



HAL
open science

Modélisation thermomécanique d'éprouvettes polymère/composite représentatives des réservoirs haute pression à hydrogène

Benoit Gentileau, Fabienne Touchard, Jean-Claude Grandidier

► **To cite this version:**

Benoit Gentileau, Fabienne Touchard, Jean-Claude Grandidier. Modélisation thermomécanique d'éprouvettes polymère/composite représentatives des réservoirs haute pression à hydrogène. 17èmes Journées Nationales sur les Composites (JNC17), Jun 2011, Poitiers-Futuroscope, France. pp.196. hal-00597541

HAL Id: hal-00597541

<https://hal.science/hal-00597541>

Submitted on 1 Jun 2011

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Modélisation thermomécanique d'éprouvettes polymère/composite représentatives des réservoirs haute pression à hydrogène

Thermo-mechanical modeling of polymer/composite specimens for high pressure hydrogen storage vessels

Benoit Gentilleau, Fabienne Touchard et Jean-Claude Grandidier

Institut P²
CNRS • ENSMA • Université de Poitiers • UPR 3346
Département Physique et Mécanique des Matériaux
ENSMA • Téléport 2
1 Avenue Clément Ader • BP 40109
F86961 FUTUROSCOPE CHASSENEUIL Cedex
e-mail : benoit.gentilleau@ensma.fr, fabienne.touchard@ensma.fr

Résumé

Cette étude porte sur les matériaux constitutifs des réservoirs haute pression de type IV. Ce sont des réservoirs en composite carbone/époxy bobiné autour d'un liner polymère. Les conditions de remplissage de ce type de réservoir induisent des chargements mécanique et thermique de fortes amplitudes.

Des essais de traction quasi statique et des essais à chargements répétés progressifs réalisés à différentes températures (-40°C, 25°C, 85°C) permettent d'obtenir les lois de comportement mécanique. Les caractéristiques thermiques (capacité thermique) sont obtenues à partir d'essais de DSC (de -50°C à 150°C pour couvrir toute la plage d'utilisation du réservoir). L'analyse des essais a mis en évidence une influence non négligeable de la température sur les lois de comportement, ce qui montre l'importance d'une modélisation thermomécanique pour simuler le comportement de ces réservoirs.

Un modèle thermomécanique a été développé afin d'obtenir une estimation précise des champs thermique et mécanique présents dans une éprouvette soumise à un chargement thermomécanique représentatif du remplissage d'un réservoir. Les lois de comportement non linéaires et dépendantes de la température caractérisées précédemment sont utilisées. Les résultats du modèle éléments finis sont comparés avec les essais de fatigue thermomécanique. Une bonne corrélation entre les champs de température calculés et les champs de température mesurés par camera infrarouge est obtenue. Ce modèle nous permet aussi de connaître l'état de contrainte dans l'éprouvette. Les résultats montrent la capacité du modèle à simuler le comportement thermomécanique des matériaux utilisées dans les réservoirs hydrogène.

Abstract

This study focuses on the behaviour of materials used for type IV high-pressure tanks. These tanks are made of carbon / epoxy composite wound around a polymer liner. To achieve the specifications required by industry, the pressure within the tank has to reach 700 bars. Fast filling of this kind of tank leads to a thermo-mechanical loading.

Mechanical and thermal behaviour laws are determined from mechanical tests (quasi-static and repeated progressive loading tensile tests) carried out at different temperatures (-40 ° C, 25 ° C, 85 ° C) and from DSC tests (from -50 ° C to 150 ° C which cover all the range of use of the tank). These tests show a significant influence of temperature on the behaviour laws, highlighting the importance of thermo-mechanical modelling to simulate the tank behaviour.

A thermo-mechanical model is developed, and calculated mechanical and thermal fields are compared with those of a specimen subjected to a thermo-mechanical loading representative of hydrogen storage tank fast filling. The nonlinear and temperature-dependent constitutive laws characterized experimentally are used in this model.

An infrared camera is used in order to measure thermal field on each face of the thermo-mechanical specimen. A comparison is done between these tests and the model. Results show a good accordance between calculated and measured temperature fields. This model also allows us to know the state of stress in the specimen. These results show the capability of the model to simulate correctly the thermo-mechanical behaviour of materials used in H₂ tanks.

Mots Clés : Stockage d'hydrogène, matériau multicouche polymère/composite, caractérisation et modélisation thermo-mécanique

Keywords : Hydrogen storage, multilayer material, thermo-mechanical characterisation and modelling

1. Introduction

Cette étude porte sur les matériaux constitutifs des réservoirs haute pression de type IV. Ce sont des réservoirs en composite carbone/époxy bobiné autour d'un liner polymère. Pour atteindre les spécifications demandées par l'industrie, la pression au sein de ces réservoirs doit atteindre 700 bars. Le remplissage rapide de ce type de réservoir conduit à un chargement thermomécanique de forte amplitude [Dic 2007], [Wer 2003]. Ainsi, pour des raisons de sécurité, le comportement des matériaux et les mécanismes d'endommagement doivent être connus. Dans la littérature, des études ont déjà été menées sur les réservoirs haute pression à l'aide de modèles éléments finis. Par exemple, la pression d'éclatement d'un réservoir d'hydrogène est étudiée par Xu à l'aide de différents critères de rupture tels que la contrainte maximale, Hoffman, Tsai-Wu et Tsai-Hill [Xu 2009]. Dans une autre étude, une simulation d'un réservoir bobiné est réalisée en prenant en compte la variation de l'angle de bobinage en fonction de la position dans le réservoir. Ces résultats numériques sont comparés à des tests de pressurisation avec de l'eau [Par 2002].

Comme le remplissage rapide conduit à un chargement thermomécanique du réservoir, celui-ci est soumis à de la fatigue à cause des successions de remplissage et de vidange. De plus, après un remplissage, la pression dans le réservoir diminue très lentement. Ainsi le chargement est composé d'une étape transitoire où la pression et la température augmentent rapidement et d'une longue période où la pression et la température diminuent plus lentement (à des échelles différentes). Très peu d'études ont été réalisées sur les réservoirs d'hydrogène soumis à de la fatigue. Comond et al. proposent une méthode pour augmenter la durée de vie d'un réservoir de type III avec un liner métallique [Com 2009]. Pour étudier l'impact de ce chargement complexe, une campagne d'essais pourrait être réalisée sur des réservoirs. Cependant, ce type de tests prend du temps et coûte cher. Ainsi, pour valider les matériaux utilisés et les choix technologiques avant de réaliser des prototypes, des éprouvettes doivent être utilisées. L'étude présentée est une modélisation d'une éprouvette multicouche polymère/composite sous chargement mécanique et thermomécanique ainsi que la caractérisation des lois de comportement des matériaux.

2. Comportement des matériaux

Le cahier des charges du réservoir prévoit une utilisation comprise entre -40°C et 85°C , c'est pourquoi les matériaux ont été caractérisés à différentes températures couvrant toute la plage d'utilisation du réservoir. Les essais réalisés permettent de déterminer les lois de comportement mécanique et thermique des matériaux.

2.1 Comportement mécanique

Des essais de traction quasi statique et des essais à chargements répétés progressifs réalisés à différentes températures (-40°C , 25°C , 85°C) permettent d'obtenir les lois de comportement mécanique.

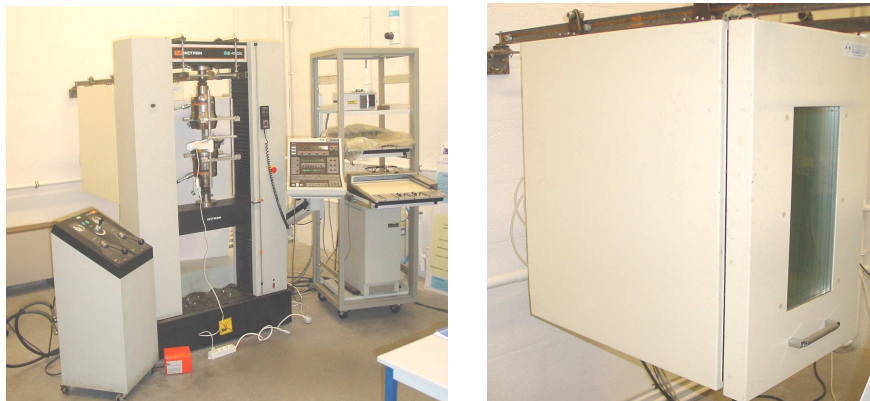


Fig. 1. Machine de traction INSTRON 4505 et enceinte Servathin

Ces essais sont réalisés sur des éprouvettes unidirectionnelles à 0°, 90° et +/- 45 ° prélevées dans des tubes. De cette manière on garde le même procédé de fabrication que le réservoir. Des talons sont utilisés afin d'adapter la courbure des éprouvettes aux mors de la machine de traction INSTRON 4505. Une enceinte SERVATHIN régulée en température est utilisée pour réaliser les essais (figure 1).

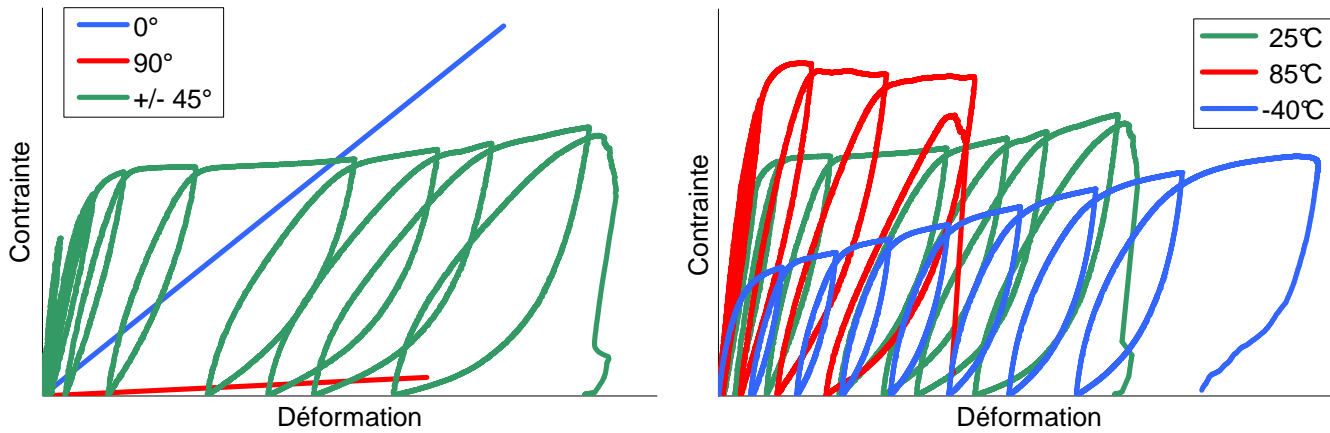


Fig. 2. Loi contrainte - déformation pour différentes orientations à 25°C (a) et Loi contrainte - déformation des +/- 45° pour différentes températures (b)

On obtient ainsi les paramètres élastiques dans toutes les directions du composites. La figure 2a présente un exemple de courbe contrainte - déformation obtenue à 25°C pour chaque orientation du composite et la figure 2b présente les résultats obtenus à différentes températures pour les échantillons à +/-45°.

	0°	90°	+/-45°
$\sigma_{rupture}$ à -40°C	26.7	0.42	1.2
$\sigma_{rupture}$ à 25°C	26.7	0.33	1
$\sigma_{rupture}$ à 85°C	26.7	0.27	0.8

Tab. 1. Contraintes à rupture normées en fonction de la température

Le comportement dans le sens des fibres est linéaire jusqu'à la rupture. On n'observe pas d'influence de la température sur les paramètres élastiques ni sur les valeurs à rupture. Pour les essais dans le sens transverse aux fibres, on observe un comportement légèrement dépendant de la température que ce soit du point de vue des paramètres élastiques ou des valeurs à rupture (tableau 1). La rupture dans le sens transverse est une rupture fragile. En cisaillement le matériau présente un comportement non linéaire couplé à une forte dépendance à la température. De plus, on observe une perte de module en cisaillement avec la déformation résiduelle (figure 3).

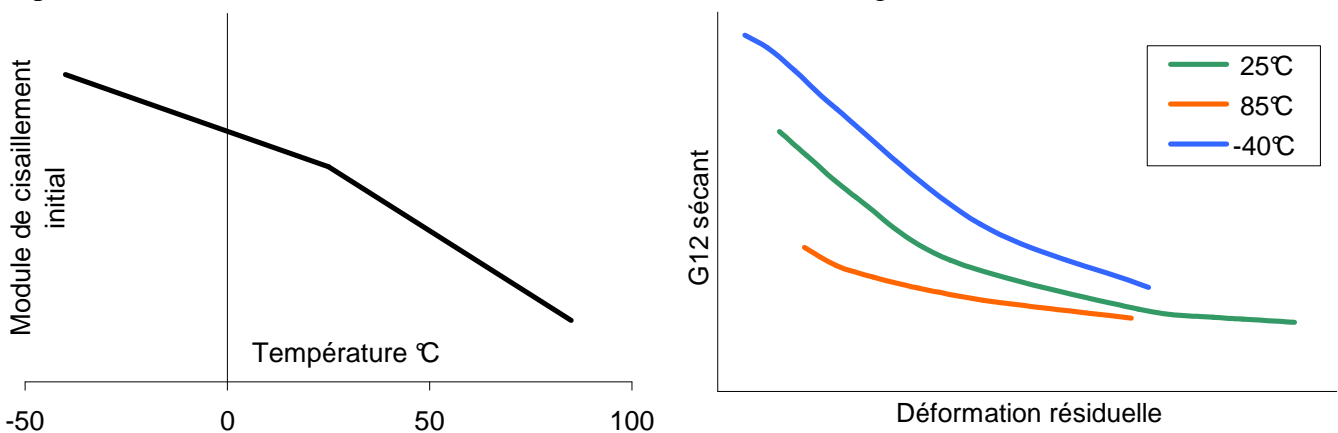


Fig. 3. Module de cisaillement : Evolution par rapport à la température et à la déformation résiduelle

2.2 Comportement thermique

L'objectif est d'obtenir les données nécessaires pour caractériser le comportement en thermique du matériau. La capacité thermique est obtenue à partir d'essais de DSC de -50°C à 150°C pour couvrir toute la plage d'utilisation du réservoir (figure 4). Celle-ci varie de $600 \text{ J}/(^{\circ}\text{C}\cdot\text{kg})$ à $1300 \text{ J}/(^{\circ}\text{C}\cdot\text{kg})$. Les différentes courbes représentent la dispersion des valeurs pour des échantillons prélevés à différents endroits d'un tube. On peut aussi noter sur cette figure la valeur de la température de transition vitreuse : 120°C . Des essais densitométriques permettent d'obtenir les masses volumiques des matériaux nécessaires à la résolution de l'équation de la chaleur. Les conductivités thermiques sont obtenues par le LET à l'aide de la méthode laser flash développée au Département fluides, thermique et combustion de l'Institut P' [Ruf 2010].

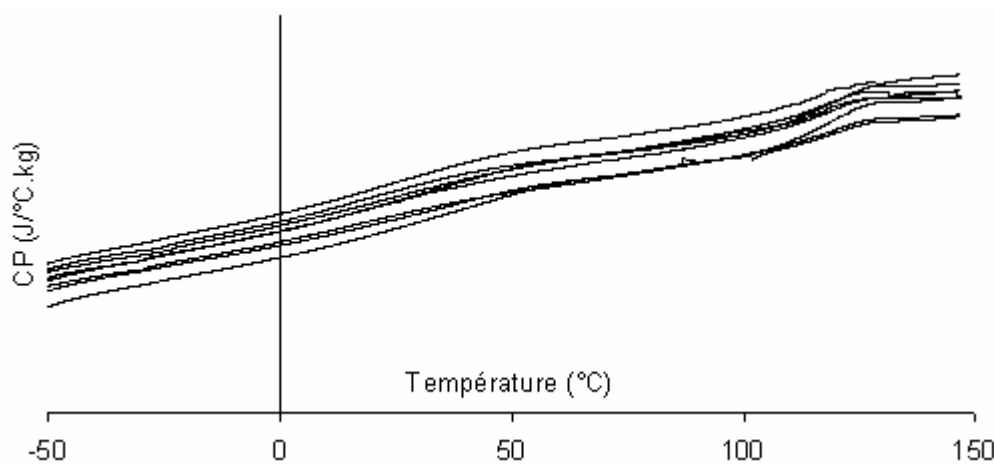


Fig. 4. Capacité calorifique du composite en fonction de la température (Visualisation de la dispersion selon les échantillons testés).

2.3 Bilan

Les essais réalisés ont permis de caractériser les matériaux constitutifs du réservoir et de déterminer une loi de comportement du composite élasto-plastique endommageable et thermo-dépendante. Les résultats montrent une influence non négligeable de la température sur les lois de comportement d'où l'importance d'une modélisation thermomécanique pour simuler le comportement des réservoirs.

3. Modélisation

Un modèle thermomécanique est développé afin de déterminer les champs mécanique et thermique au sein d'une éprouvette technologique créée dans le but d'être représentative du chargement thermomécanique d'un réservoir H_2 haute pression [Ber 2010]. Les éprouvettes sont constituées du collage d'une éprouvette composite avec un liner polyuréthane (figure 5). Le composite et le liner polymère sont les matériaux constitutifs du réservoir.

La géométrie du modèle éléments finis s'appuie sur des mesures précises des dimensions des éprouvettes. Les éléments utilisés sont des éléments C3D20T (quadratique en déplacement et linéaire en température). Le maillage est raffiné dans les zones de fort gradient, i.e. près des bords et dans la zone de transition du liner (figure 5).

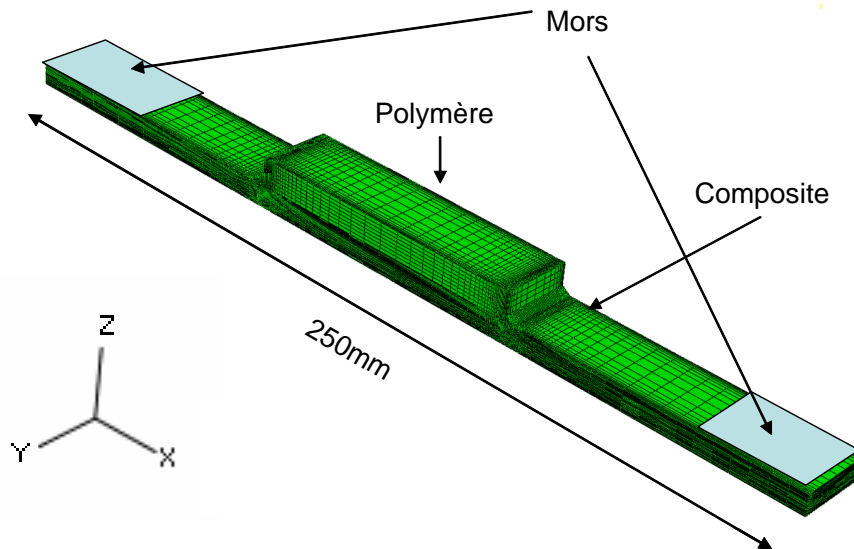


Fig. 5. Géométrie du modèle et conditions aux limites appliquées

Les essais de caractérisation avaient montré des différences de comportement importantes entre traction et cisaillement. Un comportement élastique linéaire fragile en traction et un comportement fortement non linéaire en cisaillement ont été observés lors des essais. C’est pourquoi dans le modèle on utilise un critère de plasticité de Hill qui est une extension anisotrope du critère de Von Mises. Celui-ci permet de modéliser un comportement du composite à la fois linéaire en traction/compression et non linéaire en cisaillement grâce au rapport de limite d’élasticité que ce critère permet d’introduire. De plus, la dépendance des modules d’élasticité à la température et à la déformation résiduelle est assurée à l’aide d’une « user subroutine » Abaqus. Ainsi, pour chaque température d’essai (-40, 25 et 85°C) la loi utilisée est celle déterminée lors des essais. Entre ces températures, une interpolation linéaire est réalisée pour déterminer les paramètres matériaux. La figure 6a présente la loi de comportement en cisaillement simulé par Abaqus comparée à celle obtenue lors des essais sur des plis à +/-45°. On peut voir sur cette figure la diminution du module d’élasticité en cisaillement avec l’augmentation de la déformation plastique. Les boucles d’hystérésis due à la viscosité ne sont pas modélisées. Sur la figure 6b, on peut voir l’évolution des différentes variables du modèle pour un chargement répété progressif en contrainte. On peut voir l’augmentation de la déformation plastique avec la contrainte, d’où une perte progressive de rigidité. L’augmentation de la déformation plastique ainsi que la perte de rigidité entraîne une non-linéarité de la déformation totale.

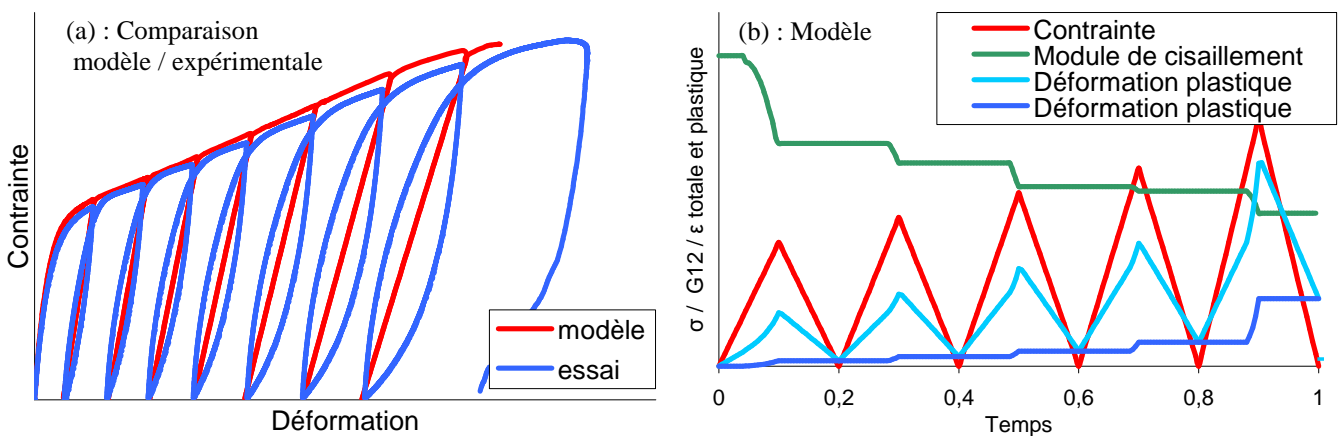


Fig. 6. Loi de comportement en cisaillement : Comparaison avec les essais et évolution des différents paramètres du modèle au cours d’un essai à chargement répété progressif.

Les essais de fatigue thermomécanique [Ber 2010] sont réalisés sur ces éprouvettes en appliquant un flux de chaleur sur la surface du liner par l'intermédiaire d'un jet d'air chaud (figure 7). Afin de modéliser au mieux ce chargement, une subroutine permet d'imposer les flux de chaleur pour les conditions aux limites, ceux-ci étant dépendants de la position, de la température de paroi ainsi que du temps. Ce flux de chaleur est déterminé à l'aide d'abaque déterminant le nombre de Nusselt ainsi que la température adiabatique de paroi pour un jet de caractéristiques identiques à celles du jet utilisé lors des essais. Il est ainsi possible d'imposer un chargement thermique le plus proche possible de celui vu lors des essais.

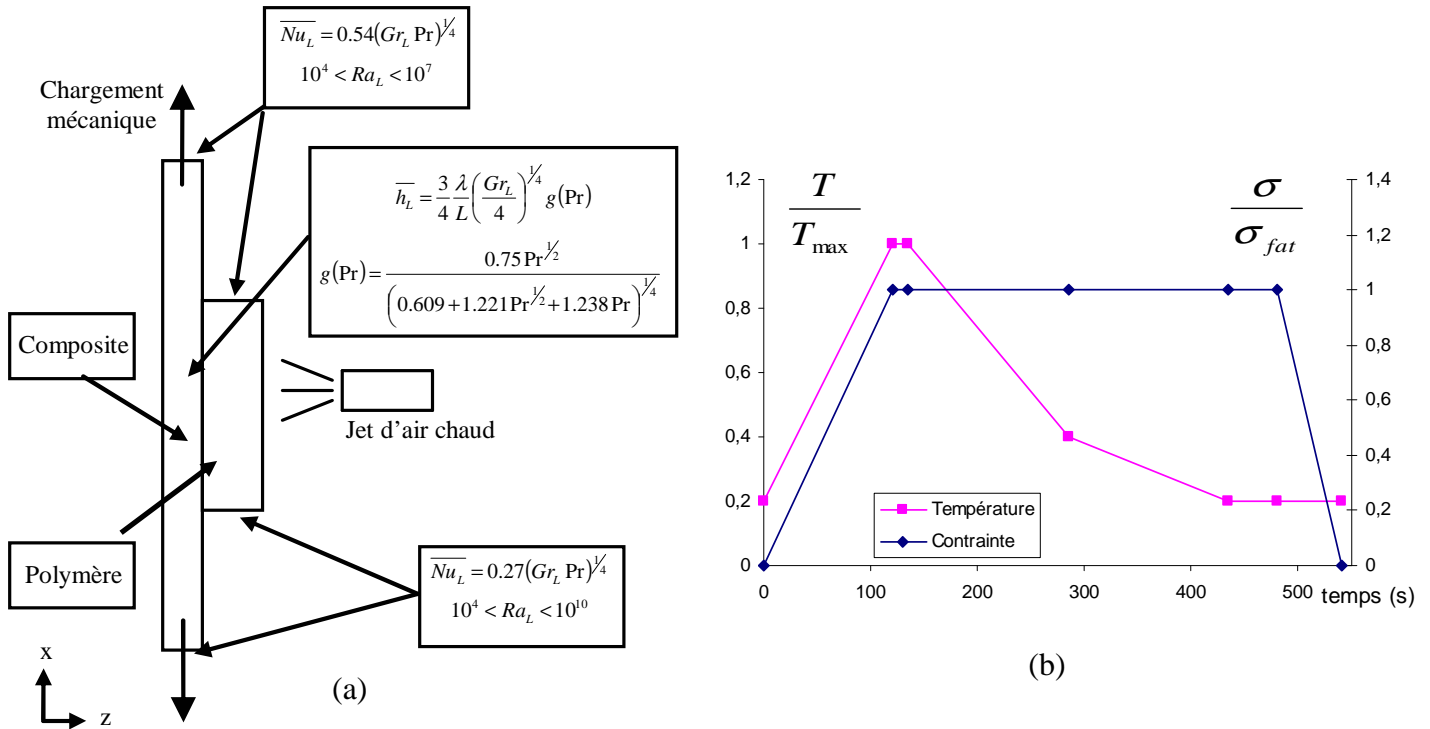


Fig. 7. Conditions aux limites en thermique (a) et cycle de fatigue thermomécanique appliqué (b).

Afin de localiser l'apparition des fissures, on a choisit d'utiliser un critère de rupture. Ce critère utilisé pour cette modélisation est un critère anisotrope 3D de type Tsai-Wu [7].

4. Résultats

Les résultats obtenus avec le modèle sont comparés à différents essais réalisés.

4.1 Comportement mécanique

On réalise dans un premier temps un calcul purement mécanique afin de connaître les champs de contraintes et d'appréhender le comportement d'une telle éprouvette multicouche. Les drapages de la partie composite des éprouvettes multicouches utilisées sont constitués d'un empilement de couches A de type $(+\theta_1/-\theta_1)$ avec $15^\circ < \theta_1 < 35^\circ$ et de couches B de type $(+\theta_2/-\theta_2)$ avec $75^\circ < \theta_2 < 90^\circ$. Les séquences d'empilement étudiées sont : $[A_3B_2]_s$ et $[ABABA]_s$.

Les champs de contraintes observés dans le calcul sont comparés à des observations microscopiques réalisés après 2000 cycles de fatigue mécanique 1Hz. On peut voir sur la figure 8 que le critère de rupture utilisé permet de localiser les zones d'endommagement dans l'éprouvette et ce quel que soit le drapage.

Ces premiers résultats permettent de comprendre l'influence de la géométrie sur le comportement de l'éprouvette représentative. En effet, le collage du liner sur l'éprouvette en composite induit un

phénomène de flexion qui va favoriser certains sites pour l'apparition d'endommagements. Le critère utilisé permet de prévoir ces sites mais aussi de comparer la tenue des différents drapages.

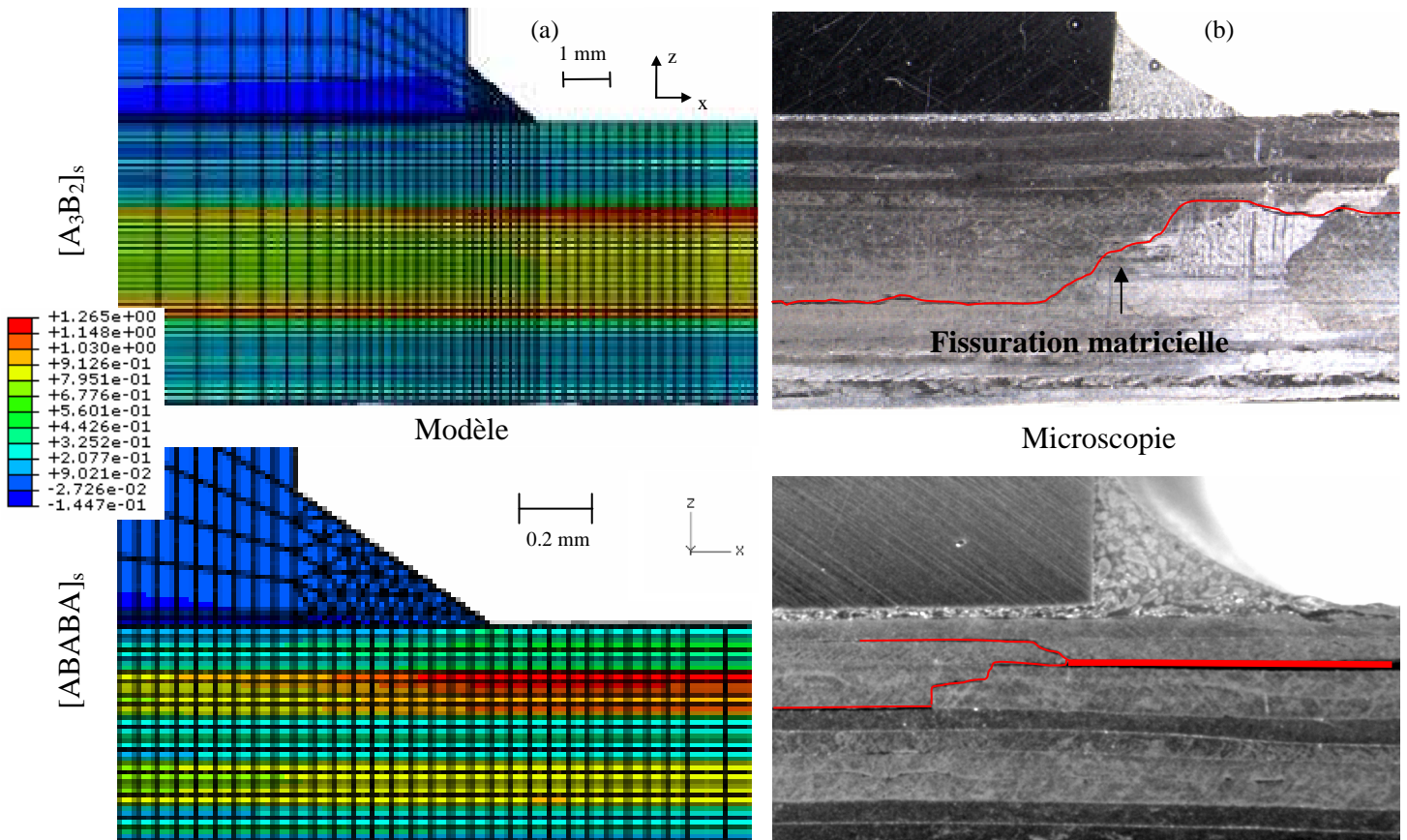


Fig. 8. Comparaison des endommagements observés expérimentalement (b) [Ber 2010] et du critère de Tsai-Wu (a) pour les drapages $[ABABA]_s$ et $[A_3B_2]_s$.

4.2 Comportement thermomécanique

Dans cette partie l'étude porte sur l'éprouvette $[A_3B_2]_s$, soumis au chargement thermomécanique décrit dans la partie précédente avec des montées en température et en charge simultanées représentatives de l'augmentation de la pression dans le réservoir au cours du remplissage puis une diminution progressive de la température avec un maintien en charge représentatifs de l'équilibrage de la température avec le milieu extérieur (figure 7b). Les résultats obtenus avec le modèle sont comparés à différents essais réalisés. Un essai a été réalisé en mesurant à l'aide d'une caméra infrarouge les champs de température sur les différentes faces de l'éprouvette. La comparaison des champs de températures relevés lors de cet essai va nous permettre de valider les conditions aux limites imposées à l'aide des coefficients d'échange h . On observe une bonne corrélation entre les champs de température calculés et les champs de température mesurés par caméra infrarouge sur la face du liner (figure 9) et sur les bords et le dos de l'éprouvette. Le champ de température obtenu à l'aide du modèle permet donc de connaître la température partout au sein de l'éprouvette et ce tout au long du cycle thermomécanique.

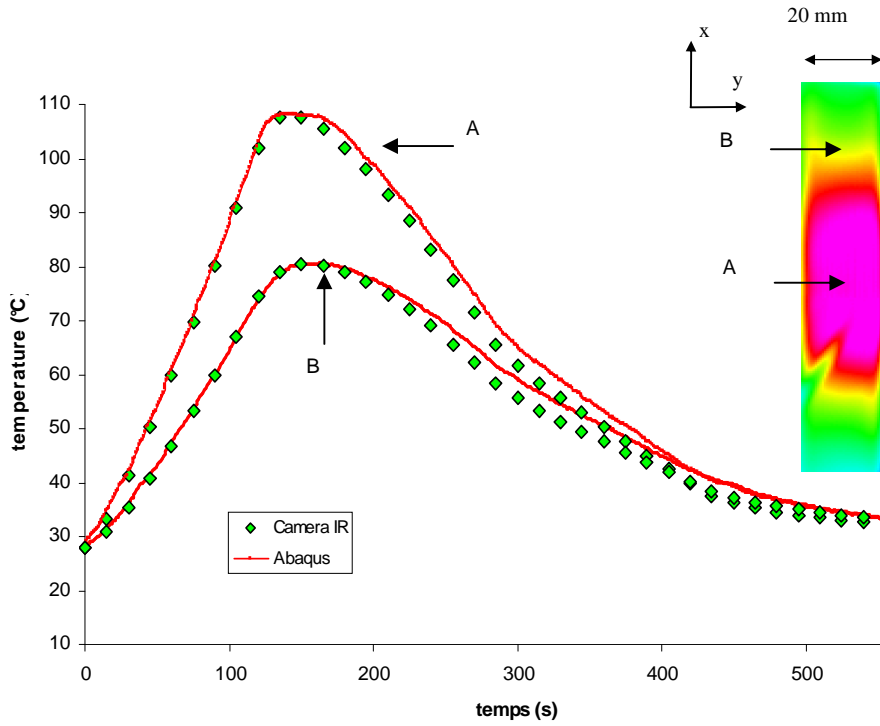


Fig. 9. Comparaison des températures relevées par camera infrarouge et calculées avec le modèle.

Dans un premier temps on utilise une loi linéaire élastique indépendante de la température. On peut voir que l'augmentation de température entraîne une diminution des contraintes locales dans la zone la plus sollicitées, soit un pli où les fibres sont très désorientées par rapport à la charge (figure 10).

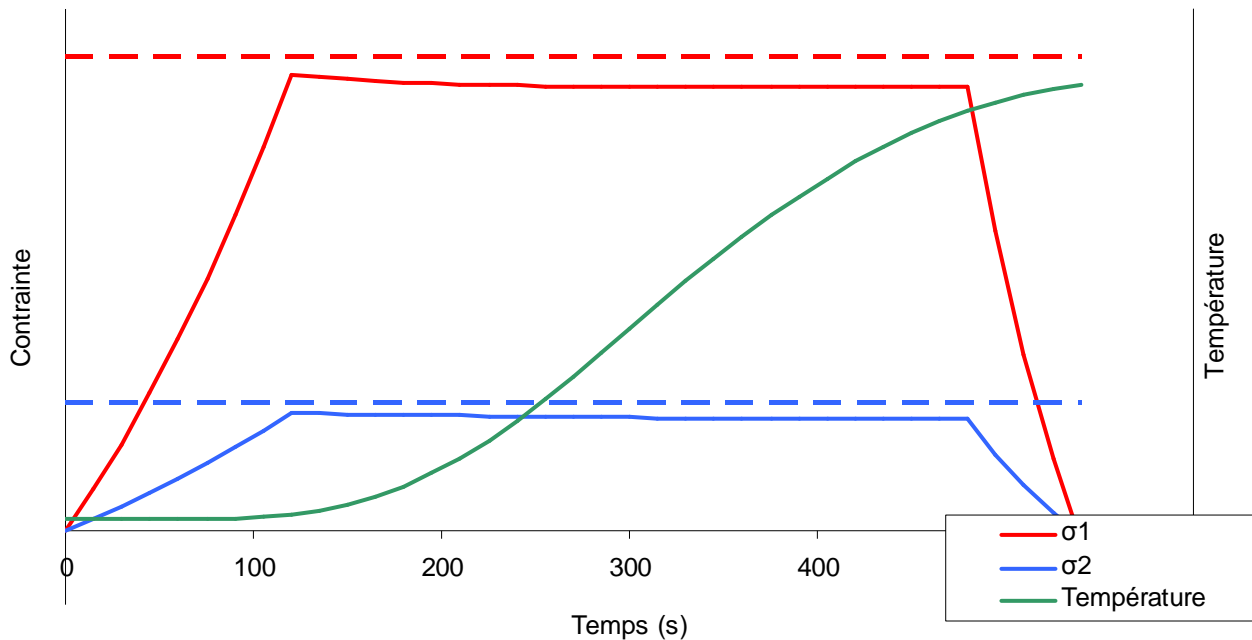


Fig. 10. Comparaison des contraintes en thermomécanique (traits pleins) et en mécanique (traits pointillés)

La dilatation thermique anisotrope entraîne donc une diminution du critère dans les plis aux fibres désorientées par rapport à la charge. Cette diminution est due aux dilatations thermiques, les propriétés matériaux ne variant pas dans ce cas. Une diminution du critère implique une augmentation de la tenue des éprouvettes, cependant, les essais réalisés [Ber] ont montré une très forte diminution de la durée de vie des éprouvettes soumis à un chargement thermomécanique

comparées à celles soumis uniquement à un chargement mécanique. En effet, la durée de vie est divisé par 20 en passant de la fatigue mécanique 1 Hz à de la fatigue thermomécanique. Ce phénomène peut s'expliquer par le fait que les propriétés mécaniques en traction dans le sens transverse mais surtout en cisaillement sont affectées par l'augmentation de température. Plus la température augmente, plus les propriétés élastiques diminuent (figure 3). De plus, l'augmentation de la température influe très fortement sur les contraintes à rupture observées sur des plis unidirectionnels en traction dans le sens transverse et en cisaillement (tableau 1).

Un nouveau calcul a donc été réalisé en prenant en compte la dépendance thermique des paramètres mécaniques. Les résultats montrent que la diminution des paramètres avec la température entraîne une augmentation du critère de rupture calculé. On retrouve donc une rupture des éprouvettes prématurée sous chargement thermomécanique comme en expérimental. L'utilisation des lois développées précédemment est donc nécessaire afin d'appréhender au mieux l'état de contraintes d'un réservoir soumis à un remplissage rapide.

La figure 11 présente, par exemple, l'évolution de la contrainte de cisaillement en fonction de la déformation de cisaillement dans la zone où l'éprouvette est la plus fortement sollicitée. On constate effectivement une augmentation de la contrainte et de la déformation par rapport au calcul purement élastique.

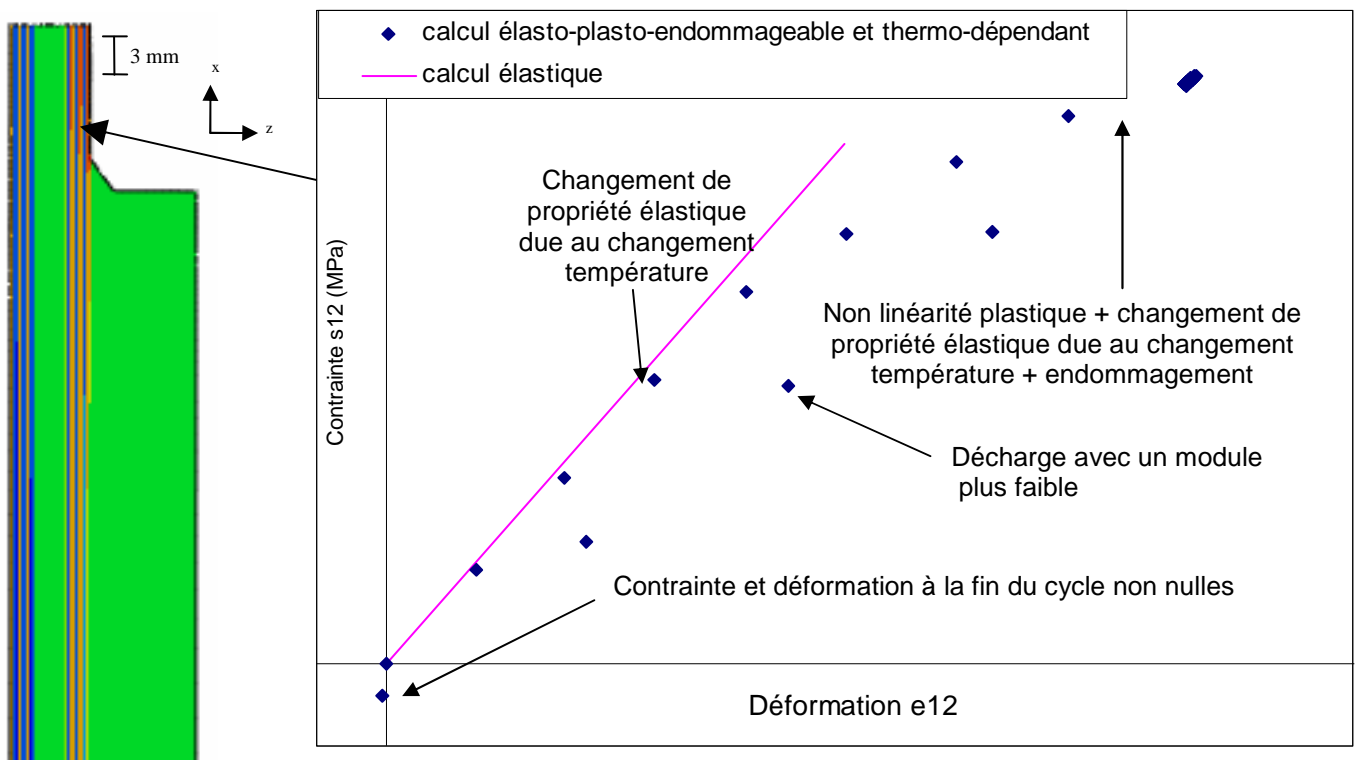


Fig. 11. Evolution de la contrainte s_{12} au cours d'un cycle de fatigue thermomécanique dans un élément de la plus sollicité de l'éprouvette.

L'augmentation du niveau de contrainte, combinée à la diminution des propriétés à rupture avec la température explique la diminution de la tenue des éprouvettes en fatigue thermomécanique.

Avec cette loi de comportement, de la même manière que pour un chargement purement mécanique, on peut voir une bonne corrélation entre la localisation des endommagements et les zones de fortes contraintes. Ces zones d'endommagements sont les mêmes que pour le chargement purement mécanique. Les résultats montrent que le modèle numérique développé permet de prédire les zones où risquent d'apparaître des endommagements lors d'un chargement mécanique mais aussi thermomécanique.

5. Conclusion

Des essais de caractérisation mécanique ont été réalisés sur des drapages à 0°, 90° et +/-45, à différentes températures (-40°C, 25°C, 85°C) pour couvrir toute la plage d'utilisation du réservoir (refroidissement à la vidange et échauffement au remplissage). Les lois de comportement non linéaires et dépendantes de la température ainsi obtenues ont été implantées dans un modèle numérique. Des éprouvettes représentatives d'un réservoir ont été développées (éprouvette multicouche polymère / composite) afin de reproduire le chargement de fatigue thermomécanique subi par le réservoir. Le modèle thermomécanique développé a été comparé aux résultats expérimentaux obtenus sur ces éprouvettes. On obtient une bonne corrélation entre le champ de température calculé et le champ de température mesuré par caméra infrarouge lors des essais, ainsi qu'une première approximation du champ de contrainte présent dans un réservoir soumis à un remplissage rapide.

Le modèle thermomécanique et les essais ont montré l'importance de prendre en compte précisément la thermique dans la modélisation du réservoir. En effet, le gradient de température dans le réservoir entraîne une modification importante de la répartition des contraintes au sein de l'éprouvette. De plus, lors des essais, on peut observer une influence marquée de la température sur les données matériaux (cisaillement, CP, ...). Ces variations des propriétés sont un enjeu important dans l'estimation de la tenue de réservoirs bobinés haute pression.

Remerciements

Nous tenons à remercier tous les partenaires du projet OSEO H2E.

Références

- [1] Dicken CJB, Merida W. "Measured effects of filling time and initial mass on the temperature distribution within a hydrogen cylinder during refueling". *Journal of Power Sources*, Vol. 165, pp. 324-336, 2007.
- [2] Werlen E. PP, Barral K., Renault P. "Thermal effects related to H2 fast filling in high pressure vessels depending on vessels types and filling procedures: modelling, trials and studies". In: *European Energy Conference*, Grenoble, France 2003.
- [3] Bertin M, Touchard F, Lafarie-Frenot MC. "Experimental study of the stacking sequence effect on polymer/composite multi-layers submitted to thermomechanical cyclic loadings". *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol.35, pp. 11397-11404, 2010.
- [4] Park JS, Hong CS, Kim CG, Kim CU, "Analysis of filament wound composite structures considering the change of winding angles through the thickness direction", *Composite Structures*, Vol. 55, pp.63-71,2002.
- [5] Xu P, Zheng JY, Liu PF, "Finite element analysis of burst pressure of composite hydrogen storage vessels", *Materials & Design*, Vol. 30, pp. 2295-230, 2009.
- [6] Comond O, Perreux D, Thiebaut F, Weber M, "Methodology to improve the lifetime of type III HP tank with a steel liner", *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 34, pp. 3077-3086, 2009.
- [7] Tsai SW, Wu EM. "A General Theory of Strength for Anisotropic Materials". *Journal of Composite Materials*, Vol. 5, pp. 58-80, 1971.
- [8] Ruffio E, Saury D, Petit D. "Caractérisation de la diffusivité par méthode flash inverse". Communication interne ENSMA 2011.