

ANALYSE DE L'EFFET DU MODE DE POLYMERISATION SUR LE COMPORTEMENT D'UN RESERVOIR D'HYDROGENE

Abdelkader Hocine¹, David Chapelle¹, A. Benamar², A. Bezazi³
Institut FEMTO-ST, Dept. LMARC, 24, rue de l'épithaphe, 25000 Besançon, France
E-mail hocinea_dz@yahoo.fr
E-mail david.chapelle@univ-fcomte.fr

² ENSET, Department of mechanical engineering, BP 1523, Oran 31000, Algeria,
E-mail benamar_dz@yahoo.fr

³ University 08 Mai 1945, BP. 401, Guelma 24000, Algeria.
E-mail: ar_bezazi@yahoo.com

Résumé :

L'élaboration des réservoirs composites multicouches à matrice thermodurcissable avec liner métallique fait généralement appel à un cycle thermique destiné à polymériser la résine de l'empilement des couches de préimprégné. Au cours de ces étapes, les différents composants matériels de la structure subissent des variations dimensionnelles. Lors du refroidissement du réservoir à la température ambiante, des contraintes thermiques résiduelles sont développées dans les couches composites et un petit espace (gap) apparaît entre le liner et le composite.

Ce travail présente un modèle de comportement qui permet de déterminer les contraintes résiduelles d'origines thermiques dans la partie composite, ainsi le calcul du gap. L'effet de la séquence d'empilement sur le gap et sur les contraintes thermiques fait l'objet de ce travail.

KEYWORDS: *Hydrogène, stockage, réservoir, polymérisation, gap, contraintes résiduelles*

1. Introduction:

Les préoccupations croissantes pour l'environnement et les changements climatiques, notamment en relation avec les engagements découlant de la conférence de Kyoto, militent en faveur de sources d'énergie propres et renouvelables. Les technologies de l'hydrogène figurent parmi celles qui suscitent le plus grand intérêt et sont appelées à connaître un essor important au cours des prochaines décennies. Les émissions de gaz causées principalement par la combustion des carburants fossiles contribuent à augmenter le phénomène d'effet de serre. En conséquence, il est dans notre intérêt de développer, dès que possible, des systèmes énergétiques basés sur des ressources propres et renouvelables, sans danger pour l'atmosphère. L'utilisation de l'hydrogène pourrait contribuer à l'atteinte de ces objectifs.

Les systèmes énergétiques basés sur l'hydrogène séduisent par leurs avantages, qui cadrent bien avec le souci public concernant les émissions polluantes et le changement climatique.

Le carburant hydrogène est efficace et il est aperçu comme une énergie renouvelable et propre. On se réjouit de la vapeur d'eau inoffensive qui sort du pot d'échappement mais on oublie que l'hydrogène n'est pas une énergie primaire et qu'il doit d'abord être produit et stocké avant d'être utilisé.

Les recherches et les développements dans le domaine du stockage de l'hydrogène visent d'une part à en augmenter la densité énergétique par une meilleure compacité du réservoir, d'autre part à en augmenter l'énergie spécifique par une diminution du poids du réservoir par rapport à la masse d'hydrogène stockée. En outre, le réservoir doit garantir à la fois une durée de vie minimale du stockage, c'est-à-dire un niveau minimal de fuite d'hydrogène, et un certain niveau de sécurité pendant les opérations normales de remplissage et de soutirage de l'hydrogène, ainsi que dans les situations accidentelles, contre les risques d'inflammation et d'explosion [1].

Quel que soit le mode de stockage embarqué retenu, celui-ci devra être sûr, économique et devra permettre d'obtenir une autonomie comparable à celle que nous connaissons aujourd'hui (au moins 500 km).

Nos travaux de recherches menés au Laboratoire de Mécanique Appliquée Raymond Chaléat – Besançon – France, se consacrent en développement d'une solution, qui semble avoir été peu explorée : il s'agit de l'association de plusieurs moyens de stockage. L'une d'entre elles combine le stockage sous forme gazeuse et celui sous forme solide. Dans la solution proposée, l'intermétallique joue le rôle suivant : il sert à limiter voire interrompre la fuite d'hydrogène susceptible de survenir au cours des cycles de charge - décharge.

Lors de l'élaboration de la solution hybride et plus spécifiquement du composite multicouches à matrice thermodurcissable, un cycle thermique destiné à polymériser l'empilement des couches de préimprégné est généralement nécessaire. Au cours de ces étapes, les différents composants matériels de la structure subissent des variations dimensionnelles. Ces variations conduisent au développement des contraintes internes d'origines thermiques et à la création d'un espace entre les matériaux isotrope (liner et l'intermétallique) et orthotrope (composite).

Dans ce travail et comme première approche, on se limite à étudier l'effet de la polymérisation sur un réservoir métallique renforcé par un multicouche composite en carbone/époxy. Ce travail présente une analyse qui permet de déterminer l'effet des séquences d'empilement sur les contraintes d'origine thermique dans la partie composite, ainsi que sur le gap, qui est créé entre le liner métallique et la partie composite.

2. Hypothèses et mise en équations

On considère un tube cylindrique métallique renforcé par un multicouche composite de rayon interne r_0 et externe r_a . On définit les coordonnées du cylindre, r : radiale, θ : circonférentielle et z : axiale. Si on se place dans le cas où la structure est soumise à un chargement thermomécanique axisymétrique, ça nous permettra de conclure que les états de contraintes et de déformations (figure 1) sont indépendants de la coordonnée circonférentielle θ . Par ailleurs, les déplacements radiaux et

axiaux ne dépendent respectivement que de z et de r . Donc, le champ de déplacement peut s'écrire [2] :

$$\begin{cases} U_r = U_r(r) : \text{déplacement radial} \\ U_\theta = U_\theta(r, z) : \text{déplacement circonférentiel} \\ U_z = U_z(z) : \text{déplacement axial} \end{cases} \quad (1)$$

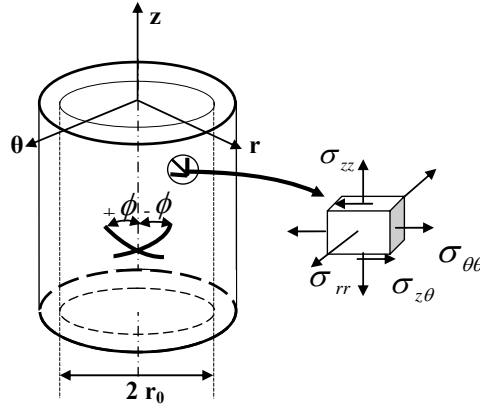


Figure 1: Etat de contrainte dans un tube multicouche.

Les relations contrainte – déformation de la couche k , pour des matériaux anisotropes sont données par [3]:

$$\begin{Bmatrix} \sigma_z \\ \sigma_\theta \\ \sigma_r \\ \tau_{\theta r} \\ \tau_{zr} \\ \tau_{z\theta} \end{Bmatrix}^{(k)} = \begin{bmatrix} \overline{C}_{11} & \overline{C}_{12} & \overline{C}_{13} & 0 & 0 & \overline{C}_{16} \\ \overline{C}_{12} & \overline{C}_{22} & \overline{C}_{23} & 0 & 0 & \overline{C}_{26} \\ \overline{C}_{13} & \overline{C}_{23} & \overline{C}_{33} & 0 & 0 & \overline{C}_{36} \\ 0 & 0 & 0 & \overline{C}_{44} & \overline{C}_{45} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \overline{C}_{45} & \overline{C}_{55} & 0 \\ \overline{C}_{16} & \overline{C}_{26} & \overline{C}_{36} & 0 & 0 & \overline{C}_{66} \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} \varepsilon_z - \alpha_z \Delta T \\ \varepsilon_\theta - \alpha_\theta \Delta T \\ \varepsilon_r - \alpha_r \Delta T \\ \dots \\ \dots \\ \gamma_{z\theta} - \alpha_{z\theta} \Delta T \end{Bmatrix}^{(k)} \quad (2)$$

Les hypothèses et la substitution des équations d'équilibre et cinématique pour la partie cylindrique du réservoir, permettent d'aboutir à l'équation différentielle en déplacement suivante [4]:

$$\frac{d^2 U_r^{(k)}}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{dU_r^{(k)}}{dr} - \frac{N_1^{(k)}}{r^2} U_r^{(k)} = [N_2^{(k)} \varepsilon_0 + N_3^{(k)} \Delta T] \frac{1}{r} + N_4^{(k)} \gamma_0 \quad (3)$$

On pose $\beta^{(k)} = \sqrt{N_1^{(k)}}$; La solution de l'équation (3) prend la forme suivante selon la valeur de $\beta^{(k)}$:

Si: $\beta^{(k)} = 1$, alors:

$$U_r^{(k)} = D^{(k)} r + E^{(k)} / r + r \ln(r) \left(N_2^{(k)} \varepsilon_0 + N_3^{(k)} \Delta T \right) + \alpha_4^{(k)} \gamma_0 r^2 \quad (4)$$

Sinon, $\beta^{(k)}=2$

$$U_r^{(k)} = D^{(k)} r^{\beta^{(k)}} + E^{(k)} r^{-\beta^{(k)}} + (\alpha_2^{(k)} \varepsilon_0 + \alpha_3^{(k)} \Delta T) r + \frac{N_4^{(k)}}{2} \gamma_0 r^2 \ln(r) \quad (5)$$

Sinon, $\beta^{(k)} \neq 1$ (ou 2)

$$U_r^{(k)} = D^{(k)} r^{\beta^{(k)}} + E^{(k)} r^{-\beta^{(k)}} + (\alpha_2^{(k)} \varepsilon_0 + \alpha_3^{(k)} \Delta T) r + \alpha_4^{(k)} \gamma_0 r^2 \quad (6)$$

Avec :

$$\begin{aligned} N_1^{(k)} &= \beta^{(k)}; \quad N_2^{(k)} = \frac{\overline{C_{12}^{(k)}} - \overline{C_{13}^{(k)}}}{C_{33}^{(k)}}; \\ N_3^{(k)} &= \frac{K_3^{(k)} - K_2^{(k)}}{C_{33}^{(k)}}; \quad N_4^{(k)} = \frac{\overline{C_{26}^{(k)}} - 2\overline{C_{36}^{(k)}}}{C_{33}^{(k)}} \\ \alpha_2^{(k)} &= \frac{N_2^{(k)}}{1 - N_1^{(k)}}; \quad \alpha_3^{(k)} = \frac{N_3^{(k)}}{1 - N_1^{(k)}}; \quad \alpha_4^{(k)} = \frac{N_4^{(k)}}{1 - N_1^{(k)}} \end{aligned} \quad (7)$$

Où,

$$\begin{aligned} K_2^{(k)} &= \alpha_z^{(k)} \overline{C_{12}^{(k)}} + \alpha_\theta^{(k)} \overline{C_{22}^{(k)}} + \alpha_r^{(k)} \overline{C_{23}^{(k)}} + \alpha_{z\theta}^{(k)} \overline{C_{26}^{(k)}} \\ K_3^{(k)} &= \alpha_z^{(k)} \overline{C_{13}^{(k)}} + \alpha_\theta^{(k)} \overline{C_{23}^{(k)}} + \alpha_r^{(k)} \overline{C_{33}^{(k)}} + \alpha_{z\theta}^{(k)} \overline{C_{36}^{(k)}} \end{aligned} \quad (8)$$

$\varepsilon_0, \gamma_0, D^{(k)}$ et $E^{(k)}$ sont les constantes d'intégrations pour $k \in [1, n]$, où n est le nombre de couches de composite.

2.1 Conditions aux limites :

Les conditions aux limites au niveau de la partie composite sont d'une part des conditions imposées par la géométrie du milieu étudié dès lors que l'on suppose la continuité et la conservation du volume, et des conditions de chargement thermique d'autre part. Ces conditions permettront de déterminer les conditions d'intégrations $\varepsilon_0, \gamma_0, D^{(k)}$ et $E^{(k)}$.

2.2 Démarche d'analyse:

Le retrait durant le refroidissement des deux parties composite et liner métallique, induit un gap, c'est-à-dire un espace entre les deux. Dans ce travail, on s'intéresse à estimer ce gap et la pression interne nécessaire à le fermer pour la solution de stockage liner/composite. Pour cela, deux séries de séquences d'empilements sont utilisées $[+\phi/-\phi]_3$ et $[\pm\phi_2/90_2]$, où ϕ est l'angle d'orientation des fibres au niveau de chaque couche composite. Cette démarche, nous permettra, aussi de déduire l'état de contraintes résiduelles d'origine thermique. Une analyse comparative est établie entre les deux séquences qui figurent dans le tableau 1, où l'ordre d'empilement de chaque stratifié est prie de l'intérieur vers l'extérieur.

Séquences	Angles d'enroulements
Seq1	$[(+55-55)_2/90_2]$
Seq2	$[+55/-55]_3$

Tableau 1 : Séquences d'empilement de la solution hybride.

La solution de stockage est caractérisée par un rayon interne de 50 mm, une épaisseur de 0.5 mm de liner et 0.27 mm pour chaque couche de composite. Les propriétés des deux matériaux sont présentées dans le tableau 2. Le réservoir composite de type III est soumis à un gradient de température de refroidissement $\Delta T = -130$ °C.

Propriétés	Carbone/Epoxy (T300 /934)	Liner Aluminium
E_x (GPa)	141,6	69,5
E_y (GPa)	10,7	69,5
G_{xy} (GPa)	3,88	26,7
ν_{yx}	0,268	0,3
ν_{zy}	0,495	-
α_L (10^{-5} °C ⁻¹)	-0.065	2
α_T (10^{-5} °C ⁻¹)	2.7	-

Tableau 2: Caractéristiques élastiques

3. Résultats et analyses:

Les résultats ci-après présentent la variation des contraintes et du déplacement à travers l'épaisseur de la partie cylindrique du réservoir.

3.1 Gap et pression interne de fermeture :

La figure 2 ci-dessous présente la variation du gap en fonction de deux types de séries d'empilements $[+\phi/-\phi]_3$ et $[\pm\phi_2/90_2]$. Une variation identique caractérise l'allure des deux séries de séquences. D'après la figure, on remarque que le gap maximal est obtenu pour une orientation de 60°, pour les deux séries, où cette valeur est de l'ordre de 0.104 mm pour la série 1 et 0.094 mm pour la série2.

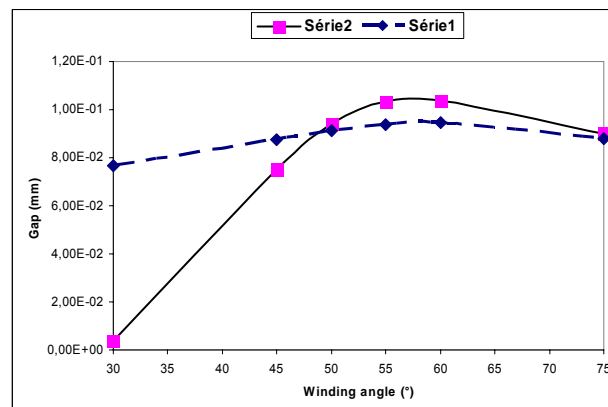


Figure 2: Variation du gap en fonction de l'angle d'enroulement.

Bien évidemment, la même tendance est observée pour la pression interne nécessaire à la fermeture du gap entre l'empilement composite et le liner métallique (figure 3). La pression interne maximale enregistrée est d'une valeur de l'ordre de 4.31 MPa, pour la série 1 et de 4.47 MPa pour la série 2.

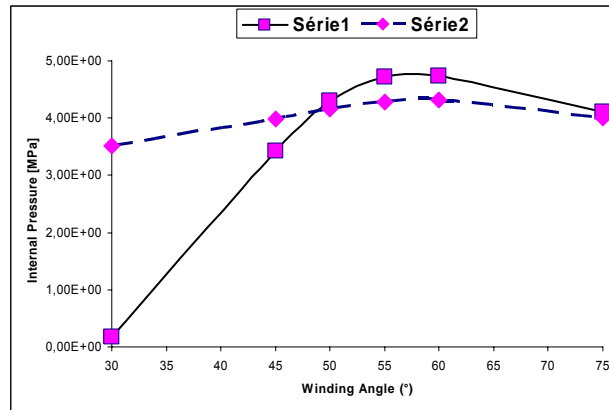


Figure 3: Variation de la pression interne nécessaire à la fermeture du gap en fonction de l'angle d'enroulement.

3.2 Contraintes thermiques :

La figure 4 présente la variation des contraintes axiales et circonférentielles à travers l'épaisseur pour les deux séquences d'empilement. D'après la figure, on remarque une discontinuité de variation en passant d'une couche composite à une autre. Le rapport de contrainte $\frac{\sigma_{\theta\theta}}{\sigma_{zz}}$ varie suivant chaque séquence d'empilement et ne dépasse pas la valeur 2. L'alternance des deux contraintes d'une couche à une autre est due principalement à l'effet du signe de l'angle d'orientation ϕ . Le caractère antisymétrique de la Seq 1, par rapport au plan moyen du composite, est répercuté sur l'allure des deux contraintes axiale et circonférentielle, par rapport rayon moyen $r=30.81$ mm. La même remarque caractérise la Seq 2, pour les quatre premières couches. La contrainte axiale est moins influencée par la présence de l'orientation 90° par rapport à la circonférentielle.

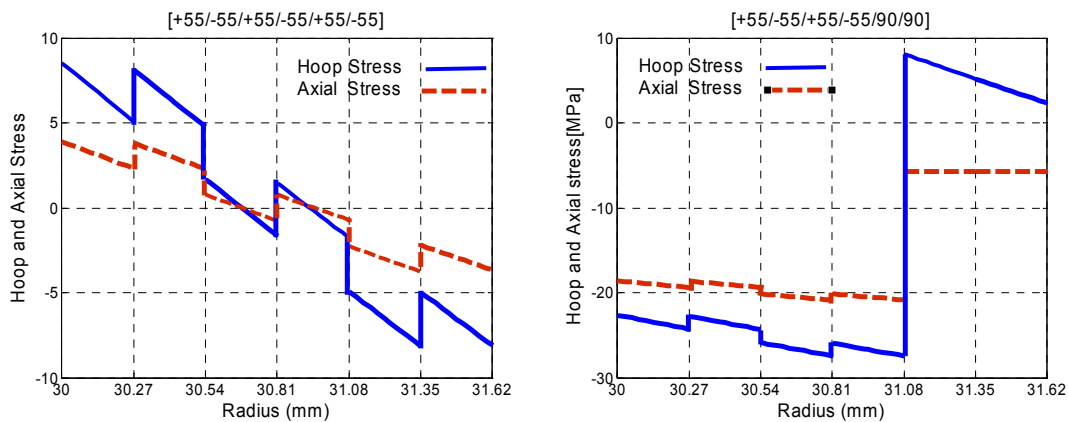


Figure 4 : Distribution des contraintes circonférentielles et axiales à travers la paroi du réservoir.

La figure 5 présente la variation de la contrainte de cisaillement à travers la direction radiale de la partie cylindrique du réservoir. Les deux séquences présentent une alternance de variation aux niveaux des interfaces. Cette alternance est due principalement à l'effet de l'orientation des fibres composites, c'est-à-dire aux signes de l'angle d'enroulement ϕ . La contrainte de cisaillement prend une valeur nulle pour les couches orientées à 90° .

La figure 6 présente la variation de la contrainte radiale à travers l'épaisseur de la paroi du réservoir. D'après la figure, on remarque que la Seq 2 est caractérisée par un état de compression, ce qui n'est pas le cas pour la Seq 1. Cette différence de comportement est due principalement à la présence de l'orientation 90° . La présence de 90° , permettra au réservoir de résister à la fatigue charge –décharge) et de réduire l'effet d'expansion.

La contrainte au niveau des parois interne et externe prend une valeur nulle, qui représente parfaitement les conditions aux limites de cette étude. La Seq 1 présente une allure symétrique par rapport au plan moyen du stratifié, ce qui n'est pas le cas pour la Seq 2.

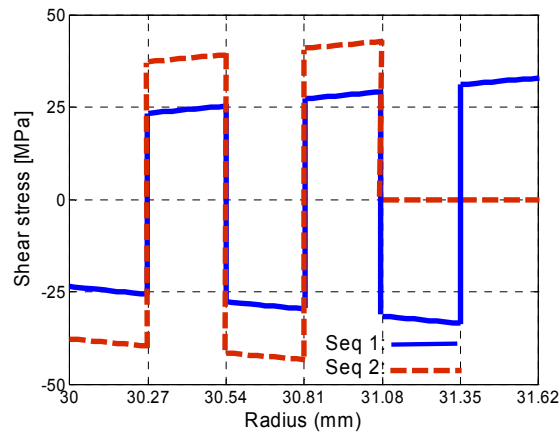


Figure 5 : Distribution de la contrainte de cisaillement à travers la paroi du réservoir.

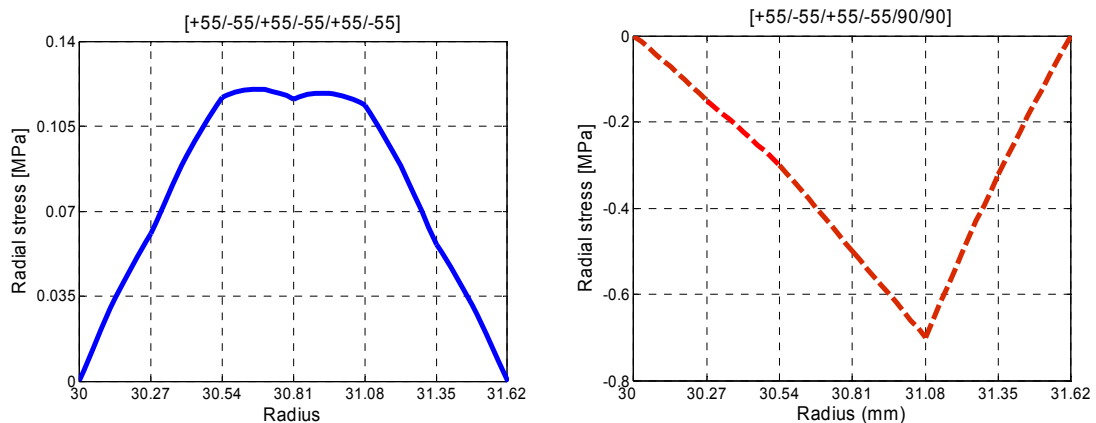


Figure 6 : Distribution de la contrainte radiale à travers la paroi du réservoir.

4. Conclusions et perspectives:

Cette démarche d'étude est consacrée à la détermination des effets de la polymérisation sur la solution de stockage d'hydrogène. Le premier effet résultant est le gap, qui a été déterminé pour deux types de séries d'empilement $[+\phi / -\phi]_3$ et $[\pm\phi_2 / 90_2]$, ainsi que la pression interne nécessaire à le fermer.

Le deuxième effet c'est la création des contraintes résiduelles d'origine thermique, due à la phase de refroidissement. Deux séquences d'empilements ont été utilisées, $[(+55-55)_2/90_2]$ et $[(+55-55)_3]$, pour analyser ces contraintes.

Il apparaît très utile de procéder à un fretage de l'enveloppe métallique, afin d'éliminer le gap et de prendre en compte l'état des contraintes d'origine thermique, lors du dimensionnement de la solution de stockage de l'hydrogène. Afin de mettre en œuvre, la solution qui fait l'objet de notre recherche, une prise en compte de ces résultantes est indispensable. Ce travail verra le jour dans nos prochaines publications.

5. Références Bibliographiques

- [1] Schlapbach L., Züttel A., Hydrogen-storage materials for mobile applications, *Journal Nature* 414, 353-358 (15 November 2001).
- [2] Chapelle D., Perreux D., Optimal design of a Type 3 hydrogen vessel: Part I—Analytic modelling of the cylindrical section. *International Journal of Hydrogen Energy*_Volume 31, Issue 5 , April 2006, Pages 627-638.
- [3] D. Chapelle, D. Perreux, Analytical modelling of the vessel reinforced by filament winding for hydrogen storage, *Journal of Science and engineering of composite materials* Volume 12, nos. 1-2, 2005.
- [4] Xia M., Takayanagi M., Kemmochi K., 2001, Analysis of multi-layered filament -wound composite pipes under internal pressure. *Composites structures*, vol. 53, pp. 483-491.
- [5] Berthelot, J.-M, *Composite Materials. Mechanical Behavior and Structural Analysis*, New York. Springer, p.676, 1999.
- [6] Hocine A, Chapelle D, Analysis of a Hybrid Composite Tank under Pressure. First International Conference on Multidisciplinary, Design Optimization and Applications, April 17-20, 2007 Besancon, France.