λ , et, par conséquent, les élasticités associées, sont nulles. En fait, la perturbation infligée par la différence finie n'est pas suffisante pour percevoir une variation dans le résultat du modèle ModER. En d'autres termes, la fonction densité de flux satisfaisant l'équilibre thermo-chimique au point moyen de fonctionnement satisfait aussi l'équilibre au point perturbé, et ce même après avoir diminué le critère de convergence.

L'analyse des sensibilités et des élasticités permet aussi de qualifier les paramètres. Ainsi, le débit d'eau tend à faire augmenter G_1 et diminuer G_2 , ce qui, d'un point de vue physique, est tout à fait réaliste puisque l'augmentation de ce débit dilue le mélange, et par conséquent limite la réactivité, l'exothermie et donc la température maximale (G_1), mais limite aussi le rendement (G_2). À l'inverse, l'augmentation des débits des réactifs concentre le mélange et donc accroît la vitesse de réaction, ce qui provoque l'augmentation de la

température maximale et du rendement. Enfin de la même manière l'augmentation des températures d'entrée du fluide procédé et du fluide utilité active la réaction. Finalement le problème revient bien à optimiser la valeur des paramètres pour maximiser le rendement tout en limitant le pic de température.

4.2.3 Choix des variables aléatoires pour l'étude fiabiliste

Le choix des paramètres à prendre en compte comme variables aléatoires est une étape importante permettant de limiter la taille du système à résoudre. Une nouvelle variable représente un nombre de calculs supplémentaires non négligeable, surtout si les gradients, lors de la recherche du point de conception par exemple, sont calculés par différences finies. À contrario, considérer une variable déterministe peut sensiblement modifier le résultat du calcul fiabiliste s'il s'avère que son impact n'est pas négligeable.

L'étude de sensibilité précédemment réalisée permet de classifier l'importance des paramètres sur les fonctions de performance, mais seulement autour du point moyen de fonctionnement. L'hypothèse forte réalisée consiste à dire que l'ordre de classement mais aussi l'importance relative des paramètres, en se basant sur leur élasticité, reste le même dans tout le domaine d'étude. Dans ce cas, le coefficient de convection h_c et la conductivité thermique du SiC λ sont considérés déterministes. Par contre, même si pour G_1 les paramètres $Dm_{perox.}$ et $Dm_{thio.}$ semblent légèrement moins influents, ils seront malgré tout considérés comme des variables aléatoires.

Le système est donc composé de 5 variables aléatoires : Dm_{eau} , $Dm_{perox.}$, $Dm_{thio.}$, T_{in} et T_u . Comme peu d'informations statistiques sont disponibles sur ces variables, leur distribution est considérée normale, de moyenne égale à la valeur du point de fonctionnement optimal. Ne disposant pas d'informations contradictoires, les variables sont aussi considérées indépendantes. La valeur des écart-types est choisie suivant les informations fournies par les industriels du secteur. Pour les débits, les pompes d'alimentation ont un intervalle de confiance de $\pm 2\%$, et si on considère qu'il représente $\pm 2\sigma$, alors l'écart-type de chacun des débits est égal à 1% de leur moyenne. Concernant la température des fluides, une estimation majorée de l'écart-type est utilisée, et dans les deux cas ce dernier est pris égal à 2, 5°C. Finalement le tableau 4.2 reprend les paramètres (moyennes μ et écart-types σ) des distributions normales représentant chaque variable aléatoire considérée, et ce pour chacune des fonctions de performance G_1 et G_2 .

	Dm_{eau}	$Dm_{perox.}$	$Dm_{thio.}$	T_{in}	T_u
μ	4,01	0,189	0,416	50,0	40,0
σ	$4,01 \cdot 10^{-2}$	$1,89 \cdot 10^{-3}$	$4,16 \cdot 10^{-3}$	2,5	2,5

TABLE 4.2 – Paramètres des distributions normales des variables aléatoires du modèle thermo-chimique (débits en $kg.h^{-1}$ et températures en $^{\circ}C$)

4.2.4 Résolution directe par méthode FORM

Pour rappel, la méthode d'approximation FORM se déroule en deux étapes. La première consiste à chercher le point de conception dans l'espace standard au moyen d'un algorithme d'optimisation spécialisé. La seconde correspond à l'approximation mathématique de la surface d'état limite par un hyperplan, permettant le calcul direct de la probabilité de défaillance. L'effort de calcul se concentre donc sur la première étape, lors de l'estimation de la valeur de la fonction de performance et de ses dérivées premières et secondes à chaque itération de l'algorithme.

Dans le cas présent, l'algorithme d'Abdo-Rakwitz [Abdo 90] est utilisé. Cet algorithme nécessite le calcul du gradient par différences finies, alors que le hessien est approximé. Ainsi, le nombre d'appels au code de calcul est de $1 + 2n = 11$ par itération. Comme pour l'étude de sensibilité, le pas de calcul pour l'approximation par différences finies est $\Delta x_i = \mu_i \cdot 10^{-3}$, et la précision du modèle ModER est $E = 0,1 mW.mm^{-2}$.

Espace	Dm_{eau}	$Dm_{perox.}$	$Dm_{thio.}$	T_{in}	T_u
Physique	3,99	0,189	0,418	54,2	42,5
Standard	-0,53	0,24	0,25	1,69	0,98

TABLE 4.3 – Coordonnées du point de conception pour la fonction de performance G_1

Espace	Dm_{eau}	$Dm_{perox.}$	$Dm_{thio.}$	T_{in}	T_u
Physique	4,02	0,188	0,416	48,5	38,5
Standard	0,19	-0,15	-0,15	-0,58	-0,63

TABLE 4.4 – Coordonnées du point de conception pour la fonction de performance G_2

La recherche du point de conception nécessite 6 itérations soit 66 appels pour la fonction G_1 et 9 itérations soit 99 appels pour G_2 , ce qui correspond à des temps de calcul d'environ 4 et 6 heures. Les coordonnées du point de conception pour les fonctions G_1 et G_2 dans l'espace standard et physique sont exposées dans les tableaux 4.3 et 4.4, ce qui permet d'accéder directement à l'indice de fiabilité et à la probabilité de défaillance de chaque mode de défaillance (tableau 4.5).

	P_f	β
G_1	$1,99.10^{-2}$	2,05
G_2	$18,9.10^{-2}$	0,91

TABLE 4.5 – Indice de fiabilité et probabilité de défaillance pour les fonctions d'état G_1 et G_2

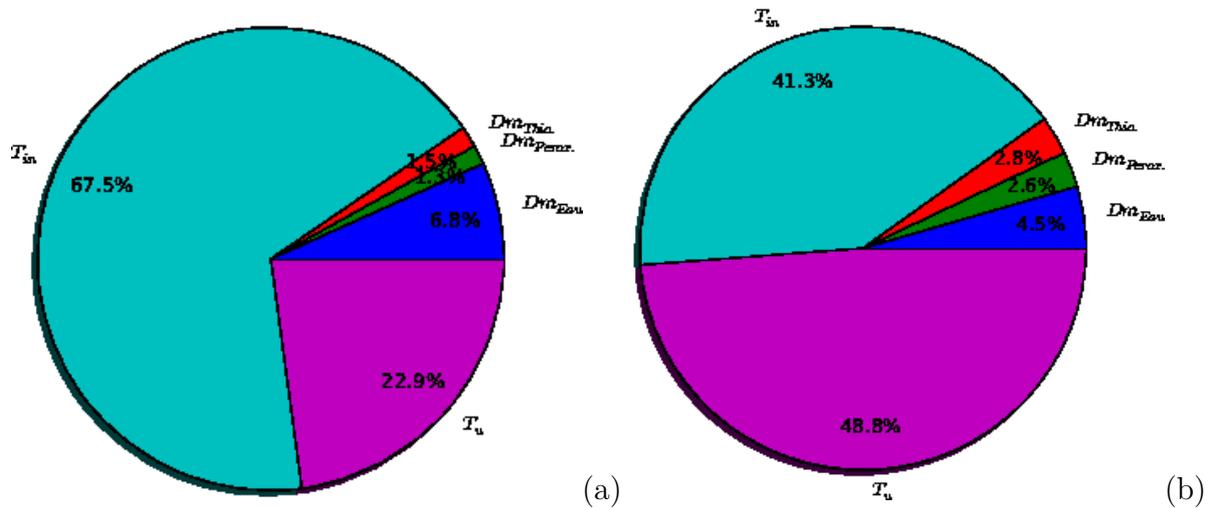


FIGURE 4.7 – Facteurs d'importance des variables pour les fonctions G_1 (a) et G_2 (b)

La dernière information directement accessible est l'ensemble des facteurs d'importance (graphique 4.7), représentant l'impact relatif de la variabilité d'un paramètre U_i dans l'espace standard sur l'étude fiabiliste. Pour les deux fonctions de performances, les variables de températures T_{in} et T_u sont prépondérantes alors que les deux variables de débit massique des réactifs sont minoritaires. Comme les variables physiques sont normales et indépendantes, il est acceptable d'analyser directement ces facteurs. Mais seule une étude de sensibilité aux écart-types des variables physiques peut estimer précisément leur importance relative.

Maintenant que l'indice de fiabilité et la probabilité de défaillance sont connus, il est intéressant de savoir quels sont les paramètres des variables aléatoires les plus influent sur la fiabilité du système. Ainsi il est possible de choisir de quelle manière agir pour augmenter cette fiabilité. Cette démarche passe par une étude de sensibilité de l'indice de fiabilité autour du point de conception. Cela représente 10 calculs supplémentaires par fonction et l'évaluation des élasticités de la moyenne et de l'écart-type de chaque variable sur chacune des fonctions.

Les élasticités de l'indice de fiabilité par rapport aux moyennes des variables (figure 4.8) donnent les mêmes informations que l'étude de sensibilité autour de la moyenne, en terme de hiérarchisation et d'importance des variables. Cela conforte l'hypothèse précédemment

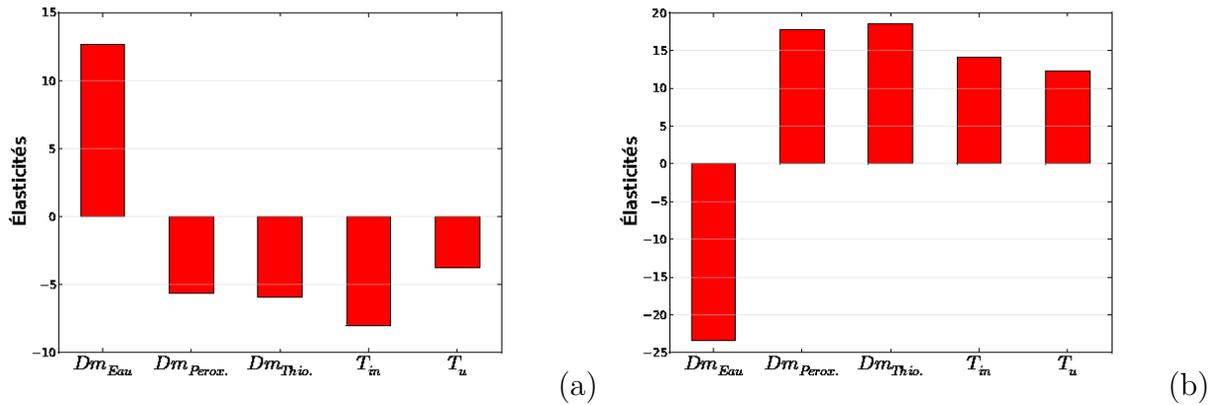


FIGURE 4.8 – Élasticités de l'indice de fiabilité par rapport aux moyennes des variables pour les fonctions G_1 (a) et G_2 (b)

réalisée lors du choix des variables aléatoires.

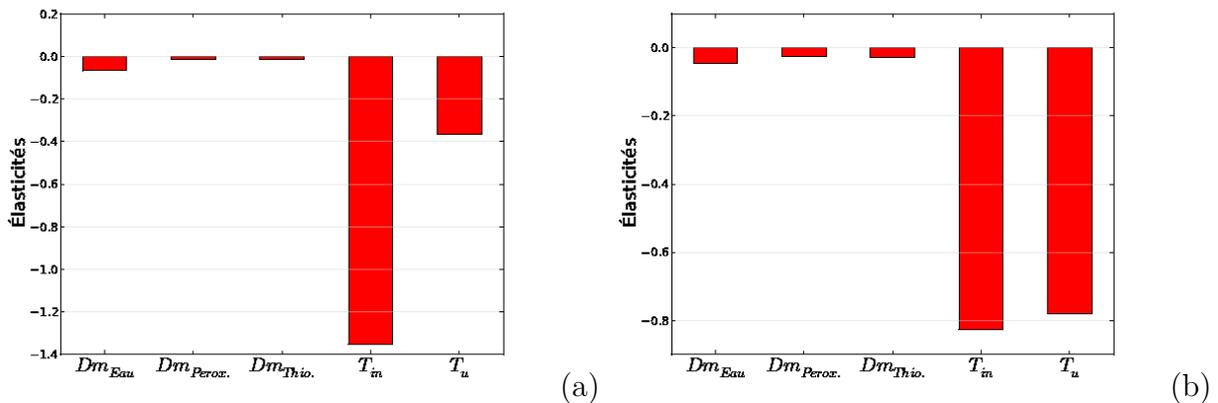


FIGURE 4.9 – Élasticités de l'indice de fiabilité aux écart-types des variables pour les fonctions G_1 (a) et G_2 (b)

D'après les élasticités par rapport aux écart-types présentées sur la figure 4.9, c'est l'écart-type des températures qui influe le plus sur l'indice de fiabilité, et en particulier celui de la température d'entrée du fluide procédé dans le cas de la fonction de performance G_1 . Ceci est en accord avec les valeurs des facteurs d'importance précédemment exposés.

Cette analyse se base sur l'approximation réalisée par la méthode FORM. Pour savoir si cette approche est satisfaisante et ainsi utiliser les résultats exposés, il est intéressant de pouvoir la valider par une méthode de simulation.

4.2.5 Résolution indirecte par SRQ et Monte Carlo

Une évaluation de l'une des fonctions de performance G_1 ou G_2 nécessite un temps de calcul d'environ 4 minutes. Dans ces conditions, l'application directe de la méthode de Monte Carlo ou toute autre méthode de simulation n'est pas envisageable. Pour cela, il est intéressant d'utiliser une surface de réponse, et dans le cas présent une surface de réponse quadratique (SRQ).

Pour identifier une surface quadratique complète, c'est à dire avec tous les termes croisés, il faut un plan d'expérience d'une taille minimale de $1 + (2n + 2^n) = 43$. Ici c'est un plan composite à 1 niveau qui est utilisé de valeurs $\pm\sigma_i$ dans chaque direction, comportant ainsi le nombre exact d'expériences nécessaires à l'identification des coefficients de la SRQ. De plus, comme vue précédemment, il est plus intéressant que le plan soit centré sur le point de conception P^* . Or ce point n'est pas connu au début de l'étude, ce qui impose d'utiliser la méthode itérative suivante pour trouver la SRQ optimale :

1. construction d'un premier plan d'expérience autour de la moyenne
2. évaluation des coefficients de la SRQ
3. recherche du point de conception sur la SRQ identifiée
4. si le point de conception est identique au point central du plan d'expérience, alors la SRQ est stabilisée et optimale, sinon un nouveau plan d'expérience est construit autour de ce nouveau point et l'étape 2 est reprise.

Pour la fonction de performance G_1 , le nombre d'itérations nécessaire à la recherche de la SRQ optimale a été de 5, soit 215 évaluations. Pour G_2 , 4 itérations et 172 appels à la fonction ont été nécessaires. Les coordonnées du point de conception de chacune des fonctions, mentionnées dans le tableau 4.6, sont identiques à celles trouvées par l'analyse FORM directe.

	Espace	Dm_{eau}	$Dm_{perox.}$	$Dm_{thio.}$	T_{in}	T_u
G_1	Physique	3,99	0,189	0,418	54,3	42,4
	Standard	-0,53	0,23	0,24	1,70	0,97
G_2	Physique	4,02	0,188	0,416	48,6	38,4
	Standard	0,19	-0,14	-0,15	-0,58	-0,64

TABLE 4.6 – Coordonnées du point de conception pour les fonctions de performance G_1 et G_2

Une fois que la SRQ est identifiée, la méthode de Monte Carlo est appliquée pour évaluer la probabilité de défaillance. Les résultats de cette étude sont présentés dans le tableau 4.7.

	P_f	COV	Simulations
G_1	$2,01.10^{-2}$	0,05	19526
G_2	$17,5.10^{-2}$	0,05	1881

TABLE 4.7 – Probabilités de défaillance estimées par simulations de Monte Carlo sur les SRQ centrées au point P^* pour les fonctions d'état G_1 et G_2

Les résultats sont en accord avec l'analyse FORM, ce qui valide l'approximation du premier ordre des fonctions d'état limite. Mais la limite de ces deux approches est leur incapacité à garantir la convergence sur le minimum global lors de la recherche du point de conception. Pour écarter l'éventualité d'identifier un minimum local, une approche globale d'estimation de la probabilité de défaillance doit être menée afin de valider définitivement le calcul fiabiliste.

4.2.6 Résolution indirecte par méthode AK-MCS

Afin de confirmer les résultats obtenus avec les méthodes précédentes, la méthode AK-MCS est appliquée à l'étude des deux fonctions de performances G_1 et G_2 . Pour l'interpolation par krigeage, un modèle de tendance isotrope Gaussien est utilisé. Le plan d'expérience initial est un LHS composé de 30 points. L'interpolation est réalisée sur une population de Monte Carlo de 10000 points. Le critère d'arrêt des itérations est fixé à $U_{min} > 2$ et le coefficient de variation maximal à 0,05.

L'algorithme a réalisé la résolution des systèmes G_1 et G_2 en 157 et 158 itérations, ce qui représente un nombre d'appels au modèle thermo-chimique respectivement de 187 et 188, en prenant en compte la construction du plan d'expériences numériques initial.

	P_f	COV	Simulations
G_1	$14,0.10^{-2}$	0,02	10000
G_2	$28,0.10^{-2}$	0,02	10000

TABLE 4.8 – Estimation de la probabilité de défaillance par la méthode AK-MCS pour les fonctions G_1 et G_2

Les probabilités de défaillance estimées par l'AK-MCS sont exposées dans le tableau 4.8. Ces résultats sont très éloignés de ceux trouvés par l'approximation FORM et la surface de réponse quadratique. Pour tenter d'évaluer la validité de l'interpolation faite par l'AK-MCS, une série de populations de Monte Carlo a été générée dans l'espace standard selon les différents plans du système. Les quatre évaluations les plus intéressantes pour chaque fonction de performance sont exposées sur les figures 4.10 et 4.11. D'après ces graphes, il

semble que les espaces de défaillance et de sûreté aient été définis de manière claire par l'algorithme, du moins dans les plans du repère du système. Il n'y a pas d'information particulière permettant de remettre en cause l'interpolation effectuée par l'AK-MCS.

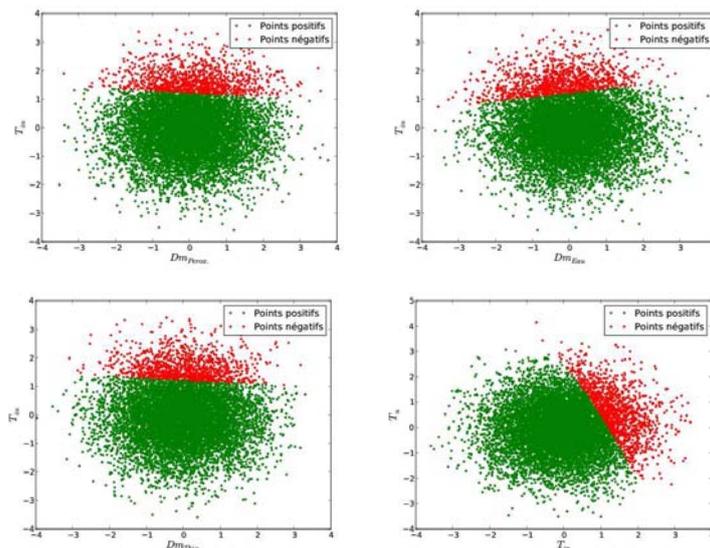


FIGURE 4.10 – Estimation par krigeage d'une population de Monte Carlo dans l'espace standard et selon différents plans du système pour la fonction G_1

Parmi les points de la population finale de Monte Carlo dans l'espace standard, le point le plus proche de l'origine du repère dont l'estimation par krigeage est négative doit être proche du point de conception. Or dans le cas présent, un point plus proche de l'origine et relativement éloigné du point de conception trouvé par FORM est identifié (tableau 4.9).

	Méthode	Dm_{eau}	$Dm_{perox.}$	$Dm_{thio.}$	T_{in}	T_u	β
G_1	FORM	-0,53	0,24	0,25	1,69	0,98	2,05
	AK-MCS	0,04	-0,26	0,22	1,04	0,54	1,21
G_2	FORM	0,19	-0,15	-0,15	-0,58	-0,63	0,91
	AK-MCS	-0,23	-0,31	0,17	-0,51	-0,29	0,72

TABLE 4.9 – Comparaison des points de conceptions trouvés par FORM et AK-MCS pour les fonctions G_1 et G_2

Cette analyse laisse penser que les méthodes précédentes ont convergé vers un minimum local et non le minimum global du système. Ceci peut s'expliquer par le choix du point de départ du problème d'optimisation sous contraintes. En effet, dans la configuration moyenne, le thiosulfate de sodium se trouve en excédent par rapport au peroxyde d'hydrogène, ce qui implique que la variation de concentration et donc la dérivée par rapport à celle-ci n'a pas le même impact que si ce réactif était limitant. En d'autres termes, la

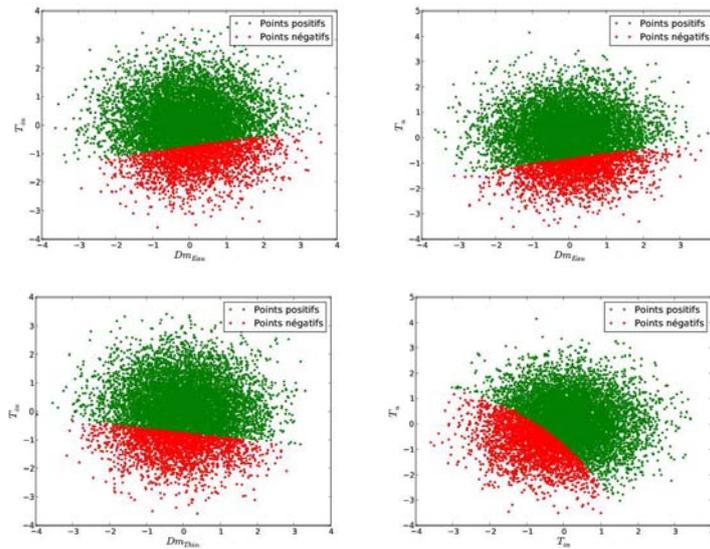


FIGURE 4.11 – Estimation par krigeage d'une population de Monte Carlo dans l'espace standard et selon différents plans du système pour la fonction G_2

fonction d'état peut être composée de plusieurs zones à la jonction desquelles la dérivée n'est pas continue.

Pour aller plus loin, les points de défaillance les plus probables estimés par l'AK-MCS sont évalués par les fonctions de performance. L'estimation en ces points donne un résultat de $-0,41$ pour la fonction G_1 , et $-0,08$ pour G_2 , ce qui confirme qu'ils appartiennent à l'espace de défaillance, tout en étant proche de l'état limite. Finalement l'interpolation par krigeage de l'AK-MCS est validée en ce point.

	Espace	Dm_{eau}	$Dm_{perox.}$	$Dm_{thio.}$	T_{in}	T_u	β
G_1	Physique	4,01	0,189	0,417	55,0	41,8	1,11
	Standard	-1,16	0,07	0,07	1,01	0,44	
G_2	Physique	4,01	0,189	0,417	48,1	38,6	0,52
	Standard	-0,06	-0,05	0,05	-0,38	-0,35	

TABLE 4.10 – Points de conception identifiés sur les surfaces de réponse par krigeage de l'AK-MCS pour les fonctions G_1 et G_2

Dans l'objectif de trouver le point de conception qui minimise globalement l'indice de fiabilité, et non seulement localement comme avec l'analyse FORM, on se propose de réaliser une nouvelle recherche du point de conception pour les deux surfaces de réponses par krigeage provenant de l'AK-MCS, en utilisant comme points initiaux les points de défaillance les plus probables des populations de Monte Carlo (tableau 4.9). L'algorithme converge rapidement puisqu'il est appliqué au modèle de krigeage, et produit les résultats

du tableau 4.10. De plus, l'étude de sensibilité autour de ces nouveaux points de conception permet de calculer les élasticités de l'indice de fiabilité par rapport aux paramètres des lois de distribution des variables aléatoires (figures 4.12 et 4.13).

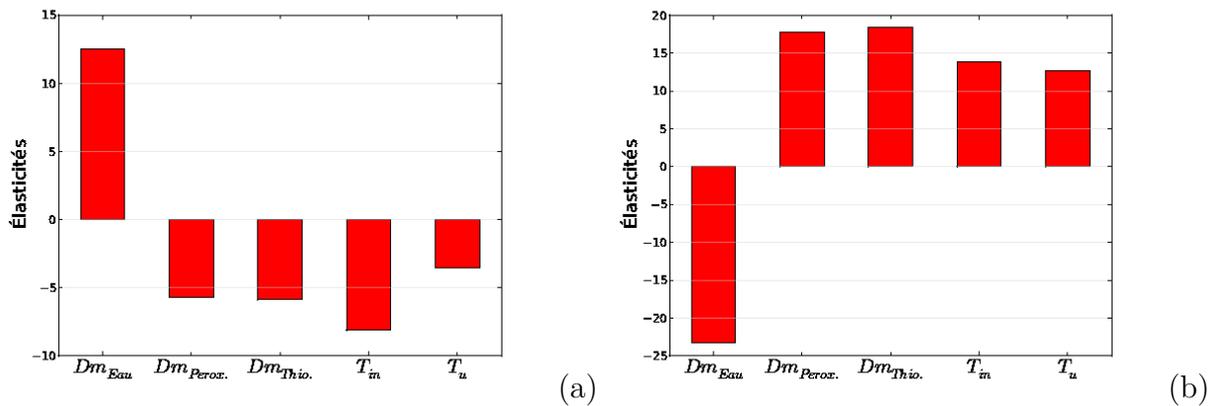


FIGURE 4.12 – Élasticités de l'indice de fiabilité par rapport aux moyennes des variables pour les fonctions G_1 (a) et G_2 (b)

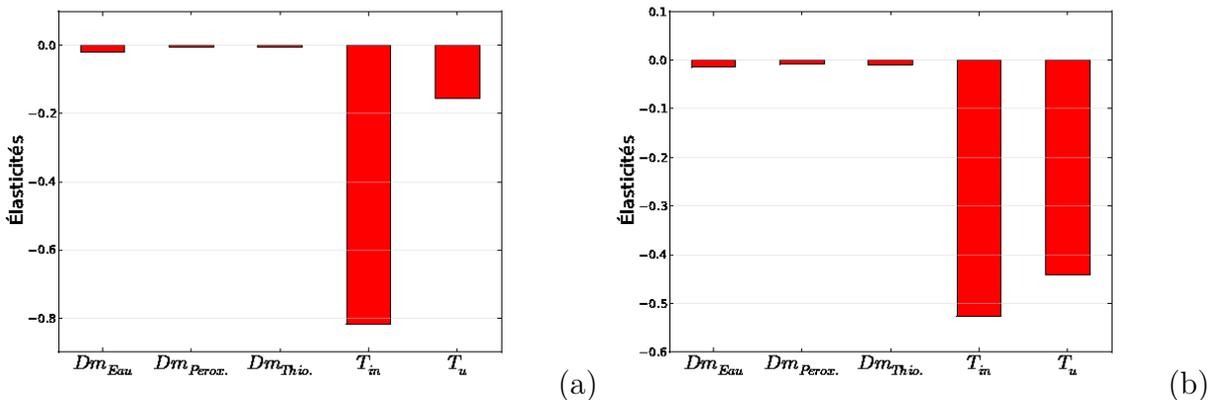


FIGURE 4.13 – Élasticités de l'indice de fiabilité aux écart-types des variables pour les fonctions G_1 (a) et G_2 (b)

L'étude des élasticités montre là encore que la hiérarchie des variables dans le poids de leur impact sur les fonctions de performance est le même que pour l'étude de sensibilité autour de la moyenne. Les moyennes des variables sont les paramètres les plus influents et en particulier celle du débit d'eau. Pour les élasticités aux écart-types, celles des températures sont prépondérantes, bien qu'elles restent négligeables par rapport à celles des moyennes.

4.2.7 Analyse et conclusion

Lors de cette étude, deux modes de défaillance ont été analysés. Le premier se rapporte à l'aspect sécuritaire du procédé et est modélisé par la fonction G_1 , alors que le second représente la stabilité de son rendement modélisée par la fonction G_2 . À ces deux fonctions sont appliquées trois méthodes de résolution complémentaires qui sont l'approximation par FORM, l'estimation par surface de réponse adaptative (SRQ-MC) et l'estimation par AK-MCS. Alors que l'étude par SRQ semble valider l'approximation FORM, la méthode AK-MCS montre que ces deux méthodes convergent vers un minimum local et non vers le minimum global, point de conception du système. L'étude se concentre donc sur les résultats calculés par la méthode AK-MCS.

Le premier résultat intéressant concerne la valeur de la probabilité de défaillance : 14 % pour G_1 et 28 % pour G_2 . Bien que relativement élevées, ces valeurs sont à prendre avec recul car les écart-types des variables ont volontairement été majorés. Les élasticités sont à regarder avec plus d'intérêt. D'après elles, les moyennes ont un impact prépondérant sur l'indice de fiabilité, ce qui suggère d'optimiser le point moyen de fonctionnement avant de travailler sur l'aléa des variables. Comme les élasticités aux moyennes ont des signes opposés selon la fonction considérée, augmenter la fiabilité d'un mode de défaillance revient à diminuer l'autre.

Pour optimiser le système d'un point de vue fiabiliste, la stratégie proposée consiste dans un premier temps à ajuster la moyenne des variables pour atteindre le niveau de sécurité souhaité, c'est à dire la fiabilité relative à la fonction G_1 . Cela implique une baisse du rendement moyen de la réaction. Puis, dans un second temps, il sera intéressant de travailler sur le contrôle de la variabilité des paramètres, en particulier des températures, pour augmenter la fiabilité du rendement relative à la fonction G_2 .

4.3 Fiabilité mécanique

L'échangeur réacteur intensifié est le lieu d'une série de réactions chimiques très exothermiques, avec des produits et réactifs concentrés dont l'impact sur les personnes et l'environnement est critique. Il est donc important de s'assurer de la fiabilité mécanique globale du système, pour éviter les risques de fuite, de rupture ou éventuellement d'explosion dûs à la variabilité des conditions de mise en oeuvre.

Cette partie s'attache à décrire l'étude de fiabilité mécanique menée sur l'ERI. Le modèle mécanique éléments finis développé dans le chapitre 2 est utilisé pour évaluer les différents

modes de défaillances. Comme dans l'étude précédente, le travail commence par la définition des modes de défaillance, pour continuer par l'identification et le choix des variables aléatoires, et enfin terminer par la résolution du problème fiabiliste.

L'objectif est de déterminer les probabilités de défaillance et indices de fiabilité de chaque mode mais aussi le poids de chaque variable et de leurs paramètres, dans le but d'orienter les choix d'actions d'optimisation de la fiabilité mécanique de l'ERI.

4.3.1 Définition des modes de défaillances et fonctions d'état limite

Outre sa fonction d'échangeur thermique, la principale propriété de l'ERI est sa capacité à maintenir les fluides, et en particulier le fluide procédé, confinés dans leurs circuits respectifs. La perte de cette fonction est envisageable selon deux scénarios : un défaut d'écrasement des joints et une rupture de la plaque procédé.

L'avantage majeur de l'ERI assemblé par empilement de plaques est sa modularité. Par contre il existe un risque de défaut d'écrasement d'une partie d'un des joints pouvant provoquer une fuite du fluide utilité ou du fluide procédé. Grâce au modèle mécanique développé et mis en oeuvre dans le chapitre 2, il est possible de calculer l'écrasement de chaque partie de joint qui compose l'ERI. D'après les spécifications du fournisseur, les joints sont garantis étanches pour un écrasement compris entre 10 et 20 %, ce qui correspond à un écrasement de 0,4 à 0,8 mm [Simrit 09]. Comme les joints sont placés dans des gorges de 3,2 mm, le joint ne peut être comprimé au delà de sa limite maximale. Ainsi, il est possible de définir la fonction d'état limite G_3 du premier mode de défaillance en fonction de l'écrasement minimal e_{min} en mm, calculé par le modèle mécanique éléments finis dépendant du jeu de paramètres x :

$$G_3 = e_{min}(x) - 0,4 \quad (4.12)$$

L'autre scénario envisagé est la rupture critique d'une des plaques en carbure de silicium constituant l'ERI lors du serrage à froid, au moment où les plaques sont soumises aux contraintes maximales. Sachant qu'il n'est pas possible de définir une contrainte maximale admissible à cause du comportement fragile de ce matériau, il faut prendre en compte la probabilité de rupture P_r calculée selon la théorie de la rupture fragile présentée au chapitre 1. En fixant la limite acceptable de la probabilité de rupture à 10^{-5} , il est possible de définir une fonction d'état limite représentant ce mode de défaillance :

$$G_4 = 10^{-5} - P_r(x) \quad (4.13)$$

Avant de pouvoir utiliser les fonctions de performance G_3 et G_4 pour l'étude fiabiliste, il est intéressant d'effectuer une étude de sensibilité à plusieurs paramètres et de définir les variables aléatoires à prendre en compte.

4.3.2 Étude de sensibilité aux paramètres de la fonction de performance

Les sensibilités des fonctions de performances sont calculées de la même manière que précédemment, c'est à dire par différences finies en utilisant un pas égal à $\mu_i \cdot 10^{-3}$, où μ_i est la valeur du paramètre x_i au point moyen de fonctionnement.

Concernant la fonction de performance G_3 , relative à l'écrasement minimum des joints, trois paramètres ont été identifiés comme potentiellement influants : la force globale de serrage $F = 25005 N$, la pression du fluide utilisée $P = 0,5 MPa$ et la raideur des joints représentée par le coefficient $\alpha = 1$. Rappelons que le comportement des joints est caractérisé par une courbe non-linéaire liant l'écrasement e et la force de réaction F_l par la relation $F_l = g(e)$. Ainsi le coefficient α est inséré dans la relation selon $F_l = \alpha g(e)$.

	F	P	α
Sensibilités	$1,51 \cdot 10^{-5}$	$-6,28 \cdot 10^{-1}$	$-9,77 \cdot 10^{-2}$
Élasticités	0,98	-0,81	-0,25

TABLE 4.11 – Sensibilités et élasticités de la fonction de performance mécanique G_3 autour du point moyen de fonctionnement

Les résultats de l'étude de sensibilité de la fonction G_3 par rapport aux paramètres sont présentés dans le tableau 4.11. D'après les élasticités comparées de manière graphique dans la figure 4.14, la force F et la pression P semblent avoir un impact majeur sur la fonction. Mais, bien que l'impact de la propriété des joints soit le plus faible, il n'est pas négligeable pour autant.

Dans le cas de la fonction de performance G_4 caractérisant la probabilité de rupture du carbure de silicium, les paramètres pris en compte pour l'étude de sensibilité sont la force globale de serrage $F = 25005 N$, le module de Weibull $\omega = 9,48$ et la contrainte caractéristique $\eta = 445 MPa$ liés au matériau. D'après l'étude mécanique réalisée au chapitre 2, comme la contrainte maximale de traction dans les conditions optimales d'utilisation est égale à $1,56 MPa$, la probabilité de rupture de la plaque est quasi nulle, ce qui ne permet

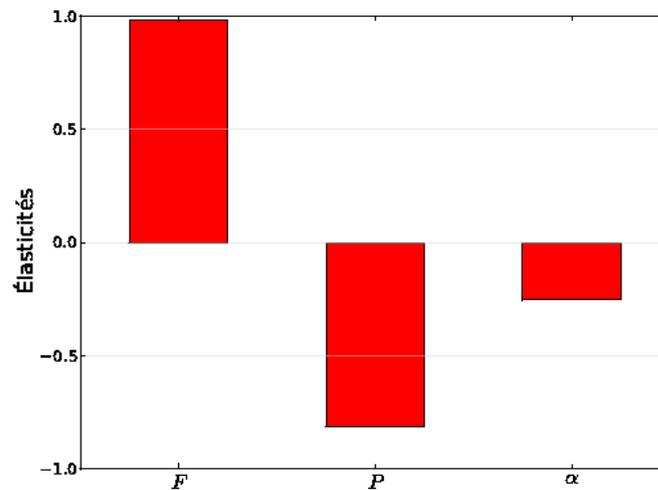


FIGURE 4.14 – Élasticités de la fonction de performance G_3 par rapport aux paramètres du modèle

pas de calculer les sensibilités par différences finies. Pour palier à cette difficulté, nous proposons de se placer autour d'un point de fonctionnement plus défavorable, écarté de 20 % dans le sens défavorable de chaque paramètre (tableau 4.12).

	F	ω	η
Valeurs	30006 N	7,58	364 MPa

TABLE 4.12 – Coordonnées du point de calcul dans des conditions défavorables de 20 %

Malgré la position défavorable du point considéré, la contrainte maximale de traction ne dépasse pas 1,86 MPa, et la probabilité de rupture est quasi nulle car non quantifiable de manière numérique. En d'autres termes, la probabilité de rupture est suffisamment éloignée de la limite acceptable pour que l'étape de serrage à froid ne représente pas un risque suffisant pour être étudiée d'un point de vue fiabiliste. La fonction de performance G_4 est donc écartée de l'étude de fiabilité.

4.3.3 Choix des variables aléatoires pour l'étude fiabiliste

Au vu des résultats de l'étude de sensibilité sur la fonction de performance G_3 et en particulier des élasticités, aucun des paramètres ne peut être écarté à priori. L'effort global de serrage F , la pression du fluide utilité P et le coefficient de raideur des joints α sont retenus comme variables aléatoires du système mécanique caractérisé par G_3 .

Concernant l'effort de serrage, il a été choisi de considérer seulement la variation globale et non les variations des efforts individuels sur chacun des 10 boulons. Cela représente une erreur systématique réalisée sur chacun des boulons lors d'une opération de montage, et donc, bien que l'effort global soit variable, le serrage reste homogène.

La variabilité de la pression représente l'aléa sur les conditions d'écoulement du fluide utilité. Ces conditions dépendent principalement du débit, et donc du réglage des pompes, et du circuit. Une fois mis en service, le régime d'écoulement de l'eau et en particulier la pression qu'elle applique sur les plaques sont considérés constants dans le temps.

Enfin le coefficient de raideur α permet la prise en compte de la variabilité des propriétés des joints, dépendant du lot de fabrication. Par contre, l'hypothèse est que tous les joints sont issus d'un même lot, et donc que leur propriété est identique.

Sans information statistique particulière disponible sur les trois variables aléatoires, leur distribution est considérée normale, de moyenne égale au point moyen de fonctionnement et d'écart-type valant 10 % de la moyenne. Les paramètres des variables sont résumés dans le tableau 4.13.

	F	P	α
μ	25005 N	0,5 MPa	1
σ	2500 N	0,05 MPa	0,1

TABLE 4.13 – Paramètres des distributions normales des variables aléatoires de la fonction G_3

4.3.4 Résolution directe par méthode FORM

Comme dans l'étude précédente, la recherche du point de conception, première étape d'une analyse FORM, est assurée par l'algorithme d'Abdo-Rakwitz. Le calcul des dérivées premières relatives à chaque variable est effectué par différences finies, en utilisant le même pas que pour l'analyse de sensibilité. Il faut donc 7 évaluations de la fonction de performance par itération.

La résolution du problème de minimisation sous contrainte est effectuée en 6 itérations, soit 42 appels au modèle éléments finis. Les coordonnées du point de conception estimées dans les différents espaces sont exprimées dans le tableau 4.14.

De ces coordonnées découle l'approximation du premier ordre de l'état limite, et donc la probabilité de défaillance ainsi que l'indice de fiabilité du système étudié (tableau 4.15).

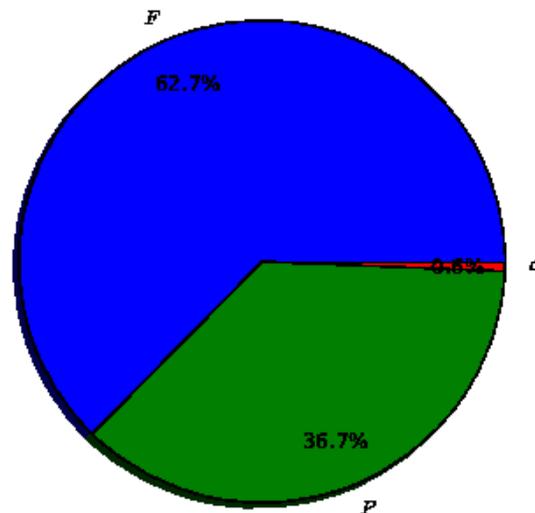
Espace	F	P	α
Physique	22902	0,532	1,01
Standard	$-8,41 \cdot 10^{-1}$	$6,43 \cdot 10^{-1}$	$8,50 \cdot 10^{-2}$

TABLE 4.14 – Coordonnées du point de conception pour la fonction de performance G_3

	P_f	β
G_1	$14,4 \cdot 10^{-2}$	1,06

TABLE 4.15 – Indice de fiabilité et probabilité de défaillance pour la fonction d'état G_3

Enfin les facteurs d'importance représentés sur la figure 4.15 montrent la prépondérance des variables standardisées F et P par rapport à celle représentant le coefficient de raideur des joints α .

FIGURE 4.15 – Facteurs d'importance des variables pour la fonction de performance G_3

L'étude de sensibilité de l'indice de fiabilité par rapport aux paramètres des variables aléatoires nécessite 6 calculs supplémentaires. Les sensibilités de l'indice de fiabilité sont énumérées dans le tableau 4.16 et les élasticités associées exposées sur la figure 4.16. Comme dans l'étude thermo-chimique, les moyennes des variables ont un impact majeur sur la fiabilité du système.

4.3.5 Résolution indirecte par SRQ et Monte Carlo

Comme pour l'étude thermo-chimique, une seconde étude de fiabilité est menée en parallèle de la résolution FORM. Cette étude basée sur un algorithme de surface de réponse adaptative, permet de trouver le point de conception du système et de définir une SRQ optimale, centrée en ce point, pour réaliser une simulation de Monte Carlo.

Paramètres	F	P	α
μ_i	$3,17 \cdot 10^{-4}$	$-12,1$	$-8,01 \cdot 10^{-1}$
σ_i	$-2,66 \cdot 10^{-4}$	$-7,79$	$-6,81 \cdot 10^{-2}$

TABLE 4.16 – Sensibilités de l'indice de fiabilité aux paramètres des variables pour la fonction de performance G_3

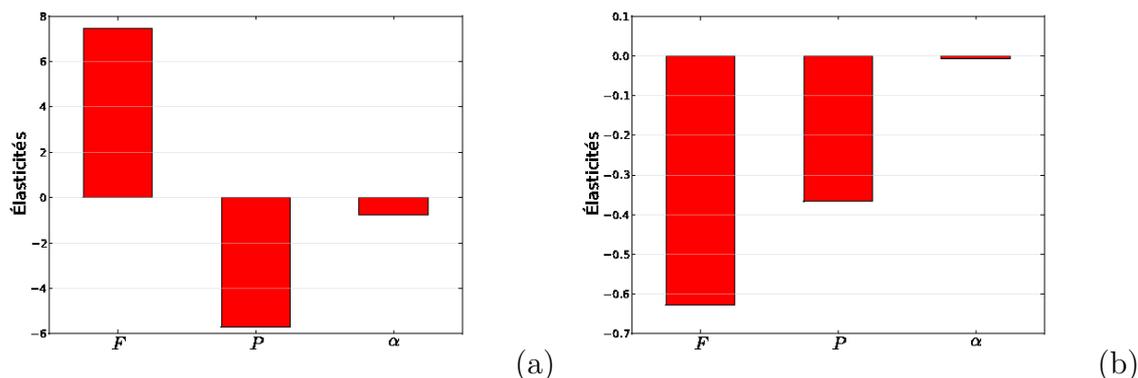


FIGURE 4.16 – Élasticités de l'indice de fiabilité aux moyennes (a) et écart-types (b) des variables pour la fonction de performance G_3

Le plan d'expérience de la SRQ est un plan composite à 1 niveau, dont le pas dans chaque direction est égal à l'écart-type de la variable. Cela représente un plan composé de 15 points expérimentaux, permettant l'identification exacte des coefficients de la SRQ complète.

Espace	F	P	α
Physique	22983	0,531	1,01
Standard	$-8,08 \cdot 10^{-1}$	$6,11 \cdot 10^{-1}$	$7,98 \cdot 10^{-2}$

TABLE 4.17 – Coordonnées du point de conception pour la fonction de performance G_3

Le nombre d'itérations nécessaire à la convergence de la méthode est de 4, ce qui représente 60 appels au modèle éléments finis. Les coordonnées du point de conception identifié sont exposées dans le tableau 4.17. Elles correspondent à celles du point de conception trouvé lors de l'étude FORM, ce qui conforte le résultat précédent.

La surface de réponse ainsi identifiée est utilisée dans un calcul par simulations de Monte Carlo. La probabilité de défaillance est estimée dans le tableau 4.18. Le résultat est aussi proche de la résolution par FORM, ce qui semble valider l'approximation linéaire de l'état limite.

	P_f	COV	Simulations
G_3	$15, 5 \cdot 10^{-2}$	0,05	2054

TABLE 4.18 – Estimation de la probabilité de défaillance par Monte Carlo sur SRQ pour la fonction G_3

4.3.6 Résolution indirecte par méthode AK-MCS

Pour valider définitivement la résolution par approximation FORM, la méthode AK-MCS est appliquée au système à résoudre. Pour cette étude, un krigeage ordinaire est utilisé avec modèle de tendance isotrope Gaussien. Un plan d'expérience LHS de 30 points est construit pour la première itération de l'algorithme AK-MCS, avec une population de Monte Carlo initiale de 10000 points. Le critère d'arrêt des itérations est fixé à $U_{min} \geq 2$ sous la condition d'un coefficient de variation $COV < 0,05$.

	P_f	COV	Simulations
G_3	$15, 0 \cdot 10^{-2}$	0,02	10000

TABLE 4.19 – Estimation de la probabilité de défaillance par la méthode AK-MCS pour la fonction G_3

L'algorithme converge en 76 itérations, ce qui représente un total de 106 appels à la fonction d'état. L'estimation de la probabilité de défaillance présentée dans le tableau 4.19 valide les résultats des études précédentes.

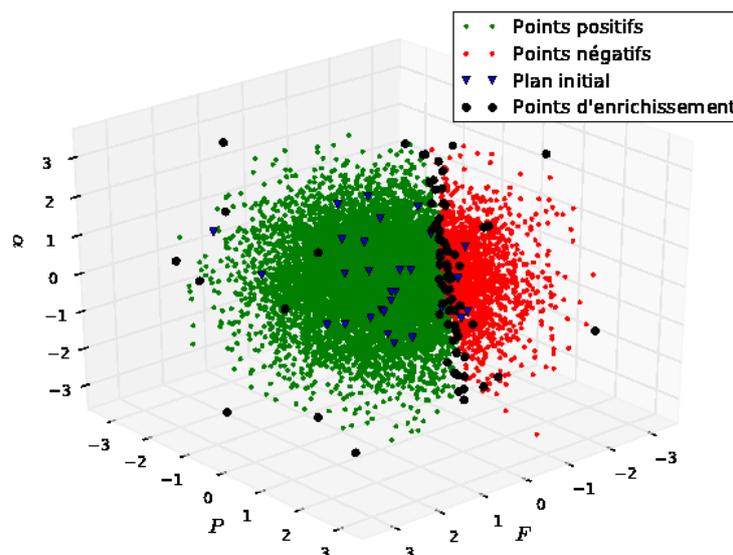


FIGURE 4.17 – Représentation de la population de Monte Carlo de la méthode AK-MCS dans l'espace standard pour la fonction G_3

Comme le système ne comporte que 3 variables, il est possible de visualiser graphiquement la répartition des points sur une figure. Ainsi les zones de défaillance et de sûreté sont identifiables, tout comme la forme linéaire de l'état limite (figure 4.17). De plus, il apparaît qu'un grand nombre de points expérimentaux ont été ajoutés à proximité de l'état limite, ce qui confirme le bon comportement de l'algorithme dans le choix des points permettant l'augmentation de la prédiction par krigeage.

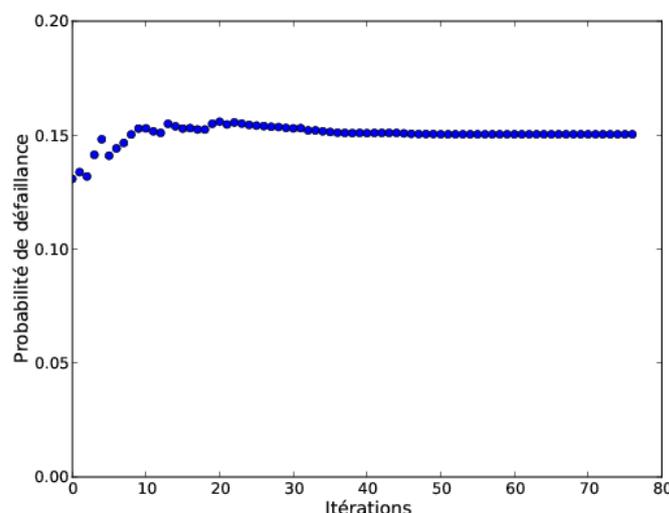


FIGURE 4.18 – Évolution de l'estimateur de défaillance au cours des itérations de l'AK-MCS pour la fonction G_3

Pour finir, l'évolution de la probabilité de défaillance au cours des itérations (figure 4.18) montre que l'estimation est proche du résultat final après environ 30 itérations, et que les 46 suivantes permettent de préciser cette estimation dans la zone d'état limite.

4.3.7 Analyse et conclusion

Une fois le risque de rupture écarté, le problème de fiabilité de l'ERI mono-plaque se résume au mode de défaillance lié aux fuites de fluides, conséquence d'un défaut d'écrasement des joints. L'étude a été menée selon trois principaux axes correspondant à trois méthodes de calcul complémentaires. Les méthodes par surface de réponse quadratique et AK-MCS ont permis de confirmer la qualité de l'approximation FORM. Ainsi, les résultats de cette dernière méthode peuvent être analysés et utilisés pour l'optimisation du produit.

Les premiers résultats intéressants sont la probabilité de défaillance et l'indice de fiabilité, dont les valeurs respectives de 14,4 % et 1,06 sont relativement importantes. Ce résultat

est à prendre avec précaution puisque, par manque d'information à leur sujet, les valeurs des écart-types ont été choisies relativement élevées. Cela étant dit, le reste de l'analyse est à lire en connaissance de cause.

Les élasticités de l'indice de fiabilité par rapport aux moyennes et écart-types des variables montrent la prédominance de l'impact des moyennes, et en particulier celles de l'effort F et de la pression P , par rapport aux écart-types. Donc, si on considère que la pression du fluide est subie, il faut augmenter l'effort global de serrage F pour augmenter la fiabilité de l'ERI d'un point de vue étanchéité. D'après les derniers calculs mécaniques réalisés sur la rupture de la plaque SiC, cet effort peut être porté à 30000 N sans risque de compromettre l'intégrité du réacteur. Pour aller plus loin, comme l'écart-type de F est aussi prépondérant, le contrôle de la variabilité de l'effort appliqué par la mise en place d'une procédure stricte de serrage permettrait d'augmenter la fiabilité du système.

4.4 Conclusion

Dans ce dernier chapitre nous avons présenté les outils fiabilistes utilisés ainsi que les développements spécifiques réalisés pour l'interpolation par krigeage et l'algorithme AK-MCS. Ce dernier ainsi que la méthode FORM et la substitution par SRQ ont été appliqués aux modèles afin de réaliser l'étude fiabiliste de l'ERI selon trois modes de défaillances particuliers qui sont basés sur la température maximale du fluide procédé, le rendement de la réaction et l'apparition de fuite au niveau des joints. Le mode de défaillance lié à la rupture des plaques SiC a été écarté car la faible valeur de la probabilité de rupture calculée que le modèle mécanique ne permet pas l'application des méthodes numériques. Les variables aléatoires considérées ont été choisies suite à une étude de sensibilité de chaque fonction de performance autour du point moyen de fonctionnement.

La première conclusion de l'étude est que la fiabilité de l'ERI dépend de sa mise en oeuvre, avec notamment la valeur de la température d'entrée du fluide procédé ou de l'effort global de serrage, plutôt que de sa conception et fabrication, avec par exemple la valeur de la conductivité thermique du SiC ou de ses paramètres de rupture de la loi de Weibull. Des procédures de mise en oeuvre strictes et la maîtrise des appareils et outils associés (pompes, bain thermostatés...) sont à privilégier pour garantir la fiabilité globale de l'ERI.

La seconde conclusion concerne la mise en oeuvre des méthodes fiabilistes et en particulier la méthode AK-MCS, qui a nécessité le développement d'un code spécifique. Pour les trois fonctions de performance, les méthodes FORM et surface de réponse quadratique

donnent des résultats similaires. La résolution par la méthode AK-MCS permet de confirmer l'approximation seulement dans le cas du mode de défaillance mécanique, associé aux fuites de fluide. Dans les deux cas thermo-chimiques, les résultats de la méthode AK-MCS montrent que le point de conception trouvé lors de l'approximation FORM et confirmé par l'approche par SRQ n'est pas le point de défaillance le plus probable. Ceci démontre la nécessité de toujours valider une approximation FORM par une méthode par simulation globale, et que, pour cela, la méthode AK-MCS s'avère efficace, même avec un nombre de variables relativement grand. Finalement, l'étude de fiabilité de l'ERI aura aussi permis de valider l'approche par la méthode AK-MCS, grâce à sa mise en oeuvre sur un problème réel.

Conclusion générale

Dans ce mémoire nous avons présenté un travail de recherche portant sur l'étude et l'optimisation thermo-mécanique d'un échangeur réacteur intensifié. Cette étude a été développée dans le cadre du programme INPAC (INtensification de Production d'Anti-Cancéreux), labellisé par le pôle de compétitivité CBS (Cancer-Bio-Santé) situé à Toulouse, dont l'Institut de Recherche Pierre Fabre est le pilote industriel et la société Boostec le partenaire chargé du développement des Échangeur Réacteur en Carbure de silicium. Dans ce cadre là, les objectifs initiaux de ces travaux étaient :

- développer un modèle thermo-mécanique permettant de simuler le comportement de l'ensemble de l'ERI, afin d'optimiser les paramètres de conception et de mise en oeuvre pour garantir la réalisation de synthèses chimiques en toute sécurité,
- utiliser le modèle thermo-mécanique développé dans une étude de fiabilité, afin d'estimer la probabilité de défaillance du système et d'orienter les décisions pour une optimisation fiabiliste globale.

Conformément à ce qui était défini, nous avons tout d'abord développé un modèle thermo-mécanique dont l'exploitation a permis de déterminer les efforts de serrage de chaque boulon garantissant l'intégrité des plaques et l'absence de fuite. Ensuite, une étude fiabiliste a été menée pour plusieurs modes de défaillance, ce qui a permis d'estimer les probabilités de défaillance associées et d'identifier les paramètres intéressants pour l'optimisation de la fiabilité du système.

Dans ce travail nous avons utilisé des méthodes classiques de résolution fiabiliste comme l'approximation du premier ordre de l'état limite par la méthode FORM ou l'application de la méthode par simulations de Monte Carlo sur une surface de réponse quadratique des fonctions de performance. Ensuite, nous avons mis en application une nouvelle méthode de modélisation de la surface réponse du système par interpolation par Krigeage, associée à une méthode d'apprentissage permettant d'affiner la définition de l'état limite de la fonction de performance. Nous avons ainsi montré la validité et l'intérêt de la mise en oeuvre de la méthode AK-MCS dans la résolution d'un problème mécano-fiabiliste. Elle a permis de confirmer les résultats pour le problème mécanique et de montrer les limites

des méthodes FORM et SRQ-MC pour les problèmes thermo-chimiques étudiés.

Concernant les résultats de l'étude fiabiliste de l'ERI, l'analyse a mis en avant la faible probabilité de défaillance du prototype par rupture de la plaque SiC. Par contre, elle a permis d'identifier les moyennes de l'effort global de serrage et de la pression du fluide utilité comme paramètres prépondérants dans la probabilité de défaillance par fuites. Concernant les modes de défaillances thermo-chimiques, ce sont les moyennes des variables qui influent majoritairement sur la fiabilité du système. En fait, les moyennes des paramètres de mise en oeuvre de l'ERI, par opposition aux paramètres de conception, sont à considérer en priorité pour fiabiliser le système.

L'étude fiabiliste s'appuie sur la construction préalable d'un modèle thermo-chimique et d'un modèle thermo-mécanique. Le premier a nécessité le développement d'un code spécifique nommé ModER, afin de modéliser le comportement thermo-chimique d'une réaction au sein de la structure de l'ERI. Le second est un modèle éléments finis complexe, prenant en compte, entre autres, les multiples contacts entre plaques et les propriétés non linéaires des joints. Ces modèles sont complémentaires puisque les résultats de l'un sont utilisés comme conditions limites de l'autre, et ce de manière automatique. Partant de ces modèles comme base, il est possible de modifier les données thermo-chimiques pour simuler le comportement thermo-mécanique du réacteur soumis à de nouvelles réactions, et ainsi d'optimiser les paramètres de conception ou les conditions opératoires.

Finalement, le développement global de cet échangeur réacteur intensifié au sein du groupe de projet INPAC est un succès puisqu'il est actuellement installé et en fonction sur une chaîne de production de l'industriel partenaire. De plus, un autre ERI est en service à la Maison Européenne des Procédés Innovants à Toulouse, permettant ainsi son accès à de nouveaux industriels souhaitant effectuer des essais de production chimique.

Bien que ce travail ait été porté à son terme, plusieurs prolongements peuvent être proposés pour compléter et poursuivre cette étude. En effet, maintenant qu'une démarche fiabiliste valide a été construite et validée, il serait intéressant d'obtenir des données plus précises sur les variables aléatoires considérées pour alimenter les modèles et donc affiner les résultats de fiabilité. D'autre part, alors que seul l'effort de serrage global a été pris en compte dans notre étude, les efforts de serrage de chaque boulon pourraient être considérés indépendamment, ce qui représente une dizaine de variables aléatoires supplémentaires mais permettrait d'évaluer l'incidence d'un aléas sûrement non négligeable. Enfin, le modèle thermo-mécanique représente un ERI mono-plaque, et le modèle d'un ERI multi-plaques pourrait être aisément développé en s'appuyant sur notre travail.

Bibliographie

- [Abaqus 09] *Abaqus Version 6.9 Documentation Collection*, 2009.
- [Abdo 90] T. Abdo & R. Rackwitz. *A new beta-point algorithm for large time-invariant and time-variant reliability problems*. Proceeding of the third WG 7.5 IFIP Conference on Reliability and Optimisation of Structures, 1990.
- [Anxionnaz 08] Z. Anxionnaz, M. Cabassud, C. Gourdon & P. Tochon. *Heat exchanger/reactors (HEX reactors) : Concepts, technologies : State-of-the-art*. Chemical Engineering and Processing : Process Intensification, vol. 47, no. 12, pages 2029–2050, 2008.
- [Anxionnaz 09] Z. Anxionnaz. *Etude de l'influence de la géométrie des canaux sur les performances d'un réacteur/échangeur*. Mémoire de thèse, Institut National polytechnique de Toulouse, 2009.
- [Arnaud 00] M. Arnaud & X. Emery. *Estimation et interpolation spatiale : méthodes déterministes et méthodes géostatiques*. Paris, Hermès Science, 2000.
- [ASTM 04] *Standard Test Method for Monotonic Equibiaxial Flexural Strength of Advanced Ceramics at Ambient Temperature*. ASTM, C 1499-03, 2004.
- [Au 01] S.K. Au & J. L. Beck. *Estimation of small failure probabilities in high dimensions by subset simulation*. Probabilistic engineering mechanics, vol. 16, pages 263–277, 2001.
- [Au 07] S.K. Au, J. Ching & J.L. Beck. *Application of subset simulation methods to reliability benchmark problems*. Structural Safety, vol. 29, no. 3, pages 183–193, 2007. A Benchmark Study on Reliability in High Dimensions.
- [Averous 99] D. Averous, K. Hammadi, H. Pingaud, X. Joulia & P. Guittard. *Dynamic simulation of brazed plate-fin heat exchangers*. Computers and Chemical Engineering Science, vol. 23, pages 447–450, 1999.

- [Baillargeon 05] S. Baillargeon. *Le krigeage : revue de la théorie et applications à l'interpolation spatiale de données de précipitations*. Mémoire de thèse, Université Laval, 2005.
- [Benaïssa 06] W. Benaïssa. *Développement d'une méthodologie pour la conduite en sécurité d'un réacteur continu intensifié*. Mémoire de thèse, Institut National polytechnique de Toulouse, 2006.
- [Bennani 08] M. Abbanna Bennani. *Apport des mousses métalliques en réacteur continu intensifié*. Mémoire de thèse, Institut National polytechnique de Toulouse, 2008.
- [Bichon 08] B. J. Bichon, M. S. Eldred, L. P. Swile, S. Mahadevan & J. M. Mcfarland. *Efficient Global Reliability Analysis for Nonlinear Implicit Performance Functions*. AIAA journal, vol. 46, pages 2459–2468, 2008.
- [Boch 01] P. Boch. *Propriétés et applications des céramiques*. Paris, Hermès science, 2001.
- [Cannamela 08] C. Cannamela, J. Garnier & B. Iooss. *Controlled stratification for quantile estimation*. The annals of applied statistics, vol. 2, pages 1554–1580, 2008.
- [Chermant 89] J.L. Chermant. *Les céramiques thermomécaniques*. Paris, Presses du CNRS, 1989.
- [Cornell 69] C. Cornell. *A probability-based structural code*. J. Am. Conc Inst, vol. 66, pages 974–985, 1969.
- [Deheeger 08] F. Deheeger. *Couplage mécano-fiabiliste : ²SMART - méthodologie d'apprentissage stochastique en fiabilité*. Mémoire de thèse, Université Blaise Pascal, 2008.
- [Dehmous 07] H. Dehmous. *Fiabilité et micromécanique des matériaux composites ; Application à la passerelle de Laroin*. Mémoire de thèse, Institut National Polytechnique de Toulouse, 2007.
- [Devictor 96] N. Devictor. *Fiabilité et mécanique : méthodes FORM/SORM et couplage avec des codes d'éléments finis par des surfaces de réponse adaptative*. Mémoire de thèse, Université Blaise Pascal, 1996.
- [Dortmans 90] L. J. M. G. Dortmans & G. de With. *Weakest-link Failure Predictions for Ceramics Using Finite Element Post-processing*. The Netherlands Journal of the European Ceramic Society, vol. 6, pages 369–374, 1990.

- [Dubourg 10] V. Dubourg & F. Deheeger. *Une alternative à la substitution pour les méta-modèles en analyse de fiabilité*. Journées Fiabilité des Matériaux et des Structures, 2010.
- [Duperrioux 07] T. Duperrioux. *Conception et calcul thermo-mécanique d'un échangeur*. Rapport technique, Boostec SA, 2007.
- [Echard 10] B. Echard, N. Gayton & M. Lemaire. *Kriging based Monte Carlo simulation to compute the probability of failure efficiently : AK-MCS method*. Journées Fiabilité des Matériaux et des Structures, 2010.
- [Eissen 03] Marco Eissen, Andreas Zogg & Konrad Hungerbuhler. *The runaway scenario in the assessment of thermal safety : simple experimental access by means of the catalytic decomposition of H₂O₂*. Journal of Loss Prevention in the Process Industries, vol. 16, no. 4, pages 289–296, 2003.
- [Elgue 04] S. Elgue, A. Devatine, L. Prat, P. Cognet, M. Cabassud, C. Gourdon & F. Chopard. *Dynamic simulation of a novel intensified reactor*. ESCAPE14, 2004.
- [Elgue 08] S. Elgue, C. Jolivet, C. Gourdon, K. Ramdani & M. Cabassud. *Intensification of a hydrosilylation process according to a theoretical and experimental methodology*. 18th International Congress of chemical and process engineering, 2008.
- [Ferrouillat 06] S. Ferrouillat, P. Tochon, D. Della Valle & H. Peerhossaini. *Open loop thermal control of exothermal chemical reactions in multifunctional heat exchangers*. International Journal of Heat and Mass Transfer, vol. 49, no. 15-16, pages 2479–2490, 2006.
- [Gollwitzer 06] S. Gollwitzer, B. Kirchgabner, R. Fischer & R. Rackwitz. *PERMAS-RA/STRUREL system of programs for probabilistic reliability analysis*. Structural Safety, vol. 28, pages 108–129, 2006. Structural Reliability Software.
- [Goupy 99] J. Goupy. *Plans d'expériences pour surfaces de réponse*. Dunod, 1999.
- [GPL] *The free software foundation - <http://www.fsf.org>*.
- [Haftka 91] R.T. Haftka & Z. Gurdal. *Elements of structural optimization, 3rd edition*. Springer, 1991.
- [Hamed 99] M. H. Hamed & P. B. Bedient. *Reliability based uncertainty analysis of groundwater contaminant transport and remediation*. Office of reserch and development Washington DC 20460, 1999.

- [Hasofer 74] A. M. Hasofer & N. C. Lind. *Exact and invariant second-moment code format*. Journal of the Engineering Mechanics Division, vol. 100, pages 111–121, 1974.
- [Haukaas 03] T. Haukaas. *State-of-the-art FORM reliability analysis*. Lecture 9, CVIL 518, Reliability and structural safety, 2003.
- [Haussonne 05] J.M. Haussonne, C. Carry, P. Bowen & J. Barton. *Céramiques et verres : principes et techniques d'élaboration*. Lausanne, Presses polytechniques et universitaires romandes, 2005.
- [Hendershot 00] D. C. Hendershot. *Process minimization : Making plants safer*. Chemical engineering progress, vol. 96, pages 35–40, 2000.
- [Herdrich 05] G. Herdrich, M. Fertig, S. Löhle, S. Pidan, M. Auweter-Kurtz & T. Laux. *Oxidation Behavior of Siliconcarbide-Based Materials by Using New Probe Techniques*. Journal of Spacecraft and Rockets, vol. 42, pages 817–824, 2005.
- [Hurtado 04] Jorge E. Hurtado. *An examination of methods for approximating implicit limit state functions from the viewpoint of statistical learning theory*. Structural Safety, vol. 26, no. 3, pages 271–293, 2004.
- [Jourdan 09] A. Jourdan & J. Franco. *Plans d'expérience numériques d'information de Kullback-Leibler minimale*. 41èmes journées de Statistique, Bordeaux, France France, 2009.
- [Kaymaz 05] I. Kaymaz. *Application of kriging method to structural reliability problems*. Structural Safety, vol. 27, pages 133–151, 2005.
- [Kiureghian 06] A. Der Kiureghian, T. Haukaas & K. Fujimura. *Structural reliability software at the University of California, Berkeley*. Structural Safety, vol. 28, pages 44–67, 2006. Structural Reliability Software.
- [Kleijnen 09] Jack P.C. Kleijnen. *Kriging metamodeling in simulation : A review*. European Journal of Operational Research, vol. 192, pages 707–716, 2009.
- [Lamon 83] J. Lamon & A. G. Evans. *Statistical Analysis of Bending Strengths for Brittle Solids : A Multiaxial Fracture Problem*. Journal of the American Ceramic Society, vol. 66, pages 177–182, 1983.
- [Laurenceau 08] J. Laurenceau. *Surfaces de réponse par krigeage pour l'optimisation de formes aérodynamiques*. Mémoire de thèse, Institut National Polytechnique de Toulouse, 2008.
- [Laurent 03] A. Laurent. *Sécurité des procédés chimiques : connaissances de base et méthodes d'analyse de risques*. Tec & Doc, Lavoisier, 2003.

- [Lemaire 05] M. Lemaire. *Fiabilité des structures*. Hermès - Lavoisier, 2005.
- [Lemaire 06] M. Lemaire & M. Pendola. *Phimeca-soft*. Structural Safety, vol. 28, pages 130–149, 2006. Structural Reliability Software.
- [Leveque 07] R. J. Leveque. *Finite difference methods for ordinary and partial differential equations : steady-state and time-dependent problems*. Philadelphia, PA , Society for Industrial and Applied Mathematics, 2007.
- [Lin 81] K. F. Lin & L. L. Wu. *Performance of an adiabatic controlled cycled stirred tank reactor*. Chemical Engineering Science, vol. 36, no. 2, pages 435–444, 1981.
- [Lin 06] H.-Z. Lin & M.R. Khalessi. *General outlook of UNIPASS V5.0 : A general-purpose probabilistic software system*. Structural safety, vol. 28, pages 196–216, 2006. Anglais.
- [Liu 91] P.L. Liu & A.D. Kiureghian. *Optimization algorithms for structural reliability*. Structural Safety, vol. 9, no. 3, pages 161–177, 1991.
- [Lomel 06] S. Lomel, L. Falk, J.M. Commenge, J.L. Houzelot & K. Ramdani. *The Microreactor : A Systematic and Efficient Tool for the Transition from Batch to Continuous Process ?* Chemical Engineering Research and Design, vol. 84, no. 5, pages 363–369, 2006. International Conference on Sustainable (Bio)Chemical Process Technology.
- [Lophaven 02] S. N. Lophaven, H. B. Nielsen & J. Sondergaard. *DACE : A Matlab Kriging Toolbox*. Rapport technique, Technical University of Denmark, 2002.
- [Matheron 73] G. Matheron. *The intrinsic random function and their applications*. Advances and applied probability, vol. 5, pages 435–468, 1973.
- [Melchers 89] R. E. Melchers. *Importance sampling in structural systems*. Structural Safety, vol. 6, pages 3–10, 1989.
- [Meunier 07] L. Meunier, G. Chagnon, D Favier & L Orgéas. *Caractérisation du comportement mécanique d'élastomères silicones chargés et non chargés*. 18ième Congrès Français de la Mécanique, 2007.
- [Micol 07] A. Micol. *Approche probabiliste dans la conception des modules de puissance*. Mémoire de thèse, Université de Toulouse, 2007.
- [Mohamed 98] Alaa Mohamed, Maurice Lemaire, Jean-Claude Mitteau & Eric Meister. *Finite element and reliability : a method for compound variables-application on a cracked heating system*. Nuclear Engineering and Design, vol. 185, no. 2-3, pages 185–202, 1998.

- [Nataf 62] A. Nataf. *Détermination des distributions de probabilités dont les marges sont données*. Comptes Rendus de l'Académie des Sciences, vol. 255, pages 42–43, 1962.
- [Ogden 99] R. W. Ogden & D. G. Roxburgh. *A pseudo-elastic model for the Mullins effect in filled rubber*. Proceedings of the Royal Society of London. Series A : Mathematical, Physical and Engineering, vol. 455, pages 2861–2877, 1999.
- [Ogura 02] Y. Ogura & T. Morimoto. *Mass Spectrometric Study of Oxidation of SiC in Low-Pressure Oxygen*. Journal of The Electrochemical Society, vol. 149, pages 47–52, 2002.
- [OpenTurns 09] *Reference Guide : Open TURNS version 0.13.1*. <http://www.openturns.org>, 2009.
- [Pellissetti 06] M.F. Pellissetti & G.I. Schueller. *On general purpose software in structural reliability - An overview*. Structural Safety, vol. 28, pages 3–16, 2006. Structural Reliability Software.
- [Phillips 97] C. H. Phillips, G. Lauschke & H. Peerhossaini. *Intensification of batch chemical processes by using integrated chemical reactor-heat exchangers*. Applied Thermal Engineering, vol. 17, no. 8-10, pages 809–824, 1997.
- [Pitti 10] R. Moutou Pitti, A. Chateauneuf & C. Chazal. *Fiabilité des structures en béton précontraint avec prise en compte du comportement viscoélastique*. Journées Fiabilité des Matériaux et des Structures, 2010.
- [Prat 05] L. Prat, A. Devatine, P. Cognet, M. Cabassud, C. Gourdon, S. Elgue & F. Chopard. *Performance Evaluation of a Novel Concept "Open Plate Reactor" Applied to Highly Exothermic Reactions*. Chemical Engineering & Technology, vol. 28, no. 9, pages 1028–1034, 2005.
- [Ramshaw 83] C. Ramshaw. *High distillation - An example of process intensification*. The Chemical Engineering Journal, vol. 389, pages 13–14, 1983.
- [Ramshaw 95] C. Ramshaw. *The incentive for process intensification*. Proceedings of 1st International Conference on Process Intensification, 1995.
- [Ramshaw 01] C. Ramshaw. *Process intensification : potential impact on the chemical industry*. Clean Technology for the Manufacture of Speciality Chemicals, Special Publication, pages 32–36, 2001.
- [Ranjan 08] P. Ranjan, D. Bingham & G. Michailidis. *Sequential Experiment Design for Contour Estimation from Complex Computer Codes*. Technometrics, vol. 50, pages 527–541, 2008.

- [Rjanitzyne 59] A.R. Rjanitzyne. *Calcul a la rupture et plasticité des constructions*. Eyrolles, Paris, 1959.
- [Rohsenow 98] W.M. Rohsenow, J.P. Hartnett & Y.I. Cho. *Handbook of Heat Transfer*. McGraw-Hill Professional, 1998.
- [Rold 09] G. Da Rold. *Catalycité et vieillissement des matériaux à haute technicité. Etude des barrières de diffusion vis-à-vis de l'oxygène*. Mémoire de thèse, Labo. de Génie des Procédés Plasmas et Traitements de Surface, ENSCP, 2009.
- [Rosenblatt 52] M. Rosenblatt. *Remarks on a multivariate transformation*. The Annals of Mathematical Statistics, vol. 23, pages 470–472, 1952.
- [Sargousse 99] A. Sargousse, J.M. Le Lann, X. Joulia & L. Jourda. *DISCo : un nouvel environnement de simulation orienté objet*. MOSIM, 1999.
- [Sarzeaud 95] O. Sarzeaud. *Les réseaux de neurones : contribution à une théorie*. Ouest Editions, 1995.
- [Schneider 95] B. Schneider. *Sur l'oxydation active des céramiques à base de carbure de silicium*. Mémoire de thèse, Université de Bordeaux 1, Talence, 1995. Thesis.
- [Schneider 05] M.A. Schneider & F. Stoessel. *Determination of the kinetic parameters of fast exothermal reactions using a novel microreactor-based calorimeter*. Chemical Engineering Journal, vol. 115, no. 1-2, pages 73–83, 2005.
- [Schweich 01] D. Schweich. *Génie de la réaction chimique*. Tec. & doc., 2001.
- [Shelat 04] M. R. Shelat & P. N. Sharratt. *Use of compact heat exchanger as flexible reactor*. AIChE Annual Meeting, Austin, Texas, USA, 2004.
- [Simrit 09] *Manuel technique - O-Rings et joints statiques - Simrit*, 2009.
- [Singh 93] J. Singh. *Assessing semi-batch reaction hazards*. Chemical engineer, pages 21–25, 1993.
- [Stankiewicz 02] A. Stankiewicz & J. A. Moulijn. *Process intensification*. Industrial & Engineering Chemistry Research, vol. 41, pages 1920–1924, 2002.
- [Stanley 73] P. Stanley, H. Fessler & A. D. Seville. *An engineer's approach to the prediction of failure probability of brittle components*. Proc. Brit. Ceram. Soc., vol. 22, pages 453–87, 1973.
- [Stitt 02] E. H. Stitt. *Alternative multiphase reactors for fine chemicals : A world beyond stirred tanks ?* Chemical Engineering Journal, vol. 90, no. 1-2, pages 47–60, 2002.

- [Stoessel 93] F. Stoessel. *What is your thermal risk ?* Chemical engineering progress, vol. 89, pages 68–75, 1993.
- [Trambouze 03] P. Trambouze. *Réacteurs chimiques - Technologie - J4020*. Rapport technique, Techniques de l'ingénieur, 2003.
- [Tsouris 03] C. Tsouris & J. V. Porcelli. *Process intensification : Has its time finally come ?* Chemical engineering progress, vol. 99, pages 50–55, 2003.
- [Tvedt 06] L. Tvedt. *Proban - probabilistic analysis*. Structural Safety, vol. 28, pages 150–163, 2006. Structural Reliability Software.
- [Ubrich 99] O. Ubrich, B. Srinivasan, P. Lerena, D. Bonvin & F. Stoessel. *Optimal feed profile for a second order reaction in a semi-batch reactor under safety constraints : Experimental study*. Journal of Loss Prevention in the Process Industries, vol. 12, no. 6, pages 485–493, 1999.
- [Villiermaux 93] J. Villiermaux. *Génie de la réaction chimique : conception et fonctionnement des réacteurs*. Tec & Doc, 1993.
- [Villiermaux 94] J. Villiermaux. *Réacteurs chimiques - Principe - J4010*. Rapport technique, Techniques de l'ingénieur, 1994.
- [Walpot 03] J. I. Walpot & M. COX. *TNO's work on intensification : practical examples*. Journal of chemical technology and biotechnology, vol. 78, pages 236–240, 2003.
- [Yonezawa 99] M. Yonezawa, S. Okuda & Y. Tae Park. *Structural reliability estimation based on simulation within limited sampling region*. International Journal of Production Economics, vol. 60-61, pages 607–612, 1999.
- [Zhang 97] Y. Zhang & A. Der Kiureghian. *Finite element reliability methods for inelastic structures*. Rapport technique, Technical Report No. UCB/SEMM-97/05, Departments of Civil and Environmental, University of California, Berkeley, 1997.
- [Zienkiewicz 00] O. C. Zienkiewicz & R. L. Taylor. *The finite element method*. Oxford, Butterworth-Heinemann, 2000.