

Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

وزارة التعليم العالي والبحث العلمي

Badji Mokhtar Annaba University
Université Badji Mokhtar – Annaba
Faculté de Technologie



جامعة باجي مختار – عنابة

كلية التكنولوجيا

قسم الهندسة الميكانيكية

Département de Génie Mécanique

Présentée pour obtenir le diplôme de

Doctorat en science

Filière : Génie mécanique

Par :

MAMMERI Sabrina

Thème :

Étude des effets d'environnements agressifs sur la résistance des tubes en polyéthylène co-polymérisés

Thèse soutenue le 15 /10/2025 devant le jury composé de :

Qualité	Grade	Nom et Prénom	Etablissement
Président	Pr	LAGRED Ahmed	U- Annaba
Rapporteur	Pr	CHAOUI Kamel	U- Annaba
Examineur	Pr	YALLESE Mohamed Athmane	U- Guelma
Examineur	Pr	AZZOUZ Salaheddine	ENSTI Annaba
Examineur	Pr	BOUSSAID Ouzine	U- Annaba
Examineur	Pr	BOUZAOUIT Azzedine	U- Skikda

Dédicace

Dédicace

Je dédie ce travail à :

Mes parents (*Soraya et Farouk*)

Mon mari (*Kamel*)

Mes enfants (*Rayane et Simou*)

Mon frère *Minou*

Mes sœurs *Soumia et Monia*
Et leurs maris *Salim et Rachid*

Mes frères et leurs Femmes

Mon âme *Rihem*

Mes neveux

Ma belle-famille.

Sabrina

Remerciements

Cette thèse est le fruit d'un travail très long, d'un parcours académique très dur, sa réalisation n'aurait pas été possible sans l'assistance précieuse de tous ceux qui, même non cités nommément, m'ont apporté leur assistance et leur attachement.

Avant tout, je tiens à relater ma gratitude envers mon directeur de thèse le professeur *Kamel CHAOUI*, qui a joué un rôle prépondérant dans l'évaluation de ma thèse, par sa vision critique et constructif sur mon travail accompli, par ces efforts et son temps consacrés à l'épreuve de ma recherche. Je suis extrêmement redevable à mon encadreur et je suis très chanceuse de le voir menés mes thèses.

Je voudrais révéler ma sincère reconnaissance à mon collègue et mon frère le professeur *Khaidar BOUACHA*, et je lui adresse mes sincères remerciements, et je suis très touché par son soutien pendant l'usinage de mes éprouvettes, et ces conseils.

Je tiens à révéler ma sincère reconnaissance à *Pr. LAGRED Ahmed* d'avoir agréé de présider mon jury. Je tiens aussi à remercier les examinateurs, *Pr. YALLESE Mohamed Athmane*, *Pr. AZZOUZ Salaheddine*, *Pr. BOUSSAID Ouzine* et *Pr. BOUZAOUIT Azzedine*, qui ont consacré leurs temps précieux pour lire et critiquer mon travail.

Je désire remercier tout spécialement mes collègues et amis du laboratoire de Recherche en Mécanique des Matériaux et Maintenance Industrielle (*LR3MI*). Étudier avec vous a été une véritable satisfaction. *Dr. BERKAS Khaoula*, *Dr. GHABECHE Wafia*, *Dr. ALIMI Latifa*, *Mme BOUCHAKHCHOUKA Soumia*, *Mme AOUSSAT Adra*, *Dr MENAIL* et ces doctorants.

Je tiens à saluer la contribution au professeur. *GHEID Abdelhak*, Univ. Mouhamed Cherif Messaadia Souk-Ahras, pour la réalisation des essais FTIR. Je remercie *Pr BOULOUIDNIN Manel* ma collègue et mon amie, pour son soutien.

Je remercie ma petite famille, qui a été continuellement là pour moi, dans les circonstances d'incertitude et de succès. Vos m'avez donné la force de poursuivre, par votre amour sympathisant et votre appui constant. Je vous adore.

« دراسة تأثير لبينات الغير ملائمة على مقاومة أنابيب البولي إيثيلين المبلمر »

تُستخدم أنابيب البولي إيثيلين عالي الكثافة (HDPE) على نطاق واسع في شبكات نقل الغاز الطبيعي. لذلك، من الضروري فهم آثار البيئات الفيزيائية والكيميائية القاسية على سلامة هذه الهياكل المدفونة في التربة. يهدف هذا العمل إلى تقديم مساهمة تجريبية في دراسة تباين الخصائص والسلوك الميكانيكي لجدار الأنبوب من خلال إدخال عامل الشبخوخة في المذيبات العضوية حيث أخذ بعين الاعتبار الصدمة الحرارية التي تعرض لها الأنبوب أثناء التصنيع عند تبريده. والذي يتم أخذ منه عينات على شكل ألياف يتم الحصول عليها بطريقة صناعية لرحي المادة و التي تقوم على مبدأ إزالة تدريجية للمادة، لتوضع في أنابيب اختبار. لدراسة الخصائص الميكانيكية على طول جدار الأنبوب. لذلك، من الضروري البحث في الظروف المثلى لقطع العينات على شكل ألياف، لدراسة ظاهرة الشبخوخة وإجراء التجارب المختلفة. الجزء الأول مخصص لتجارب تصنيع عن طريق إزالة المادة لأنابيب البولي إيثيلين عالي الكثافة وتحسين ظروف القطع: (أ) الخراطة و (ب) التخديد. تمت دراسة إنتاج شريط مستمر ومنتظم كدالة لسرعة القطع ومعدل التغذية وعمق القطع. تم اعتماد جدولين لتجربة Tagushi (L18) و (L9) لعمليات الخراطة والتغيب على التوالي. بالنسبة لعوامل المخرجات والفعالية تم اختيار 4 خصائص أداء؛ وهي درجة حرارة القطع (°T) ومعايير خشونة السطح (Ra و Rt) وانحراف الشريط (L). لتحديد الحالات الحدية للعوامل، تم إجراء تحليل التباين (ANOVA)، بينما تم إجراء تحسين معاملات الأداء باستخدام طريقة سطح الاستجابة (RSM). ظروف القطع المثلى من حيث (Vc و f و ap) للألياف هي على التوالي 137 م/دقيقة و 0.4 مم/لفة و 4 مم. بما أن تقييم مقاومة البولي إيثيلين عالي الكثافة (HDPE) مع مرور الوقت يجب أن يتضمن آثار التفاعل مع المذيبات، فقد ركزت الدراسة على نهج ESCR المُجَرَّب. تم تحديد امتصاص الكتلة لبعض المذيبات الشائعة (التولوين: T، الميثانول: M، خليط التولوين-الميثانول: TM، البنزين: B، الإيثانول: E، وثنائي كلورو الميثان: DCM) بواسطة عينات البولي إيثيلين عالي الكثافة متوازية السطوح لفترات تصل إلى 112 يومًا. نسبة اكتساب الكتلة كدالة زمنية منخفضة للإيثانول (0.1%)، بينما تكون كبيرة لـ TM و B و DCM و (5.9% و T و 6.45% و 7.65% و 7.79% على التوالي). معاملات الانتشار لـ TM و DCM و T مرتفعة. ومع ذلك، يمكن للبوليمرات أيضًا أن تتعرض لتدهور في خصائصها عند تعرضها لبيئات قاسية. غالبًا ما يرتبط شبخوخة البولي إيثيلين بمشاكل مثل الانتفاخ والتشقق الدقيق والتلدين. وقد حلل الباحثون في دراسة تأثير المذيبات على البولي إيثيلين عالي الكثافة (HDPE) النتائج من منظور منحنيات σ - ϵ كدالة لموقع البولي إيثيلين في جدار الأنبوب (11.4 مم) وزمن التعرض (7، 28، 90، و210 أيام). وحُللت خصائص البولي إيثيلين عالي الكثافة بعد كل فترة شبخوخة باستخدام اختبار الشد ثم اختبار مطيافية تحويل فورييه بالأشعة تحت الحمراء (FTIR)، واختبار الوزن الحراري (DSC). وبالمقارنة مع بيئة الهواء المحيط، أظهر المذيب القوي (TM 50/50) انخفاضًا ملحوظًا في الخواص الميكانيكية وتغيرات في راتنج البوليمر، مما أضعف صلابة النظام وماتنته بمرور الوقت.

الكلمات المفتاحية: أنابيب البولي إيثيلين عالية الكثافة، التصنيع، RSM، الشبخوخة، المذيبات العضوية، خليط

التولوين والميثانول، الامتصاص، الخصائص الميكانيكية.

Abstract

« Study of the effects of aggressive environments on the resistance of co-polymerized polyethylene tubes »

High-density polyethylene (HDPE) pipes are widely used in natural gas transmission networks. Therefore, it is crucial to understand the effects of aggressive physicochemical environments on the integrity of these structures buried in the ground. The objective of this work is to make an experimental contribution to the study of the heterogeneity of properties and mechanical behavior through the pipe wall by introducing the aging factor in organic solvents. The thermo mechanical history of the extruded material must be preserved in the test specimens directly prepared from the pipe in the form of regular filaments. Obtaining the localized properties through the pipe wall is accomplished through a destructive method inspired by the literature based on progressive material removal. Therefore, it is essential to research the optimal conditions for cutting specimens in the form of filaments, to implement the aging phenomenon and to perform the different characterizations. The first part is dedicated to the machining experiments of HDPE pipe and the optimization of cutting conditions: (i) turning and (ii) grooving. The production of a continuous and regular filament was studied as a function of cutting speed, feed rate and depth of cut. Two Taguchi experiment schedules (L18) and (L9) were adopted for turning and grooving operations respectively. For the output parameters, 4 performance characteristics were chosen; i.e. cutting temperature (T°), surface roughness criteria (R_a and R_t) and filament deflection (L). To identify the limit states of the parameters, an analysis of variance (ANOVA) was performed, while the optimization of the performance parameters was carried out using the response surface method (RSM). The optimal cutting conditions in terms of (V_c , f and a_p), for a valid filament, are respectively 137 m/min, 0.4 mm/rev and 4 mm. Since the evaluation of HDPE resistance over time must involve the interaction effects with solvents, the study focused on the proven ESCR approach. The mass absorption of some common solvents (Toluene: T, Methanol: M, Toluene-Methanol Mixture: TM, Benzene: B, Ethanol: E and Dichloromethane: DCM) by parallelepiped-shaped HDPE specimens was established for periods up to 112 days. The % mass gains as a function of time are low for ethanol (0.1%), while they are significant for TM, B DCM and T (respectively: 5.9%; 6.45%; 7.65% and 7.79%). The diffusion coefficients of TM; DCM and T are high. However, polymers can also undergo degradation of their characteristics when exposed to aggressive environments. Polyethylene aging is often associated with problems such as swelling, microcracking and plasticization. The study of the effect of solvents on HDPE analyzed the results from the point of view of $\sigma-\epsilon$ curves as a function of the position in the tube wall (11.4mm) and the exposure time in days (7, 28, 90 and 210). The HDPE properties after each aging period were analyzed by tensile test, Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FTIR) test and thermo gravimetric test (DSC). Compared to the ambient air environment, the strong solvent (TM 50/50) environment showed significant reductions in mechanical properties and changes in the polymer resin weakening the rigidity and strength of the system over time.

Keywords: HDPE tube, machining, RSM optimization, aging, organic solvents, toluene-methanol mixture, absorption, mechanical properties.

Sommaire

Résumé

« Étude des effets d'environnements agressifs sur la résistance des tubes en polyéthylène co-polymérisés »

Les conduites en polyéthylène de haute densité (HDPE) sont largement employées dans les réseaux de transport du gaz naturel. Par conséquent, il est crucial de comprendre les effets de l'agressivité de milieux physico-chimiques sur l'intégrité de ces structures enfouies dans le sol. L'objectif de ce travail est de réaliser une contribution expérimentale à l'étude de l'hétérogénéité des propriétés et du comportement mécanique à travers la paroi du tube en introduisant le facteur vieillissement dans des solvants organiques. L'historique thermomécanique du matériau extrudé doit être préservé dans les spécimens d'essais directement préparés du tube sous forme de filaments réguliers. L'obtention des propriétés localisées à travers la paroi du tube est accomplie par le biais d'une méthode destructive inspirée de la littérature basée sur l'enlèvement progressif de matière. Par conséquent, il est essentiel de rechercher les conditions optimales de coupe d'éprouvettes sous forme de filaments, de mettre en œuvre le phénomène de vieillissement et d'effectuer les différentes caractérisations. La première partie est dédiée aux expérimentations d'usinage du tube HDPE et à l'optimisation des conditions de coupe : (i) chariotage et (ii) gorgeage. La production d'un filament continu et régulier a été étudiée en fonction de la vitesse de coupe, l'avance et la profondeur de passe. Deux planifications des expériences de Taguchi (L18) et (L9) ont été adoptées respectivement pour les opérations de chariotage et de gorgeage. Pour les paramètres de sortie, 4 caractéristiques de performance ont été choisies ; i.e. température de coupe (T°), critères de rugosité de surface (Ra et Rt) et déviation du filament (L). Pour identifier les états limites des paramètres, une analyse de la variance (ANOVA) a été effectuée, tandis que l'optimisation des paramètres de performance a été réalisée à l'aide de la méthode de la surface de réponse (RSM). Les conditions de coupe optimales en termes de (Vc , f et ap), pour un filament valide, sont respectivement 137 m/min, 0.4 mm/tr et 4 mm. Comme l'évaluation de la résistance du HDPE dans le temps doit faire intervenir les effets d'interaction avec les solvants, l'étude s'est intéressée à l'approche éprouvée de l'ESCR. L'absorption massique de certains solvants courants (Toluène : T, Méthanol : M, Mélange Toluène-Méthanol : TM, Benzène : B, Ethanol : E et Dichlorométhane : DCM) par les éprouvettes HDPE de forme parallélépipédiques a été établie pendant des durées allant jusqu'à 112 jours. Les % gains en masse en fonction du temps sont faibles pour l'éthanol (0,1%), alors qu'ils sont conséquents pour TM, B DCM et T (respectivement : 5,9% ; 6,45% ; 7,65% et 7.79%). Les coefficients de diffusion de TM ; DCM et de T élevés. Toutefois, les polymères peuvent aussi subir une dégradation de leurs caractéristiques lorsqu'ils sont exposés à des milieux agressifs. Le vieillissement du polyéthylène est souvent associé à des problèmes tels que le gonflement, la microfissuration et la plastification. L'étude de l'effet des solvants sur le HDPE a analysé les résultats du point de vue des courbes $\sigma \square \epsilon$ en fonction de la position dans la paroi du tube (11,4mm) et du temps d'exposition en jours (7, 28, 90 et 210). Les propriétés HDPE après chaque durée de vieillissement ont été analysées par l'essai de traction, l'essai de spectroscopie infrarouge à transformé de Fourier (FTIR) et l'essai thermogravimétrique (DSC). Par rapport au milieu air ambiant, celui du solvant fort (TM 50/50) a montré des réductions importantes des propriétés mécaniques et des changements dans la résine polymère affaiblissant la rigidité et la résistance du système dans les temps.

Mots-clés : Tube HDPE, usinage, optimisation RSM, vieillissement, solvants organiques, mélange toluène-méthanol, absorption, propriétés mécaniques.

Sommaire

Sommaire

Dédicace.....	ii
Remerciements.....	iii
ملخص.....	iv
Abstract.....	v
Résumé.....	vi
Introduction générale.....	2

Chapitre I: Phénomène de vieillissement du polyéthylène dans les solvants

I.1. Introduction.....	6
I.2. Polyéthylène.....	6
I.2.1. Applications et production du Polyéthylène.....	6
I.2.2. Procédé de mise en forme de tube en polyéthylène.....	7
I.3. Structure.....	8
I.4. Morphologie.....	9
I.5. Propriétés mécaniques.....	10
I.5.1. Comportement mécanique du polyéthylène.....	10
I.6. Vieillissement.....	12
I.6.1. Fissuration sous contrainte environnementale (ESC).....	12
I.6.2. Vieillissement du PE.....	14
I.6.3. Facteurs d'influence sur les tubes enfouis :.....	16
I.6.4. Conséquences des environnements de service :.....	18
I.7. Effets des solvants sur le polyéthylène.....	19
I.8. Gonflement du polyéthylène dans les solvants.....	21
I.9. Conclusion.....	24
Références bibliographiques.....	25

Chapitre II: Procédures expérimentales

II.1. Introduction.....	31
II.2. Matériau.....	32
II.3. Procédure expérimentale.....	32
II.3.1. Usinage des éprouvettes.....	32
II.3.1.1. Usinage des éprouvettes d'essai de traction par chariotage.....	32
II.3.1.2. Usinage des éprouvettes d'essai de traction par gorgeage.....	35
II.3.1.3. Usinage des parallélépipèdes.....	38
II.3.2. Découpage des éprouvettes filaments.....	39
II.3.3. Identification des éprouvettes filaments.....	40
II.3.4. Environnement de vieillissement.....	42

Sommaire

II.3.5. Protocole d'immersion des spécimens dans les solvants :	42
II.3.5.1. Protocole d'immersion des parallélépipèdes	42
II.3.5.2. Protocole d'immersion des filaments	43
II.3.6. Caractérisation mécanique (Essais de traction)	44
II.3.7. Caractérisation structurale du HDPE (<i>FTIR</i> + <i>DSC</i>).....	45
II.3.7.1. Caractérisation structurale du HDPE par <i>FTIR</i>	45
II.3.7.2. Caractérisation structurale du HDPE par <i>DSC</i>	47
II.4. Conclusion	49
Références bibliographiques	49

Chapitre III: Optimisation de l'usinabilité du HDPE-100 dans les cas de chariotage et du gorgeage

III.1. Introduction :	55
III.2. Usinage des polymères semi-cristallin	55
III.2.1. Procédé de tournage	55
III.2.2. Conditions de coupe des polymères	56
III.2.2.1. Étude de formation des copeaux.....	57
III.2.3. Travaux antérieurs sur l'usinage des polymères semi-cristallins	58
III.3. Technique de modélisation utilisée	62
III.4. Résultats et discussions	64
III.4.1. Opération de chariotage.....	64
III.4.1.1. Planification des expériences (Taguchi L18)	65
III.4.1.2. Analyse de variance (<i>ANOVA</i>)	66
III.4.1.3. Effets des paramètres de coupe (V_c , f , ap , γ et κr) sur T , Ra , Rt et L	68
III.4.1.4. Modèles <i>RSM</i>	70
III.4.1.5. Diagrammes de surface de réponse 3D	71
III.4.1.6. Optimisation par l'analyse de la fonction de désirabilité	73
III.4.2. Opération de gorgeage.....	75
III.4.2.1. Planification des expériences par le plan orthogonal Tagushi L9	75
III.4.2.2. Filaments	76
III.4.2.3. Approche de variance (<i>ANOVA</i>)	77
III.4.2.4. Modèles <i>RSM</i> (Équations de régression).....	79
III.4.2.5. Diagrammes de surface de réponse 3D	79
III.4.2.6. Conditions d'usinage optimisées.....	80
III.5. Conclusion.....	81
Références bibliographiques	81

Chapitre IV: Etude du phénomène d'absorption de quelques solvants lors du vieillissement des tubes HDPE-100

IV.1. Introduction:	88
IV.2. Absorption-désorption des liquides par le HDPE	88

Sommaire

IV.3. Résultats	91
IV.3.1. Comparaison de l'absorption de T, M et du mélange TM 50/50.	91
IV.3.2. Comparaison de l'absorption des six solvants	92
IV.3.4. Evolution du temps de saturation	92
IV.5. Discussion et analyses des résultats	93
IV.5.1. Obtention du coefficient de diffusion « D ».....	93
IV.5.2. Discussion et interprétation des résultats	96
IV.6. Conclusion :	98
Références bibliographiques	98

Chapitre V: Évolution du comportement mécanique à travers la paroi d'un tube HDPE extrudé

V.1. Introduction	102
V.2. Revue sur l'hétérogénéité induite dans les tubes plastiques	103
V.3. Approche expérimentale.....	110
V.4. Résultats	112
V.4.1. Observations au cours de la traction.....	112
V.4.2. Comportement mécanique.....	113
V.4.2.1. Vue intégrale du comportement de la paroi tubulaire	114
V.4.2.2. Vue détaillée du comportement mécanique.....	115
V.5. Discussion.....	117
V.5.1. Variabilité des propriétés mécaniques	117
V.5.1.1. Courbes contraintes-déformations.....	117
V.5.1.2. Propriétés mécaniques	119
V.5.1.3. Mécanismes de fissuration lors de la traction monotone.....	124
V.5.2. Variation des propriétés structurales	125
V.5.2.1. Résultats et interprétation de l'analyse par spectroscopie infrarouge.....	125
V.5.2.2. Résultats et interprétation de l'analyse enthalpique différentielle.....	126
V.6. Conclusion.....	129
Références bibliographiques :	130

Chapitre VI: Vieillissement du HDPE-100 dans une solution équimolaire de toluène-méthanol

VI.1. Introduction	135
VI.2. Résultats	135
VI.2.1. Comportement (σ - ϵ) du HDPE vieillis dans TM (50/50)	135
VI.2.1.1. Après 7 jours de vieillissement	136
VI.2.1.2. Après 28 jours de vieillissement	137
VI.2.1.3. Après 90 jours de vieillissement	138
VI.2.1.4. Après 210 jours de vieillissement	139

Sommaire

VI.2.2. Variation des propriétés mécaniques du HDPE-100 Vieilli (TM (50/50))	140
VI.2.3. Analyse <i>FTIR</i>	143
VI.2.3.1. Spectres HDPE vieilli (TM 50/50) durant (7j, 28j, 90j et 210j) en fonction des trois positions (CE, CM et CI)	144
VI.2.3.2. Spectres HDPE non- vieilli et vieilli (TM 50/50) durant (7j, 28j, 90j et 210j) superposés des trois couches (CE, CM et CI)	146
VI.2.3.3. Calcul de l'Indice de Carbonyle (<i>IC</i>) du HDPE.....	147
VI.2.4. Analyse par <i>DSC</i> (Cas TM 50/50)	148
VI.2.4.1. Température de Fusion T_f	149
VI.2.4.2. Cristallinité X_C	150
VI.2.4.3. Taille des lamelles cristallines L_c	150
VI.3. Discussion des résultats.....	151
VI.3.1. Comportement mécanique du HDPE-100 vieilli dans le TM 50/50	151
VI.3.2. caractéristiques physico-chimiques.....	153
VI.3.2.1. Par Spectroscopie Infrarouge à Transformée de Fourier (<i>FTIR</i>).....	153
VI.3.2.2. Par Analyse Enthalpique Différentielle (<i>DSC</i>)	155
VI.4. Conclusions:	156
Références bibliographiques	157
Conclusions générale.....	161
Perspectives	166

Liste des figures

Liste des figures

Chapitre I

Figure I. 1. Ligne d'extrusion de tubes HDPE (SARL TUBOGAZ Annaba).	7
Figure I. 2. Molécule de polyéthylène. [11].	8
Figure I. 3. Morphologie semi cristalline du polyéthylène [10, 15].	9
Figure I. 4. Schéma simplifié d'un sphérolite et des lamelles. [15,16]	9
Figure I. 5. Comportement mécanique du polyéthylène [22].	10
Figure I. 6. Schéma des modes de rupture des pipe en plastique sous pression et de la courbe contrainte-durée de vie [33].	14
Figure I. 7. HDPE vieilli par UV solaire (30j) a) Spectre Infra Rouge b) DSC [17].	15
Figure I. 8. Comportement mécanique du HDPE a) non-vieilli b) vieilli dans TM et c) vieilli dans DCM [43].	17
Figure I. 9. Transport du gaz naturel via des tuyaux HDPE.	18
Figure I. 10. Courbe de saturation du PLLA dans divers solvants organiques [51].	22
Figure I. 11. Courbes des différents phénomènes de sorption ne suivant pas la loi de distribution de Fick (A, B, C, D, S), ainsi que la courbe particulière de cette loi (LF) [57]. ...	22

Chapitre II

Figure II. 1. Pipe HDPE sur tour universel.	32
Figure II. 2 a) Configuration expérimentale du charitage. b) téléphone intelligent (<i>smartphone CAT</i>) c) Outil de coupe.	33
Figure II. 3. Description du paramètre (L) à partir de photos à faible contraste de filaments HDPE usinés ; (a) grande et (b) courbure très faible.	34
Figure II. 4. Collier de serrage de PE fabriqué.	35
Figure II. 5. Configuration d'usinage (gorgeage)	37
Figure II. 6. Usinage des parallélépipèdes. a) Pipe HDPE sur tour universel b) Anneaux c) Découpe des éprouvettes d) Eprouvettes. e) Outil de rainurage	39
Figure II. 7. Un filament complet issu d'un rainurage représentatif de toute l'épaisseur du tube (~12 m de long). a) enroulé. b) brouillées.	40
Figure II. 8. Étapes de découpage des éprouvettes de l'essai de traction: (a) Les emplacements des cinq couches sur la paroi du tube. (b) une longueur équivalente à un diamètre (Couche). (c) un ensemble d'échantillons découpés dans une seule couche.	41
Figure II. 9. Parallélépipèdes immergés dans les solvants.	43
Figure II. 10. Protocol d'immersion des éprouvettes vieilles. a) Filament b) Une couche coupé+ tube ou CBU c) Tri et numérotations des spécimens d) Pesage des éprouvettes immergé.	44
Figure II. 11. Machine d'essai de traction Zwick et système d'acquisition de données TestXpert.	45
Figure II. 12. Spectromètre infrarouge a transformé de Fourier (IRAFFINITY-15 SHIMADZU).	46

Liste des figures

Figure II. 13. Technique DSC	48
------------------------------------	----

Chapitre III

Figure III. 1. Angles de coupe d'un outil simple [26].	57
Figure III. 2. Impact de l'angle de direction de l'outil de coupe kr sur l'épaisseur (h) et la largeur (w) du copeau [26].	58
Figure III. 3. Diverses géométries d'éprouvettes d'essai usinées à partir de tuyaux en HDPE. 62	
Figure III. 4. Courbes des effets principaux pour la moyenne : (a) T , (b) Ra , (c) Rt et (d) L . . 69	
Figure III. 5. Surface de réponse estimée pour la T° de coupe en fonction de (a) Vc, f et (b) $\kappa r, Vc$	72
Figure III. 6. Récapitulation de l'optimisation des réponses avec contraintes	75
Figure III. 7. Un filament complet issu d'un rainurage représentatif de toute l'épaisseur du tube (~12 m de long).	77
Figure III. 8. Surface de réponse estimée des caractéristiques de performance par rapport aux paramètres du processus	80
Figure III. 9. Optimisation de la réponse pour T, Ra et Rt	81

Chapitre IV

Figure IV. 1. Gain de masse en fonction de la racine du temps d'immersion pour les trois environnements (T, M et TM).	91
Figure IV. 2. Gain de masse en fonction de la racine du temps d'immersion pour les six environnements (E, M, TM, T, B et DCM).	92
Figure IV. 3. Courbes expérimentales de sorption en fonction de la racine carrée du temps rapporté à l'épaisseur de l'échantillon du: a) Ethanol b) Méthanol c) TM d) Toluène e) Benzène et f) DCM.	95

Chapitre V

Figure V.1. Variabilité des propriétés mécaniques à travers l'épaisseur du tube [10].	105
Figure V.2. Exemple de l'évolution des contraintes résiduelles (après relaxation) à travers la paroi d'un tube HDPE-100 [13].	106
Figure V. 3. Prélèvement des éprouvettes d'un tube HDPE dans les deux sens.	107
Figure V. 4. Evolution de E en fonction de t/t_0 , directions L (lot 1) et \square (lot 2) [16].	108
Figure V. 5. Variation des courbes σ - ϵ des éprouvettes des couches externes et internes [18].	109
Figure V. 6. Morphologie des deux surfaces interne et externe d'un tube en HDPE.	109
Figure V. 7. Opérations de (a) Chariotage (b) Alésage ; d'un pipe HDPE soudé bout-à-bout pour saisie d'éprouvettes des couches : (1) interne, (2) moyenne et (3) externe.	110

Liste des figures

<i>Figure V. 8.</i> Résumé des différentes opérations conçues préparer les éprouvettes filaments. (Tube, Anneaux, Filaments complets, Couches filaments, spécimens filaments, identification avec perforation sur l'extrémité et les revêtements en papier émeri pour l'adhésion.	111
<i>Figure V. 9.</i> Série de photographies du filament soumis à la traction monotone.....	113
<i>Figure V. 10.</i> Courbe σ - ε type d'un filament comme reçu (AR, Eprouvette 46 ; Couche N°12).....	114
<i>Figure V. 11.</i> Evolution des courbes σ - ε à travers l'épaisseur du tube (L~12,50m ; 79 essais).....	115
<i>Figure V. 12.</i> Représentation de 5 lots des courbes à travers la paroi selon la position : CE (3-4), (b) CE-I (7-8) (c) CM (10-11), (d) CI-I (14-15) et (e) CI (18-20).	116
<i>Figure V. 13.</i> Evolution du module E en fonction de l'épaisseur adimensionnelle.	120
<i>Figure V. 14.</i> Evolution de la limite élastique σ_y en fonction de l'épaisseur adimensionnelle.	120
<i>Figure V. 15.</i> Evolution de ε_y en fonction de l'épaisseur adimensionnelle.	121
<i>Figure V. 16.</i> Variation de l'étrirage à froid nominal σ_{CD} en fonction de t/t_0	121
<i>Figure V. 17.</i> Variation de l'étendue de l'étrirage à froid nominal $\Delta\varepsilon_{CD}$ en t/t_0	122
<i>Figure V. 18.</i> Evolution de la contrainte nominale à la rupture σ_f en fonction t/t_0	123
<i>Figure V. 19.</i> Evolution de la déformation à la rupture ε_f en fonction de t/t_0	123
<i>Figure V. 20.</i> Variation de σ_y en fonction de ε_y pour l'ensemble des courbes.....	124
<i>Figure V. 21.</i> Variation de σ_f en fonction de ε_f pour l'ensemble des courbes.	124
<i>Figure V. 22.</i> Spectres As-Recieved des 3 couches : intérieure, intermédiaire et extérieure.	126
<i>Figure V. 23.</i> Courbe DSC type d'un thermo-gramme du HDPE pour la couche externe AR.	127

Chapitre VI

<i>Figure VI. 1.</i> Courbes σ - ε du HDPE-100. Immergé 7 jours dans le TM (50/50): (a) Couches extérieures, (b) Couches intermédiaires, et (c) couches intérieures.	136
<i>Figure VI. 2.</i> Courbes contraintes déformation du HDPE-100. Immergé 28 Jours dans le TM (50/50). (a) Couches extérieures, (b) Couches intermédiaires, et (c) couches intérieure.....	137
<i>Figure VI. 3.</i> Courbes contraintes déformation du HDPE-100. Immergé 90 Jours dans le TM (50/50). (a) Couches extérieures, (b) Couches intermédiaires, et (c) couches intérieures.	138
<i>Figure VI. 4.</i> Courbes contraintes déformation HDPE-100. Immergé 210 jours dans le TM (50/50) (a) Couches extérieures, (b) Couches intermédiaires, et (c) couches intérieures.....	139
<i>Figure VI. 5.</i> Module d'élasticité E (MPa) superposées du HDPE-100 immergé dans le TM (50/50), pendant les durées : 7j, 28j, 90j et 210j en fonction de t/t_0	140
<i>Figure VI. 6.</i> Contraintes maximales σ_y à 7j, 28j, 90j et 210j superposées du HDPE-100 dans le TM (50/50) en fonction de t/t_0	140
<i>Figure VI. 7.</i> Contrainte σ_{CD} superposées du HDPE-100 immergé dans le TM (50/50), pendant les durées : 7j, 28j, 90j et 210j en fonction de t/t_0	141
<i>Figure VI. 8.</i> Contrainte à la rupture σ_f superposées du HDPE-100 immergé dans le TM (50/50), pendant les durées : 7j, 28j, 90j et 210j en fonction de t/t_0	141
<i>Figure VI. 9.</i> Déformation au seuil d'écoulement ε_y (%) superposées du HDPE-100 immergé dans le TM (50/50), pendant les durées : 7j. 28j. 90j. et 210j. en fonction de t/t_0	142
<i>Figure VI. 10.</i> Déformation $\Delta\varepsilon_{cd}$ (%) superposées du HDPE-100 immergé dans le TM (50/50), pendant les durées : 7j. 28j. 90j. et 210j. en fonction de t/t_0	142
<i>Figure VI. 11.</i> Déformation à la rupture ε_f (%) superposées du HDPE-100 immergé dans le TM (50/50), pendant les durées : 7j. 28j. 90j. et 210j en fonction de t/t_0	143

Liste des figures

<i>Figure VI. 12.</i> Spectres du polyéthylène vieilli 7j dans le TM (50/50) des couches : intérieure, intermédiaire et extérieur.....	144
<i>Figure VI. 13.</i> Spectres du polyéthylène vieilli 28j dans le TM (50/50) des couches : intérieure, intermédiaire et extérieur.....	144
<i>Figure VI. 14.</i> Spectres du polyéthylène vieilli 90j dans le TM (50/50) des couches : intérieure, intermédiaire et extérieur.....	145
<i>Figure VI. 15.</i> Spectres du polyéthylène vieilli 210j dans le TM (50/50) des couches : intérieure, intermédiaire et extérieur.....	145
<i>Figure VI. 16.</i> Spectres FTIR superposés du HDPE-100 Vieilli dans le TM (50/50) des quatre durées, couches : (a) extérieures (b) intermédiaires (c) intérieures.	147
<i>Figure VI. 17.</i> Évolution de l'indice de carbonyle avec le temps de vieillissement dans le TM (50/50) en fonction de l'épaisseur adimensionnelle.	148
<i>Figure VI. 18.</i> Courbe DSC d'un thermo-gramme du HDPE. De la couche : (a) CE. Immergé dans le TM (50/50) 210j.....	149
<i>Figure VI. 19.</i> Évolution de la température de fusion T_f à travers la paroi du tube HDPE (AR et vieilli dans TM 50/50).....	149
<i>Figure VI. 20.</i> Évolution de la cristallinité à travers la paroi du tube HDPE (AR et vieilli dans TM 50/50).	150
<i>Figure VI. 21.</i> Évolution de la taille des lamelles cristallines L_c à travers la paroi du tube HDPE (AR et vieilli dans TM 50/50).....	150

Liste des tableaux

Chapitre I

Tableau I. 1. Quelques Propriétés du Polyéthylène (selon le fabricant).....	11
Tableau I. 2. Principales propriétés des différents types de PE selon ASTM D-1248.....	12
Tableau I. 3. Processus de dégradation [42].....	16

Chapitre II

Tableau II. 1. Paramètres de coupe et leurs niveaux.....	34
Tableau II. 2. Niveaux choisis pour les paramètres de coupe.....	38
Tableau II. 3. Caractéristiques des Solvants utilisés.....	42

Chapitre III

Tableau III. 1. Résultats expérimentaux de (L18).....	65
Tableaux III. 2. a) ANOVA de T. b) ANOVA de Ra. c) ANOVA de Rt. d) ANOVA de Ln(L).	66
Tableau III. 3. Solution optimisée sans contraintes pour T, Ra, Rt et Ln(L).....	74
Tableau III. 4. Solution d'optimisation avec contraintes.....	74
Tableau III. 5 Plan expérimental L9 Taguchi pour les opérations de rainurage.....	76
Tableaux III. 6. a) ANOVA de Ra, b) ANOVA de Rt, c) ANOVA de T.....	78
Tableau III. 7. Solution d'optimisation sans contraintes pour T, Ra et Rt.....	80

Chapitre IV

Tableau IV. 1. Compatibilité des polyéthylènes avec les solvants [12-14].....	90
Tableau IV. 2. Evolution de la masse du HDPE dans les solvants organiques.....	92
Tableau IV. 3. Paramètres de corrélation pour le modèle exponentiel choisi.....	95
Tableau IV. 4. Diffusivité (D).....	95

Chapitre V

Tableau V. 1. Valeurs des JIC et We des cinq couches du tube.....	106
Tableau V. 2. Identification des couches du filament AR (testé).....	116
Tableau V. 3. Résultats DSC (Tc, Tf et ΔH_f) et de morphologie (Xc et Lc) à travers la paroi.....	128

Nomenclature

- AD** : Anderson-Darling normality test.
ANOVA : Analyse de variance.
AR : As- Received.
ap : Profondeur de passe (mm).
B : Benzène.
C : Couche
CM : ajust Moyenne des carrés ajustés.
Cr : Capacité calorifique de l'échantillon.
Cs : Capacité calorifique référence.
Cont.% : Pourcentage de contribution %.
DCM : Dichlorométhane
DL : Degrée de liberté
DF : Fonction de désirabilité
DRX : Diffraction des rayons X
DSC : Calorimétrie différentielle à balayage (Differential Scanning Calorimetry).
dh/dt : Puissance thermique absorbée ou relâchée par l'échantillon
E : Ethanol.
E : Module de Young (N/mm²)
ESC : Fissuration sous contrainte environnementale : Environmental Stress Cracking.
f : Vitesse d'avance (mm/tr)
FTIR : Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (Fourier Transform Infra Red spectroscopy).
F-value : Test de Fisher
PE : Polyéthylène (C₂H₄)_n
HDPE : Polyéthylène haute densité.
IC : Indice de Carbonyle
j : Jour
M : Masse final
M : Méthanol.
MDPE : Polyéthylène moyenne densité
MEB : Microscopie à balayage électronique
min. : Minute
M0 : Masse initial
MCMM : Solvent
L : Filament height bend (or curvature) (mm).
Lc : Taille de lamelle, taille de cristallite (nm).
PEBD : Polyéthylène basse densité
LF : loi de Ficke
PLLA : Polymère semi-cristallin
POM-C : Polyoxyméthylène
P-value : Valeur de probabilité
R² : Coefficient de détermination %
R² (adj) : Coefficient de détermination ajusté %
Ra : Rugosité moyenne arithmétique (µm)
Rt : Rugosité totale (µm)
RSM : Méthodologie des surfaces de réponse
S : Solvant.

SDR : Rapport Dimensionnel Standard

Seq SS : Somme des carrés.

t : Epaisseur (mm)

t₀ : Épaisseur initiale (mm);

t : Temps (Heure or jours);

T : Toluène.

T : Température de coupe (°C)

T_c : Température de cristallisation (°C)

T_f : Température de fusion (°C)

T_g : Transition vitreuse

TM (50/50) : Toluène-Méthanol (50/50).

V_c : Vitesse de coupe (m/min).

X_c : Taux de cristallinité (%).

PE : Polyéthylène (C₂H₄).

Greek Letters:

α : Angle de dépouille (°)

Γ : Angle de coupe (°)

ΔH_f : Enthalpie de fusion spécifique (J/g)

σ_y : Contrainte au seuil d'écoulement (N/mm²)

σ_f : Contrainte à la rupture (N/mm²)

σ_{cd} : Contrainte de l'écoulement à froid. (N/mm²)

ξ : Déformation (%)

Δ ξ_{cd} : Déformation (%)

ξ_y : Déformation au seuil d'écoulement (%)

ξ_f : Déformation à la rupture (%)

INTRODUCTION GENERALE

Introduction générale

Les tubes en polyéthylène haute densité (HDPE) sont très convoités pour le transport de différents fluides sous des pressions de service pouvant dépasser les 20 bars et des températures dans les limites des 40°C. Toutefois, ces limites peuvent être largement dépassées lorsque des conditions d'utilisations adaptées et un dimensionnement conséquent en termes de SDR (Standard Dimension Ratio : rapport du diamètre extérieur à l'épaisseur du tube) et de PN (Pression nominale du tube à 20°C). Cette convoitise est généralement dictée par les multiples avantages procurés par les tubes en plastiques en comparaison aux tubes métalliques. La durée de vie des tuyaux en HDPE est un sujet qui a fait l'objet de nombreuses études. Précisément, le thème de la durabilité des tubes en plastiques a été traité sous plusieurs angles tels que la production industrielle, les méthodes d'installation et de soudage, de maintenance, d'exploitation, de calcul de durée de vie et des modes de dégradation physico-chimiques. En général, il est admis que la durée de vie est fortement compétitive car elle se mesure en centaines d'années selon les normes de l'ISO et pour des résines copolymérisées. Cependant, certains facteurs liés à l'environnement et aux conditions d'utilisation, représentés par ESCR (*Environmental Stress Cracking Resistance* ou la résistance à la croissance lente des fissures sous contrainte environnementale), peuvent engendrer des dommages causant des impacts négatifs sur la longévité des tubes.

Le polymère concerné par cette thèse est un HDPE copolymérisé extrudé sous la forme d'un tube destiné pour véhiculer sous pression du gaz naturel dans les agglomérations. Lors de sa polymérisation, le polyéthylène se cristallise à partir de l'état fondu (liquide) en produisant des phases cristallines et amorphes sous un arrangement particulier aux polymères semi-cristallins. Cette structure présente des propriétés intéressantes qui permettent d'accommoder de manière convenable les contraintes environnementales au fil des années d'exploitation. Divers facteurs participent dans le déclenchement et la progression d'une fissure dans les tubes en plastiques, y compris les substances chimiques, se trouvant aux surfaces de contact, et qui dépendent de la concentration, de la pression et de la température de service (contraintes d'exploitation), de la durée d'exposition et de l'état de surface du tube.

Cette thèse est organisée autour de 3 aspects qui se suivent et se complètent pour essayer d'apporter des éclaircissements aux points suivants : (i) établir les conditions optimales de température et de rugosité pour usiner des éprouvettes standards ou non-standards, (ii) approcher de manière pratique la question de l'hétérogénéité des propriétés à travers la paroi du tube HDPE et enfin (iii) étendre la question de l'hétérogénéité des

propriétés au phénomène de vieillissement dans les solvants. Elle s'intéresse aux effets d'environnements agressifs représentés par des solvants sur le comportement mécanique de la paroi d'un tube HDPE-100 copolymérisé (éthylène-butène). Elle est présentée en six chapitres.

Dans le **premier chapitre**, nous abordons l'état des connaissances relatives au matériau HDPE extrudé sous forme de tubes avec les possibilités du vieillissement sous ses différentes formes. Le document commence par un aperçu sur la structure et la morphologie du HDPE en tant que candidat idéal pour les tubes. Ensuite, les différentes propriétés mécaniques telles que établies dans le comportement contrainte-déformation sont discutées. Dans la revue du vieillissement, le phénomène de l'ESC est expliqué avec ses principales formes ; c'est-à-dire chimique, physique et mécanique ainsi que les facteurs d'influence. Enfin, les effets des solvants associés au vieillissement et surtout au gonflement du polyéthylène sont présentés.

Le **second chapitre** a détaillé les procédures expérimentales utilisées dans cette étude. Il s'agit du matériau de l'étude, des moyens expérimentaux, de procédés d'enlèvement de matière, différents protocoles de découpes, de fabrication des éprouvettes destinées aux essais mécaniques ou de caractérisation de morphologie, de sorption et d'immersion des éprouvettes dans les environnements de vieillissement.

Les efforts déployés dans le **troisième chapitre** ont pour but d'améliorer les recherches antérieures centrées sur l'optimisation des conditions d'usinage des tubes en HDPE pour la fabrication de spécimens à travers la paroi pour essais mécaniques. L'objectif étant de fabriquer de manière optimisée de nouveaux spécimens basés sur des filaments de polyéthylène. C'est la troisième fois que l'usinabilité des polyéthylènes de différentes résines est traitée après les travaux de *M. Kaddeche* (2014) et de *N. Hamlaoui* (2019). Cette fois-ci, nous avons consacré une partie importante au procédé de gorgeage (grooving), travaux réalisés dans cette thèse de *S. Mammeri* (2024 et 2025). Toutefois, dans cette recherche, le nombre de paramètres d'entrée et de sortie est élargi pour englober respectivement la géométrie de l'outil de coupe et la forme finale du filament travaillé. Cette recherche vise à étudier les options de préparation d'éprouvettes pour des tests mécaniques qui permettent de suivre les caractéristiques inhérentes et reconnues pour être des conséquences du procédé d'extrusion dans la structure des tubes (induites). L'obtention d'un filament d'une forme régulière a été étudiée expérimentalement en faisant varier la vitesse de coupe (V_c), l'avance (f) et la profondeur de coupe (ap) en utilisant la planification des expériences orthogonale de Taguchi L18 pour le cas du chariotage et (L9) pour le cas du gorgeage. Cette étude consiste à

modéliser les données expérimentales des caractéristiques de performance : Température de coupe T , les critères de rugosité de surface (Ra , Rt) et la régularité du filament (L) lors de l'usinage de tubes en HDPE-100, avec des outils en carbure (K10) en fonction des paramètres de coupe. Pour déterminer les états critiques des paramètres de coupe, une analyse de variance (*ANOVA*) a été appliquée tandis que l'optimisation des paramètres affectant les caractéristiques de performance a été obtenue avec la méthodologie de surface de réponse (*RSM*).

Le **quatrième chapitre** s'intéresse à établir le phénomène d'absorption massique par des spécimens de HDPE de quelques solvants usuels. Il s'agit de 6 solvants choisis pour couvrir un large intervalle de diffusion : 1) Toluène (T), 2) Méthanol (M), 3) Benzène (B), 4) Mélange Toluène-Méthanol 50 : 50 (TM), 5) Ethanol (E) et 6) Dichlorométhane (DCM). Dans un premier stade, le vieillissement des tubes HDPE-100 dans le milieu 4 (TM mixture) est présenté ultérieurement dans cette thèse.

Dans le **cinquième chapitre** de ce travail, l'étude des possibles variations des propriétés mécaniques est entamée. Elle consiste à réaliser des essais de traction monotone selon la norme *ISO 527* sur des filaments à éprouvette finie (type plaque parallélépipédique). Les caractérisations structurales sont approchées par les essais de la *FTIR* et *DSC* à travers la paroi du tube HDPE.

Le **chapitres six** traite le vieillissement et la dégradation du tube HDPE-100 sous le phénomène ESC (Environmental Stress Cracking) ; un mode de rupture associé à l'exposition des filaments HDPE, sur des durées déterminées dans un solvant agressif composé du mélange équimolaire de toluène et de méthanol (TM 50/50). La discussion a porté également sur la variation des propriétés mécaniques en fonction de l'épaisseur du tube HDPE et aussi les impacts sur les caractéristiques de structure (comparaison avec chapitre 5).

Nous avons complété le travail par une conclusion récapitulant l'ensemble de ces recherches et les résultats essentiels obtenus.

CHAPITRE I :
PHENOMENE DE VIEILLISSEMENT DU
POLYETHYLENE DANS LES
SOLVANTS

I.1. Introduction

Il convient de noter que ces dernières années, la portée d'application des matériaux polymères s'est considérablement développée. Parfois, ils sont utilisés dans les domaines de la dentisterie, de la médecine et de l'équipement pharmaceutique. Et aussi les produits d'hygiène, alimentaires et les appareils électroménagers. Grâce à leur bonne isolation, ils avouent parfaitement aux applications électriques. De plus, les plastiques possèdent des propriétés mécaniques solides. Les caractéristiques mécaniques des plastiques sont également impressionnantes. Les articles en plastique coûtent moins cher que les analogues à base de métal. Ainsi, en raison de leur coût et de leur durabilité, le plastique remplace également les métaux pour de nombreuses applications. Les produits en plastique sont désormais largement utilisés pour la production de tuyaux pour le transport de liquides. Les héritiers de leurs performances mécaniques ont le plus grand intérêt potentiel pour le designer. Cependant, ils peuvent générer une grande quantité d'espèces qui pourraient polluer l'environnement, car la plupart des plastiques sont obtenus à partir du pétrole [1].

I.2. Polyéthylène

I.2.1. Applications et production du Polyéthylène

Le polyéthylène est l'un des matériaux semi-cristallins les plus couramment utilisés. Les tuyaux en polyéthylène ont été largement utilisés comme tuyaux de transport de gaz, d'eau ou d'irrigation, en raison de leurs avantages multiples, tels qu'un traitement et un soudage faciles, un poids léger, haute résistance à la corrosion et excellentes propriétés mécaniques [1-3].

En 2008, la production de plastique artificiel s'exhaussait à 245 millions de tonnes. Le premier emplacement avec un quart de la production revient au polyéthylène, qui se caractérise par de faibles coûts de production et des propriétés physiques et mécaniques élevées [4]. Les polyéthylènes sont classés en trois groupes principaux en fonction de leur densité selon la norme *ASTM D-1248* :

BDPE: $0,910 \text{ g/cm}^3 < \rho < 0,925 \text{ g/cm}^3$.

MDPE: $0,926 \text{ g/cm}^3 < \rho < 0,944 \text{ g/cm}^3$.

HDPE : $0,945 \text{ g/cm}^3 < \rho < 0,960 \text{ g/cm}^3$ et plus.

De plus, ce polymère est généralement facile à mettre en forme. Il présente également une bonne isolation électrique et une bonne ténacité, ainsi qu'une grande inertie chimique et biologique (au contact des nourritures).

I.2.2. Procédé de mise en forme de tube en polyéthylène

Pendant la production d'éléments en plastique, des procédés de moulage par injection, par extrusion ou par compression sont souvent appliqués, ce qui permet d'obtenir le moule final en une seule opération [5]. Généralement les thermoplastiques sont souvent produits par extrusion. A partir de granulés ou de poudre, ils produisent en continu des pièces très longues: portes et fenêtres, tuyaux, câbles, panneaux, membranes, plaques, barres, etc. Les industriels du plastique ont développé des résines adaptées à l'extrusion pour tous types de polymères [1].

Pour obtenir des tubes en HDPE par extrusion, Tout d'abord, il faut préparer le HDPE sous forme de granulés ou de poudre pour l'extrusion. Il est important de s'assurer que le matériau est propre et sec pour éviter toute contamination. Le HDPE est introduit dans l'extrudeuse, où il est chauffé et fondu pour former une pâte plastique homogène à une température qui peut atteindre les 300 °C. La pâte fondue est poussée à travers une filière en forme de tube. Sous pression et chaleur, le matériau prend la forme du tube désiré. A cette étape, et une fois le tube formé, il passe à travers un système de refroidissement brusque par jet d'eau, pour solidifier le matériau et maintenir sa forme. Enfin, le tube en HDPE est découpé à la longueur souhaitée et inspecté pour s'assurer de sa conformité aux normes de qualité désirée (figure.I.1) [5].



Figure I. 1. Ligne d'extrusion de tubes HDPE (SARL TUBOGAZ Annaba).

En outre, l'architecture et la microstructure du matériau, c'est-à-dire la composition des chaînes entraînant des ramifications ou des niveaux de maillage et la décadence de la longueur des chaînes, peut également affecter sa mise en œuvre. De plus, la microstructure facilite le maillage des chaînes par étirement et orientation moléculaire, cristallisation et

texture cristalline, sans oublier le rangement spatiale des constituants, la distribution et l'orientation des charges et hétéro-phases [6,7]. Le processus de fabrication contient un refroidissement brusque qui cause la reproduction de contraintes résiduelles.

I.3. Structure

Le polymère est une grande molécule formée de petites unités appelées des monomères. jointes par des liaisons covalentes pour former un long monomère linéaire ou ramifié, la formule du polymère est également exprimée par celle de l'unité répétitive, mis entre parenthèses et accompagnée d'un indice « n » indiquant de monomères dans chaque chaîne polymérique. Lorsque « n » est inférieur à 10, le polymère est désigné sous le nom d'oligomère [8].

Les propriétés des polymères sont influencées par plusieurs facteurs, notamment la nature des monomères utilisés, le poids moléculaire et les types de liaisons chimiques au sein de la macromolécule. Dans le cas des polymères linéaires, les macromolécules demeurent sans liaison chimique. La cohésion de ces chaînes est assurée par des interactions physiques, qui tendent à diminuer avec l'élévation de la température. Ces polymères sont appelés thermoplastiques. En revanche, les polymères réticulés se distinguent par des chaînes macromoléculaires qui sont reliées entre elles par des liaisons chimiques, qui se créent soit par chauffage, en présence d'un catalyseur, soit par irradiation. Un monomère est une substance formée de molécules fondamentales pouvant interagir avec d'autres pour engendrer un polymère. Contrairement aux polymères, les monomères ont une masse moléculaire partiellement faible. Par ailleurs, il est habituel d'utiliser le terme « macromolécule » comme synonyme de « polymère » [7,9].

Le PE est un polymère thermoplastique contenant des molécules (C_2H_4), représente une longue chaîne d'atomes de carbone [10]. Le polyéthylène est un nom général utilisé pour décrire les polyoléfines formées par la polymérisation de l'éthylène (*figure.I.2*).

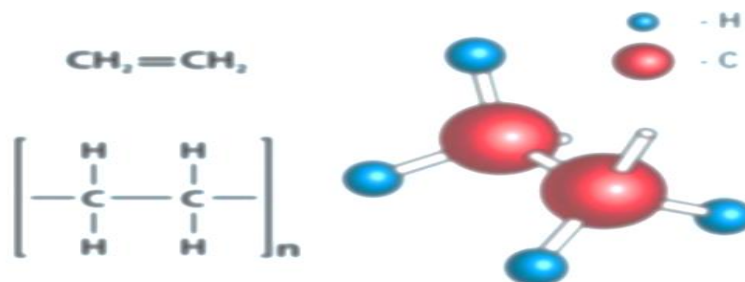


Figure I. 2. Molécule de polyéthylène. [11].

I.4. Morphologie

Le polyéthylène est fréquemment dévisagé comme un polymère à deux phases (phase amorphe et phase cristalline) (*figure I.3*), mais réellement il existe une troisième phase appelée interphase, inclus entre les deux phases cristallines et phase amorphe (*figure.I.4*). Il est partiellement commandé et se compose de boucles pliées, extrémités de chaîne, enchevêtrements et les molécules de liaison inter-cristalline sont plus ou moins tendues. Ces éléments de couplage est également appelé transmetteur de contrainte (*ST*), ils jouent un rôle essentiel car ils assurent le couplage mécanique entre les phases cristallines et amorphes et transfèrent les contraintes entre deux phases [3, 12-14].

Le copolymère est un polymère formé à partir d'une macromolécule contenant au moins deux unités monomères dans sa chaîne. Selon le nombre d'unités monomères différentes, on les appelle binaires, ternaires.

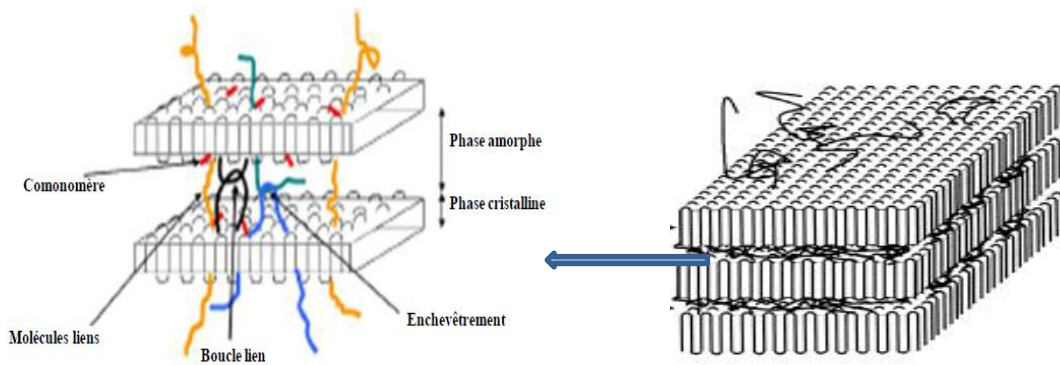


Figure I. 3. Morphologie semi cristalline du polyéthylène [10, 15].

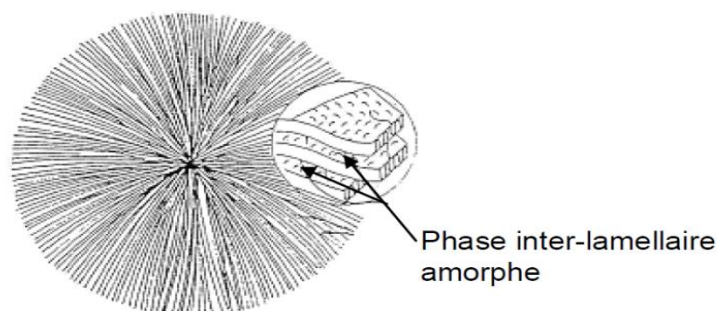


Figure I. 4. Schéma simplifié d'un sphérolite et des lamelles. [15,16]

I.5. Propriétés mécaniques

1.5.1. Comportement mécanique du polyéthylène

Les tubes en plastique sont utilisés dans de nombreuses applications, ils occupent une place prépondérante dans notre quotidien et leur utilisation concerne pratiquement tous les secteurs et notamment dans les réseaux d'adduction d'eau potable, transport du gaz, des eaux usées, de l'essence, pétrole et d'autres substances chimiques inflammables ou corrosifs dans les conditions stipulées. Il est essentiel de connaître diverses caractéristiques de ce matériau. Effectivement, cela a suscité l'inquiétude des chercheurs ces dernières années. Dans la grande majorité de leurs applications, les polymères doivent avoir une durée de vie la plus longue possible afin de limiter le remplacement des pièces et l'éventuel recours à leur recyclage [9,16-26].

La fissuration et le dommage fragile d'un échantillon de polymère sous sollicitation en existence d'un accélérateur chimique, à l'échelle moléculaire, est celle qui se produit dans la phase amorphe. En effet, à cause de la structure semi-cristalline, de nombreuses molécules amorphes relient à l'échelle moléculaire les deux constituants cristallins adjacents forment une liaison. Leurs enchevêtrements assurent les liaisons implémentées. Lorsque le polymère semi-cristallin est soumis à des pressions, il peut se produire une rupture : les liaisons moléculaires sous tension se déforment jusqu'à ne plus pouvoir assurer la liaison entre les deux lamelles cristallines qu'elles maintenaient antérieurement ensemble (figure I.5) [19-22].

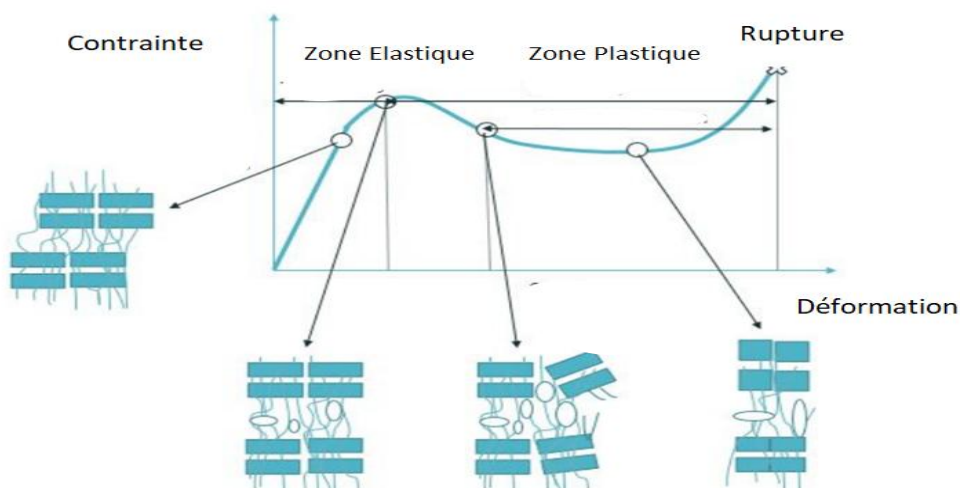


Figure I. 5. Comportement mécanique du polyéthylène [22].

Chapitre I : Phénomène de vieillissement du polyéthylène dans les solvants

Les principales caractéristiques du polyéthylène susceptibles d'influencer la résistance à la fissuration sous contrainte incluent le taux de cristallinité, la distribution de masse moléculaire, l'orientation privilégiée ou non des molécules de la phase cristalline. Une approximation classique passe par l'observation de la densité de la résine d'une part et du taux de cristallinité d'autre part [21].

Les tuyaux en PE sont largement utilisés dans les projets de transport de gaz en raison de leurs excellentes propriétés mécaniques (*tableau I-1*). Ils pourraient être sujets à des dommages et des ruptures brusques au cours du fonctionnement. Les ruptures sont issues d'un mécanisme de déformation inhomogène favorisant la propagation d'une défaillance dans le matériau à partir d'une ou plusieurs zones d'amorçage présentant des points faibles, dont des anomalies primordiales [23-24]. La craquelure est généralement consécutif à :

- Contraintes mécaniques excessives ou mal prises en compte pendant l'étude de conception.
- Environnements non adaptés comme une température importante, un milieu oxydant ou la présence de fluides agressifs.
- Combinaison de différents paramètres telle que la fissuration sous l'effet d'un environnement auquel est ajouté l'effet d'une contrainte.

Tableau I. 1. Quelques propriétés du polyéthylène (selon le fabricant)

Propriété	Méthode	Valeur
Physique		
Densité	<i>ISO 1183</i>	0,959 (g/cm ³)
Indice de fluidité (<i>MFI</i>) (190°C/21,6kg)	<i>ISO 1133</i>	6,4 (g/10 min)
Mécanique		
Module d'élasticité (<i>E</i>) (23 °C, $\nu = 1$ mm/min, Sécante)	<i>ISO 527-1, -2</i>	900 (MPa)
Contrainte au seuil d'écoulement (σ_Y) (23 °C, $\nu = 50$ mm/min)	<i>ISO 527-1, -2</i>	23 (MPa)
Déformation au seuil d'écoulement (ε_Y) (23 °C, $\nu =$ 50 mm/min)	<i>ISO 527-1, -2</i>	9 (%)
Propriétés thermiques		
Température de ramollissement Vicat (VST/B/50 K/h (50 N))	<i>ISO 306</i>	74 (°C)
Temps d'induction à l'oxydation thermique (<i>OIT</i>) (210°C)	<i>EN 728</i>	30 (min)
Autres informations		
Noir du carbone	<i>ISO 6964</i>	2,25 (%)
Seuil de l'odeur	<i>EN 1622/EN 1240</i>	< 2

Chapitre I : Phénomène de vieillissement du polyéthylène dans les solvants

Le comportement mécanique des polymères se caractérise par une grande dissemblance apparente. En effet, d'un point de vue technique dans les mêmes conditions opératoires, on retrouve des polymères durs, fragiles, ductiles ou caoutchouteux. La famille des polymères présente une variété de comportements, notamment viscoélastique, viscoplastique, super-élastique et durcissant. Cette diversité se produit lorsque certaines propriétés d'un même polymère sont modifiées ou simplement lorsque les conditions d'utilisation sont modifiées. Certains sont durs, certains sont fragiles, certains sont ductiles et certains sont élastiques. Cela ne signifie pas que le comportement du polymère soit variable ou incontrôlable [7,25].

Les paramètres qui influencent les propriétés mécaniques du polyéthylène (*tableau I.2*) sont liés aux réglages de mise en œuvre et de contraintes ou à l'environnement, à la structure du matériau polymère et conditions d'utilisation.

Bien entendu, tous ces paramètres ne sont pas indépendants les uns des autres, parce que la nature de la chaîne détermine dans une certaine mesure sa composition et son comportement [8]. En effet, leur facilité de mise en œuvre, et la variété de leurs propriétés mécaniques, contribuent à la privilégiations de ce matériau par les opérationnels.

Tableau I. 2. Principales propriétés des différents types de PE selon *ASTM D-1248*.

Propriétés	Unités	BDPE	MDPE	HDPE
ρ	(g.cm ⁻³)	0.910-0.925	0.926-0.940	0.941 à 0.960 et plus
X_c	(%)	< 40	40-60	60-80
T_f	(°C)	105-115	-	118-146
T_g	(°C)	-130	-	-120
$\bar{O}r$	(MPa)	8-15	18-28	26-40
ϵ_r	(%)	150-1000	200-1200	200-1000

Cependant, ces structures polymères doivent être construites et dimensionnées pour résister aux contraintes (mécaniques ou environnementales) auxquelles elles sont soumises lors de leur utilisation. Les difficultés associées sont importantes en raison du temps limité dont dispose l'expérimentateur pour discuter des phénomènes en question [26].

I.6. Vieillessement

I.6.1. Fissuration sous contrainte environnementale (ESC)

La fissuration sous contrainte environnementale (ESC) est l'une des causes les plus courantes de défaillance des polymères. La principale raison en est la complexité du phénomène, qui inclut des aspects tels que la compatibilité chimique, la diffusion des liquides,

Chapitre I : Phénomène de vieillissement du polyéthylène dans les solvants

la formation et le développement des fissures. Bien que les polymères cristallins et amorphes soient sensibles à l'*ESC*, les polymères amorphes sont particulièrement sensibles car leurs structures sont relativement ouvertes et sujettes à la pénétration des fluides. Une fois que le fluide pénètre dans le polymère, il se dissout localement, favorisant ainsi les craquelures et fissures du polymère. La formation de fissures est généralement précédée par l'initiation de fissures aux endroits de concentration de contraintes ou dans les zones d'inhomogénéité microstructurale [27]. Les dommages et l'étendue de la contamination sont fonction de plusieurs facteurs tels que : les propriétés des matériaux, les procédés de fabrication, le temps d'exposition, les paramètres environnementaux, la nature et la concentration des contaminants [28-29].

'*ESC*' limite la durée de vie du polyéthylène utilisé dans des applications critiques comme les géo-membranes, les tuyaux, les conteneurs, les revêtements de décharges, etc. La fissure est associée à des conditions de charge à long terme à faible niveau et on pense qu'elle se produit plus rapidement dans certains environnements chimiques. Ce mode de rupture est caractérisé par la présence de « fissures » macroscopiques dans le matériau fibreux microscopique au niveau de la surface de fracture préexistantes, c'est-à-dire à des concentrations de contraintes qui se développent davantage avec le temps. Les mécanismes moléculaires précis responsables de ce mode de défaillance restent un sujet de discussion [29-31].

L'analyse du comportement des pipelines en polyéthylène haute densité HDPE repose sur une variété de facteurs mal contrôlés, dont les effets sont difficiles à modéliser de manière réaliste. En effet, les conditions d'installation, les conditions géotechniques locales et les surcharges accidentelles sont dans une certaine mesure aléatoire. Différentes conditions de conduites créent un danger et, dans certaines circonstances, peuvent entraîner des accidents et des défaillances de conduites (en particulier des défauts structuraux). Les interruptions de service entraînent des problèmes avec les opérations du réseau. La *figure 1.6* décrit schématiquement la relation entre la contrainte et le temps de défaillance. Elle montre les trois principaux modes de défaillance des tuyaux en HDPE, rupture ductile, fragile et sous contrainte dans un environnement contrôlé (*ESC*). A proximité de la température ambiante, la courbe présente deux zones de défaillance. [32-33].

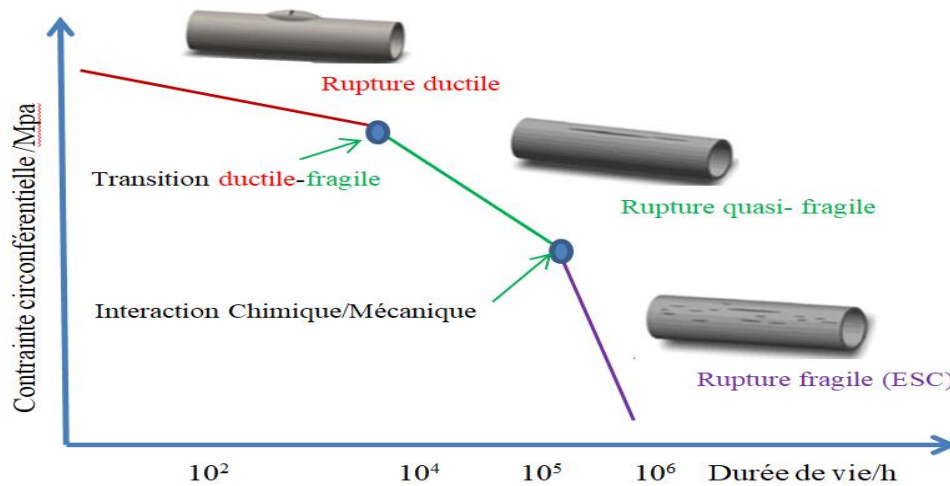


Figure 1.6. Schéma des modes de rupture des pipe en plastique sous pression et de la courbe contrainte-durée de vie [33].

I.6.2. Vieillessement du PE

Les résines HDPE sont fréquemment choisies pour fabriquer des structures et des produits à usage technique tels que des géo-membranes, des films, des tuyaux, des équipements domestiques et des pièces moulées. Étant donné que ces produits sont utilisés régulièrement dans des environnements défavorables, il est nécessaire d'évaluer les conséquences résultantes d'un tel contact (sorption, diffusion, perméabilité ou solubilité) et d'évaluer la résistance à la fissuration sous contrainte environnementale (*ESCR*) (*Environmental Stress Cracking*), en termes de mécanismes de dégradation/vieillessement en fonction de l'opération de service [34]. On dehors de cela, ils sont principalement utilisés dans des applications souterraines sous forme de réseaux de canalisations soudées. Dans ce cas, les deux côtés du pipeline sont exposés à des environnements différents caractérisés par des conditions instables telles que la température, la pression de fonctionnement, l'humidité, la concentration chimique et la charge externe du sol. Les données disponibles montrent une durée de vie minimum de 50 ans en cas d'enterrement dans des applications typiques de drainage et de transport des hydrocarbures du gaz [35].

Choi et al. Discutent du vieillissement chimique, à partir du concept de masse molaire. Les propriétés chimiques sont nombreuses et abordent brièvement la solubilité, la perméabilité et la résistance chimique. Cette dernière catégorie comprend un large éventail de propriétés, telles que la résistance à l'environnement, la résistance aux radiations, etc [36-37]. En général, les plastiques présentent une excellente résistance à de nombreuses formes d'attaque chimique et sont meilleurs que de nombreux métaux, en particulier face aux acides ou alcalis faibles. Ils sont cependant attaqués par les acides oxydants forts. Les

Chapitre I : Phénomène de vieillissement du polyéthylène dans les solvants

thermoplastiques peuvent également être dissous par divers composés solvants organiques. Lorsque le poids moléculaire augmente, la solubilité du diffusant dans le polymère influence également la perméabilité. La solubilité réduit généralement la perméabilité [38-40].

Boudrahem et al. ont étudié les effets du vieillissement photochimique un vieillissement qui est conclu par l'interaction du polymère avec des radiations lumineuses (généralement *UV*), naturel et accéléré, en étudiant les transmutations dans la structure et les propriétés du polyéthylène haute densité (HDPE-100) utilisé pour le transport des gaz sous haute pression grâce à une approche multidisciplinaire, comprenant des analyses thermiques et chimiques en fonction du temps d'exposition. En comparant la progression de la dégradation du HDPE due au vieillissement naturel et au vieillissement accéléré par l'utilisation d'*IR* (figure.I.7.a) et *DSC* (figure.I.7.b) [17].

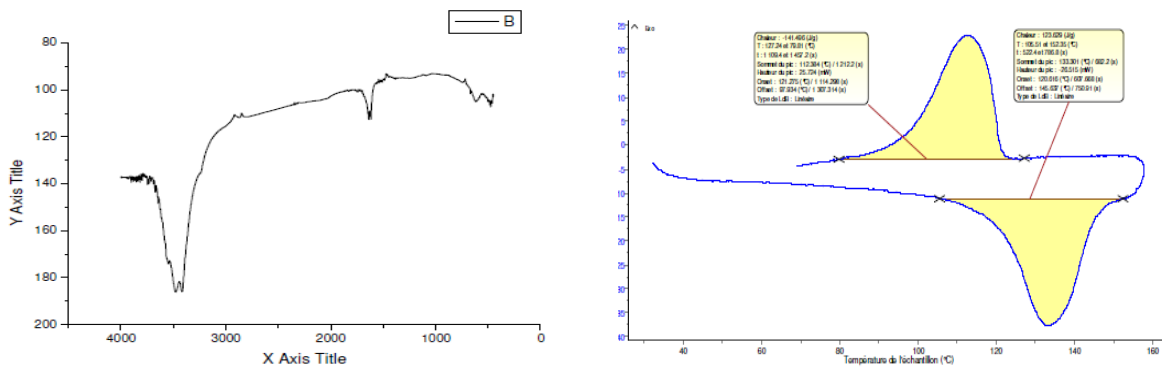


Figure I. 7. HDPE vieilli par UV solaire (30j) a) Spectre Infra Rouge b) DSC [17].

Ladaci a étudié le comportement mécanique et tribologique du HDPE-80. Des tests d'élasticité sur des prototypes entaillés et non entaillés ont révélé l'effet potentiel du vieillissement (à la température et aux *UV*) sur la résistance aux chocs du HDPE-80. La seconde section a été consacrée à l'étude tribologique du HDPE-80, se focalisant sur l'impact des facteurs tribologiques tels que la vitesse et la charge sur le comportement de frottement et d'usure du HDPE-80 ainsi que l'effet du vieillissement sur le comportement du matériau. Les conclusions révélés que l'usure s'intensifie avec l'accroissement de la charge et de la vitesse. L'impact du vieillissement provoqué par les *UV* sur la perte de masse est plus significatif que celui dû au vieillissement thermique [41].

On rappellera les différents phénomènes de dégradation et du vieillissement et leurs caractéristiques à l'aide de la classification présentée dans le *tableau I.3*. Nous détaillons dans d'autres paragraphes quelques aspects spécifiques de ces mécanismes.

Chapitre I : Phénomène de vieillissement du polyéthylène dans les solvants

Pendant le vieillissement de ce matériau, des évolutions physico-chimiques et mécaniques peuvent survenir. De plus, plusieurs recherches [36,17,41,43], ont prouvés que divers éléments tels que les caractéristiques chimiques, la température, la durée et l'environnement de vieillissement, ainsi que la solution d'immersion, ont une influence significative sur le processus de dégradation.

Tableau I. 3. Processus de dégradation [42].

Dégradation (avec environnement)		Vieillissement		
		<i>Chimique</i>	<i>Physique</i>	<i>Mécanique</i>
Sans interaction		-Vieillissement thermique anaérobie	-Relaxation structurale -Migration des additifs	-Fluage/Relaxation -Fatigue *Usure
avec interaction		-Thermo- oxydation -Vieillissement photochimique -Vieillissement en milieu réactif -Vieillissement biochimique	Absorption des solvants	des
Assemblage chimique	physico-chimique	-Vieillissement chimique avec perte des antioxydants. -Vieillissement chimique et plastification.	Extraction des additifs en milieu fluide	des
Conjonction physico-chimique	mécano-physico-chimique	-Couplage fissuration oxydation. -Vieillissement sous contrainte. -Couplage fissuration et vieillissement chimique.	-Stress Cracking en milieu solvant	

I.6.3. Facteurs d'influence sur les tubes enfouis :

Les avantages multiples du transport des fluides par les pipes en HDPE ont orientés les axes de recherches vers les études de la dégradation des pipes en HDPE et leurs durée de vie [24], leurs procédés de fabrication ayant pour but l'optimisation des conditions opératoires depuis l'extrusion jusqu'à l'installation, et de la détérioration des tuyaux en fonctionnement sous l'influence de facteurs internes, ainsi que l'évolution de leurs propriétés physico-chimiques lors du vieillissement induit par des facteurs environnementaux externes. Des incidents graves peuvent arriver tels qu'un incendie, une explosion, une fuite toxique ou une pollution des sols et de l'environnement [43,32,35].

Ghabeche a mis en évidence l'hétérogénéité entre les deux surfaces de la paroi d'un tube en HDPE-100, elle a trouvé que la surface interne présente les meilleures propriétés morphologique et structurales, ce qui lui confère un bon comportement mécanique que celui de la surface externe. Pour le cas du HDPE vieilli dans le TM les courbes des deux surfaces sont dispersées, l'écart entre surface intérieure et surface extérieure augmente avec l'absence

du palier du durcissement, en revanche pour le cas du DCM, elle a remarquée qu'il est plus agressif que le TM, les courbes perdent leur forme avec l'absence du palier du durcissement aussi pour les deux surfaces et même le palier d'étirage pour la surface extérieure (figure.I.8) [43].

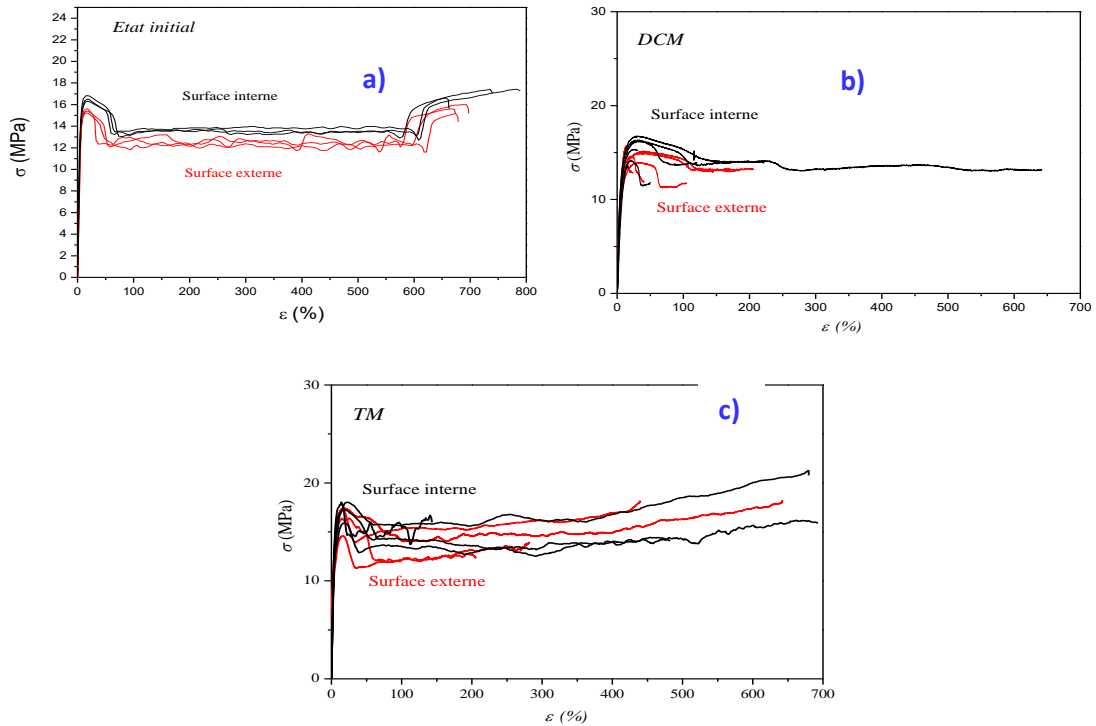


Figure I. 8. Comportement mécanique du HDPE a) non-vieilli b) vieilli dans TM et c) vieilli dans DCM [43].

Dans des recherches antérieures [11,17,44], l'accès aux propriétés locales et l'évaluation de l'agressivité tout au long d'une paroi de tuyau en PE a été réalisée en utilisant différentes techniques. Il est important de comprendre que le PE est affecté par l'environnement de service et que la durée de vie de cinquante ans peut être diminuée par des effets thermiques et environnementaux, sous terre (figure.I.9), les canalisations se dégradent facilement en fonction de plusieurs paramètres tels que la perméabilité à l'air et à l'eau, l'humidité. Divers facteurs peuvent influencer la dégradation des canalisations, notamment la perméabilité à l'air et à l'eau, l'humidité, la salinité du sol, ainsi que l'acidité ou l'alcalinité et la conductivité ou résistivité du milieu environnant. Par exemple, un sol qui est à la fois humide, mal aéré et acide s'avère être particulièrement corrosif, affectant ainsi l'intégrité du matériau de plusieurs manières, tant sur le plan chimique que physique. L'ampleur de ces effets dépend de divers éléments, tels que la composition chimique et l'interaction entre le polyéthylène et

son environnement. Par ailleurs, une augmentation de la température ambiante pourrait aggraver ces risques de dégradation [11,26,35].



Figure I. 9. Transport du gaz naturel via des tuyaux HDPE.

I.6.4. Conséquences des environnements de service :

Le transport continu ou séquentiel des fluides par conduite à travers de pipelines, est seulement sous la seule influence de la pression. En revanche, l'emploi de ces tubes sous pression demande la détermination des conditions d'utilisation optimales d'exploitation ainsi que la connaissance des limites opérationnelles. Du point de vue mécanique, l'évaluation de la résistance à la rupture est l'enjeu principal du choix d'un tube pour la fabrication de réseaux destiné à la construction de réseaux de distribution de gaz et d'autres fluides [45].

Les polymères sont exposés à différents environnements tout au long de leur cycle de vie. Ces contacts contraignent le polymère à interagir avec l'environnement et vice versa. Certaines interactions n'ont d'impact ni sur le polymère, ni sur l'environnement. Malheureusement, la plupart des interactions aient un impact défavorable sur un aspect ou un autre. Diffusion, gonflement et libération de polymères lors d'une exposition à divers milieux tels que solvants, acides, hydrocarbures, etc. La diffusion de l'agent pénétrant engendre la plastification du matériau. Et les sollicitations mécaniques résultant de l'expansion lors de l'adsorption peuvent entraîner des fissures sous tension. En raison des contraintes de traction extrêmement élevées générées sur la surface, des fissures peuvent également se former lors du processus de désorption [46].

Les polyéthylènes, en raison de leur caractère non polaire, résistent aux agressions. Ils présentent une perméabilité extrêmement faible à l'eau et aux gaz, ils sont insolubles à une température inférieure à 60°C. Ils ne sont pas attaqués par les acides, sauf pour quelques acides oxydants. Leur phase cristalline est quasiment intégralement imperméable à la

pénétration de substances chimiques, la phase amorphe est plus délicate et plus sensible. Les hydrocarbures halogénés sont les exemples qui représentent parmi les exceptionnels acides capables d'engendrer une détérioration importante des polyéthylènes. D'autres substances chimiques comme les huiles minérales, les hydrocarbures aromatiques, ou encore les agents hautement oxydants peuvent également influencer le PE en cas d'exposition à long terme. Ces substances peuvent causer le gonflement, la plastification, le durcissement et l'apparition de microfissures dans le polyéthylène. Si les concentrations d'agents chimiques sont élevées, ils peuvent également emporter une scission de chaîne. Le polyéthylène haute densité (HDPE) est plus résistant aux attaques chimiques, à cause de sa haute cristallinité. Cependant, les HDPE peuvent être sujets à la fissuration sous sollicitations en présence des milieux agressifs, ce qui n'est pas le cas pour les BDPE [11, 48].

Les tremblements de terre sont très destructeurs et difficiles à prévoir et constituent l'une des plus grandes catastrophes causées par la rupture des tuyaux en PE. Les recherches montrent que la pression du gaz a peu d'effet sur les propriétés mécaniques des canalisations PE enfouies dans le sol, la déformation des tuyaux dans l'argile est la plus grande que la déformation des tuyaux en sable. Plus le diamètre est grand, plus le paramètre d'aplatissement du diamètre du tuyau est petit. Les tuyaux PE avec un rapport de dimension de montage standard (*SDR*) plus grand et un diamètre plus petit sont susceptibles de se fissurer en cas de zones défectueuses. Les résultats peuvent servir de base à la conception, à l'installation, aux tests et au déploiement de gazoducs [22].

Lors des conditions de service, les pipes en PE, subissent des sollicitations interne ou externe qui l'amènent à se déformer et à affaiblir ses caractéristiques mécaniques. Ces caractéristiques sont également influencées par la nature de l'environnement de service.

Solutions acides ou alcalines, liquides d'hydrocarbures, lubrifiants, carburants, essence kérosène, agents de blanchiment, détergents, etc. sont ordinairement déposés et vendus dans des récipients en HDPE durant des périodes de stockage relativement courtes. Le HDPE est même utilisé comme couche protectrice de tubes en béton ou en acier dans les environnements corrosifs pour améliorer leur durabilité [49].

I.7. Effets des solvants sur le polyéthylène

Baron a montré que l'effet du méthanol est susceptible de réduire l'énergie de surface et de réduire la contrainte critique requise pour l'ouverture des fissures dans la région inter lamellaire. Benzène, toluène et autres carburants. Ils sont connus pour augmenter le

Chapitre I : Phénomène de vieillissement du polyéthylène dans les solvants

gonflement et réduire les propriétés mécaniques des tuyaux en HDPE. L'absorption d'hydrocarbures améliore la plastification du PE et affaiblit ses propriétés mécaniques, telles que σ_f et E . Un autre effet dangereux de l'absorption d'hydrocarbures est l'expansion physique du matériau PE, qui provoque une augmentation de volume d'environ 3 % et des aromatiques jusqu'à 10 %. D'autre part, le méthanol est un additif chimique souvent utilisé pour empêcher la formation d'hydrates susceptibles de bloquer le flux de gaz dans les tuyaux en PHDE. Le méthanol s'évapore facilement en phase gazeuse ou se mélange aux hydrocarbures liquides et à l'eau et est finalement absorbé dans les tuyaux en HDPE. Les vapeurs de méthanol imprègnent le HDPE et peuvent provoquer des dommages dus à la corrosion de l'installation si elles se condensent. [50].

Le poly(Lactic acid) PLLA qui est le premier alternatif naturel au polyéthylène, été étudié par *Udayakumar et al*, en utilisant différents solvants organiques thermodynamiquement compatibles, la diffusion en douceur des molécules de solvant dans la matrice PLLA, qui stimule le mouvement aléatoire de la chaîne moléculaire du polymère, induisant l'arrangement ordonné des chaînes avec un degré élevé de cristallinité. L'effet de différents solvants à différentes températures et temps de durcissement sur la cristallisation de la feuille PLLA été expliqués par l'utilisant de différentes techniques d'analyse. Les différences étaient parfaitement mises en évidence par la taille de la cellule unitaire, en particulier dans le sens de la longueur de la chaîne des fibres polymères, indiquant des liaisons plus courtes, donc une meilleure conformation des cristaux lors du traitement. Le pourcentage de cristallinité calculé à l'aide de l'indice de cristallinité relative classique du *XRD* montre des valeurs plus proches de celles du *DSC* [51]. Des expériences d'adsorption de solvants réalisées sur PA6 et HDPE par *Fillot*, outre les expériences d'évaporation, la perméabilité des polymères aux solvants dépend également de la solubilité et de la cinétique de diffusion du solvant, (Vérifiez le poids), leur travail vise à élucider les paramètres environnementaux (composition du carburant, épaisseur de l'échantillon, température) qui contribuent aux propriétés barrières significatives des biocarburants PA6 et HDPE, et à mettre en évidence les conséquences de la différence observée entre le PA6 et le HDPE. En fait, l'analyse thermogravimétrique n'a montré qu'une perte de poids de 2,5 % du polymère après avoir été maintenu à 290 °C pendant 30 minutes, tandis que la chromatographie a exclu le dimensionnement à haute température du HDPE avant et après le traitement et n'a montré qu'un léger changement du poids moléculaire moyen. (M_w : +15%) [52].

Chapitre I : Phénomène de vieillissement du polyéthylène dans les solvants

Des filaments usinés à travers une épaisseur de tuyau en HDPE, émergés dans des environnements agressifs (pétrole brut, de toluène-méthanol et l'acide sulfurique), pendant des durées prédéterminées. Pour étudier l'hétérogénéité des matériaux et les effets environnementaux sur les propriétés mécaniques. Les composants de contrainte sont dégradés. Ces modifications sont des conséquences de la répartition de la cristallinité imposée par le procédé de fabrication qu'est l'extrusion [53].

José Roberto a étudié les effets provoqués sur le comportement physico-chimique des matériaux à haute densité des tuyaux en polyéthylène par exposition à un lubrifiant diesel, en fonction du temps et de la température, par analyse thermogravimétrique et gravimétrique et par *FTIR* [54]. Les données gravimétriques décrites de manière satisfaisante à l'aide de la loi de *Ficke*. L'étude expérimentale a montré que le diesel, a un grand taux de diffusion dans le HDPE. D'après l'analyse effectuée, le vieillissement physique et le vieillissement chimique se produisant lorsque les tuyaux en HDPE entrent en contact avec du lubrifiant diesel.

D'après *Ahart*, il faut environ 50 heures pour atteindre la saturation en toluène et butanol du HDPE. Les tubes en polyéthylène absorbent lentement le MCHM (Methylcyclohexanemethanol) et atteignent des niveaux de saturation tout aussi bas. Les deux contaminants peuvent faire gonfler le PE [55]. Pour les futurs déversements chimiques de contaminants dont les propriétés d'adsorption sont inconnues, la polarité peut être un moyen rapide d'estimer la quantité potentielle de diffusion dans les matériaux d'infrastructure en polyéthylène. Le toluène diffuse quatre fois plus vite lorsqu'il est mélangé avec un peu de méthanol [56].

I.8. Gonflement du polyéthylène dans les solvants

La sorption est le phénomène de dispersion et de pénétration dans les polymères. Le terme couvre l'adsorption, l'absorption, la dispersion et la diffusion de substances en volume libre. Le transport d'une substance concerne sa mobilité et de la mobilité des chaînes de polymères. Si la masse moléculaire du liquide et l'encombrement stérique sont faibles, le liquide transporté dans les tuyaux en HDPE peut être adsorbé et diffuser dans la paroi du tube. Il est à noter expérimentalement qu'il y a diverses évolutions éventuelles du changement de la masse en fonction du temps (*figure.I.10*) dues à la sorption et à la désorption des fluides dans les polymères.

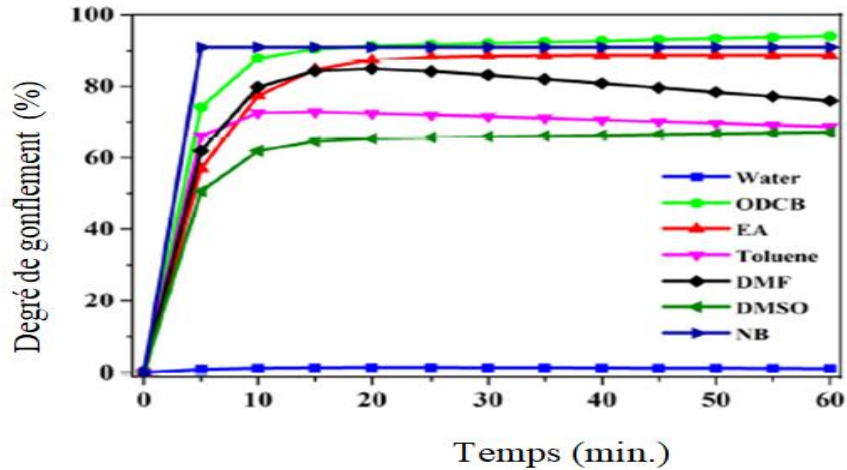


Figure I. 10. Courbe de saturation du PLLA dans divers solvants organiques [51].

Ces divers processus sont fréquemment non-Fickiennes (figure.I.11). (Sorption et pénétration des solvants organiques dans le polyéthylène) [57].

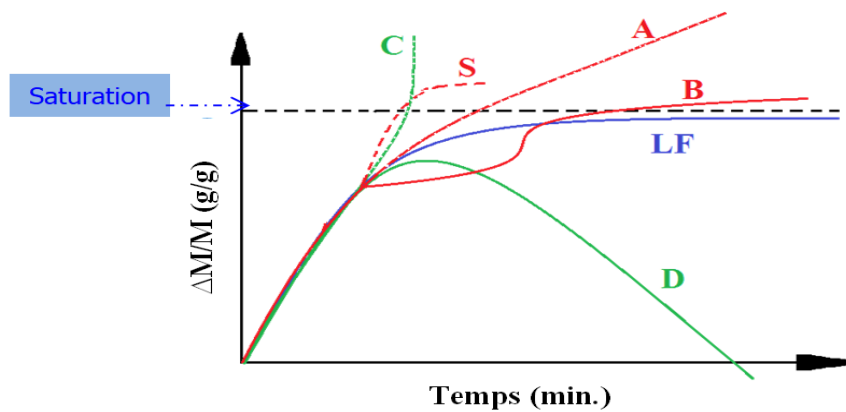


Figure I. 11. Courbes des différents phénomènes de sorption ne suivant pas la loi de distribution de Fick (A, B, C, D, S), ainsi que la courbe particulière de cette loi (LF) [57].

Des modèles plonger dans un milieu vieillissent et enlever périodiquement pour être pesés. La propagation des solvants dans le polymère est généralement Fickienne [40, 58], et obéit à une loi exponentielle (Equation I.1).

$$\frac{Mt}{M\infty} = 1 - \frac{8}{\pi^2} \sum_{i=0}^{\infty} \frac{1}{(2i+1)^2} e^{-\frac{D(2i+1)^2\pi^2}{l^2}t} \quad (I.1)$$

Avec : $M\infty$ et Mt sont les masses absorbées respectivement à l'équilibre et après un temps (t), (i) est un nombre entier, (e) est l'épaisseur du matériau.

Le coefficient de diffusion D peut être déterminé à partir de la variation de $Mt / M\infty$ avec t , selon l'Équation I.2 :

$$D = \frac{\pi e^2}{16 t} \left(\frac{Mt}{M\infty}\right)^2 \quad (I.2)$$

Chapitre I : Phénomène de vieillissement du polyéthylène dans les solvants

Ce modèle nécessite la connaissance du coefficient de diffusion D . Celui-ci est estimé expérimentalement à partir de la courbe de prise de masse globale d'un échantillon. Sa détermination peut constituer une difficulté, notamment dans le cas de matériaux anisotropes.

La sorption est caractérisée en mettant le polymère en contact avec le liquide étudié dans des conditions spécifiques et en suivant l'évolution de sa concentration dans le polymère en fonction du temps. Plusieurs techniques expérimentales ont été utilisées pour étudier les phénomènes de transport dans les polymères, notamment la chromatographie en phase gazeuse, la spectrophotométrie UV , la spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier ($FTIR$), la chromatographie liquide à haute performance ($HPLC$) et les méthodes gravimétriques. La sorption dépend de la concentration des molécules diffusantes et de leurs structures, de la température et de la structure macromoléculaire du polymère. Il convient de noter que la quantité de sorption est directement proportionnelle à la concentration des molécules diffusées et à leurs propriétés chimiques. [59-60]

Il a été démontré que le stockage d'échantillons de polyéthylène dans des solvants organiques modifie ses propriétés mécaniques (résistance à la traction, module de Young et allongement à la rupture) en raison de la plastification du polymère. Les études de résistance chimique et d'évolution des caractéristiques mécaniques des articles lors de leur stockage dans des solvants organiques permettent de prédire leur fiabilité et leur constance à des conditions agressives effets liquides. Ces dernières années, une attention particulière a été portée à l'étude de l'effet des milieux agressifs sur le comportement des polymères. Le PE est connu pour être insoluble dans tout solvant à température ambiante, bien qu'il puisse gonfler dans certains solvants [63]. La capacité de gonflement du PE dépend de la structure du PE qui est déterminée par la méthode et les conditions de préparation de l'échantillon [43].

Alimi et al ont montré que la flexibilité et l'allongement à la rupture augmentaient considérablement après que les échantillons de PE étaient immergés dans des solvants. Cependant, la résistance à la traction des éprouvettes (AR) est encore suffisamment élevée. Aucune interaction entre les chaînes polymères et les molécules de solvant n'a été détectée. Les résultats obtenus sont importants pour la conception et l'exploitation des revêtements PE et des produits PE tels que les tuyaux. Ils ont trouvé aussi que la perméabilité aux hydrocarbures peut causer une réduction des propriétés mécaniques. Parmi les solutions étudiées, le mélange Toluène-Méthanol (50-50) qui est le plus agressif ; il réduit le module d'élasticité longitudinale E de 59 %, la contrainte à l'écoulement σ_y de 20% par contre la déformation à l'écoulement ε_y et la déformation à la rupture ε_r sont grandissantes de 8% et

18%, et aussi les solvants peuvent réduire la résistance à long terme du PE. Ils ont trouvé aussi que : l'absorption du mélange Toluène-Méthanol est la plus importante car elle a atteint les 4 % environ [49].

Ivan Kuryndin a immergé des échantillons de PE, dans des solvants organiques (orthodichlorobenzène (*ODCB*, $C_6H_4Cl_2$ et ortho-xylène (*OX*) C_8H_{10})), Après 24 heures d'immersion dans les solvants, le gonflement du PE, entraînent une modification significative des caractéristiques mécaniques : le module de Young a diminué, la limite plastique et l'allongement à la rupture ont augmenté. Quand le gonflement atteint la saturation, le bouleversement des propriétés mécaniques devient autant plus énoncé. Pendant l'extension de PE, les valeurs de résistance plus élevées des échantillons gonflés, peuvent s'expliquer par l'orientation favorisée des macromolécules. L'absorption de la phase amorphe PE des solvants améliore la mobilité des macromolécules, On peut donc dire que le PE soit plastifié lorsqu'il est immergé dans des solvants organiques [61].

D'après *Krimm* et *Pinter* les chaînes PE interagissent avec les molécules de solvant, puisque leurs positions après gonflement dans les solvants organiques ne changent pas, d'après le test de spectroscopie *FTIR* [62,63]. Nous pouvons conclure qu'il n'y a pas d'interaction entre les chaînes PE. En revanche *Ghabeche* à trouver que le gonflement des éprouvettes de PE dans les solvants organiques, entraîne une augmentation de la masse et du volume des éprouvettes et une modification des propriétés mécaniques [64], En particulier, une augmentation de la flexibilité et de l'allongement à la rupture devient perceptible. Les résultats obtenus avèrent être importants pour la création et le fonctionnement des revêtements PE et des produits PE (tuyaux, réservoirs, etc.) qui peuvent avoir des contacts à long terme ou à court terme avec des produits pétroliers.

I.9. Conclusion

La dégradation peut être le résultat de la perméabilité du polymère qui est caractérisée par la prolixité dans le tube en PE du gaz, ou de la vapeur et même de certains liquides. Dans le cas de certains hydrocarbures liquides, ceci peut entraîner le changement des propriétés figures; chimiques ou autres. L'objectif de ce travail est l'étude expérimentale de l'influence de quelques solvants organiques pouvant se trouver dans l'environnement et qui conduisent à l'altération des propriétés des tubes en HDPE. En même temps, l'étude de l'hétérogénéité des propriétés; mécaniques à travers la paroi du tube HDPE 100.

Références bibliographiques

- [1] Min NIE, QI Wang, Shi Bing Bai, Zhi Li et Anyun Huang. 2013, *The Formation and Evolution of the Hierarchical Structure of Polyethylene Pipe During Extrusion Processing*. Macromolecular Science, 3:205–216.
<https://doi.org/10.1080/00222348.2013.810092>
- [2] Roger Brown, 2002, *Handbook of Polymer Testing – Short-Term Mechanical Tests*, Rapra Technology.
- [3] S. Etienne et L. David, 2002, *Introduction à la physique des polymères*, Dunod.
- [4] R. L. Ayres, 1987, *Basic structure: Property relationship for PE pipe resins, Tenth plastic fuel gas pipe symposium*, AGA.
- [5] H. H. Kausch, N. Heymans, C. J. Plummer, P. Decroly, 2001, *Matériaux polymères : Propriétés Mécaniques et Physiques Principe de mise en œuvre*. Lausanne.
- [6] G.W. Ehrenstein, F. Montagne, 2000, *Matériaux polymères*, Paris : Hermes science.
<https://www.decitre.fr/livres/materiaux-polymeres-9782746201491.html>
- [7] N. Billon, JL. Bouvard, 2015, *Propriétés et comportement mécanique des polymères thermoplastiques*. Techniques de l'Ingénieur, 26p. AM3115. (hal-01259577).
- [8] Alain Boudet, 2005, *Voyage ou Cœur de la Matière Plastique* ; CNRS.
- [9] Y.G. Hsun, 2000, *Data base of field incidents used to establish HDPE géomembrane stress cracking ; resistance spicification*. Geotextiles and geomembranes, vol 18.
- [10] S. Humbert, O. Lame et G. Vigier, 2009, *Polyethylene yielding behaviour: What is behind the correlation between yield stress and crystallinity?* Polymer, 50:3755(3761).
- [11] Jacques Lacoste et Sandrine Therias, 2015, *Vieillissement des matériaux polymères et des composites*, l'Actualité Chimique n° 395.
<https://www.researchgate.net/publication/281434513>
- [12] X. Qian R. Lu et N. Brown, 1995, *The effect of crystallinity on fracture and yielding of polyethylenes*. Polymer, 36, 4239–4244.
- [13] M.H. Sharobeam, J.D. Landes, 1991. *The load separation criterion and methodology in ductile fracture mechanics*, Inter J Fract, 47, 81–104.
- [14] C. A. Naudin, 1995, *Nomenclature, Classification et formules chimiques des polymères*, Technique de l'ingénieur, traité plastiques et composites, A 3035.
- [15] N. Chaix, 2001, *Modifications par irradiation y du polyéthylène a très haut poids moléculaire. Comportement tribologique pour des applications orthopédiques*, Thèse, institut national polytechnique de Grenoble, Ecole nationale supérieure des mines de saint Etienne, France.

- [16] Ludovic Douminge, 2010, *Etude du comportement du polyéthylène haute densité sous irradiation ultraviolette ou sollicitation mécanique par spectroscopie de fluorescence*. Autre. Université de La Rochelle. Français.
- [17] M. Boudrahem , A. Belbah , O.Kirati, 2014, *Etude de Vieillissement d'un Polyéthylène de haute Densité (PEHD 100) Utilisé dans les Conduites à Gaz Sous Pressions* *Journal of Materials, Processes and Environment* May edition, 2(1). ISSN : 2335-1020.
<https://www.asjp.cerist.dz/en/PresentationRevue/284>
- [18] L. A. Pruitt, 2005, *Deformation, yielding, fracture and fatigue behavior of conventional and highly cross-linked ultra-high molecular weight polyethylene,* *Biomaterials*, vol. 26, no. 8, pp. 905–915. <https://doi.org/10.1016/j.biomaterials.2004.03.022>
- [19] W. R Broughton et A. S Maxwell, 2007. *Accelerated Environmental Ageing of Polymeric Materials*. Measurement Good Practice Guide No. 103. National Physical Laboratory. ISSN 1368-6550.
- [20] J.A. Samuel, 2018, *Polymer crystallinity and the ductile to brittle transition*. *Polymer*, 158.72–76. <https://doi.org/10.1016/j.polymer.2018.10.031>
- [21] L.C.Mendes, E.S. Rufino, 2003, “*Mechanical, thermal and microstructure evaluation of HDPE after weathering in Rio de Janeiro City*”, *Polym.Degrad. & Stability*, 79, pp. 371-383.
- [22] P.Y. Zhang, Jar, X. Shifeng, and L. Li, 2019, *Quantification of strain-induced damage in semi-crystalline polymers: A review*, *Journal of Materials Science*, vol. 54(1). <https://doi.org/10.1007/s10853-018-2859-2>.
- [23] S. Zha, H. qing Lan, H. Huang, 2022, *Review on lifetime predictions of polyethylene pipes: Limitations and trends*, *Int. J. Press. Vessel. Pip.*, vol. 198, p. 104663, <https://doi.org/10.1016/j.ijpvp.2022.104663>
- [24] M. Germain Clavier 2017, *Étude à l'échelle moléculaire des propriétés mécaniques des polymères semi-cristallins*. Thèse Doctorat, Univ. Paris-Saclay.
- [25] R.Sarathi, S.Chandrasekar, V.Sabari Giri, C. Venkatasessaiah et R. Velmurugan, 2003. *Analysis of surface degradation of high density polyethylene (HDPE), Insulation Material due to Tracking*. 27(3), pp. 251–262. Indian.
- [26] Imtiaz Afzal Khan, Kang Hoon, 2022, *Degradation analysis of polymeric pipe materials used for water supply systems under various disinfectant conditions*, *Chemosphere*. 291(1). <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2021.132669>
- [27] Randová A, Bartovská L, 2017, *Nouvelle approche pour la description des phénomènes de sorption et de gonflement dans les systèmes de membrane liquide + polymère*. *Sep Purif Technol* 179 : 475-485.
- [28] Schott H, 1992, *Cinétique de gonflement des polymères et de leurs gels*. *J Pharm Sci* 81: 467-470.
- [29] M. Lloyd Robeson. 2012, *Environmental stress cracking: A review*. <https://doi.org/10.1002/pen.23284>

- [30] M. José et al, 1999, *Rôle d'un environnement actif d'utilisation dans un test de résistance aux fissures sous contrainte environnementale (ESCR) dans du polyéthylène étiré : Une spectroscopie vibrationnelle et une étude MEB*. *Polymère*, 40(7), p 1629-1636.
- [31] M. S. Schilling, 2019, *Environmental Stress Cracking (ESC) and Slow Crack Growth (SCG) of PEHD induced by external fluids*.
<https://tuprints.ulb.tudarmstadt.de/id/eprint/11544>
- [32] Liu Yijiang et al, 2020, *A Time Dependent Process Zone Model for Slow Crack Growth of Polyethylene Pipe Material*, 1634. *Journal of Physics: Conference Series*.
<https://doi.org/DOI.10.1088/1742-6596/1634/1/012140>
- [33] X. Colin, G. Minard, 2011, *Chemical degradation of polyethylene pipes due to water-based disinfectants*. Society of Plastics Engineers (SPE).
<http://4spepro.org/pdf/003631/003631.pdf>.
- [34] I. Kuryndin, S. Kostromin, R. Mamalimov, A. Chervov, A. Grebennikov, S. Bronnikov, 2022, *Organic solvents effect on the physical and mechanical properties of polyethylene*,
<https://doi.10.22063/POJ.2021.3005.1199>
- [35] PF. Schoeffl, RW. Lang, 2015, *Effet des milieux liquides liés aux champs pétrolifères sur le comportement de croissance lente des fissures dans les matériaux de qualité des tuyaux en polyéthylène*. *Int J Fatigue* 72: 90-101.
- [36] B.H. Choi, Z. Zhou, A. Chudnovsky, S.S. Stival, K. Sehanobish, C.P. Bosnyak, 2005, *Fracture initiation associated with chemical degradation: observation and modelling*, *International Journal of Solids & Structures*, 42, p. 681-695.
<https://doi.org/10.1016/j.ijsolstr.2004.06.028>
- [37] B.H. Choi, A. Chudnovsky, R. Paradkar, W. Michie, Z. Zhou, P.M. Cham, 2009, *Experimental and theoretical investigation of stress corrosion crack (SCC) growth of polyethylene pipes*, *Polymer Degradation & Stability*, 94, p. 859-867.
<https://doi.org/10.1016/j.polyimdegradstab.2009.01.016>
- [38] P. Taylor, A. Donald, E. Kramer, R. Athene, M. Donald, et J. Kramer, 2015, *The mechanism for craze-tip advance in glassy polymers,*” no. May, pp. 37–41, 2006,
<https://doi:10.1080/01418618108239496>
- [39] *La Diffusion dans les Solides*, Ed. By Institut National de Sciences et Techniques Nucléaires. Saclay, France.
- [40] Y. Adda, J. Philibert, 1966, *La Diffusion dans les Solides*, ed. by Institut National de Sciences et Techniques Nucléaires. Saclay, France, 2, 718 p.
- [41] N. Ladaci 2015, *Effet du Vieillissement et Analyse des Mécanismes du Comportement Mécanique et Tribologique d'un PEHD*.
<http://dspace.univ-guelma.dz/jspui/handle/123456789/338>
- [42] B. Fayolle, J. Verdu, 2005, *Vieillissement physique des matériaux polymères, Technique de l'ingénieur*, AM 3150, p. 1-19.

- [43] W. Ghabeche, L. Alimi, K. Chaoui, 2019, *Degradation of plastic pipe surfaces in contact with an aggressive acidic environment*, Energy Procedia, 74, p. 351-364.
<https://doi.org/10.1016/j.egypro.2015.07.625>
- [44] J. Zhang, 2005, “*Experimental Study of Stress Cracking in High Density Polyethylene Pipes*”, Ph.D. Thesis, Drexel University.
- [45] R. Khelif, 2006, *Etude et analyse de la rupture des tubes en polyéthylène pour le transport de gaz : optimisation par la fiabilité*, Thèse Doctorat, Univ. Annaba.
- [46] E. Janis Ritums, 2004, *Diffusion, swelling and mechanical properties of polymers*. Royal Institute of Technology, Department of Fibre and Polymer Technology, S-10044 Stockholm, Sweden.
- [47] J. Cazenave, R. Séguéla, B. Sixou, Y. Germain, 2006, “*Short-term mechanical and structural approaches for the evaluation of polyethylene stress crack resistance*”, Polymer, 47, pp. 3904-3914.
- [48] Yunho Ahn, 2022, *Radio-oxidation mechanisms of polyethylene and the role of antioxidants: atomic scale simulations*. Materials Science. [cond-mat.mtrl-sci]. Thèse Doctorat, université de Paris-Saclay.
- [49] L. Alimi et al, 2019, *Experimental study of chemically aged HDPE pipe material in toluene-methanol mixture and distilled water*. Technologies and Materials for Renewable Energy, Environment and Sustainability. AIP Conf. Proc. 2123, 020006-1020006-7.
- [50] J. Baron, 2022, *Use of High Density Polyethylene (HDPE) Lined Pipelines*. Publication was prepared for the Canadian Association of Petroleum Producers (CAPP). Consulté le 06 novembre 2023.
<https://www.capp.ca/wp-content/uploads/2022/08/Use-of-High-Density-Polyethylene-Lines-Pipelines-410114.pdf>
- [51] Mahitha Udayakumar et al, 2020, *Temperature and Time Dependence of the Solvent-Induced Crystallization of Poly(l-lactide)*. Polymers, 12(5), 1065.
<https://doi.org/10.3390/polym12051065>
- [52] LA. Fillot et al, 2015, *Biofuels Barrier Properties of Polyamide 6 and High Density Polyethylene*. Oil & Gas Science and Technology – Rev. IFP Energies nouvelles, 70(2), pp. 215-390. <https://doi.org/10.2516/ogst/2013213>
- [53] R. Bekkouche, W. Ghabeche, M. Kaddeche, N. Kiass, K. Chaoui, 2009, *Mechanical behaviour of machined polyethylene filaments subjected to aggressive chemical environments*, MECHANIKA, 3 (77), p. 40-46.
- [54] José Roberto d'Almeida, 2011, *Aging of HDPE Pipes Exposed to Diesel Lubricant*, Polymer-Plastics Technology and Engineering.
<https://doi.org/10.1080/03602559.2011.578297>
- [55] M. Ahart, DL. Gallagher, P. Scardina, AM. Dietrich, 2016, *Industrial Spills and Water Distribution: Crude MCHM Sorption and Desorption in Polymer Pipes and Linings*. J. Environ Eng. ASCE., 142(10):1–9.

[https://doi.org/10.1061/\(ASCE\)EE.1943-7870.0001116](https://doi.org/10.1061/(ASCE)EE.1943-7870.0001116)

[56] C. Gagnard, Y. Germain, 2004, *Permeability of Semi-crystalline Polymers to Toluene/Methanol Mixture*. Journal of Applied Polymer Science, Vol. 92, 676 – 682.

<https://doi.org/10.1002/app.20184>

[57] Y.J. Weitsman, 1995, *Effect of Fluids on Polymeric Composites - a Review*, Report MAES. 95-1.0 CM.

<https://doi.org/10.1007/978-1-4614-1059-1>

[58] J. Crank, 1975, *The mathematics of diffusion*, Clarendon Press, Oxford, 2nd Ed. 414 p.

http://wwweng.lbl.gov/~shuman/NEXT/MATERIALS%26COMPONENTS/Xe_damage/Crank-The-Mathematics-of-Diffusion.pdf

[59] M. Erdmann, U. Niebergall, V. Wachtendorf, M. Böhning, 2020, *Evaluation of UV-induced embrittlement of PE-HD by Charpy impact test*, J. Appl. Polym. Sci., vol. 137, no. 36, pp. 1–14.

<https://doi.org/10.1002/app.49069>

[60] D1693 – 15. *Standard Test Method for Environmental Stress-Cracking of Ethylene Plastics*, 2015.

[61] Ivan Kuryndin, Sergei Kostromin, 2021, *Organic solvents effect on the physical and mechanical properties of polyethylene*. Polyolefins Journal, 9, (1).

<https://doi.org/10.22063/POJ.2021.3005.1199>

[62] S. Krimm, CY. GBBM. Liang, 1956, *Infrared Spectra of High Polymers. II. Polyethylene*. The American Institute of Physics. 25 : 549-562.

<https://hdl.handle.net/2027.42/70535>

[63] G. Pinter, M. Haager, R.W. Lang, 2007, *Influence of nonylphenol–polyglycol–ether environments on the results of the full notch creep test*, J. Polymer Testing, 26, p. 700-710.

<https://doi.org/10.1016/j.polymertesting.2007.01.010>

[64] W. Ghabeche , K. Chaoui, 2021, *Revue des interactions physico-chimiques du polyéthylène extrudé sous forme de tubes avec des environnements agressifs Environmental Stress Cracking of High Density Polyethylene Pipes : Rev. Sci. Technol., Synthèse Vol 27*.

<https://www.ajol.info/index.php/srst/article/view/220705/208256>

CHAPITRE II
PROCEDURES EXPERIMENTALES

II.1. Introduction

En raison de la longue histoire de l'évolution des polyéthylènes, la première génération en 1950, la deuxième génération la génération des années 1970 (PE 80), la troisième génération à la fin des années 1980 (PE 100) et PE 125 d'ici 2011. Il est maintenant possible d'en avoir un bon PE, alignement entre résistance, rigidité, robustesse et durabilité sous contrainte à long terme Service sous l'influence de la charge du sol et de l'environnement [1]. L'utilisation de polyéthylène à haute densité est devenue le premier choix dans le domaine des tubes à pression, destinés pour les systèmes de distribution du gaz [2].

Des recherches axées sur le processus de fabrication conçu pour passer de l'extrusion à l'installation [3]. Autres études pour évaluer la biodégradation facteurs internes des canalisations en service et évolution de leurs performances chimique et physique. Les tuyaux en HDPE réussissent dans les applications de transfert de fluides [4-6].

Pour gérer les polymères et leur comportement, il est important de connaître les paramètres importants relatifs aux propriétés mécaniques des polymères, qui peuvent être liés au polymère, ainsi qu'aux conditions de mise en œuvre, la formulation du polymère (l'extrusion) et de sollicitation ou d'environnement (température, pression, milieu environnant et les conditions d'utilisation [3,7].

Que signifie la caractérisation des matériaux? L'analyse des matériaux permet aux scientifiques d'approprier la structure d'un matériau, le rapport entre cette structure et ses caractéristiques à grand degré, pareillement sa signification dans les applications technologiques. La caractérisation des matériaux consiste à apprécier et exposer les propriétés chimiques, physiques, thermiques, mécaniques et distinctes caractéristiques de divers matériaux. Elle autorise à étudier les caractéristiques, la synthèse et la structure, le traitement des matériaux afin de créer de nouveaux types avec des exploits supérieurs.

La caractérisation de matériaux est effectuée pour connaître la compatibilité du matériau avec l'emploi finale du produit ; l'évolution du matériau dans le temps ou face à variés environnement et solution, conformité des matériaux vis-à-vis des normes en résistance du produit et la performance du matériau finale (produit).

Pour concevoir un matériau, il est inévitable de le caractériser, c'est-à-dire d'étudier ses propriétés. Il y a une subdivision de méthodes pour caractériser les matériaux, fondées sur varié principes physiques fondamentaux : les interactions entre le rayonnement et la matière, la thermodynamique et la mécanique. La caractérisation thermique des matériaux permet d'estimer leur comportement en fonction de la température si la nature et la transaction des

éléments distinctifs des matériaux permettent de les caractériser d'un point de vue chimique et structural [8].

II.2. Matériau

Le matériau utilisé dans cette étude est un tuyau en polyéthylène haute densité fabriqué à partir d'une résine HDPE-100 pigmentée en noir de carbone. Il est extrudé avec un diamètre extérieur de 200 mm et une épaisseur de 11,4 mm ($SDR=17,6$). Chaque pièce à travailler est une portion de tuyau de 300 mm (*figure II.1*). Cette canalisation est destinée au transport et à la distribution de gaz naturel en milieu urbain. Il est acheté auprès de la Cie *CHIALI* (Sidi Bel-Abbès, Algérie). Il est conçu selon les normes européennes et algériennes (*EN 1555-2* et *NA 7591-2*) pour les réseaux moyens pression (4 bars) et peut résister à des essais de 6 à 10 bars manométriques.



Figure II. 1. Pipe HDPE sur tour universel.

II.3. Procédure expérimentale

II.3.1. Usinage des éprouvettes

II.3.1.1. Usinage des éprouvettes d'essai de traction par chariotage

a) Montage du tube HDPE sur le tour

Une succession d'opérations de tournage orthogonal est programmée sur une pièce en tube. Un mandrin en bois est fabriqué afin de renforcer le maintien de la pièce en HDPE (*figure II.2(a)*). Deux embouts en acier doux sont conçus pour fixer les deux côtés de l'ensemble (tube-mandrin en bois) afin de garantir l'élimination de tout mouvement radial indésirable pendant le fonctionnement (*figure II.1*). Les dimensions de la géométrie de base du système et de ses parties usinées sont régulières et vérifiables tout au long de la progression expérimentale. Les expériences de tournage sont réalisées dans des conditions sèches en utilisant un tour parallèle *SN-40* ayant une puissance de broche de 6,6 kW. La

Chapitre II : Procédures expérimentales

combinaison de la plaquette et du porte-outil permettait des angles de coupe négatifs et positifs γ (-6° et 15°), l'angle de dépouille α (6°), l'angle d'inclinaison λ (6°) et l'angle de coupe κ_r (30° , 60° et 90°).

b) Moyens expérimentaux

La mesure des critères de rugosité (R_a et R_t) pour chaque condition de coupe est obtenue via un *rugosimètre Surftest 301 Mitutoyo*. La longueur examinée est de 4,0 mm avec une portée de base de 0,8 mm. La température mesurée à l'aide d'une application développée sur un téléphone intelligent [9], une configuration spéciale calibrée est réalisée en laboratoire pour suivre les changements de température (*figure II.b*). Un outil en carbure *K20* est utilisé dans cette recherche car le HDPE est un matériau mou et ne nécessite pas d'outil de coupe spécial (*figure II.c*).

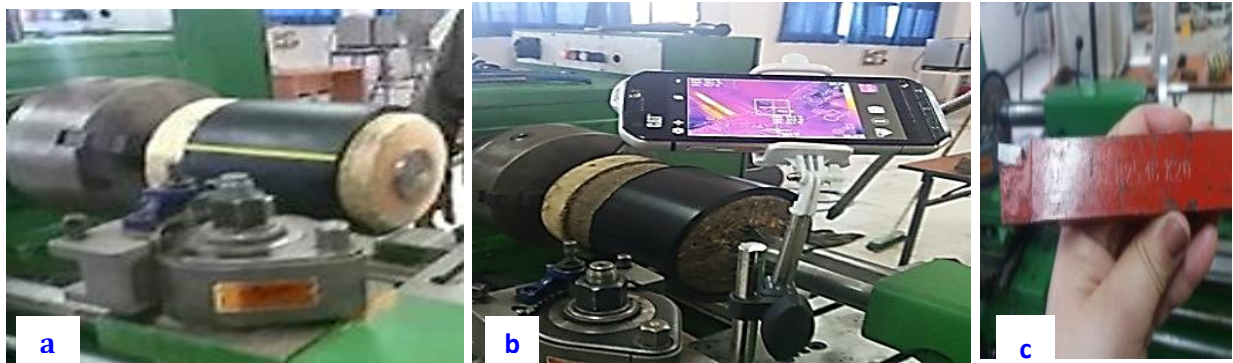


Figure II. 2 a) Configuration expérimentale du charitage. b) téléphone intelligent (smartphone CAT) c) Outil de coupe

En principe, pour un filament usiné donné, les mesures sont répétées 3 fois.

c) Description du paramètre (L)

Habituellement, les copeaux de polymère ou les filaments obtenus par enlèvement de la matière plastique, sont considérablement déformés et inclinés en raison des contraintes et des déformations imposées par l'avance de l'outil de coupe et la rotation de la pièce. À partir de tests préliminaires, la *figure II.3* montre trois (3) parties de filament courbées et deux (2) parties relativement droites ; les deux lots sont obtenus dans des conditions différentes. Afin de permettre d'effectuer des tests de traction acceptables sur de tels filaments, il est conseillé de minimiser la frisure lors de l'usinage. Par conséquent, un critère géométrique (L) est également combiné avec des paramètres de sortie afin de réduire la courbure latérale du filament.

Chapitre II : Procédures expérimentales

Généralement, ces copeaux supplémentaires de matériau sont le résultat d'une déformation plastique due au processus de coupe et sont fortement influencés par la vitesse d'avance et d'autres paramètres du semi-cristallin [10-12]. Le paramètre (L) est mesuré, dans les mêmes conditions particulières, en utilisant l'écart normal d'une longueur de 70 mm de tangente au filament.

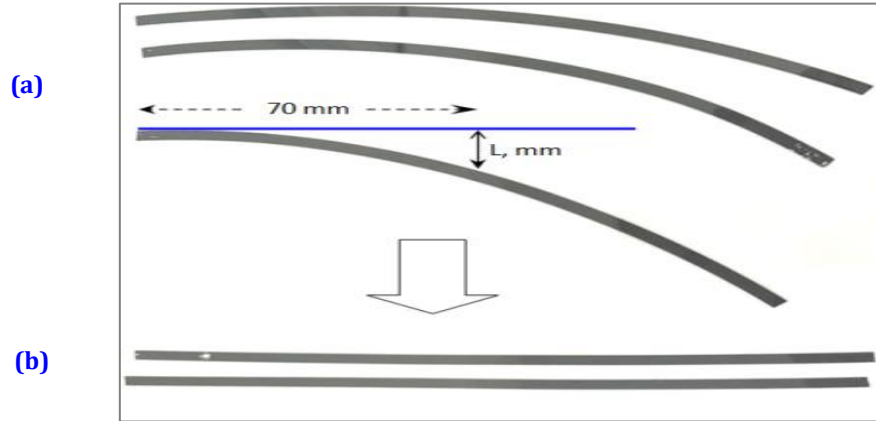


Figure II. 3. Description du paramètre (L) à partir de photos à faible contraste de filaments HDPE usinés ; (a) grande et (b) courbure très faible.

d) Paramètres de coupe

Afin de lancer l'étude, un plan expérimental est choisi. Il se compose de 18 essais, est basé sur trois niveaux et cinq facteurs (c'est-à-dire les paramètres d'usinage) comme indiqué dans le [tableau II.1](#). Les paramètres de sorties (température de coupe, critères de rugosité totale et moyenne arithmétique et hauteur de courbure du filament) sont mesurées après les opérations de tournage, en utilisant le réseau orthogonal à niveaux mixtes *Taguchi L18*.

Tableau II. 1. Paramètres de coupe et leurs niveaux

Level	V_c (m/min)	f (mm/rev)	a_p (mm)	γ (°)	κ_r (°)
1	100	0.37	2	-6	30
2	140	0.53	3	-	60
3	560	0.67	4	15	90

Dans ce travail spécifique, les copeaux de polymère sont destinés à servir d'éprouvettes mécaniques pour une étude ultérieure de l'hétérogénéité des propriétés conférée par le processus d'extrusion du tuyau en HDPE. Ainsi, les principales conditions imposées au procédé d'obtention du filament sont la continuité et la régularité du copeau, une température de coupe inférieure à 40°C et le moins de déformations possible. Enfin, le processus de fabrication de la configuration finale souhaitée de l'éprouvette doit tirer des paramètres d'usinage optimaux.

Chapitre II : Procédures expérimentales

Il est établi que l'influence de la vitesse sur la température de coupe et la rugosité de surface s'exprime par des effets opposés. Dans ce scénario, il est avantageux de conserver une vitesse de coupe relativement élevée, mais cela ne permet pas d'abaisser la température de coupe comme indiqué dans les directives d'usinage des polymères [13-15] ont montré que la rugosité d'un polyamide thermoplastique en fonction de la vitesse V_c ou de l'angle de coupe γ passe par un minimum établi par des essais en atelier.

Par conséquent, les variables de processus et leurs niveaux sont choisis dans les intervalles de travail recommandés par les fabricants d'outils de coupe et à partir des données d'usinage publiées des thermoplastiques [13-18]. Dans cette étude, cette phase critique est corroborée par certains essais préliminaires en laboratoire et par la littérature expérimentale disponible dédiée à l'usinage du HDPE [13,19-21]. Il est entendu que les variables de processus sélectionnées ont des effets prononcés sur la qualité des caractéristiques de sortie.

II.3.1.2. Usinage des éprouvettes d'essai de traction par gorgeage

a) Installation du tube HDPE sur le tour

Comme il a été mentionné précédemment, l'objectif de cette partie est de préparer des filaments pour essais de traction, et des anneaux pour essais d'absorption, dans des conditions d'usinage spécifiques afin d'étudier la répartition probable des propriétés au sein de la paroi du tube. Pour cela, il est nécessaire de trouver un dispositif de serrage adapté afin de ne pas endommager la surface du tube par les mâchoires de la broche. Par conséquent, un cylindre ou collier de serrage (*figure II.4*) auto-serrant est fabriqué pour saisir le segment de tuyau en HDPE avec une pression suffisante et permettre l'opération de rainurage selon les paramètres choisis pour l'étude d'optimisation.



Figure II. 4. Collier de serrage de PE fabriqué.

Chapitre II : Procédures expérimentales

Après avoir équilibré le segment de tuyau monté pendant la rotation, l'usinage doit être effectué progressivement, étant donné que les petits défauts de cylindricité dans les tuyaux en plastique fabriqués sont courants et sont tolérés jusqu'à une certaine limite standard. Il est essentiel de noter que toute portion continue de copeaux endommagée ou perdue en raison de problèmes de cylindricité est enregistrée, pour être prise en compte lors de l'identification de la longueur réelle du toron obtenu à la fin d'une opération de rainurage.

Chaque étape de coupe fournit un long copeau continu (c'est-à-dire un filament), en plus d'un anneau de tuyau ayant une largeur préfixée (entre 2 mm et 24 mm) en fonction de la nature du prochain essai mécanique. Chaque condition de découpe est réalisée plusieurs fois et seuls les filaments répondant aux exigences fixées par le protocole expérimental sont conservés. Tout filament obtenu et présentant des défauts lors de l'usinage sera rejeté, car il est censé représenter toute l'épaisseur du tube avec ses écarts mécaniques et morphologiques.

b) Moyens expérimentaux

Les expériences de rainurage sont réalisées dans des conditions sèches en utilisant la même tour parallèle *SN-40* utilisé précédemment pour le chariotage. Afin de tenir compte de la géométrie de l'outil, trois outils en carbure (type *K20*) avec différentes largeurs de coupe sont utilisés. On a réduit le plan de planification des expériences *Taguchi L27* à *L9* tout en gardant l'orthogonalité et le maximum d'informations possible (*figure II.5*).

Certains choix sont simples pour la géométrie de l'outil lors du passage des opérations de tournage aux opérations de rainurage. Finalement, un angle de coupe (γ) positif de 15° est défini et l'angle de dépouille (α) et l'angle d'inclinaison de pointe (λ) sont respectivement fixés à 6° et 0° . L'angle de direction (κ_r), est formé par l'arête de coupe et la direction d'avance. Cela affecte directement la longueur de coupe (L_c) et l'épaisseur des copeaux (ou filaments) résultants (h) [22].

Les mesures de rugosité sont effectuées dans le sens longitudinal du côté extérieur du filament à l'aide d'un rugosimètre *MITUTOYO SurfTest 301M* comme expliqué ailleurs [19, 21,22]. Deux critères de rugosité (c'est-à-dire R_a et R_t) sont choisis afin d'avoir une compréhension globale de la surface du filament facilement accessible. Ce choix est conservé pour toutes les expériences avec 3 mesures différentes à différentes positions le long du filament.

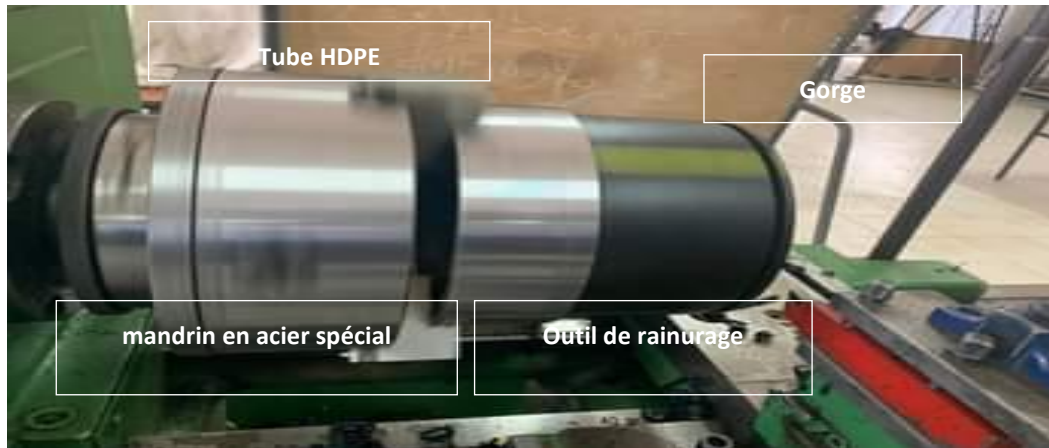


Figure II. 5. Configuration d'usinage (gorgeage)

La température de surface du filament est mesurée au plus près de la zone de coupe. Sa détermination est réalisée lors des opérations d'usinage du HDPE avec un *smartphone CAT S60* équipé d'un *capteur Lepton 2.5* pour la caméra thermique *FLIR (Forward Looking InfraRed)* (*figure II.2.b*). Avec une précision de $\pm 2^{\circ}\text{C}$, il permet des mesures la température dans la plage de -20 à 120°C avec une bonne sensibilité thermique qui s'adapte bien aux pièces mobiles [9,22,23]. Un support spécial est conçu pour fixer la caméra avec la possibilité de l'orienter selon la demande. Le support est composé de deux mécanismes : le premier permet de maintenir fermement le Smartphone sur le chariot porte-outils supérieur via un aimant de commutation et le second est un support articulé commandant les mouvements de la caméra dans trois directions.

Des tests préliminaires sont effectués pour délimiter la zone de mesure et les principaux paramètres de la scène thermique (c'est-à-dire l'émissivité, l'éloignement, la température atmosphérique, la réflexion, l'angle de mesure et la palette de couleurs). Pour chaque essai, au moins trois mesures sont effectuées pendant la période de stabilisation de l'usinage.

c) Paramètres de coupe

Étant donné que les opérations de rainurage sur des tubes en HDPE se caractérisent par un angle de direction de 90° (κr) ; par conséquent, la largeur du copeau (w) et l'épaisseur h sont respectivement identifiés par la profondeur de coupe (ap ; mm) et la vitesse d'avance (f ; mm/tr). Il convient de noter que les tuyaux commerciaux en HDPE ne sont pas parfaitement circulaires au niveau des surfaces extérieures et intérieures. Ainsi, le rainurage complet d'un

Chapitre II : Procédures expérimentales

filament continu a eu lieu après quelques révolutions initiales du tube pour corriger la cylindricité le long de son axe z.

Les trois niveaux de paramètres de coupe sont choisis sur la base de données publiée, de lignes directrices pour l'usinage des plastiques et d'études antérieures spécifiques pour des polymères poly-cristallins similaires [14,15,19,21]. Suite à une étude précédente sur le tournage du matériau des tuyaux en HDPE [22], les limites inférieure et supérieure de V_c , f et ap sont respectivement (100 – 560 m/min), (0,34 – 0,63 mm/tr) et (2 – 3 mm) alors que les niveaux intermédiaires sont de 140 m/min, 0,49 mm/tr et 4 mm comme indiqué dans le [tableau II.2](#).

Tableau II. 2. Niveaux choisis pour les paramètres de coupe

Indices	Les paramètres de coupe	Niveaux		
		1	2	3
A	Vitesse de coupe: V_c (m/min)	100	140	560
B	Vitesse d'avance: f (mm/rev)	0.34	0.49	0.63
C	Profondeur de passe: ap (mm)	2	3	4

La méthode de *Taguchi L9* réduite est appliquée à la planification des opérations de rainurage afin d'organiser et de planifier les expériences. De plus, une telle optimisation est nécessaire pour obtenir des modèles mathématiques décrivant le processus de découpe. En partant des facteurs d'entrée (V_c , f et ap) et de sortie (T , Ra , Rt et régularité du filament, L), la méthode a permis de déterminer le nombre d'essais nécessaire.

II.3.1.3. Usinage des parallélépipèdes

Des éprouvettes de HDPE-100, sous formes de parallélépipèdes, sont usinées, pour effectués des expériences d'absorption réalisées pour calculer les facteurs de diffusion des solutions étudiés dans le HDPE. Des expériences de rainurage et de découpage ont été réalisées sur le même tour universel ([figure II.6.a](#)), à l'aide d'un outil simple de rainurage de 4 mm de large ([figure II.6.b](#)).

Le processus de fabrication consistait à créer une rainure dont la profondeur est égale à l'épaisseur du tube pour usiner des anneaux ([figure II.6.c](#)). Les échantillons utilisés ([figure II.6.c](#)) dans cette étape sont des échantillons obtenus en découpant les anneaux usinés, qui sont fixées sur un dispositif fabriqué en acier du carbone ([figure II.6.d](#)), monté sur une presse, coupés par une scie en parallélépipèdes de dimensions (10x11x24 mm³).

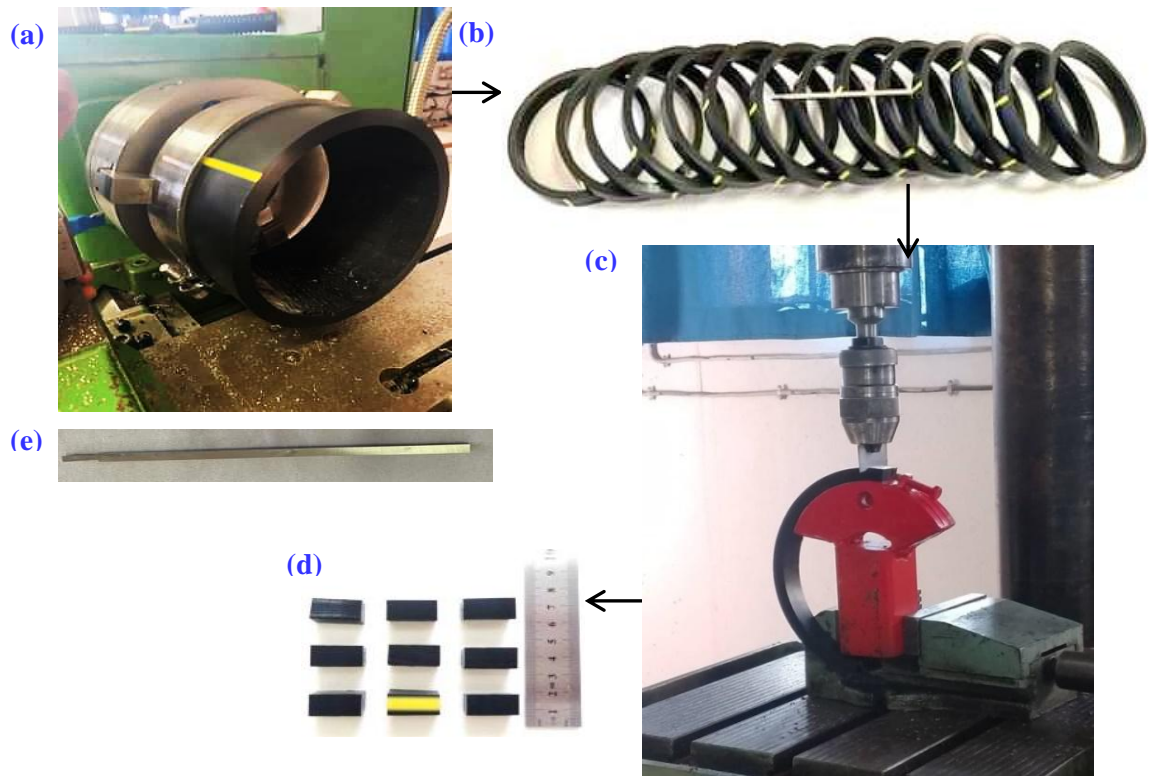


Figure II. 6. Usinage des parallélépipèdes. a) Pipe HDPE sur tour universel b) Anneaux c) Découpe des éprouvettes d) Eprouvettes. e) Outil de rainurage

II.3.2. Découpage des éprouvettes filaments

Le processus de découpage des éprouvettes est à partir d'un filament global (*figure II.7*). En effet, juste après l'usinage et l'enregistrement des paramètres de coupes, les filaments globaux peuvent être visualisés en « enroulé » *figure II.7.a*. ou des formes « brouillées » *figure II.7.b.*, qui sont influencées par les contraintes internes soulagées [24]. Ce dernier n'est pas particulièrement préféré car il augmente la probabilité d'enchevêtrements de filaments et de déformations indésirables pendant la manipulation et le stockage. Après identification des marques jaunes, mesures dimensionnelles et examen des deux points des filaments, les positions des couches sont identifiées et séparées les unes des autres (*figure II.7*).

Les couches numérotées sont considérées comme une série ayant des diamètres décroissants en allant de l'extérieur à l'intérieur du tube. En ce qui concerne le cas as-received, nous avons sélectionné toutes les couches du filament (C3-C20) dans le tableau (*annexe A.1*), tandis que pour les éprouvettes immergées dans le TM (50/50), nous avons divisé des filaments en couches et les numérotés.

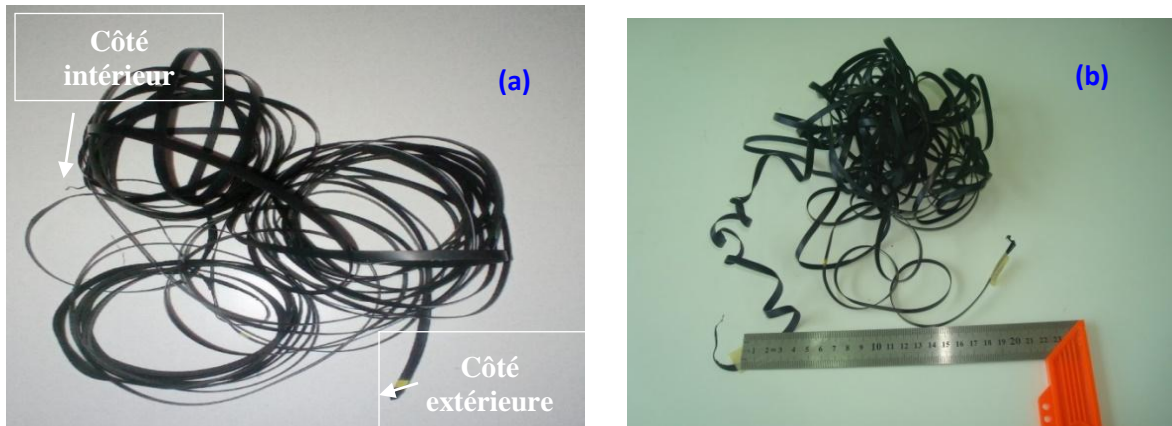


Figure II. 7. Un filament complet issu d'un rainurage représentatif de toute l'épaisseur du tube (~12 m de long). a) enroulé. b) brouillées.

Le premier filament segmenté, (C3 jusqu'au C22), les couches C1, C2, C23, C24 et C25, sont des couches perdus pendant l'usinage du filament (faux rond du tube). La couche extérieure d'un périmètre égale à 616.7 mm et l'intérieure de 569 mm. Les couches paires été immergées dans le TM 50/50 pendant 7 jours, tandis que les couches impaires été immergées pendant 90 jours, comme indiqué dans le tableau (*annexe A.2*). Les couches impairs d'un second filament (C3-C23) été sélectionnés pour être vieillis dans le TM 50/50 pendant une période de 28 jours voir (*annexe A.3*), tandis que les autres couches été utilisées pour d'autres essais expérimentaux. Le processus est identique pour le filament immergé dans TM 50/50 pendant une période de 210 jours voir (*annexe A.4*).

II.3.3. Identification des éprouvettes filaments

Après identification des marques jaunes, mesures dimensionnelles et examen des deux pointes des filaments, les positions des couches sont identifiées et séparées les unes des autres (*figure II.8*). Comme l'ensemble cumulé de couches représente l'épaisseur de la paroi du tuyau. La longueur du filament entier et d'environ 12 m. Le périmètre de chaque couche et calculé, en fonction du diamètre (variable en fonction de l'épaisseur du copeau).

Il est nécessaire d'enregistrer l'ordre séquentiel de chaque couche de l'extérieure vers l'intérieure. Et divisé chaque couche en segments. Pour une couche intermédiaire par exemple, dans les *figures II.8. a,b*, l'opération a fourni 4 à 5 échantillons efficaces et un résidu (c'est-à-dire (*figure II.8.c*); longueur de l'éprouvette < 120 mm).

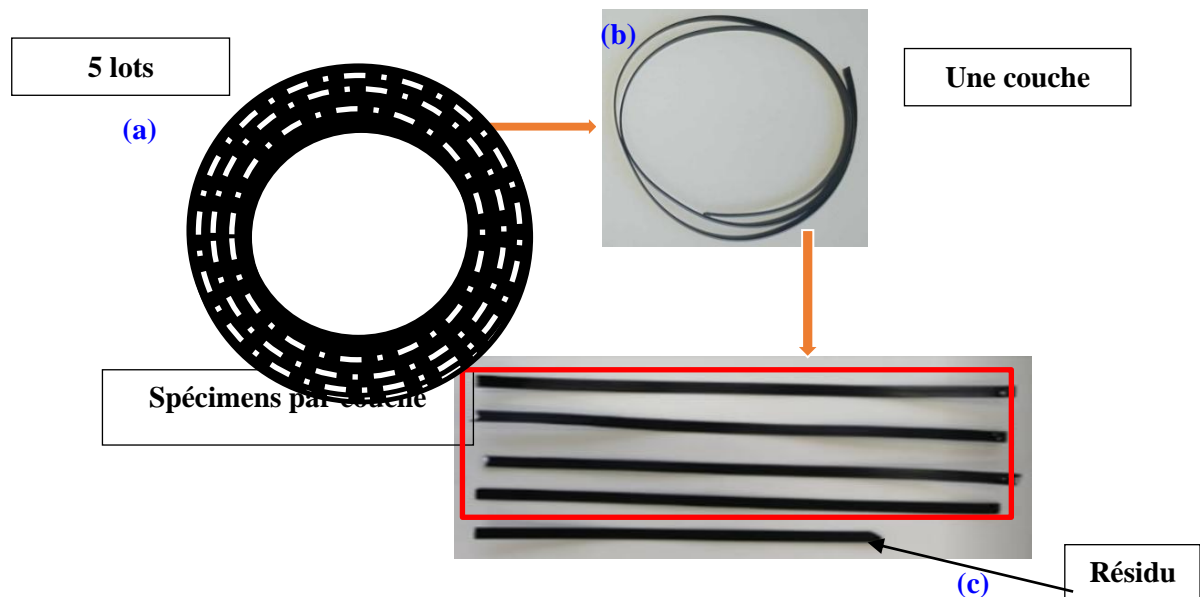


Figure II. 8. Étapes de découpage des éprouvettes de l'essai de traction: (a) Les emplacements des cinq couches sur la paroi du tube. (b) une longueur équivalente à un diamètre (Couche). (c) un ensemble d'échantillons découpés dans une seule couche.

Il est nécessaire d'enregistrer l'ordre séquentiel de chaque couche de l'extérieure vers l'intérieure. Et divisé chaque couche en segments. Pour une couche intermédiaire par exemple, dans *les figures II.8. a,b*, l'opération a fourni 4 à 5 échantillons efficaces et un résidu (c'est-à-dire (*figure II.8.c*); longueur de l'éprouvette < 120 mm). Cette opération est répétée pour la couche suivante jusqu'à ce que toutes les couches soient terminées équivalente au diamètre du tuyau à cette position radiale spécifiée. Et ensuite enregistrer l'ordre successif de chaque segment de 120 mm de long, 4 mm de largeur et 0.4 mm d'épaisseur, le numéroté, de tel qu'il apparait dans le sens des aiguilles d'une montre pour obtenir le nombre d'échantillons par couche de matériau (*annexe A-1*). Exemple : A_C7_E19 ; A : Air, C7 : la couche numéro 7 et E19, l'éprouvette numéro 19).

Pour le PE vieilli, Chaque couche, composée de 4 à 5 filaments, est immergée dans un milieu de vieillissement renfermé dans un tube de type *CBU*. Pour l'indentification de chaque éprouvette, un code composé de lettres et chiffres unique est associé à chaque éprouvette indiquant la nature du solvant, le numéro de la couche qui informe sur sa position dans la paroi, son numéro dans la série et la durée d'immersion en jours et toute autre observation utile; Exemple : TM_C4_E1_7j.

II.3.4. Environnement de vieillissement

Les solvants sont des substances qui peuvent dissoudre d'autres matières, sues sous le nom de solutés (formation de solutions). On les partage en deux catégories principales : les solvants polaires et les solvants apolaires.

Les solvants polaires indiquent des solvants qui renferment des atomes qui disposent des charges électriques plus ou moins élevées au sein de leurs molécules, comme les liaisons OH. En raison de ce partage inégal des charges, le pair atomique se transforme en dipôle. Cela leur permet de s'assembler de manière plus ou moins étroite à des produits qui eux-mêmes sont chargés, tels que certains sels organiques les sels minéraux, certains composés métalliques, les acides, les bases...

Les solvants apolaires, sont des molécules où les électrons sont distribué de manière adéquat entre deux atomes ou car les liaisons polaires sont symétriques. Ces solvants sont généralement, nuisibles et inflammables. Les huiles, les graisses et l'essence ne sont pas polaires et peuvent être solubles dans les solvants apolaires. Par exemple : Hydrocarbures aliphatiques, aromatiques, halogénés... Certaines molécules de solvants possèdent à la fois une partie polaire et une partie apolaire comme les peintures....

Dans notre étude pratique, la sorption est caractérisée par l'immersion d'échantillons de HDPE, dans les six solvants étudiés; Ethanol (E), Méthanol (M), TM (50/50), Toluène (T), Benzène (B) et Dichlorométhane (DCM), dans des conditions précises, à température ambiante, puis suivre l'évolution de sa concentration, dans le polymère, en fonction du temps. Leurs Caractéristiques présentées dans le *tableau II.3*.

Tableau II. 3. Caractéristiques des Solvants utilisés.

Solvants	Formule	Mm (g/mol)	ρ (g/cm³)	Polarité
Ethanol	C ₂ H ₆ O	46,068	0,789	Polaire
Méthanol	CH ₃ OH	32,040	0,792	Polaire
TM	(50/50)%	62.086	0.829	
Toluène	C ₇ H ₈	92,138	0,867	Apolaire
Benzène	C ₆ H ₆	78,110	0,876	Apolaire
Dichlorométhane	CH ₂ Cl ₂	84,930	1,33	Polaire

II.3.5. Protocole d'immersion des spécimens dans les solvants :

II.3.5.1. Protocole d'immersion des parallélépipèdes

Les expériences d'absorption réalisées pour calculer les coefficients de diffusion des solvants (S) étudiés ; E, M, TM 50/50, T, B et DCM, dans le HDPE ; avec la méthode

Chapitre II : Procédures expérimentales

gravimétrique : les éprouvettes sont immergées dans les solvants dans des récipients ou des bocaux en verre hermétiquement fermés, de volume suffisant pour immerger tous les échantillons (*figure II.9*), pendant les durées des expériences (7 jours, 14 jours, 21 jours 30 jours, 48 jours, 69 jours et 112 jours) Afin d'obtenir des données de sorption.



Figure II. 9. Parallélépipèdes immergés dans les solvants.

Chaque échantillon devait être pesé dans une balance électronique *OHAUS Adventurer*, ayant une précision de 0,001 g soigneusement à des intervalles de temps donnés pendant le processus de sorption. La procédure consistait à retirer l'échantillon du milieu solvant, le sécher finement avec un mouchoir, pour enlever le solvant de sa surface, le peser et le replonger dans le milieu. Le temps pris pour ce processus était d'environ 20 s. Nous notons les résultats expérimentaux. Chaque HDPE-Solvant est testé trois fois à température ambiante dans le laboratoire *LRM3* [25,26].

L'évaluation de la résistance des polymères doit impérativement faire intervenir les effets d'interaction avec les conditions d'exploitation afin de caractériser les impacts résultant de l'environnement. Cette approche est connue sous le pseudonyme d'*ESCR* (*environmental stress cracking resistance*) qui a fait l'objet de la norme *ISO 22088 (2006)*.

II.3.5.2. Protocole d'immersion des filaments

Le milieu d'étude est représenté par un solvant puissant envers les polymères. Il s'agit d'un mélange de toluène et de méthanol équimolaire (TM 50:50). Les contenants sont des tubes *CBU* en verre, étanches et assurant l'immersion complète de 4 à 5 éprouvettes appartenant à la même couche. Les durées de vieillissement des éprouvettes en HDPE sont étalées sur des périodes définies (7 ; 28 ; 90 et 210 jours).

Chapitre II : Procédures expérimentales

Il est à noter que chaque éprouvette est pesée avant et après vieillissement en utilisant une balance électronique (*OHAUS Adventurer*). Dans la procédure de pesage post-vieillessement, l'éprouvette retirée du milieu est ré-identifiée et les surfaces sont soigneusement séchées avec un papier filtre neuf (*figure II.10.a-d*).

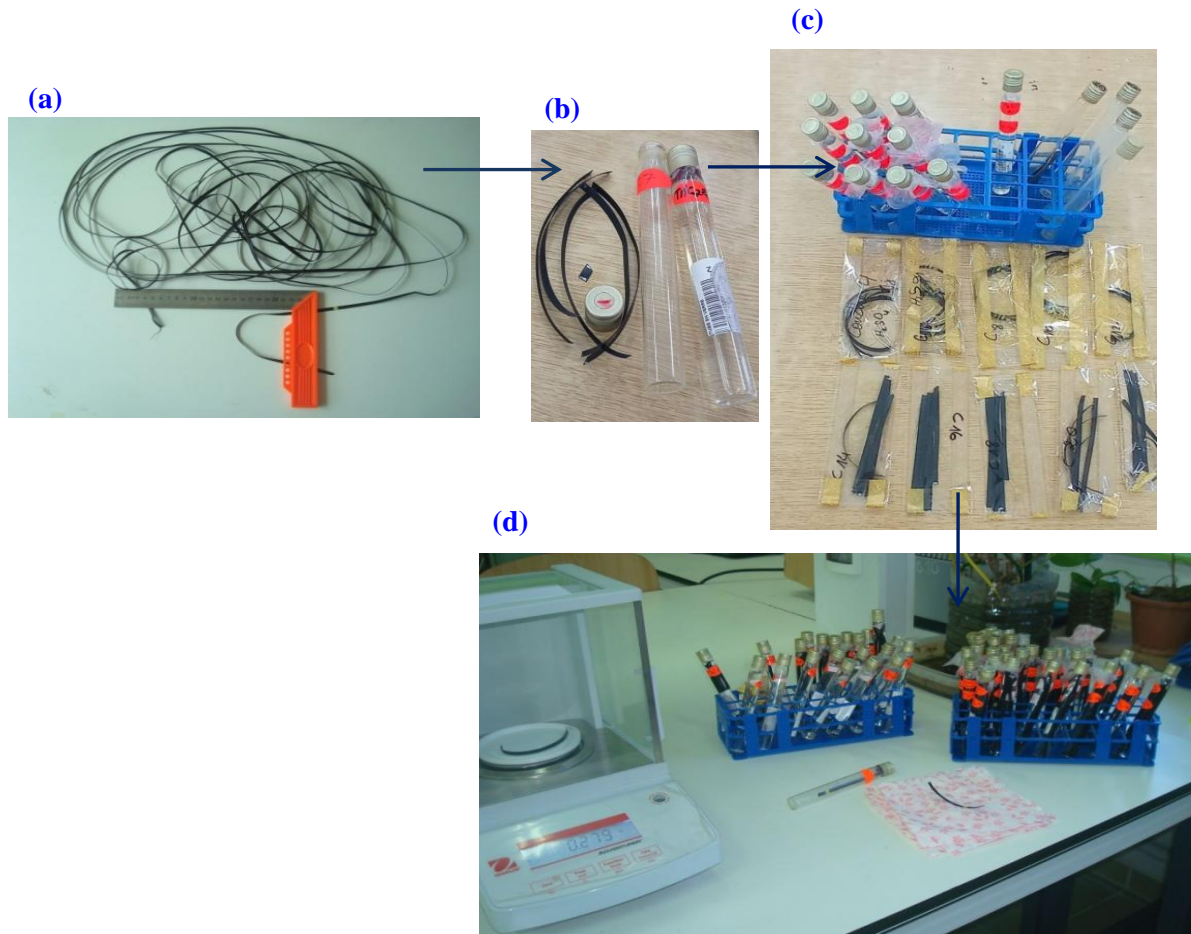


Figure II. 10. Protocol d'immersion des éprouvettes vieilles. a) Filament b) Une couche coupée+ tube ou CBU c) Tri et numérotations des spécimens d) Pesage des éprouvettes immergées

II.3.6. Caractérisation mécanique (Essais de traction)

La machine de traction est un banc d'essai destiné aux polymères. Capteur de force 50N. Accessoires spécifiques adaptés aux échantillons de filament plastique de faible épaisseur. Lors de l'essai de traction, une éprouvette en HDPE-100, est étendue jusqu'à la rupture. Les courbes contrainte-déformation ($\sigma - \epsilon$) sont obtenues à 50 mm/min, ces dernières sont obtenues sur la machine de traction universelle (*ZWICKI 1100*) contrôlée par le logiciel *TestXpert® 2.0*, comme indiqué sur la (*figure II.11*). La procédure de test précise et fiable, résultats conformes à la norme internationale. Les grandes lignes d'une validation pratique sont envisagées afin de compléter la procédure de fabrication et de test des éprouvettes de

filament. A ce stade, l'objectif principal est d'obtenir des comportements contrainte-déformation et d'analyser quelques propriétés mécaniques spécifiques pour avoir une première idée des tendances à travers la paroi du tube.

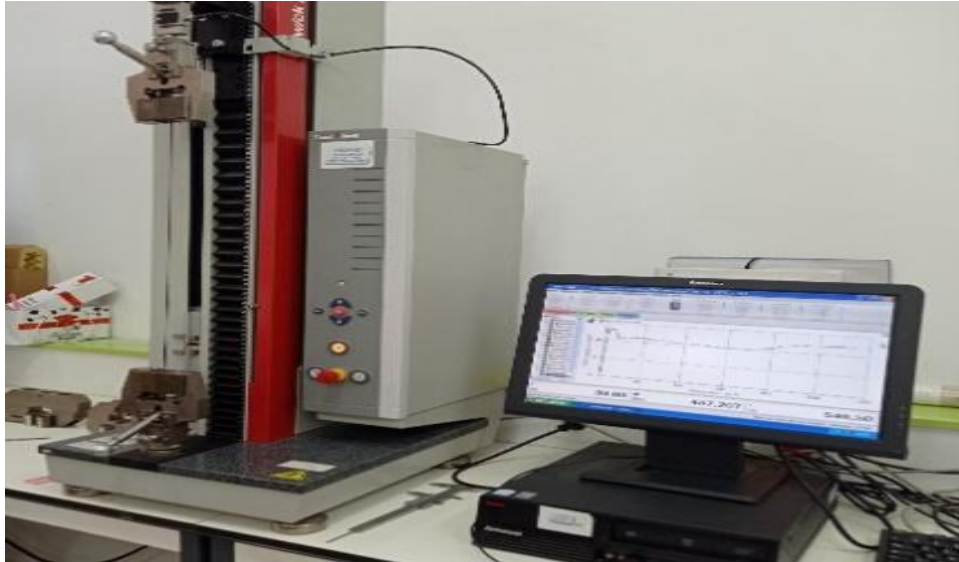


Figure II. 11. Machine d'essai de traction Zwick et système d'acquisition de données TestXpert.

L'étude du vieillissement du HDPE dans les solvants en fonction du temps et en fonction de la position à travers la paroi consiste à exécuter des essais de traction monotone selon la norme *ISO 527*. Afin d'évaluer les propriétés mécaniques avant et après vieillissements.

II.3.7. Caractérisation structurale du HDPE (*FTIR*+ *DSC*)

II.3.7.1. Caractérisation structurale du HDPE par *FTIR*

a) Spectroscopie Infrarouge à transformée de Fourier

La spectroscopie infrarouge basée sur la transformation de Fourier est un moyen de réussir le spectre d'absorption d'un échantillon solide, liquide ou gazeux. Les analyses chimiques par *FTIR* sondent la grandeur de rayonnement infrarouge absorbée par le spécimen à analyser et sont non destructrices. Cet échantillon peut être sous forme de gaz, de solide ou de liquide. Le rayonnement infrarouge (*IR*), qui est microscopique, a des longueurs d'onde supérieures à 800 nm. Une partie de la lumière est absorbée lorsqu'un prototype est croisé par un faisceau lumineux *IR*. Grâce à cette absorption, nous pouvons identifier l'existence de groupements d'atomes différents. Le rayonnement infrarouge excite des mouvements de pulsation internes dans les molécules. Les pics et les bandes d'absorption du spectre sont la conséquence de ces vibrations [25-28].

Chapitre II : Procédures expérimentales

Le nombre d'onde (l'inverse de la longueur d'onde) en (cm^{-1}), en abscisse, la transmittance (ou l'absorbance) en (%) en ordonnée. La *FTIR* est principalement utilisée pour, identifier un dépôt ou une pollution, identifier la nature d'un polymère ou d'un additif. Étudier comment un matériau évolue au fil du temps (migration, oxydation, changement d'état...). Les données sur un spectre large peuvent être collectées collectivement à l'aide d'un spectromètre *FTIR* agréé. Ceci lui confère un avantage distinct par rapport aux spectromètres à dispersion, qui ne peuvent mesurer l'intensité qu'à un instant précis dans une gamme limitée de longueurs d'onde [28].

La compréhension des vibrations d'une molécule acquiesce de l'identifier de façon évidente et d'étudier indirectement les transmutations de son comportement en fonction de son environnement. On peut analyser les vibrations des liaisons d'un polyéthylène en usant la lumière infrarouge (*IR*) (*annexe A.5*). Grâce à ce procédé, il est éventuel de localiser les mouvements moléculaires propres aux interactions chimiques présentes dans le polyéthylène. Il est possible d'examiner les vibrations des liaisons *C-H* et *C-C* dans le spectre d'absorption infrarouge du polyéthylène. Le rayonnement infrarouge stimule des modes de vibrations (déformation d'angles, élongation de liaisons chimiques) qui sont caractéristiques de la molécule étudiée et révélateurs de sa présence [27-28] (Tableau Bandes d'absorption et liaisons. *annexe A.5*).

L'analyse structurale a été exécutée avec un Spectromètre Infrarouge à Transformée de Fourier (*IRAFFINITY-15 SHIMADZU*) (*figure II.12*), sur de petits échantillons de HDPE, en tenant compte de trois paramètres :

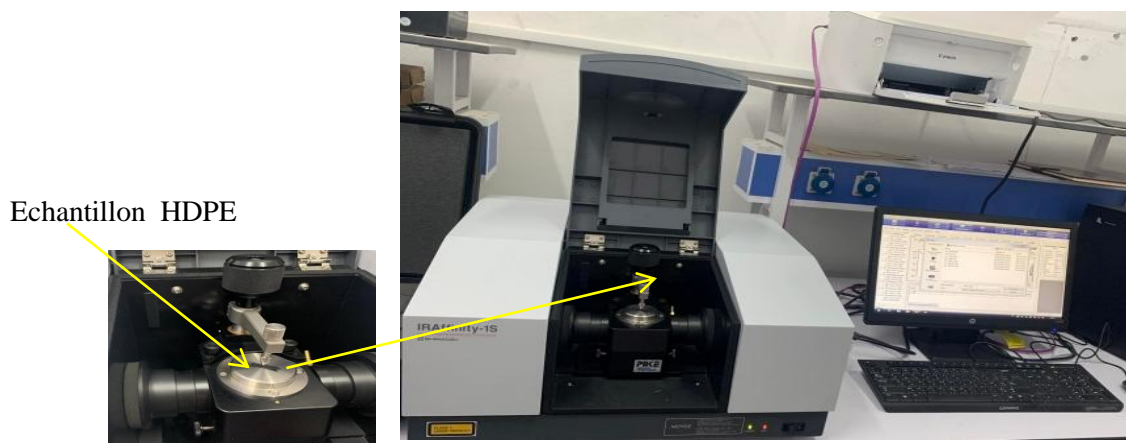


Figure II. 12. Spectromètre infrarouge a transformé de Fourier (IRAFFINITY-15 SHIMADZU).

Chapitre II : Procédures expérimentales

(i) les deux milieux d'étude : (Air (As-Received) *chapitre V*, Toluène-Méthanol (50/50) *chapitre VI*), (ii) les trois emplacements à travers la paroi (extérieure, médium et intérieure) et (iii) les durées d'immersion dans les solvants (7j, 28j, 90j et 210j). Les essais réalisés au Laboratoire de recherche en sciences et technologie de l'eau et de l'environnement, *université mohamed chérif messadia souk-ahras*.

b) Spectre vierge du polyéthylène

Pour lire ou expliquer un spectre *IF* (*infrarouge fourier transform*) pour le polyéthylène, il est important d'appréhender les caractéristiques et les bandes d'absorption spécifiques de ce matériau. Le spectre *IF* du polyéthylène est fréquemment sectionné en trois primordiales régions d'absorption : la région des groupes *CH* ($3000-2800\text{ cm}^{-1}$), la région des groupes *CH₂* ($1470-1375\text{ cm}^{-1}$) et la région des groupes *CH₃* ($1375-1350\text{ cm}^{-1}$). Dans la région des groupes *CH*, on peut observer une forte absorption, autour de 2900 cm^{-1} , qui correspond aux vibrations des groupes *CH* de la chaîne principale du polyéthylène. Cette absorption est généralement large et intense. Dans la région des groupes *CH₂*, on peut observer une absorption caractéristique autour de 1460 cm^{-1} , qui correspond aux vibrations de déformation des groupes *CH₂*. Cette absorption est généralement plus étroite et moins intense que celle de la région des groupes *CH*. Dans la région des groupes *CH₃*, on peut observer une absorption autour de, 1370 cm^{-1} , qui correspond aux vibrations de déformation des groupes *CH₃*. Cette absorption est généralement plus faible que celles des régions précédentes. Il est important de noter que l'interprétation précise d'un spectre *IF* nécessite une connaissance approfondie de la spectroscopie infrarouge et des caractéristiques spécifiques du matériau étudié. [31-32], (*annexe A.6*).

II.3.7.2. Caractérisation structurale du HDPE par DSC

c) Calorimétrie Différentielle à Balayage

DSC est un moyen de caractériser la stabilité d'une biomolécule directement sous sa forme native et permet de déterminer les proportions de phases cristallines et amorphes incluses dans un modèle. La mesure de la modification de chaleur liée à la dénaturation thermique de la molécule lorsque celle-ci est échauffée à vitesse constante est usée pour cette spécification. La calorimétrie différentielle à balayage est l'une des procédés fréquemment utilisées pour étudier ces propriétés thermiques et leurs conversions en fonction de la température. Cette façon de caractérisation des matériaux, également appelée *differential scanning calorimetry (DSC)*, permet de mesurer le flux de chaleur absorbé ou délibéré par un échantillon lorsqu'il est soumis à

Chapitre II : Procédures expérimentales

un profil de température défini dans une atmosphère examinée, exigeant l'utilisation d'étalons certifiés dont la température et l'enthalpie de transition sont connues. Les usages de la *DSC* sont très variés, y compris la pureté d'un produit, la température de transition vitreuse, la fusion ou la cristallisation d'un matériau (*ISO 11357*), la spécification d'un matériau polymère, la grandeur d'énergie nécessaire pour fondre une matière, l'étude de l'équilibre d'un polymère sous oxygène en déterminant le temps d'induction à l'oxydation *TIO* (*NF EN 728*) [2-32].

Le calorimètre d'un système *DSC* est composé de deux cellules : une cellule de référence et une cellule de mesure contenant l'échantillon. Le système est conçu pour maintenir les deux cellules à une température constante tout en les chauffant. Sous atmosphère contrôlée, le flux thermique (puissance thermique) est mesuré en fonction du temps ou de la température pendant le chauffage ou le refroidissement de l'échantillon (*figure II.13*).

Les deux cellules
(creusets)



Figure II. 13. Technique DSC

d) Principe de mesure

L'enthalpie (ΔH) qui résulte d'un changement de conformation provoqué par une augmentation de la température est mesurée par la *DSC*. Elle peut également être utilisée pour calculer la variation de capacité calorifique (C_p) liée à la dénaturation. La *DSC* permet d'identifier les éléments qui contribuent au repliement et à la stabilité des biomolécules natives. La chaleur modifie la conformation des macromolécules, qui peuvent former des structures tridimensionnelles bien définies. En raison de la répartition des liaisons non covalentes, ces réarrangements structuraux sont interprétés comme une absorption de chaleur. Cette absorption de chaleur est mesurée par calorimétrie différentielle à balayage. En pratique, on mesure la différence de flux thermique entre un creuset de référence vide et un creuset contenant l'échantillon dans la cellule de mesure. Ensuite, ces cellules sont chauffées à une vitesse constante. [33]. Le flux thermique entre chaque creuset et four est conforme pour la référence à:

$$(dq / dt)_r = C_r dT / dt \quad (II.1)$$

Et pour le prototype à :

$$(dq / dt)_s = C_s dT / dt + (dh / dt) \quad (II.2)$$

C_r, C_s : sont la capacité calorifique de l'exemplaire et de la référence.

dh/dt : est la puissance thermique absorbée ou relâchée par le spécimen pendant la réaction ($dh/dt > 0$ endothermique et $dh/dt < 0$ exothermique). [34].

e) Déroulement de l'essai

Les mesures ont été réalisées au *CERTES, IUT Créteil-Vitry, Paris*, à l'aide d'un analyseur enthalpie différentiel de modèle *SETARAM* ; qui se compose de deux récipients. Dans l'un des deux, le récipient témoin, vous mettez votre échantillon de polymère. L'autre, que vous laissez vide, est le récipient de référence. Les deux récipients se trouvent dans un four qui est chauffé à une certaine vitesse de montée. Chaque récipient contient un thermocouple relié à un ordinateur. L'ordinateur fait la différence entre la température de l'échantillon et celle de référence, et les convertit en flux de chaleur. Mesurer la quantité de chaleur supplémentaire à fournir au récipient témoin est ce que nous mesurons lors d'une manipulation *DSC* (*figure II.13*).

On générale, voici ce que nous réalisons lors d'une manipulation *DSC* : Sur l'axe des abscisses nous traçons la température (du four). Sur l'axe des ordonnées nous traçons la différence de chaleur entre les deux récipients, témoin et référence.

Types d'échantillons à utiliser:

- Les spécimens sont placés dans des creusets de rayon 3 mm, avec un excellent contact thermique entre l'échantillon et le creuset.
- Les échantillons doivent avoir une masse de (10-20) mg.

Pour notre étude, les mesures, pour les prototypes de référence As-Received (*chapitre V* vieilli (TM 50/50) *chapitre VI*). Des masses de (10 – 11) mg de polyéthylène prises des trois couches du pipe ont été encapsulées dans des creusets en aluminium scellées (*Standard Lid et Pan de TA Instruments*) avant d'être chauffées de -20°C à 180°C avec une vitesse de montée de 10°C/min.

II.4. Conclusion

Quand un matériau plastique entre en contact avec des fluides, la problématique du vieillissement induit par la propagation de ces fluides à l'intérieur du polymère est fréquente,

le fluide se répandant dans l'espace libre existant entre les chaînes polymériques. Le vieillissement est fréquemment associé à des problèmes tels que le gonflement, la plastification et la microfissuration. Cette recherche a envisagé et estimé les transformations du comportement mécanique et physico-chimique d'un HDPE, en fonction de la durée d'exposition au solvant à travers le mur du pipe. Cette étude a pour but principal d'usiner plusieurs sortes de spécimens, pour des essais de caractérisations et d'analyser les effets du vieillissement accéléré dans les solvants sur les changements dans la structure les propriétés d'un polyéthylène de haute densité, utilisé au transport des gaz à pression élevée, par l'intermédiaire d'une approche constituée d'analyses mécanique et chimique. L'évolution de la dégradation prend en considération, le facteur temps d'exposition à travers la paroi de tuyaux après vieillissement.

Références bibliographiques

- [1] Jean-Marie Michel, 2006, *Histoire industrielle des polymères l'actualité chimique* - n° 300
- [2] M. Boudrahem , A. Belbah , O.Kirati, 2014, *Etude de Vieillissement d'un Polyéthylène de haute Densité (PEHD 100) Utilisé dans les Conduites à Gaz Sous Pressions Journal of Materials, Processes and Environment* May edition, 2(1). ISSN : 2335-1020.
<https://www.asjp.cerist.dz/en/PresentationRevue/284>
- [3] Min NIE, QI Wang, Shi Bing Bai, Zhi Li et Anyun Huang. 2013, *The Formation and Evolution of the Hierarchical Structure of Polyethylene Pipe During Extrusion Processing*. *Macromolecular Science*, 3:205–216.
<https://doi.org/10.1080/00222348.2013.810092>
- [4] Imtiaz Afzal Khan, Kang Hoon, 2022, *Degradation analysis of polymeric pipe materials used for water supply systems under various disinfectant conditions*, *Chemosphere*. 291(1).
<https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2021.132669>
- [5] X. Colin, G. Minard, 2011, *Chemical degradation of polyethylene pipes due to water-based disinfectants*, *Society of Plastics Engineers (SPE)*.
<http://4spepro.org/pdf/003631/003631.pdf>.
- [6] Acioli-Moura. R. Acioli-Moura, X.S. Sun, 2008, *Thermal degradation and physical aging of poly(lactic acid) and its blends with starch*. *Polymer Engineering & Science*, 48(4), 829–83
- [7] N. Billon, JL. Bouvard, 2015, *Propriétés et comportement mécanique des polymères thermoplastiques*. *Techniques de l'Ingénieur*, 26p. AM3115. (hal-01259577).
- [9] Alain Boudet, 2005, *Voyage ou Cœur de la Matière Plastique* ; CNRS.
- [8] M. Charles Hansen, 1999, *Hansen solubility parameters: a user's handbook*, ISBN 0-8493-1525-5, 99-26234.

- [9] Y. Yan, Y. Mao, B. Li, P. Zhou, 2020, *Machinability of thermoplastic polymers: PEEK, PI, and PMMA*. *Polymers (Basel)*, 13 (1): 69-83.
<https://doi.org/10.3390/polym13010069>
- [10] AI. Khuri. S. Mukhopadhyay, 2010, *Response surface methodology*. *WIREs Computational Statistics*, 2(2): 128-149.
<https://doi.org/10.1002/wics.73>
- [11] G. Reichenbach, M. Bohley, FJP. Sousa Fabio, J. Aurich, 2018, *Micromachining of PMMA—manufacturing of burr-free structures with single-edge ultra-small micro end mills*, *Int. J. Adv. Manuf. Technol.* 96:3665–3677.
<https://doi.org/10.1007/s00170-018-1821-4>
- [12] K. Giasin, S. Ayvar-Soberanis, 2016, *An Investigation of Burrs, Chip formation, Hole Size, Circularity and Delamination during Drilling Operation of GLARE using ANOVA*, *Composite Structures*, 59:745-760.
<http://dx.doi.org/10.1016/j.compstruct.2016.10.015>
- [13] WJ. Carr, C. Feger, 1993. *Ultraprecision machining of polymers*. 15, 4: 221-237.
[https://doi.org/10.1016/0141-6359\(93\)90105-J](https://doi.org/10.1016/0141-6359(93)90105-J)
- [14] Mitsubishi Chemical Group, *Guide To Machining Plastic Parts, Metric System. Machinist's Toolkit*. (Consulted on 6 Sept. 2023).
<https://www.mcam.com/mam/41701/MCG-Machinist-Toolkit-A4-EU-metric.pdf>
- [15] G. Sutter, 2005, *Chip geometries during high-speed machining for orthogonal cutting conditions*. *International Journal of Machine Tools and Manufacture*, 45(6), 719–726. 10
<https://www.sciencedirect.com/science/article/abs/pii/S0890695504002482>
- [16] JP. Davim, LR. Silva, A. Festas, AM. Abrão, 2009, *Machinability study on precision turning of PA66 polyamide with and without glass fiber reinforcing*. *Materials and Design*, 30(2): 228-234.
<https://doi.org/10.1016/j.matdes.2008.05.003>
- [17] A. Chabbi, MA. Yallese, M. Nouioua, I.Meddour, T. Mabrouki, F. Girardin, 2017, *Modeling and optimization of turning process parameters during the cutting of polymer (POM C) based on RSM, ANN, and DF methods*, *Int. J. Adv. Manuf. Technol.*; 91: 2267–2290.
<https://doi.org/10.1007/s00170-016-9858-8>
- [18] A. Azzi, L. Boulanouar, A. Laouisi, 2022, *Modeling and optimization of machining parameters to minimize surface roughness and maximize productivity when turning polytetrafluoroethylene (PTFE)*. *Int. J. Adv. Manuf. Technol.* 123: 407–430.
<https://doi.org/10.1007/s00170-022-10160-z>
- [19] N. Hamlaoui, S. Azzouz, K. Chaoui, Z. Azari, M.A. Yallese, 2017, *Machining of toughpolyethylene pipe material: Surface roughness and cutting temperature optimization*, *Int. J. Adv. Manuf. Technol.*, 92 (5-8), p. 2231-2245.
<https://doi.org/10.1007/s00170-017-0275-4>

Chapitre II : Procédures expérimentales

- [20] JLC. Salles, MTT. Gonçalves, 2002, *Effects of machining parameters on surface quality of the ultra-high molecular weight polyethylene (UHMWPE)*, *Materia*, 8 (1): 1-10. <http://www.materia.coppe.ufrj.br/sarra/artigos/artigo10119/10119.pdf>
- [21] Cat. S60 Smartphone, User Manual. Caterpillar, 2016. <https://www.catphones.com/download/User-Manuals/S60-Smartphone/S60-User-Manual-English.pdf>
- [22] S. Mammeri, K. Chaoui, K. Bouacha, 2023, *Manufacturing of testing specimens from tough HDPE-100 pipe: Turning parameters optimization*, *JRESM*, (10):513-536". <http://dx.doi.org/10.17515/resm2023.38ma0714rs>
- [23] S. Mammeri, K. Bouacha, K. Chaoui, W. Ghabeche, K. Berkas, 2024, *Filament Manufacturing via External Grooving of an HDPE Pipe Wall: RSM Optimization and Mechanical Tests Validation*, *JRESM*. <http://dx.doi.org/10.17515/resm2024.150me0714rs>
- [24] Y. Patel, 2008. *The Machining of Polymers*. Ph.D. Dissertation, Imperial College London, UK. <https://spiral.imperial.ac.uk/bitstream/10044/1/4435/1/Patel-Y-2009-PhDThesis.pdf>
- [25] J. Crank, 1975, *The mathematics of diffusion*, Clarendon Press, Oxford, 2nd Ed. 414 p. http://wwweng.lbl.gov/~shuman/NEXT/MATERIALS%26COMPONENTS/Xe_damage/Crank-The-Mathematics-of-Diffusion.pdf
- [26] Adda. Y. Adda, J. Philibert, 1966, *La Diffusion dans les Solides*, ed. by Institut National de Sciences et Techniques Nucléaires. Saclay. France, 2, 718 p.
- [27] Artur Wolak, Wojciech Krasodomski, Grzegorz Zajac, *FTIR analysis and monitoring of used synthetic oils operated under similar driving conditions*, *Friction*, 10-1237 <https://doi.org/10.1007/s40544-019-0344-9>
- [28] Neena Jaggi, *Fourier transform infrared spectroscopy. Handbook of Applied Solid State Spectroscopy*, (pp.411-450)
- [29] Asep Nandiyanto, 2019, *How to Read and Interpret FTIR Spectroscopy of Organic Material*. [DOI:10.17509/ijost.v4i1.15806](https://doi.org/10.17509/ijost.v4i1.15806)
- [30] A. Frank, G. Pinter, R.W. Lang, 2009, *Prediction of the remaining lifetime of polyethylene pipes after up to 30 years in use*. *Polym. Test.*, 28, 737–745.
- [31] T. Zanasi, E. Fabbri, F. Pilati, 2009, *Qualification of pipe-grade HDPEs: Part I, development of a suitable accelerated ageing method*. *Polym. Test.*, 28, 96–102.
- [32] Catherine Berthomieu, Rainer Hienerwade, 2009, *Fourier transform infrared (FTIR) spectroscopy*, Springer Science+Business Media B.V. () 101:157–170.
- [33] N. Chaix, 2001, *Modifications par irradiation y du polyéthylène a très haut poids moléculaire. Comportement tribologique pour des applications orthopédiques*, Thèse, institut

Chapitre II : Procédures expérimentales

national polytechnique de Grenoble, Ecole nationale supérieure des mines de saint Etienne, France.

[34] W. Ghabeche, L. Alimi, K. Chaoui, 2019, *Degradation of plastic pipe surfaces in contact with an aggressive acidic environment*, Energy Procedia, 74, p. 351-364.
<https://doi.org/10.1016/j.egypro.2015.07.625>

CHAPITRE III
OPTIMISATION DE L'USINABILITE DU HDPE-100
DANS LES CAS DE CHARIOTAGE ET DU
GORGEAGE

III.1. Introduction :

L'usinage du polyéthylène s'est généralisé dans plusieurs composantes de l'industrie, c'est-à-dire les composants mécaniques et structuraux et les instruments chimiques et médicaux, en raison de leurs caractéristiques uniques. Pour obtenir une réalisation de surface de meilleure qualité des pièces usinées. Par conséquent, cette recherche porte sur une expérience et étude analytique traitant l'effet des paramètres d'usinage sur ces performances.

L'usinage, c'est tout ce qui concerne toutes les actions et les ressources qu'on utilise pour créer une pièce, par le suivie d'un parcours d'usinage bien défini. Généralement l'usinage se réfère à des composants utilisés dans la fabrication mécanique. L'idée, c'est d'enlever de la matière d'une pièce brute jusqu'à l'obtention de la taille et la forme désirée. L'usinage d'une pièce, s'effectue grâce à deux mouvements: le mouvement de coupe et le mouvement d'avance, la forme du tranchant qui va déterminer la surface finale. L'usinage concerne principalement des matériaux métalliques. Cependant, ce n'est pas toujours le cas puisque tous les autres types de matériaux (polymères, bois, céramiques, et leurs dérivés, verres, composites, semi-conducteurs, etc.) sont généralement traités d'une manière spécifique en fonction du type de procédé et de ses caractéristiques. [1,2].

Compte tenu de la sensibilité du HDPE à différents paramètres externes, les opérations d'usinage classiques par enlèvement de matière doivent se dérouler dans des conditions bien étudiées et bien définies. Plusieurs études ont étudié l'usinabilité de polymères semi-cristallins tels que le HDPE, le PP (polypropylène) et le PA (polyamide). Les études publiées impliquant des polymères semi-cristallins sont beaucoup plus limitées aux procédés de tournage, fraisage, sciage et perçage, mais le cas du rainurage reste jusqu'à présent dépourvu de données expérimentales explicitement optimisées [3-10].

III.2. Usinage des polymères semi-cristallin

III.2.1. Procédé de tournage

Le procédé de découpe et d'usinage des matériaux a une origine très ancienne et s'est considérablement développé avec la mécanisation de plus en plus avancée des ateliers de production. Malgré l'émergence de nouvelles techniques ces dernières années, elle reste aujourd'hui l'une des procédures les plus utilisées. Pour se convaincre de son importance économique. [11-14].

Le tournage est un procédé d'usinage qui permet de réaliser des pièces aux formes géométriques complexes mais uniquement sur des pièces tournantes. L'opération d'usinage est réalisée à l'aide d'un outil doté d'un tranchant et animé d'un mouvement d'avance et/ou de déplacement (mouvement longitudinal et mouvement radial). La pièce usinée est entraînée en rotation continue. Ainsi, la trace géométrique du corps de machine issue de cette opération d'usinage est régie par les mouvements de l'outil [15-17].

III.2.2. Conditions de coupe des polymères

Dans le domaine de fabrication de pièces à l'aide d'outils coupants, cela inclut la connaissance de la géométrie, des dimensions, de nombreuses mesures de qualité (rugosité par exemple), des grandeurs caractérisant l'interaction entre l'outil et la matière, etc. En ce qui concerne les vitesses de coupe, les principaux problèmes résident à la fois dans les outils et dans les équipements de production eux-mêmes, et il existe encore peu de recherches sur des matériaux tels que les aciers difficiles à couper, les composites renforcés de fibres et notamment les polymères. Ces études scientifiques ne permettent pas encore de déterminer la relation technique entre les causes et les effets observés. L'impact de cette nouvelle technologie d'évacuation des copeaux sur le fonctionnement général du système d'usinage et la qualité de la surface usinée n'a pas été étudié en détail [18].

Le tournage est une méthode courante pour usiner les plastiques. Y'a plusieurs critères à considérer lors de l'usinage de pièces thermoplastiques de haute performance.

Selon le « Mitsubishi Chemical Group », les instruments doivent constamment être tranchants et lisses ; un polymère précis définit le genre d'outils à employer [19] :

Il faut que les vitesses d'alimentation soient maximales.

Il est obligatoire que les outils disposent d'un espace suffisant pour que le tranchant ne rentre pas en contact qu'avec le polymère.

Il faut garantir une bonne évacuation des copeaux de l'outil.

Il est indispensable d'utiliser des fluides de refroidissement lors des opérations qui engendrent beaucoup de chaleur (comme le forage).

Le polymère coupé a nécessairement un impact absolu sur la longévité de l'outil de coupe. L'utilisation du HSS, des outils de coupe en carbure, diamantés, PCD ou CVD est recommandé par la division des matériaux [19].

III.2.2.1. Étude de formation des copeaux

a) Processus de formation du copeau

Les copeaux sont les éléments du matériau qui se séparent lors de la coupe dans un procédé d'usinage. Le copeau introduit des indications précises sur les phénomènes thermiques, mécaniques et physiques, en fonction de sa formation. La qualité de la surface fabriquée dépend des paramètres d'entrées (de coupe). Dans les opérations d'usinage qui nécessitent un enlèvement de matière, des interactions intenses produites entre l'outil de coupe et le matériau usiné au cours du processus de génération des copeaux. Ce processus est directement déterminé par le comportement du matériau et du revêtement de l'outil, le comportement du matériau de la pièce, la géométrie de l'outil, ainsi que les conditions de coupe (vitesse de coupe, profondeur de passe, lubrification, etc.) [20-23].

D'un point de vue factuel, la formation de copeaux lors de la découpe est généralement liée à des phénomènes de cisaillement du matériau. La formation de copeaux se produit lorsque le matériau est fortement comprimé par le mouvement de l'outil jusqu'à ce que la contrainte de cisaillement maximale atteigne la limite d'élasticité du matériau. La matière est alors cisailée et le phénomène recommence périodiquement [21,24].

b) Paramètres de coupes

En fonction du processus de découpe examiné, une combinaison des paramètres suivants peut être nécessaire pour enlever de la matière et permettre la fabrication de la pièce : Vitesse de coupe V_c , avance f , profondeur de coupe ap , géométrie de l'outil. Des hypothèses simplificatrices sur la configuration de l'usinage et la géométrie de l'outil sont proposées pour étudier la formation des copeaux et créer une analyse indépendante du processus (*figure. III.1*) [25].

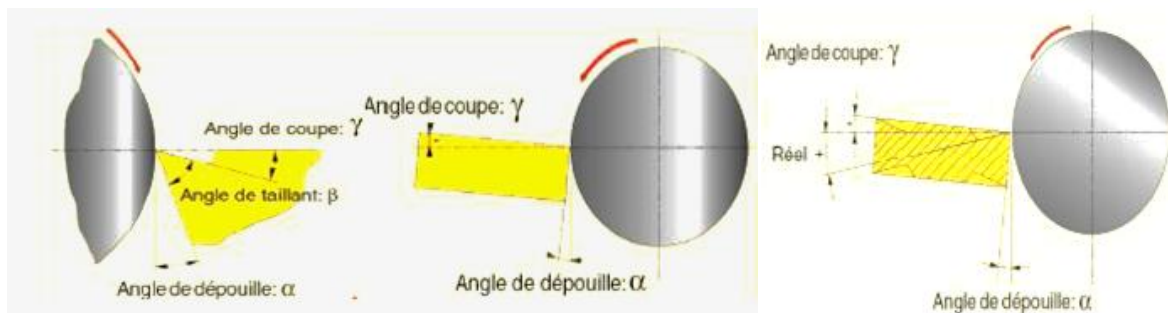


Figure III. 1. Angles de coupe d'un outil simple [26].

L'angle de direction de l'outil de coupe kr a un impact sur la largeur de copeau (w) et sur l'épaisseur du copeau (h). L'illustration suivante (*figure. III.2*) montre que pour

$\kappa r=90^\circ$, la largeur sera égale à la profondeur de passe ($w=ap$) et la valeur d'avance deviendra celle de l'épaisseur du copeau ($h=f$). Pour $\kappa r=60^\circ$: $w=1.15*ap$ et $h=0.86*f$ avec ($h = f*\sin\kappa r$). Cet angle est surtout influant à l'entrée et à la sortie de la passe [26].

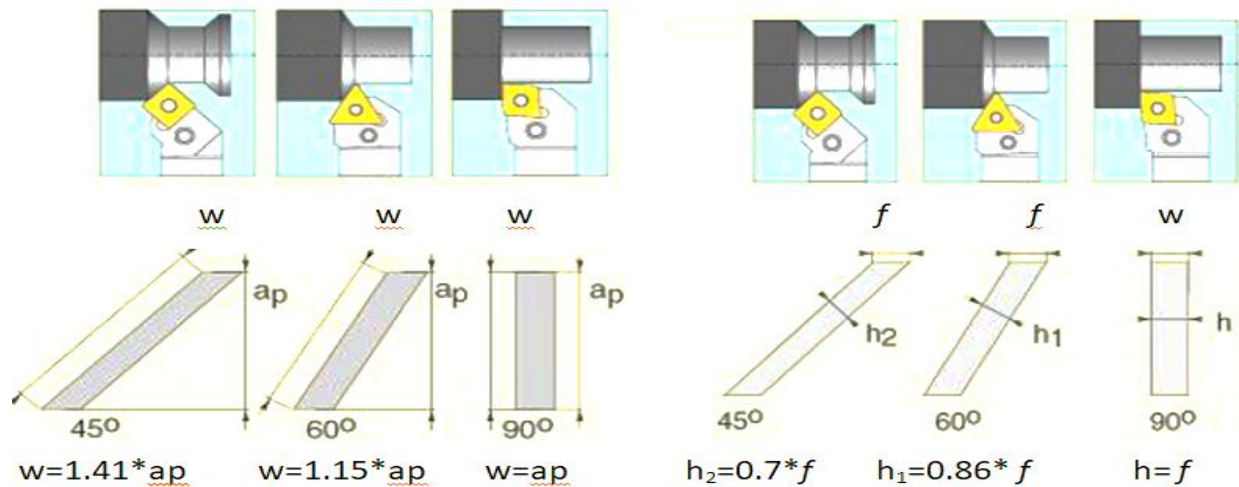


Figure III. 2 Impact de l'angle de direction de l'outil de coupe κr sur l'épaisseur (h) et la largeur (w) du copeau [26].

III.2.3. Travaux antérieurs sur l'usinage des polymères semi-cristallins

De nos jours, d'innombrables produits polymères sont utilisés pour diverses applications de la vie quotidienne comme substituts aux matériaux métalliques en raison d'avantages techniques et de considérations économiques [27]. Cependant, lors de l'adaptation des techniques de fabrication des métaux aux matériaux plastiques, les situations retravaillées nécessitent des approches rigoureuses et particulières en matière de contrôle de qualité et de résistance puisque les propriétés des polymères sont généralement inférieures à celles des composants métalliques [28,29]. On constate que les propriétés des polymères sont essentiellement liées à leurs structures chimiques, qui déterminent un état complètement chaotique (structure amorphe) ou un état partiellement ordonné (structure semi-cristalline). De tels états autorisent des propriétés spécifiques en termes de flexibilité et/ou de rigidité ainsi que de résistance aux environnements d'exploitation courants. Les exigences des normes actuelles contribuent activement à améliorer les méthodes de transformation des matières plastiques et leur intégration, notamment dans l'industrie de la tuyauterie [30]. Cette industrie est dominée par les conduites en polyéthylène haute densité (HDPE), qui constituent une sous-structure souterraine importante pour les réseaux de distribution et de transport d'eau et de gaz naturel.

Bien que l'usinage des matières plastiques ne soit pas fréquent par rapport aux métaux, il devient incontournable car les tuyaux en HDPE sont proposés pour des applications

extrêmes telles que les contacts avec des fluides chauds, corrosifs ou radioactifs nécessitant de nouvelles normes d'essais avec des modifications substantielles. Dans les cas d'usinage les plus rencontrés, comme décrit par *Alauddin et al.*, des recommandations spécifiques sont discutées pour la coupe orthogonale, le perçage, le fraisage et le meulage des thermoplastiques [3]. Habituellement, l'optimisation du régime d'usinage des thermoplastiques implique la vitesse de coupe, l'avance et la profondeur de coupe ; cependant, des paramètres de contrôle supplémentaires tels que la température de coupe, la géométrie de l'outil et la géométrie des copeaux peuvent être pris en compte afin d'éviter l'altération de la structure par dégradation thermique [4] ou déformations à grande échelle [5,8].

Salles et Gonçalves, lors d'opérations de tournage utilisant des outils métalliques durs. Ils ont conclu que la réaction de l'UHMWPE est similaire à celle du tournage de l'aluminium et du bois, la vitesse de coupe est restée faible. Alors que de nombreuses études liées aux matériaux plastiques ont conclu que V_c est le principal paramètre significatif, ils ont étudié l'influence de la vitesse de coupe et de l'avance sur la rugosité de surface de l'UHMWPE, f s'avère être le facteur le plus sensible. Bien que la température de coupe soit censée avoir une influence notable sur l'état de surface, l'effet de la rugosité. Le copeau généré est continue [6].

Carr et Feger ont utilisé du diamant à pointe unique pour usiner plusieurs polymères et ont découvert que le type de matériau et ses propriétés viscoélastiques jouent un rôle essentiel dans la détermination de la rugosité finale de la surface. Comme les propriétés dépendent fortement du temps et de la température, la modification de paramètres tels que la vitesse de coupe peut modifier le mécanisme de coupe, passant d'une rupture fragile avec des surfaces irrégulières et rugueuses à un enlèvement de matière ductile avec des surfaces lisses. Habituellement, les matériaux ayant la capacité de se déformer de manière ductile ont tendance à réagir aux outils de coupe externes en roulant autour du bord et pour les polymères de poids moléculaire inférieur, la fissuration se produit bien avant que le régime ductile ne soit atteint. D'un autre côté, une rupture fragile se produit dans les polymères ayant une température de transition vitreuse élevée. Ils ont conclu que la compressibilité et la résistance à la traction ont des effets significatifs sur la relation entre l'angle de coupe de l'outil et la rugosité de la surface de la pièce qui en résulte [25].

Xiao et Zhang devrait prendre en compte la mobilité moléculaire, la ténacité du polymère et la température, ils ont découvert que la déformation visqueuse des thermoplastiques usinés (par exemple le HDPE) a un impact significatif sur la qualité de surface et la géométrie des copeaux obtenus. Les forces de coupe sont également affectées. Ils

ont conclu que le régime d'usinage optimal ne devrait pas dépasser une limite provoquant une déchirure viscoplastique ou une fissuration fragile et transition vitreuse [31].

Tamrin et al. ont utilisé une analyse relationnelle pour trois thermoplastiques différents afin de déterminer un ensemble optimisé de paramètres d'usinage basés sur une découpe laser de précision. Ce processus améliore la qualité du produit et minimise à la fois les coûts de service et les erreurs d'exploitation. Les résultats de l'ANOVA montrent que la puissance du laser a un effet dominant sur la zone affectée thermiquement pour tous les thermoplastiques étudiés [9]. *Davim et al.* ont étudié le tournage du polyamide renforcé de 30 % de fibres de verre en fonction des vitesses d'avance et des matériaux des outils. Ils ont constaté que les forces radiales sont les plus élevées, suivies respectivement par les forces de coupe et d'avance. L'outil diamanté poly-cristallin a donné les forces les plus faibles associées à la meilleure finition de surface. Il est suivi par l'outil en carbure non revêtu. Quels que soient les paramètres du régime de coupe et le matériau de l'outil, des micros copeaux enroulés en continu sont produites dans tous les cas vérifiés [8].

Chabbi a étudié les effets des paramètres de coupe (V_c ; ap et f) sur les composantes de la force de coupe, la puissance de coupe, les critères de rugosité et la productivité lors du tournage d'un polymère de polyoxyméthylène (POM-C) avec un outil en carbure cémenté. En outre, la planification des paramètres d'usinage comprend un plan factoriel *Taguchi* (L_{27}) elle a utilisé les techniques *RSM* et *ANN* : une optimisation de la fonction de désirabilité. L'analyse ANOVA montre que f est le facteur le plus significatif affectant R_a et que sa contribution est supérieure à 66 %. Cependant, la force de coupe tangentielle est principalement affectée par les paramètres ap et f tandis que la puissance de coupe est uniformément marquée par les trois principaux paramètres de coupe d'entrée. Pour une rugosité de finition minimale issue d'un processus de tournage, l'étude donne 628 m/min, 0,08 mm/tr et 1 mm comme paramètres de coupe optimisés respectivement pour V_c , f et ap [32]. Pour le processus de tournage du polymère polytétrafluoroéthylène (PTFE), *Azzi et al.* ont analysé l'influence des paramètres d'usinage d'entrée (ap , f et V_c) sur R_a , R_z et le taux d'enlèvement de matière en utilisant la planification *Taguchi* L_{27} . Grâce à l'ANOVA, il est conclu que la rugosité de surface et le taux d'enlèvement de matière sont fortement affectés par la vitesse d'alimentation. L'optimisation finale pour minimiser la rugosité et le taux d'enlèvement de matière, réalisée de la même manière que dans l'étude précédente [32], *Azzi* a donné un régime de coupe avec une vitesse de 270 m/min, une avance de 0,126 mm/tr et une profondeur de coupe de 2mm [33].

Kaddeche et al. ont étudié la qualité de surface, les forces de coupe et plus notamment les variations de température dégagée pendant l'usinage du polymère tubulaires en HDPE-100 et HDPE-80. Ils ont observé que la vitesse d'alimentation joue un rôle prépondérant sur les critères de rugosité et que la rugosité du HDPE-80 est moins élevée que celle du HDPE-100. *Kaddeche*, conformément à d'autres recherches, a trouvé que les valeurs de V_c élevées progressent la qualité de la surface, mais elles augmentent la température de coupe, conduisent à une détérioration de la surface et à une fusion du polyéthylène. Les autres paramètres sont bien exprimés en fonction des deux qualités de tube [34].

Alauddin et al. présentent brièvement, divers procédés d'usinage comme la coupe orthogonale, le meulage, le fraisage et le perçage pour les thermoplastiques et les thermodurcissables sont brièvement exhibés [3]. En revanche, *Kaiser* a envisagé une analyse comparative de surfaces usinées dans trois polymères commerciaux (acrylique, PVC et HDPE) en tenant compte de la dureté, de la température, de la rugosité et de la déformation des copeaux. Pour une vitesse de coupe plus élevée (V_c) et une faible profondeur de coupe, il a été observé une amélioration de l'état de surface. De plus, la dureté de la surface amoindrit à mesure que la température augmente en raison de la nature du thermoplastique amorphe. Dans le même temps, la température moyenne à l'interface coupeau-outil et la déformation de copeau augmentent avec V_c et ap . L'étude a vérifié que la finition de surface est meilleure pour les acryliques que pour le PVC et le HDPE [4].

Hamlaoui a usiné des éprouvettes standards extraites d'un tuyau HDPE. Elle a utilisé la méthodologie de surface de réponse (*RSM*) et l'opportunité pour évaluer le régime d'usinage approprié. Ils ont conclu que l'approche *RSM* est adaptée pour décrire le processus de tournage du HDPE-100, en tenant compte des mesures de rugosité de surface et de température d'usinage, en fonction des paramètres de coupe. La vitesse d'avance demeure le facteur le plus déterminant pour réduire la rugosité, tandis que la température de coupe dépend de la vitesse de coupe et la profondeur de coupe. Le cas le plus sûr en termes de température est celui de 32°C, ce qui est bien accepté par les normes sur les tuyaux en polyéthylène [35].

Les figures III.3.a-h illustrent un ensemble de géométries d'éprouvettes usinées à partir de tuyaux en HDPE et qui sont prises en compte pour la caractérisation mécaniques. La figure III.3.a présente des tronçons spécifiques de conduites de gaz avec des marques jaunes. Il est possible d'identifier des échantillons standard et non standard (figures III. b- h) tels

qu'usinés à partir du tuyau et respectivement utilisés pour de nombreux tests. (b) essai de traction et fluage ; (c) essai d'impact (*Charpy*) ; (d) contraintes résiduelles, (e) sorption de liquide et (f) relaxation des contraintes internes. Les deux derniers cas sont des filaments bouclés (g) et droits (h), usinés en continu dans une direction donnée, et sont utilisés pour étudier les hétérogénéités mécaniques ou structurales à travers la paroi des tuyaux conférées par les processus de fabrication [30,34,36]

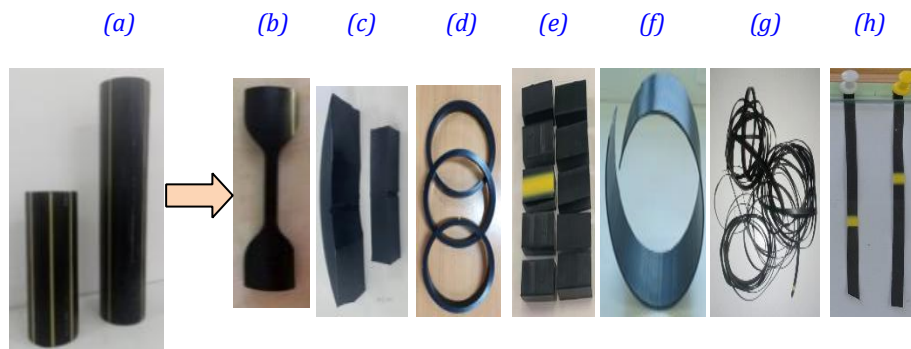


Figure III. 3. Diverses géométries d'éprouvettes d'essai usinées à partir de tuyaux en HDPE.

Les géométries non standards sont généralement étudiées pour des applications spécifiques et une fois approuvées techniquement par les principaux utilisateurs de canalisations; des normes préliminaires sont préparées et soumises à des essais standardisées pour être promues en tant que nouvelles normes. Ces configurations d'échantillons incluent des normes *ISO* bien connues [30,37].

L'objectif de cette étude est de concevoir des conditions d'usinage appropriées pour obtenir un filament uniforme et continu à partir d'un tuyau en HDPE. Plus tard, le filament servira d'échantillons pour des tests mécaniques et pour étudier l'hétérogénéité de la structure à travers la paroi du tuyau. Outre les paramètres d'usinage habituels pour les plastiques (c'est-à-dire la rugosité et la température), la minimisation de la courbure du filament est considérée comme un critère d'uniformité géométrique du filament. L'étude s'appuie sur *RSM* pour construire des corrélations entre les paramètres d'entrée (V_c , f , ap , κr et γ) et ceux de sortie qui sont la température de coupe (T), deux critères de rugosité (Ra , Rt) et la courbure du filament (L). Les valeurs de température et de rugosité sont prédites via le développement d'un modèle du second ordre via la fonction de désirabilité. L'approche d'analyse de variance (*ANOVA*) a permis de vérifier l'ordre des contributions des facteurs à la température de coupe.

III.3. Technique de modélisation utilisée

RSM, des méthodes mathématiques et statistiques nécessaires pour modéliser et analyser des problèmes où la solution est étudiée par diverses variables utilisée dans une vaste

gamme d'applications industrielles telles que les processus d'usinage et de découpe [38-39]. Le *RSM* est utilisé pour parvenir à une estimation d'une fonction de réponse en termes de variables prédictives. La procédure est généralement résumée dans les six étapes suivantes : (i) définir les variables d'entrée indépendantes et les réponses de sortie souhaitées, (ii) approuver un plan de conception expérimentale ; (iii) effectuer une analyse de régression avec le modèle quadratique *RSM*, (iv) effectuer une *ANOVA* statistique pour les variables d'entrée indépendantes afin d'identifier les paramètres significatifs, (v) déterminer la situation du modèle quadratique *RSM*, et enfin, (vi) optimiser la solution (exécutez des expériences de confirmation et vérifiez les performances prévues. De nombreuses études expérimentales réussies sur les processus d'usinage sont disponibles dans la littérature [32, 40-44].

Les modèles linéaires et quadratiques sont les modèles de réponse les plus couramment utilisés pour établir la relation entre les paramètres d'entrée et les réponses de sortie. Ils sont énoncés comme suit: [3, 39-45] :

- Pour le modèle de 1er ordre:

$$Y_k = a_0 + \sum_{i=1}^n a_i \cdot X_i + \varepsilon \quad (\text{III.1})$$

Où n est le nombre de variables et ε est l'erreur sur l'élément.

- Pour le modèle quadratique (2ème ordre):

$$Y_k = a_0 + \sum_{i=1}^n a_i \cdot X_i + \sum_{i=1}^n a_{ii} \cdot X_i^2 + \sum_{i < j}^n a_{ij} \cdot X_i \cdot X_j + \varepsilon \quad (\text{III.2})$$

Où Y_k : est la réponse souhaitée, a_0 est constant, a_i , a_{ii} et a_{ij} représentent respectivement les coefficients des termes linéaires, quadratiques et de produits vectoriels. X_i révèle les variables codées qui correspondent aux paramètres de coupe étudiés.

La désirabilité (D) est un critère de réussite pour l'optimisation de la réponse utilisé pour analyser les études d'usinage de polymères et autres matériaux [38-44]. Plages souhaitables entre 0 et 1.

$$D = \left(\prod_{i=1}^n d_i^{w_i} \right)^{\frac{1}{\sum_{j=1}^n w_j}} \quad (\text{III.3})$$

Où d_i et w_i sont respectivement l'opportunité et la pondération telles que définies pour le i ème résultat ciblé ; n est le nombre de réponses pour une position de mesure donnée. Pour une optimisation simultanée, chaque réponse doit avoir une valeur faible et élevée attribuée à chaque objectif.

Cette étude considère deux critères de rugosité de surface (Ra et Rt), la température de coupe (T) et la hauteur de courbure du filament (L) comme variables de sortie. La réponse à la courbure du filament est introduite après observation d'une courbure latérale du filament qui est préjudiciable aux mesures de propriétés mécaniques et doit être réduite au maximum. Évidemment, l'optimisation basée sur la caractéristique « le plus bas est le mieux » est appliquée pour déterminer les valeurs de désirabilité individuelles des variables de sortie (T , Ra , Rt et L). Lors de la recherche d'un minimum, les limites de désirabilité sont exprimées comme suit [32,38-42].

$$\begin{cases} d_i = 1; & (\text{si réponse} < \text{valeur faible}) \\ 1 \geq d_i \geq 0; & (\text{si la réponse varie de faible à élevée}) \\ d_i = 0, & (\text{si réponse} > \text{valeur élevée}) \end{cases} \quad (\text{III.4})$$

Dans ce cas d'optimisation, les avantages combinés consistent à avoir une bonne qualité de surface, une température de coupe la plus basse et un filament moins courbé. La minimisation de la température est une exigence essentielle pour éviter un échauffement excessif du HDPE conduisant à une dégradation thermique.

III.4. Résultats et discussions

III.4.1. Opération de chariotage

Afin de produire des filaments uniformes en termes de géométrie spécifiées, Cette recherche a met l'accent sur la capacité d'usinage des tuyaux HDPE-100 pour réaliser des éprouvettes standards et non standards destinées aux essais de caractérisations, permettant de retracer les propriétés inhérentes conférées par le processus d'extrusion dans la paroi des tuyaux HDPE-100.

Le présent travail se concentre sur l'usinage des tuyaux HDPE-100 pour préparer les filaments les plus réguliers avec une épaisseur et une largeur spécifiées. L'étude vise à établir des corrélations mathématiques entre la qualité de surface (rugosité totale ; Rt et rugosité arithmétique Ra), la température de coupe (T°), l'uniformité du filament (L) et les exigences de coupe correspondantes; Ces derniers incluent la vitesse de coupe (Vc), l'avance (f) et la profondeur de coupe (ap), combinés à la géométrie de l'outil de coupe (c'est-à-dire l'angle de coupe (γ) et l'angle de direction de l'outil de coupe (κr). Ont adopté la méthodologie de

surface de réponse *RSM* qui englobe ; un plan mixte de planification et traitement des expériences *Taguchi L18*, testes de normalité, *L'ANOVA*, graphes des effets principaux, les modèles de prédiction, les courbes 3D et l'optimisation des résultats d'usinage ultérieurs en utilisant la désirabilité (tableaux plus courbes). On constate que les critères de température de coupe et de rugosité de surface (*Ra*, *Rt*) sont fortement influencés par l'avance (*f*) et la vitesse de coupe (*Vc*). De plus, les résultats de *L'ANOVA* liés à la hauteur des courbures du filament (*L*) sont également étudiés en fonction des angles d'outil γ et κ_r , respectivement angles de coupe et angle de direction de l'outil de coupe.

III.4.1.1. Planification des expériences (Taguchi L18)

Les résultats expérimentaux sont présentés dans le *tableau III.1*. Les données de sortie suggèrent que la température de coupe la plus élevée (39,6 °C) est enregistrée aux niveaux les plus élevés de *Vc* et *f*. Le frottement visqueux lors du retrait du matériau polymère est fortement actif dans la génération de chaleur. En effet, la température de découpe correspondant à ces conditions d'usinage (Exécution n°3, *tableau III.1*) est très proche de la température limite supérieure autorisée par les normes pour les matériaux HDPE (soit 40°C).

Tableau III. 1. Résultats expérimentaux de (*L18*).

Run N°	Paramètres de coupes					Paramètres de Performances			
	γ (°)	κ_r (°)	<i>Vc</i> (m/min)	<i>f</i> (mm/rev)	<i>ap</i> (mm)	<i>L</i> (mm)	<i>T</i> (°C)	<i>Ra</i> (μ m)	<i>Rt</i> (μ m)
1	-6	30	100	0.37	2	4.3	28.5	0.61	0.97
2	-6	30	140	0.53	3	3.8	32.9	0.74	1.18
3	-6	30	560	0.67	4	7.5	39.6	0.52	0.98
4	-6	60	100	0.67	3	1.5	32.3	0.78	1.44
5	-6	60	140	0.37	4	1.3	31.7	0.39	0.81
6	-6	60	560	0.53	2	1.4	35.8	0.42	0.86
7	-6	90	100	0.53	2	1.1	31.1	0.60	1.05
8	-6	90	140	0.67	3	1.3	33.4	0.69	1.29
9	-6	90	560	0.37	4	0.5	32.8	0.14	0.41
10	15	30	100	0.53	4	2.9	30.7	0.75	1.39
11	15	30	140	0.67	2	1.2	32.6	0.97	1.55
12	15	30	560	0.37	3	2.4	33.5	0.32	0.69
13	15	60	100	0.67	4	5.2	32.4	0.89	1.42
14	15	60	140	0.37	2	1.8	29.6	0.48	0.96
15	15	60	560	0.53	3	1.6	34.8	0.51	0.92
16	15	90	100	0.37	3	2.7	28.5	0.41	0.64
17	15	90	140	0.53	4	4.3	30.8	0.53	0.95
18	15	90	560	0.67	2	1.9	36.2	0.63	1.41

Inversement, des vitesses de coupe inférieures à 100 m/min et des valeurs *f* et *ap* inférieures sont associées à des températures beaucoup plus basses (28,5°C) mais pas toujours aux critères de rugosité requis [35,19,20,34]. De l'autre côté, la courbure de filament la plus

haute (7,5 mm) semble être favorisée par des V_c , f et ap plus élevés. Cet état illustre des conditions d'usinage sévères et intenses pour les polymères semi-cristallins et est en relation directe avec les changements de température de coupe [31]. A ce stade, il est conclu que les paramètres limites supérieurs du niveau 3, notamment V_c et f (*tableau II.1, Chapitre II*), ne peuvent pas être des valeurs optimisées pour cette étude.

III.4.1.2. Analyse de variance (ANOVA)

À partir de attribuées expérimentales, les résultats de l'ANOVA sont utilisés pour identifier les facteurs d'entrée qui affectent de manière significative les paramètres de performance. L'étude de la température de coupe, la qualité de surface et la hauteur logarithmique de la courbure du filament, $Ln(L)$ sont illustrés dans les *tableaux III.2. a-d*. On constate que les modèles obtenus sont adéquats, où les principaux facteurs significatifs sont, comme déjà cités, l'angle de coupe (γ), l'angle de direction de l'outil de coupe (κ_r), la vitesse de coupe (V_c), l'avance (f) et la profondeur de coupe (ap).

Tableaux III. 2 a) ANOVA de T. b) ANOVA de Ra. c) ANOVA de Rt .d) ANOVA de Ln(L).

a)

Term	DF	Seq SS	CP%	Adj SS	Adj MS	F-tests	P-value
Model	8	128.777	98.10%	128.777	16.0971	58.07	0.000
Linear	5	122.478	93.30%	121.873	24.3746	87.94	0.000
γ	1	4.500	3.43%	4.500	4.5000	16.24	0.003
κ_r	1	2.083	1.59%	3.120	3.1197	11.26	0.008
V_c	1	74.427	56.70%	70.380	70.3804	253.92	0.000
f	1	39.998	30.47%	41.995	41.9947	151.51	0.000
ap	1	1.470	1.12%	1.653	1.6530	5.96	0.037
Square	1	2.228	1.70%	2.228	2.2277	8.04	0.020
$V_c * V_c$	1	2.228	1.70%	2.228	2.2277	8.04	0.020
2-way interaction	2	4.071	3.10%	4.071	2.0356	7.34	0.013
$\kappa_r * V_c$	1	1.861	1.42%	1.726	1.7260	6.23	0.034
$V_c * f$	1	2.211	1.68%	2.211	2.2106	7.98	0.020
Error	9	2.495	1.90%	2.495	0.2772		
Total	17	131.271	100.00%				

L'influence de l'avance (f) et la vitesse de coupe (V_c) est fortement marquée sur les critères de rugosité de surface (Ra , Rt) et température de coupe, Selon les *tableaux III.2.a-c*. Le facteur le plus significatif pour les paramètres Ra et Rt est l'avance (f), avec des contributions à la variation totale de 51,92% et 63,67% des facteurs les plus significatif respectivement Ra et Rt est la vitesse d'alimentation (f). La scande sont des contributions les plus importantes à Ra et Rt vient de la vitesse de coupe (V_c) avec des pourcentages respectifs de 29,45 % et 15,89 %.

b)

Term	DF	Seq SS	CP%	Adj SS	Adj MS	F-tests	P-value
Model	6	0.71800	98.19%	0.71800	0.119666	99.70	0.000
Linear	5	0.70398	96.28%	0.67429	0.134859	112.36	0.000
γ	1	0.02000	2.74%	0.02000	0.020000	16.66	0.002
κr	1	0.06901	9.44%	0.04674	0.046744	38.94	0.000
Vc	1	0.21531	29.45%	0.21531	0.215313	179.39	0.000
f	1	0.37965	51.92%	0.37965	0.379646	316.30	0.000
ap	1	0.02001	2.74%	0.01483	0.014831	12.36	0.005
2-way interaction	1	0.01402	1.92%	0.01402	0.014021	11.68	0.006
$\kappa r * Vc$	1	0.01402	1.92%	0.01402	0.014021	11.68	0.006
Error	11	0.01320	1.81%	0.01320	0.001200		
Total	17	0.73120	100.00%				

c)

Term	DF	Seq SS	CP%	Adj SS	Adj MS	F-tests	P-value
Model	8	1.68662	98.87%	1.68662	0.210827	98.02	0.000
Linear	5	1.55005	90.86%	1.32176	0.264352	122.90	0.000
γ	1	0.04909	2.88%	0.04909	0.049089	22.82	0.001
κr	1	0.08501	4.98%	0.03699	0.036987	17.20	0.002
Vc	1	0.27101	15.89%	0.28786	0.287864	133.83	0.000
f	1	1.08614	63.67%	0.88167	0.881667	409.89	0.000
ap	1	0.05880	3.45%	0.01507	0.015065	7.00	0.027
2-way interaction	3	0.13657	8.01%	0.13657	0.045525	21.16	0.000
$\kappa r * Vc$	1	0.07199	4.22%	0.09001	0.090008	41.85	0.000
$\kappa r * f$	1	0.04514	2.65%	0.03722	0.037218	17.30	0.002
$\kappa r * ap$	1	0.01944	1.14%	0.01944	0.019441	9.04	0.015
Error	9	0.01936	1.13%	0.01936	0.002151		
Total	17	1.70598	100.00%				

La première position est la température de coupe, la vitesse de coupe (Vc) avec une contribution de 56,70%, et vient ensuite l'avance (f) qui estime pour 30,47% des contributions de la variation totale, les résultats de l'ANOVA correspondant à la hauteur des courbures du filament (L) en fonction des paramètres du procédé (γ , κr , Vc , f et ap) illustré dans le [tableau III.2.d](#). Il est dévoilé que les primordiales conséquences de ces paramètres de procédé sont tous significatifs en ce qui concerne (L).

Le paramètre de processus le plus crucial est l'angle de direction (κr), qui compte pour 18,99 % des pourcentages à la variation totale, vient ensuite la profondeur de passe (ap) (6,56 %). De plus, il est évident que les trois paramètres de coupe (γ , Vc et f) ont une faible influence sur la courbure du filament. Toutefois, pour l'interaction angle de coupe (γ), angle de direction de l'outil de coupe (κr) et profondeur de coupe (ap), les valeurs d'influence sont

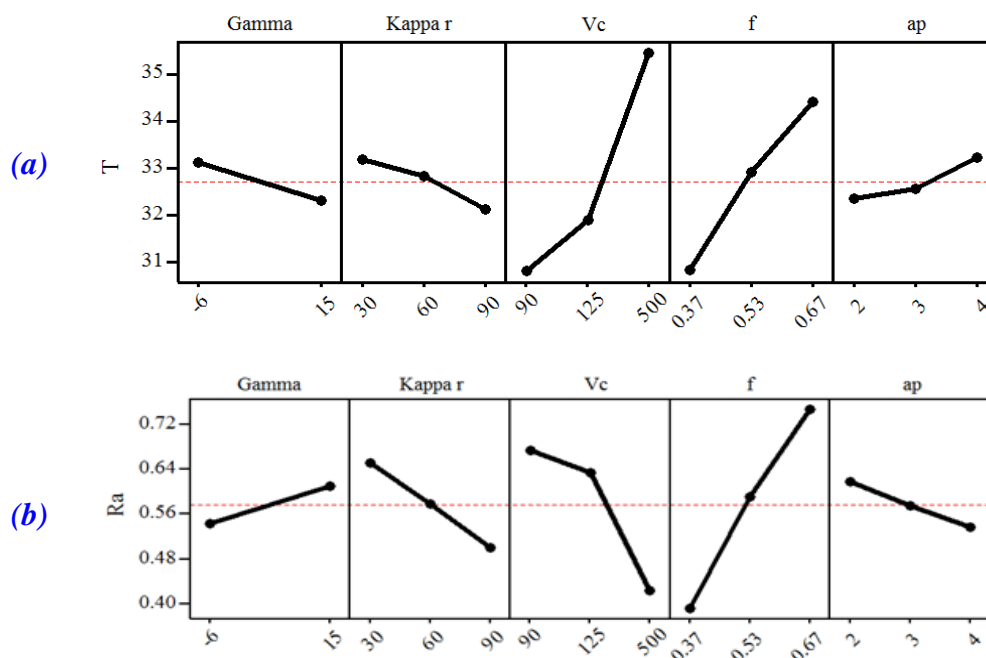
considérablement plus élevées par rapport aux autres termes, particulièrement pour celle de l'angle de coupe (γ) et l'angle de direction (κr), ce qui explique 40,78 %.

d)

Term	DF	Seq SS	CP%	Adj SS	Adj MS	F-tests	P-value
Model	11	7.61434	99.63%	7.61434	0.69221	146.38	0.000
Linear	5	2.72088	35.60%	2.85707	0.57141	120.83	0.000
γ	1	0.33220	4.35%	0.65938	0.65938	139.43	0.000
κr	1	1.45100	18.99%	1.08021	1.08021	228.42	0.000
Vc	1	0.19806	2.59%	0.23008	0.23008	48.65	0.000
f	1	0.23788	3.11%	0.08199	0.08199	17.34	0.006
ap	1	0.50174	6.56%	0.85242	0.85242	180.25	0.000
Square	2	0.19429	2.54%	0.75633	0.37816	79.97	0.000
$Vc*Vc$	1	0.17789	2.33%	0.52553	0.52553	111.13	0.000
$f*f$	1	0.01640	0.21%	0.65735	0.65735	139.00	0.000
2-way interaction	4	4.69917	61.49%	4.69917	1.17479	248.42	0.000
$\gamma*\kappa r$	1	3.11632	40.78%	3.50141	3.50141	740.42	0.000
$\gamma*ap$	1	0.61899	8.10%	1.45922	1.45922	308.57	0.000
$\kappa r*ap$	1	0.46017	6.02%	0.77480	0.77480	163.84	0.000
$Vc*ap$	1	0.50369	6.59%	0.50369	0.50369	106.51	0.000
Error	6	0.02837	0.37%	0.02837	0.00473		
Total	17	7.64271	100.00%				

III.4.1.3. Effets des paramètres de coupe (Vc , f , ap , γ et κr) sur T , Ra , Rt et L

Dans la *figure III.4*, les principaux effets tirés de l'étude sont représentés. Ils indiquent que la température de coupe est significativement affectée par la vitesse de coupe (Vc) et la vitesse d'avance (f), comme le montre la *figure III. 4.a*



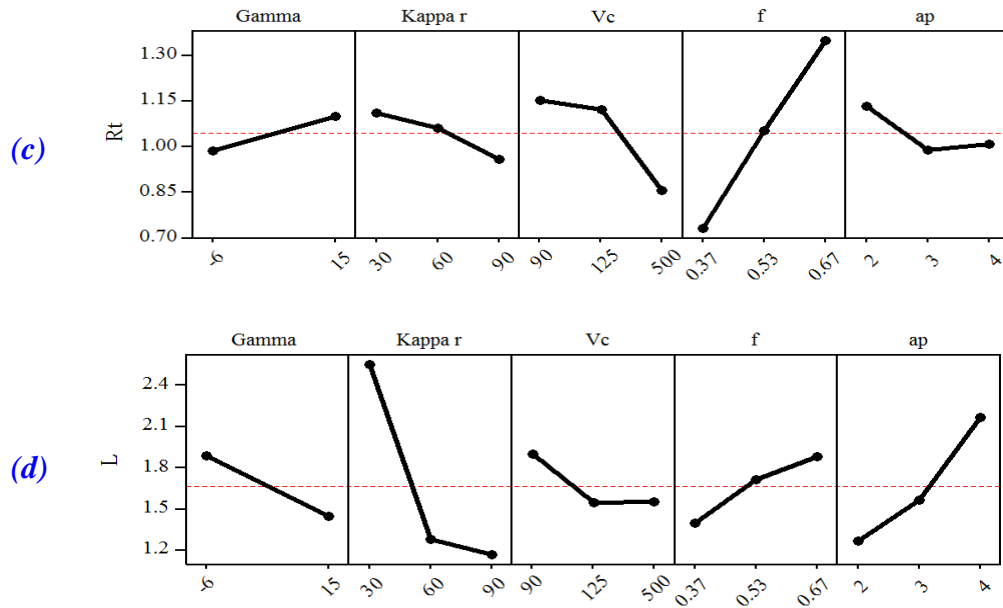


Figure III. 4. Courbes des effets principaux pour la moyenne : (a) T, (b) Ra, (c) Rt et (d) L.

Les graphiques indiquent également qu'à mesure que la vitesse de coupe et l'avance augmentent, la température de coupe augmente, ce qui est attendu ; mais pour les matériaux polymères, la vitesse de coupe reste un paramètre d'entrée important. En effet, l'augmentation de la vitesse de coupe conduit à augmenter la température de coupe, particulièrement dans la deuxième zone de cisaillement où le frottement domine. Par contre, si la vitesse de coupe est réduite, la chaleur générée est plus importante, et engendre une baisse de la température [35]. De même, l'augmentation de (f) provoque, l'augmentation de la section et donc l'augmentation de la température, particulièrement dans l'initiale zone de cisaillement par déformation [10]. On constate que la vitesse d'avance (f) a un impact significatif sur les critères de rugosité de surface (*figure III.4.b-c*).

L'effet de l'avance (f) est croissant, Il est établi que la rugosité géométrique théorique de la surface est en fonction de l'avance varie avec le carré de la valeur de l'avance. L'effet de la vitesse de coupe (Vc) est important et diminue avec le temps. L'augmentation de la vitesse de coupe améliore la rugosité de la surface [35,10,46,47-49].

Une réduction particulière de la hauteur des courbures du filament (L) diminue considérablement avec l'augmentation de l'angle de direction de l'outil de coupe (κr) observé dans la *figure III.4.d*, l'influence de l'angle de l'arête de l'outil de coupe est considérable sur le procédé de coupe, parce qu'elle détermine l'épaisseur des copeaux, pour une vitesse d'alimentation et une profondeur de coupe prédéterminé. La réduction de la hauteur des

courbures du filament est entraînée par l'augmentation de l'angle de direction (κr), ce qui engendre la diminution de la quantité de la chaleur, et forme un copeau spiral.

III.4.1.4. Modèles RSM

On a utilisé la méthodologie des surfaces de réponse, pour trouver une corrélation entre les paramètres du processus de coupe (Vc , f , ap , γ et κr) et les caractéristiques de performance (T , Ra , Rt et L) et les modélises. Dans notre recherche, on a utilisé les modèles quadratiques et de puissance pour développer et possiblement anticiper les fluctuations des performances en ce qui concerne les paramètres du processus. Le modèle de prédiction est élaboré avec un niveau de confiance de 95 % à l'aide du logiciel de conception expérimentale *Minitab 19* et est basé sur une analyse de régression utilisant la méthode des moindres carrés.

Les équations de régression initiales des caractéristiques de performance obtenues à partir de RSM incluent tous les paramètres et leurs interactions possibles. De plus, les modèles sont réduits en éliminant les termes sans effet significatif sur les caractéristiques de performance, via le processus d'élimination en amont. Il convient de noter que le RSM peut également être utilisé pour obtenir un modèle exponentiel grâce à la transformation logarithmique naturelle d'un paramètre de processus et de ses caractéristiques de performance. Les équations suivantes pour les caractéristiques de performance sont obtenues (équations III.5 à III.8) :

$$T = 21.28 - 0.048 \gamma + 0.003 \kappa r + 0.04 Vc + 8.41f - 0.384 ap - 0.005 * 10^{-2} Vc^2 - 0.006 * 10^{-2} \kappa r * Vc + 0.014 Vc * f \quad [R^2 = 98.10\%] \quad (III.5)$$

$$Ra = 0.429 + 0.318 * 10^{-2} \gamma - 0.004 \kappa r - 0.0009 Vc + 1.145f - 0.356 ap + 0.006 * 10^{-3} \kappa r * Vc \quad [R^2 = 98.10\%] \quad (III.6)$$

$$Rt = 0.883 + 0.005 \gamma - 0.009 \kappa r - 0.149 * 10^{-2} Vc + 0.946 f + 0.075 ap + 0.014 * 10^{-2} \kappa r * Vc + 0.017 \kappa r * f - 0.002 \kappa r * ap \quad [R^2 = 98.87\%] \quad (III.7)$$

$$L = e^{\left(\frac{4.977 - 0.2967 \gamma + 0.02381 \kappa r + 0.02256 Vc - 29.13 f + 0.3747 ap - 0.000039 Vc^2 + 28.58 f^2 + 0.001750 \gamma * \kappa r + 0.07055 \gamma * ap - 0.01396 \kappa r * ap + 0.001313 Vc * ap}{1} \right)} \quad [R^2 = 99.63\%] \quad (III.8)$$

Par conséquent, l'hypothèse nulle ne serait rejetée car la valeur P obtenue (0,013) est inférieure au niveau de signification fixé à 5 %. Habituellement, dans de tels cas, il devient intéressant de normaliser les données représentant la hauteur de courbure du filament en utilisant la méthode de transformation logarithmique. Le tracé de probabilité normale ainsi que la valeur P et le test AD sont utilisés. Suite à cette transformation [50], la nouvelle valeur P (0,579) indique que le modèle proposé pour ce paramètre de sortie est adéquat, comme le montre (*annexe B.1*).

Lorsque Le coefficient de détermination le R^2 est adjacent de « 1 », l'efficacité du modèle est augmentée, ceci confirme une corrélation satisfaisante décelée entre les données expérimentaux et les modèles prédictifs recherchés pour les critères de rugosité de surface et la température de coupe (la validité du modèle est vérifiée)

III.4.1.5. Diagrammes de surface de réponse 3D

Les figures III.5 et annexes B.1-3 des diagrammes 3D respectivement pour T , Ra , Rt et $\ln(L)$, exhibent les impacts combinés caractéristiques des paramètres d'usinage. D'après la figure III.5.b, ont constaté que l'impact de la vitesse de coupe est le plus élevé par rapport à celui de f et κr . L'augmentation de la température de coupe est due aux faits de friction à l'interface entre l'outil de coupe et le copeau. Dans l'intervalle de la vitesse de coupe de 350 à 550 m/min, on observe la température de coupe la plus élevée. Les interactions les plus significatives se trouvent entre la vitesse de coupe et l'avance.

À des vitesses de coupe inférieures, il est également montré qu'aucun changement significatif n'est observé sur la température de coupe en raison de la variation de l'angle de direction (figure III.5.b). Cependant, une comparaison qualitative peut être effectuée.

Les tracés de surface de réponse évalués pour les critères de rugosité (Ra et Rt) en fonction des paramètres de coupe sont illustrés dans les annexes B.2-3, on peut voir que la vitesse de coupe a plus d'effet sur la rugosité de surface Ra et que sa variation est très élevée par rapport à celle provoquée par l'angle de direction. La figure montre également que Ra est amélioré en augmentant la vitesse de coupe comme prévu [35,34]. L'annexes B.3 présente les variations du critère de rugosité Rt en fonction des paramètres du régime de coupe (Vc , f , ap) et de l'angle de direction de l'outil de coupe. Sur l'annexes B.3 (a), on observe qu'une profondeur de coupe plus élevée et un angle de direction plus élevé ont considérablement amélioré le Rt de près de deux fois (de 1,3 à $\sim 0,63 \mu\text{m}$).

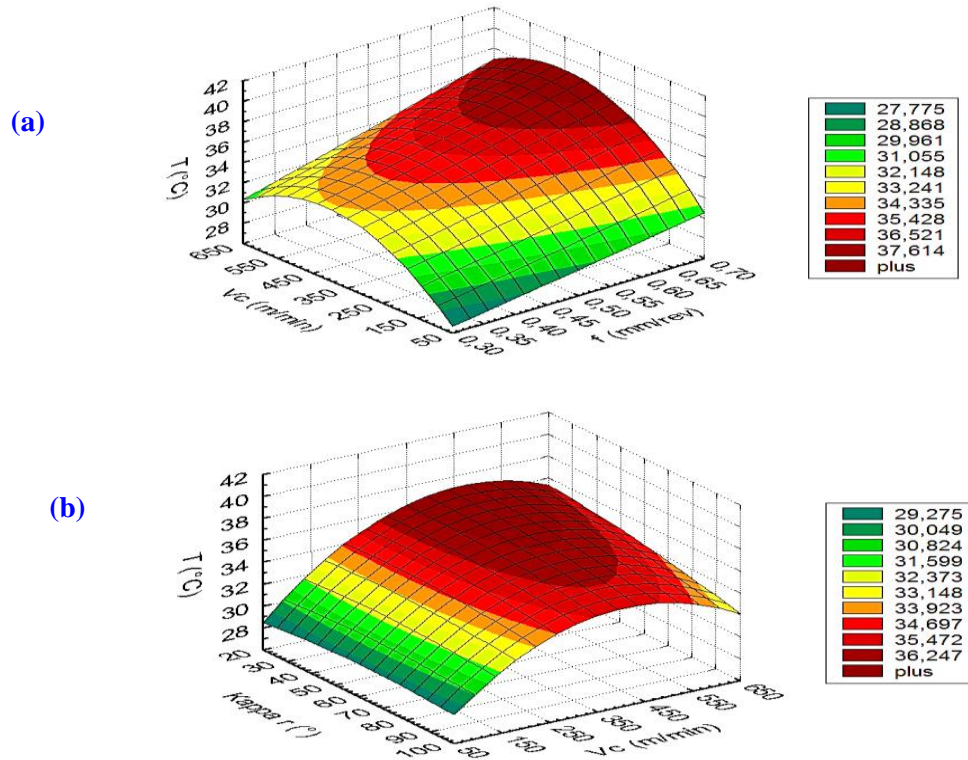


Figure III. 5. Surface de réponse estimée pour la T° de coupe en fonction de (a) V_c , f et (b) κ_r , V_c .

Les effets opposés maximaux sur R_t provoqués par l'augmentation de ap et f sont présentés sur les annexes B.3. (a et b). Au plus grand angle de direction, la variation R_t est de 75 % aux limites inférieures de ap et f (soit 1,8 mm et 0,30 mm/tr) et seulement de 55 % aux limites supérieures (soit 4,2 mm et 0,70 mm/tr). La meilleure valeur R_t ($0,3 \mu\text{m}$) est obtenue pour une avance de 0,3 mm/tr et un angle de direction maximum. Comme prévu, des vitesses d'avance plus élevées contribuent à des déformations importantes de la surface du polymère usinée et des copeaux évacués. On observe dans l'annexes B.3.(c) que les valeurs de rugosité les plus élevées ($\sim 1,4 \mu\text{m}$) sont obtenues pour les angles de direction les plus faibles et la vitesse de coupe la plus faible.

L'annexes B.4 présente le comportement du paramètre de courbure du filament, défini précédemment dans la section 3, en fonction de ap , V_c et κ_r . L'annexes B.4 (a) a montré que l'angle de direction à l'effet décroissant le plus important sur la courbure en hauteur du filament. Aucun changement vraiment significatif n'est observé sur la valeur de courbure en hauteur du filament en fonction de la variation de la profondeur de coupe, en particulier à des niveaux d'angle de coupe plus élevés et de vitesse de coupe plus élevés (L'annexes B.4 (a-c)). Ceci s'explique par les effets de la température sur l'outil de coupe-copeau d'interface qui ramollit le matériau coupé, comme indiqué précédemment.

III.4.1.6. Optimisation par l'analyse de la fonction de désirabilité

L'étude des valeurs optimales des paramètres de coupe et l'un des principaux objectifs d'une approche expérimentale. Dans notre cas, les paramètres de régime de coupe deviennent les valeurs souhaitées pour les paramètres de sortie recherchés pendant le processus de tournage des tuyaux en HDPE.

Autrement dit, l'emploi de l'optimisation de la surface de réponse permet d'assimiler la combinaison adéquate de paramètres de coupe d'entrée (c'est-à-dire γ , κr , Vc , f et ap) qui optimisent conjointement la température de coupe, les critères de rugosité de surface et la hauteur de courbure du filament la plus basse. Cette optimisation doit satisfaire aux exigences de toutes les réponses considérées dans l'ensemble. La mesure de l'optimisation est réalisée par la désirabilité, qui est la moyenne géométrique pondérée des désirabilités individuelles pour des réponses allant de zéro à un [3,33-36,50-52].

Les limitations prises en compte, dans le cas du HDPE, couvrent 4 catégories en relation avec : (i) le régime de coupe, (ii) la géométrie de l'outil, (iii) la qualité de la surface et (iv) la température limite supérieure. Ils sont donnés par les inégalités (III.9-III.16) :

$$(i) \left[\begin{array}{l} 100 \leq Vc \leq 560 \\ 0.48 \leq f \leq 0.52 \\ 3.9 \leq ap \leq 4.0 \end{array} \right. \quad \begin{array}{l} \text{(III.9)} \\ \text{(III.10)} \\ \text{(III.11)} \end{array}$$

$$(ii) \left[\begin{array}{l} -6^\circ \leq \gamma \leq +15 \\ +30^\circ \leq \kappa r \leq +90^\circ \end{array} \right. \quad \begin{array}{l} \text{(III.12)} \\ \text{(III.13)} \end{array}$$

$$(iii) \left[\begin{array}{l} Ra \leq 0.24 \mu m \\ Rt \leq 0.59 \mu m \end{array} \right. \quad \begin{array}{l} \text{(III.14)} \\ \text{(III.15)} \end{array}$$

$$(iv) \left[\begin{array}{l} T \leq 34^\circ C \end{array} \right. \quad \text{(III.16)}$$

Pour une désirabilité optimale, la solution technique proposée est donnée dans le [tableau III.3](#). Il montre clairement un angle de coupe γ négatif et l'angle de direction le plus

élevé des trois niveaux choisis. Cependant, la vitesse de coupe reste élevée et de telles conditions peuvent affecter considérablement les filaments.

Tableau III. 3. Solution optimisée sans contraintes pour T , Ra , Rt et $Ln(L)$

γ	κr	Vc	f	ap	$Ln(L)$	L	Ra	Rt	T	Composite Desirability
-4.497	90	550.014	0.438	3.831	-0.693	0.500	0.240	0.590	34.0	1.000

De même, *le tableau III.4.* illustre les résultats de l'optimisation *RSM* avec contraintes et la *figure III.6* donne l'optimisation de réponse correspondante pour les paramètres de sortie. À partir de tests préliminaires, les variations de température peuvent être contrôlées grâce à une avance et une vitesse de coupe optimisées. Les difficultés restantes concernent surtout (L) et dans une certaine mesure Ra .

Tableau III. 4. Solution d'optimisation avec contraintes

γ	κr	Vc	f	ap	$Ln(L)$	L	Ra	Rt	T	Composite Desirability
-6	90	160.225	0.515	4	-1.227	0.293	0.460	0.821	32.98	0.9995

Dans les directives d'usinage des polymères, il est généralement recommandé que les arêtes de coupe aient des angles de dépouille généreux (c'est-à-dire des angles de coupe importants) associés à un angle de coupe arrière négatif afin de minimiser tout éventuel frottement et/ou abrasion. Ces recommandations contribuent à améliorer la rugosité des surfaces lors de l'usinage. Dans le cas présent, κr ($\leq 90^\circ$) et γ (-6°) se trouvent à des intervalles adéquats pour l'usinage du HDPE. Une autre conclusion importante concerne la vitesse de coupe relativement réduite (160 m/min) qui est acceptable comme niveau d'équilibre entre les exigences de T et Ra . La valeur réelle obtenue correspondante de (L) est de 0,293 mm, ce qui est largement suffisant pour tester des filaments souples et pliables.

L'autre paramètre important est la température qui se situe bien en dessous de la limite supérieure de 40°C . La valeur de ap est volontairement maintenue suffisamment élevée car elle servira de dimension géométrique intégrée du filament pendant les tests. Il est à noter que la valeur correspondante pour le paramètre (L) est de 0,293 mm.

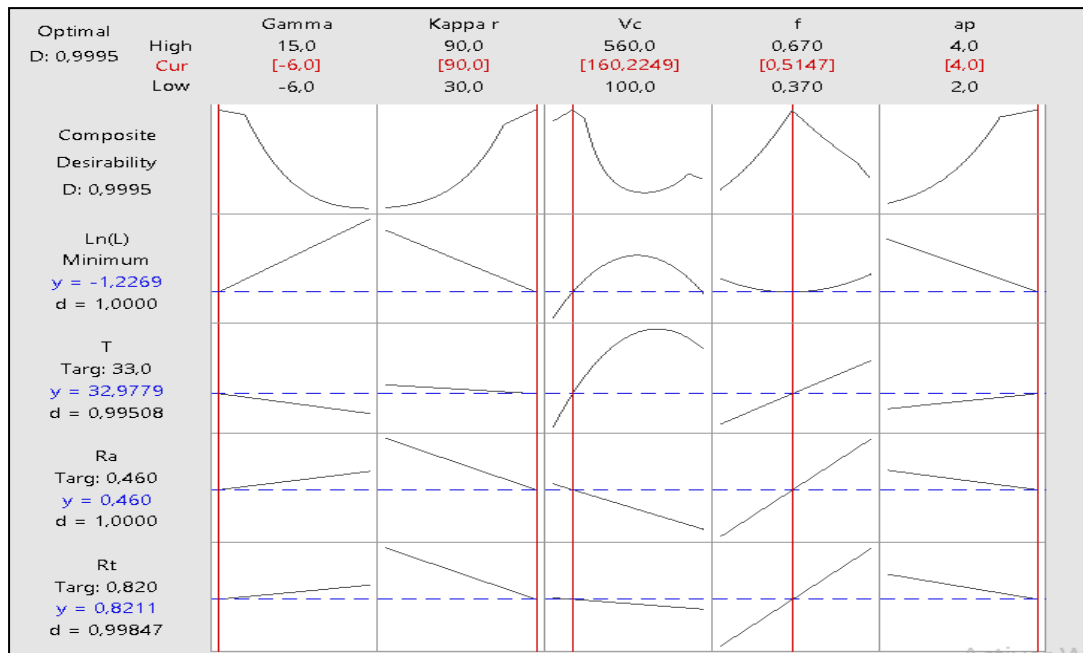


Figure III. 6. Récapitulation de l'optimisation des réponses avec contraintes

III.4.2. Opération de gorgeage

L'objectif principal de cette étude, était d'obtenir un filament le plus régulier possible (L tend vers zéro). Les résultats obtenus par le chariotage, étaient bons, mais nous recherchons la perfection. Les résultats d'optimisations obtenus par chariotage comme : $\kappa r=90^\circ$), nous ont données l'idée d'usinée avec le gorgeage.

Le concept est d'usiner en rainurant un filament continu et uniforme autant que possible, de géométrie définie et décrivant toute l'épaisseur d'un anneau tubulaire. Le protocole d'obtention du filament doit réduire au minimum les effets de dommages liés aux conditions d'usinage du matériau semi-cristallin très sensible aux déformations et à la chaleur. Un plan expérimental *Taguchi* ($L9$) est adopté prenant en entrées les paramètres de régime (vitesse de coupe : Vc ; avance : f ; profondeur de passe : ap). Les paramètres de performances modélisées sont les critères de rugosité (totale ; Rt) et (moyenne ; Ra) ainsi que la température de coupe (T°) et (L) la courbure du filament obtenu. L'optimisation des paramètres affectant les caractéristiques de performance a été obtenue avec la méthodologie de surface de réponse (*RSM*).

III.4.2.1. Planification des expériences

Les paramètres de coupe conventionnels (Vc , f et ap) sont considérés comme paramètres d'entrée tandis que les caractéristiques de performance comprennent (T , Ra , Rt et

L). Ils sont enregistrés pendant ou après l'opération de rainurage selon les cas à l'aide d'un niveau mixte *Taguchi L9* (tableau III.5).

Tableau III. 5. Plan expérimental *L9 Taguchi* pour les opérations de rainurage.

N	Vitesse de coupe. V_c (m/min)	Vitesse d'avance. f (mm/tr)	Profondeur de passe. ap (mm)	Temperature. T (°C)	Rugosité (μm)		Courbure latérale L (mm)
					R_a	R_t	
1	100	0.34	2	32.9	0.44	0.97	0
2	100	0.49	3	35.3	0.45	1.05	0
3	100	0.63	4	36.2	0.49	1.13	0
4	140	0.34	4	35.9	0.20	0.82	0
5	140	0.49	2	34.1	0.29	0.88	0
6	140	0.63	3	34.8	0.31	0.97	0
7	560	0.34	3	39.4	0.29	0.75	0
8	560	0.49	4	44.3	0.23	0.86	0
9	560	0.63	2	43.5	0.30	0.93	0

Le paramètre (L) représentant la hauteur du filament plié tel que défini dans [53] est vérifié visuellement et physiquement par rapport à une règle droite métallique. Comme prévu pour le rainurage, il est toujours nul (pas de courbure) et ceci constitue une corroboration fiable de l'uniformité et de la planéité du filament. On observe qu'un V_c élevé (560 m/min) pour tous les niveaux de f (0,49 ; 0,63 et 0,34 mm/tour) produit des températures de coupe inacceptables qui dépassent ou équivalent presque à la limite de 40°C ; ainsi, le niveau 3 ne peut pas conduire au régime d'usinage souhaitable quelles que soient les valeurs de ap . Il est entendu que la génération de chaleur est intensément déclenchée lorsque les polymères sont soumis à des opérations rapides d'élimination de matière par friction.

La valeur de rugosité la plus faible (R_a : 0,20 μm) est enregistrée à 140 m/min et 0,34 mm/tr ce qui correspond à une T mesurée acceptable (35,9°C). D'après la littérature sur l'usinage des polymères, il est connu qu'abaisser V_c , f et ap peut réduire la chaleur générée mais, il s'ensuit généralement que les critères de rugosité sont dégradés de manière catastrophique [19,53].

III.4.2.2. Filaments

La figure III.7 montre le filament usiné par rainurage il commence de l'extérieure du tuyau (marque jaune). Tout au long de l'opération d'usinage. Ce dernier est considéré comme un produit fabriqué dans des conditions de coupe connues et peut donc être utilisé pour une caractérisation (mécanique, structurale...). Chaque filament obtenu est soigneusement filé et stocké dans un sac en plastique avec une identification appropriée (chapitre II) pour éviter toute altération ou dommage.



Figure III. 7. Un filament complet issu d'un rainurage représentatif de toute l'épaisseur du tube (~12 m de long).

Dans ce cas, les conditions d'usinage et de sélection des outils ont été améliorées par rapport aux études précédentes [9,34-36,54], permettant d'obtenir des épaisseurs de filament encore plus petites.

Cependant, ces améliorations ont dévoilé les limites des paramètres de qualité des tuyaux en HDPE commercialisés, notamment en termes de tolérances d'arrondi et d'épaisseur. En effet, si le tuyau n'est pas exactement cylindrique, des approximations dimensionnelles doivent être faites pour atteindre des seuils permettant d'identifier les coordonnées de position (radiales et circonférentielles) de l'éprouvette pour chaque couche de 0,4 mm d'épaisseur. Autrement dit, on tolère parfois de perdre quelques couches, au démarrage de l'usinage, jusqu'à ce que le processus de découpe devienne peu fluctuant et que le filament produit soit continu et régulier. Il est donc nécessaire de prendre en compte ces difficultés inévitables, puisque les rectifications modifiant l'état de contrainte du tuyau ou la structure du polymère ne sont pas tolérées ici. La même approche est également efficace pour certaines couches du côté le plus interne qui pourraient être perdues en raison de déformations excessives et de distorsions du matériau. Dans tous les cas, il faut tenir compte de ces événements indésirables lors de chaque coupe et également faire le choix approprié pour réduire la largeur et la masse de l'anneau résultant associé à chaque filament préparé.

III.4.2.3. Approche de variance (ANOVA)

Les conclusions de l'ANOVA sur la manière dont les facteurs du régime initial ont affecté les paramètres de sortie sélectionnés (Ra , Rt et T) sont présentées dans les *tableaux III.6 (a-c)*. Ra , la contribution à la vitesse de coupe est en tête avec Vc et Vc^2 (respectivement 25,37% et 61,28%).

Tableaux III. 6. a) ANOVA de Ra, b) ANOVA de Rt, c) ANOVA de T

a)

Source	DF	Seq SS	Contribution	Adj SS	Adj MS	F-Value	P-Value
Model	5	0.082779	99.26%	0.082779	0.016556	79.97	0.002
Linear	3	0.027935	33.49%	0.059173	0.019724	95.27	0.002
Vc	1	0.021162	25.37%	0.051872	0.051872	250.55	0.001
f	1	0.004756	5.70%	0.002144	0.002144	10.35	0.049
ap	1	0.002017	2.42%	0.004245	0.004245	20.50	0.020
Square	1	0.051105	61.28%	0.051105	0.051105	246.84	0.001
Vc*Vc	1	0.051105	61.28%	0.051105	0.051105	246.84	0.001
2-Way Interaction	1	0.003739	4.48%	0.003739	0.003739	18.06	0.024
Vc*f	1	0.003739	4.48%	0.003739	0.003739	18.06	0.024
Error	3	0.000621	0.74%	0.000621	0.000207		
Total	8	0.083400	100.00%				

b)

Source	DF	Seq SS	Contribution	Adj SS	Adj MS	F-Value	P-Value
Model	5	0.100591	99.77%	0.100591	0.020118	260.62	0.000
Linear	3	0.073017	72.42%	0.096247	0.032082	415.60	0.000
Vc	1	0.039764	39.44%	0.062300	0.062300	807.06	0.000
f	1	0.032187	31.92%	0.033796	0.033796	437.80	0.000
ap	1	0.001067	1.06%	0.002191	0.002191	28.38	0.013
Square	1	0.025725	25.52%	0.025725	0.025725	333.25	0.000
Vc*Vc	1	0.025725	25.52%	0.025725	0.025725	333.25	0.000
2-Way Interaction	1	0.001849	1.83%	0.001849	0.001849	23.95	0.016
Vc*f	1	0.001849	1.83%	0.001849	0.001849	23.95	0.016
Error	3	0.000232	0.23%	0.000232	0.000077		
Total	8	0.100822	100.00%				

c)

Source	DF	Seq SS	Contribution	Adj SS	Adj MS	F-Value	P-Value
Model	4	133.142	98.76%	133.142	33.285	79.54	0.000
Linear	3	125.603	93.17%	132.310	44.103	105.40	0.000
Vc	1	113.075	83.87%	112.159	112.159	268.04	0.000
f	1	6.726	4.99%	11.049	11.049	26.40	0.007
ap	1	5.802	4.30%	10.803	10.803	25.82	0.007
2-Way Interaction	1	7.538	5.59%	7.538	7.538	18.02	0.013
Vc*f	1	7.538	5.59%	7.538	7.538	18.02	0.013
Error	4	1.674	1.24%	1.674	0.418		
Total	8	134.816	100.00%				

De même pour Rt , les deux formes de vitesse comme Vc et Vc^2 dominant (respectivement 39,44% et 25,52%). En ce qui concerne la température de coupe qui est supposée être le principal paramètre limitant de ce procédé, l'effet de Vc est beaucoup plus

prononcé puisqu'il explique 83,87% des différences totales. On constate que les contributions de ap dans les cas n'ont pas dépassé 5%.

III.4.2.4. Modèles RSM (Équations de régression)

L'étude préliminaire des réponses recueillies par RSM englobe tous les paramètres et leurs interactions. On procède à la réduction des modèles en supprimant les termes qui n'ont pas d'impact significatif sur les réponses. Par le biais de la méthode d'élimination préalable, les modèles finaux (modèles quadratiques et de puissance) des équations réactives en relation avec les facteurs réels sont présentés de la manière suivante pour T , Ra et Rt (équations III.17–III.19):

$$Ra = 0,9665 - 0,006926 Vc + 0,4336 f - 0,02887 ap + 0,000011 Vc * Vc - 0,000898 Vc * f \quad [R^2=99,26\%] \quad (III.17)$$

$$Rt = 1,4870 - 0,005686 Vc + 0,3366 f + 0,02074 ap + 0,000007 Vc * Vc + 0,000631 Vc * f \quad [R^2=99,77\%] \quad (III.18)$$

$$T = 30,15 - 0,00259 Vc - 3,45 f + 1,456 ap + 0,04032 Vc * f \quad [R^2= 98,76\%] \quad (III.19)$$

III.4.2.5. Diagrammes de surface de réponse 3D

La *figure III.8.* représente la variation des réponses en termes de Ra , Rt et T en fonction de la variation des paramètres d'entrée les plus influents (f et Vc) tels que déduits de la section ANOVA. Comme prévu, Ra et Rt décrivent tous les deux une forme comparable représentée par une forte diminution de Vc jusqu'à environ 350 m/min suivie d'une forte augmentation à des vitesses plus élevées (*figure III.8.a-b*). Il apparaît que 350 m/min est un tournant qui indique les valeurs les plus basses de Ra et Rt surtout lorsque l'avance est à son minimum.

L'effet de f sur les critères de rugosité reste faible dans la plage indiquée (0,3-0,66 mm/tr) et à faibles vitesses de coupe, les variations correspondantes (ΔRa) et (ΔRt) sont respectivement $\sim 0,2 \mu\text{m}$ et $\sim 0,5 \mu\text{m}$. Dans les deux cas, les valeurs globales de rugosité sont les plus faibles pour des vitesses comprises entre 250 et 350 m/min. Cependant, lorsque l'on invoque la température comme critère limitant pour l'intégrité du matériau, on observe qu'à des vitesses plus élevées ($Vc > 300$ m/min), la chaleur générée devient un facteur néfaste et conduit à une dégradation du matériau (*figure III.8.c*), en particulier à des vitesses d'alimentation plus élevées.

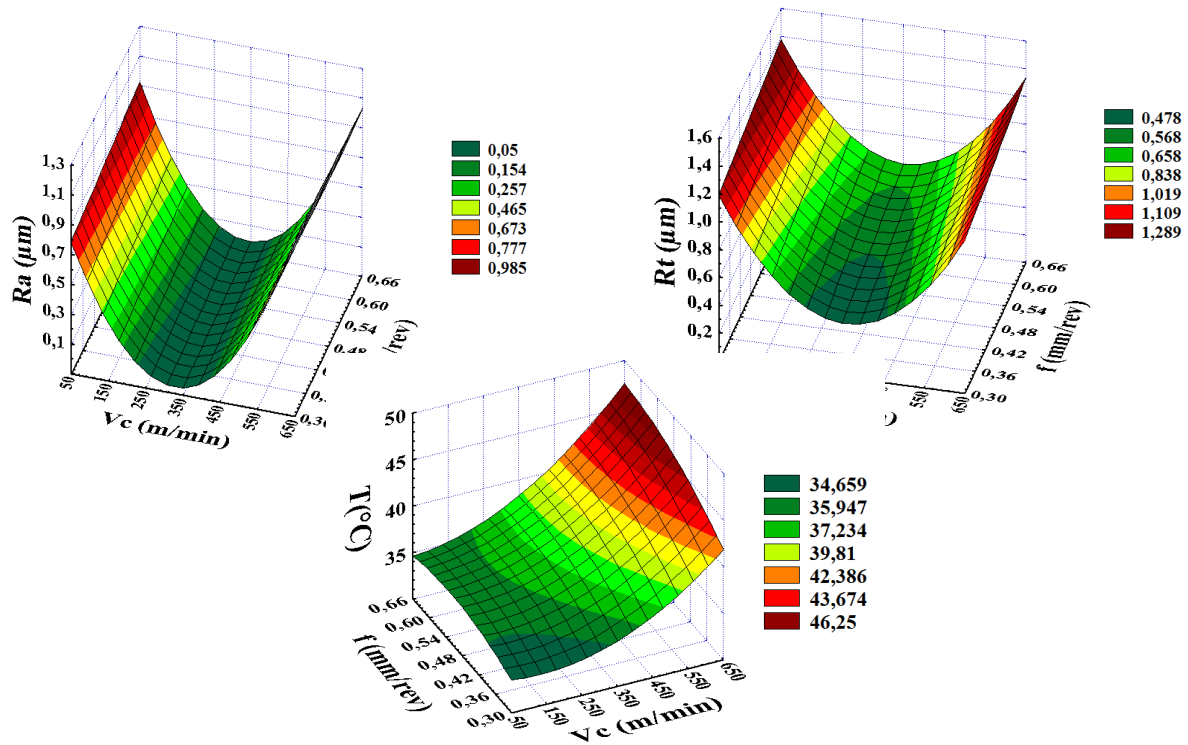


Figure III. 8. Surface de réponse estimée des caractéristiques de performance par rapport aux paramètres du processus

III.4.2.6. Conditions d'usinage optimisées

Tableau III. 7. Solution d'optimisation sans contraintes pour T , Ra et Rt .

V_c (m/min)	f (mm/tr)	ap (mm)	R_t (μm)	T (°)	R_a (μm)	Composite Desirability
137.194	0.4	4	1.10000	36.4482	0.223359	0.991034

En utilisant la désirabilité optimale, la solution pratique anticipée avec principalement une vitesse de coupe modérée et une température de coupe satisfaisante, comme résumé dans le *tableau III.7*. Il est conclu que tous les paramètres sont satisfaisants pour l'application recherchée dans le cadre du processus de rainurage et que les filaments peuvent être utilisés pour étudier les variations de propriétés à travers la paroi du tuyau.

La *figure III.10* indique l'optimisation de la réponse pour T , Ra et Rt . Encore une fois, il est révélé que V_c est le facteur le plus influent sur le processus de rainurage ; le cas de T est évident. En revanche, f et ap montrent des effets limités. Comme indiqué dans la littérature, le polyéthylène est sujet à des phénomènes induits par la chaleur [35,53].

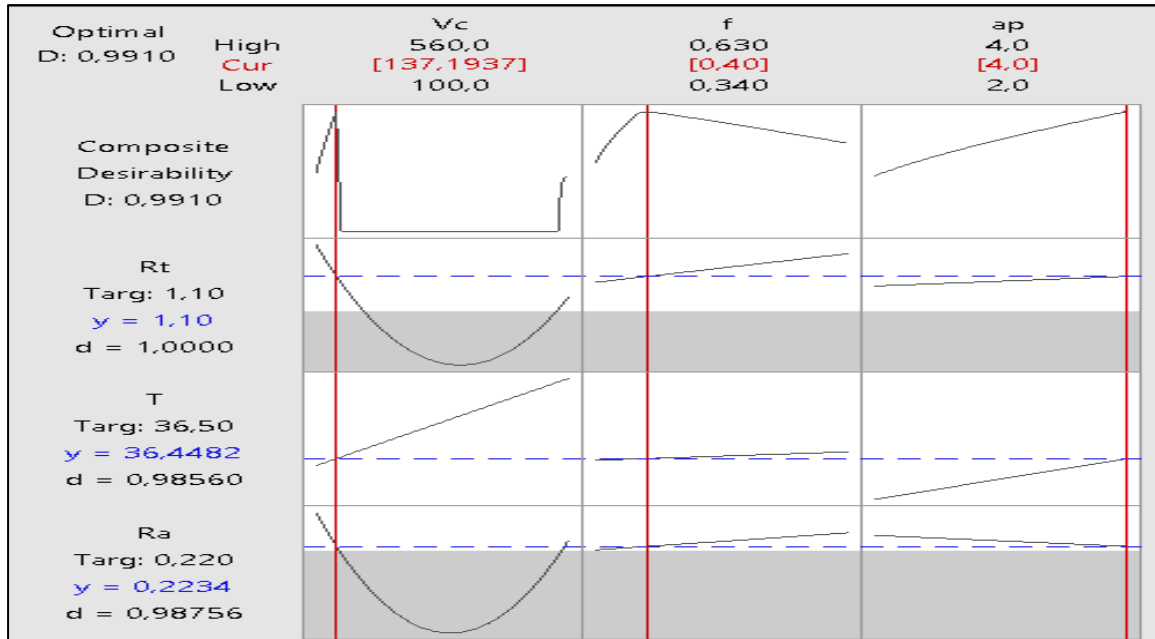


Figure III. 10. Optimisation de la réponse pour T, Ra et Rt

III.5. Conclusion

Cette recherche a pour objectif de perfectionner les études précédentes consacrées à l'optimisation des conditions d'usinage des tuyaux en HDPE pour la fabrication d'échantillons pour essais mécaniques. Cette étude a développé deux procédés d'usinage afin d'obtenir un filament uniforme, pour étudier l'hétérogénéité de la distribution des propriétés mécanique à travers le mur du tube.

Références bibliographiques

- [1] A. KARA, D. Abdelillah, 2013, *Contribution à la modélisation Coupe – paramètres d'usinage à l'aide de la Méthode de Traitement de Données par Groupe*, Thèse Doctorat, Univ. Tlemcen.
- [2] Julien THIL, 2013, *Contribution à l'étude expérimentale et à la modélisation de l'usinage des matériaux difficiles pour le procédé de forage profond avec système BTA*. Univ. Lorraine.
- [3] M. Alludin, IA. Choudhury, MA. El Badarie, MSJ. Hashmi, 1995, *Plastics and their machining: A review*, J. Mater. Proc. Technol, 54(1-4): 40-46.
[https://doi.org/10.1016/0924-0136\(95\)01917-0](https://doi.org/10.1016/0924-0136(95)01917-0)
- [4] MS. Kaiser F. Fazlullah, SR. Ahmed 2020. A comparative study of characterization of machined surfaces of some commercial polymeric materials under varying machining parameters. J. Mech. Eng., Automation & Control Syst.; 1(2): 75-88.
<https://doi.org/10.21595/jmeacs.2020.21643>
- [5] WJ. Carr, C. Feger, 1993. *Ultraprecision machining of polymers*. 15, 4: 221-237.

[https://doi.org/10.1016/0141-6359\(93\)90105-J](https://doi.org/10.1016/0141-6359(93)90105-J)

[6] JLC. Salles, MTT. Gonçalves, 2002, *Effects of machining parameters on surface quality of the ultra-high molecular weight polyethylene (UHMWPE)*, *Materia*, 8 (1): 1-10. <http://www.materia.coppe.ufrj.br/sarra/artigos/artigo10119/10119.pdf>

[7] KF. Tamrin, Y. Nukman, IA. Choudhury, S. Shirley, 2015, Multiple-objective optimization in precision laser cutting of different thermoplastics. *Optics and Lasers in Engineering*, (67): 57-65. <https://doi.org/10.1016/j.optlaseng.2014.11.001>

[8] JP. Davim, LR. Silva, A. Festas, AM. Abrão, 2009, *Machinability study on precision turning of PA66 polyamide with and without glass fiber reinforcing*. *Materials and Design*, 30(2): 228-234. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2008.05.003>

[9] S. Belhadi, M. Kaddeche, K. Chaoui, M.-A. Yallese, 2016, *Machining Optimization of HDPE Pipe Using the Taguchi Method and Grey Relational Analysis*. *Intern. Polymer Processing*, XXXI; 4: 491 – 502. <https://doi.org/10.3139/217.3271>

[10] A. Chabbi, MA. Yallese, M. Nouioua, I. Meddour, T. Mabrouki, F. Girardin, 2017, *Modeling and optimization of turning process parameters during the cutting of polymer (POM C) based on RSM, ANN, and DF methods*, *Int. J. Adv. Manuf. Technol.*; 91: 2267–2290. <https://doi.org/10.1007/s00170-016-9858-8>

[11] A. Czaplicki, 1962, *L'usinabilité et la coupe des métaux*. *Revue de la société royale belge des ingénieurs et des industries*, n°12. pp. 708 – 736.

[12] Berard Gruber, 1981, *Outillage et mesure*. *Dunod 2ème Edition*, Lausanne, 51-63.

[13] J. Lorentzon, 2009. *Modelling chip formation of alloy 718*. 209(10), P 4645-4653. <https://doi.org/10.1016/j.jmatprotec.2008.11.029>

[14] Yao Avevor, Abdelhadi Moufki, 2015, *Influence de la vitesse de coupe sur les conditions thermomécaniques à l'interface outil-copeau*, *CFM*, 2ème Congrès Français de Mécanique, Lyon, France. <https://hal.science/hal-03446230>

[15] Ph. O. Darnis, Cahuc et Y. Couétard, 2000, *Energy balance with mechanical actions measurement during a turning process*, *International seminar on improving machine tool performance*, La Baule3-5.

[16] M. Elbah, 2015, *Investigation expérimentale sur l'effet de la géométrie de l'outil et des conditions de coupe en tournage en utilisant les techniques statistiques*, Thèse Doctorat, Sciences et de la Technologie. Univ. Guelma.

[17] E.M. Trent, & P.K. Wright, 2000, *Metal Cutting*. *Butterworth-Heinemann*, Boston, pp 446.

- [18] G. Bartarya, S. K. Choudhury , 2012. *State of the art in hard turning. International Journal of Machine Tools & Manufacture*, 53, pp 1-14.
<https://doi.org/10.1016/j.ijmachtools.2011.08.019>
- [19] Mitsubishi Chemical Group, *Guide To Machining Plastic Parts, Metric System. Machinist's Toolkit*. (Consulted on 6 Sept. 2023).
<https://www.mcam.com/mam/41701/MCG-Machinist-Toolkit-A4-EU-metric.pdf>
- [20] G. Sutter, 2005, *Chip geometries during high-speed machining for orthogonal cutting conditions*. *International Journal of Machine Tools and Manufacture*, 45(6), 719–726. 10
<https://www.sciencedirect.com/science/article/abs/pii/S0890695504002482>
- [21] Yaich, M, 2017, *Contribution à la fiabilisation de la modélisation numérique de l'usinage de pièces en titane*, PhD Thesis, Paris, ENSAM. 9, 10, 12, 33
- [22] G. Sutter, 2005, *Chip geometries during high-speed machining for orthogonal cutting conditions*. *International Journal of Machine Tools and Manufacture*, 45(6), 719–726. 10
<https://www.sciencedirect.com/science/article/abs/pii/S0890695504002482>
- [23] E.M. Trent, & P.K. Wright 2000, *Metal Cutting. Butterworth-Heinemann. Boston*, pp 446.
- [24] Maxime Dawoua Kaoutoing, 2020, *Contributions à la modélisation et la simulation de la coupe des métaux : vers un outil d'aide à la surveillance par apprentissage*. Mécanique des matériaux [physics.class-ph]. Institut National Polytechnique de Toulouse - INPT; Univ. Ngaoundéré .Cameroun
- [25] John Wiley & Sons, 2002. *Fundamentals of Modern Manufacturing, 2 nd Edition*, Inc. M. P. Groover.
- [26] Brigitte Vasques, 2008, *Etude du comportement du rayon d'arête et de son influence sur l'intégrité de surface en tournage à sec*. Thèse: Doctorat Univ. François - Rabelais DE Tours École Doctorale Santé, Sciences, Technologie.
http://www.applis.univ-tours.fr/theses/2010/damien.joly_3011.pdf
- [27] QK.Nguyen, C. Mwiseneza, K. Mohamed, P.Cousin, M. Robert, B. Benmokrane, 2021, *Long-term testing methods for HDPE pipe - advantages and disadvantages: A review*. *Eng. Fract. Mech.*, 246: 107629.
<https://doi.org/10.1016/j.engfracmech.2021.107629>
- [28] Jacques Lacoste et Sandrine Therias, 2015, *Vieillessement des matériaux polymères et des composites*, l'Actualité Chimique n° 395.
<https://www.researchgate.net/publication/281434513>
- [29] J. Berneck, 2012, *Plastics instead of metals. Kunststoffe International*, 9: 57-59.
www.kunststoffe-international.com
- [30] Roger Brown, 2002, *Handbook of Polymer Testing – Short-Term Mechanical Tests*, Rapra Technology.

- [31] LC. Xiao KQ, Zhang, 2002, *The role of viscous deformation in the machining of polymers*, Int. J. Mech. Sci., 44 (11): 2317-2336.
[https://doi.org/10.1016/S0020-7403\(02\)00178-9](https://doi.org/10.1016/S0020-7403(02)00178-9)
- [32] A. Chabbi, MA. Yallese, M. Nouioua, I.Meddour, T. Mabrouki, F. Girardin 2017. *Modeling and optimization of turning process parameters during the cutting of polymer (POM C) based on RSM, ANN, and DF methods*, Int. J. Adv. Manuf. Technol.,; 91: 2267–2290. <https://doi.org/10.1007/s00170-016-9858-8>
- [33] A. Azzi, L. Boulanouar, A. Laouisi, 2022, *Modeling and optimization of machining parameters to minimize surface roughness and maximize productivity when turning polytetrafluoroethylene (PTFE)*. Int. J. Adv. Manuf. Technol. 123: 407–430.
<https://doi.org/10.1007/s00170-022-10160-z>
- [34] M. Kaddeche, K. Chaoui, MA. Yallese, 2012, *Cutting parameters effects on the machining of two high density polyethylene pipes resins*, Mechanics & Industry, 13(5): 307-316. <https://doi.org/10.1051/meca/2012029>
- [35] N. Hamlaoui, S. Azzouz, K. Chaoui, Z. Azari, M.A. Yallese, 2017, *Machining of tough polyethylene pipe material: Surface roughness and cutting temperature optimization*, Int. J. Adv. Manuf. Technol., 92 (5-8), p. 2231-2245.
<https://doi.org/10.1007/s00170-017-0275-4>
- [36] J. Niglia, A. Cisilino, R. Seltzer, P. Frontini, 2002, *Determination of impact fracture toughness of polyethylene using arc-shaped specimens*, 69 (12):1391-1399
[https://doi.org/10.1016/S0013-7944\(02\)00008-5](https://doi.org/10.1016/S0013-7944(02)00008-5)
- [37] W. R Broughton et A. S Maxwell, 2007. *Accelerated Environmental Ageing of Polymeric Materials*. Measurement Good Practice Guide No. 103. National Physical Laboratory. ISSN 1368-6550.
- [38] N. Kiass, R. Khelif, B. Bounamous, A. Amirat, K. Chaoui, 2006, *Experimental study of mechanical and morphologic al properties in HDPE-80 gas pipe*, Mechanics & Industry,; 7: 423-432.
<https://doi.org/10.1051/meca:2006056>
- [39] K. Bouacha, MA. Yallese, T. Mabrouki, JF. Rigal, 2010. *Statistical analysis of surface roughness and cutting forces using response surface methodology in hard turning of AISI 52100 bearing steel with CBN tool*. Int. J. Refract. Met. & Hard Mater. 28(3): 349–361.
<https://doi.org/10.1016/j.ijrmhm.2009.11.011>
- [40] B. Davoodi, B. Eskandari, 2015. *Tool wear mechanisms and multi-response optimization of tool life and volume of material removed in turning of N-155 iron-nickel-base superalloy using RSM*. Measurement. 68: 286-294.
<https://doi.org/10.1016/j.measurement.2015.03.006>
- [41] EM. Gutema, M. Gopal, HG. Lemu, 2022, *Temperature Optimization by Using Response Surface Methodology and Desirability Analysis of Aluminum 6061*. Materials. 15(17): 5892.
<https://doi.org/10.3390/ma15175892>

- [42] AK. Parida, BC. Routara, RK. Bhuyan, 2015, *Surface roughness model and parametric optimization in machining of GFRP composite: Taguchi and Response surface methodology approach*, *Materials Today: Proceedings*, 2(4-5): 3065–3074.
<https://doi.org/10.1016/j.matpr.2015.07.247>
- [43] AVM. Subramanian, MDG. V. Nachimuthu, 2017, *Cinnasamy Assessment of cutting force and surface roughness in LM6/SiC_p using response surface methodology*. *J. Appl. Res. & Technol.* 15(3): 283–296.
<https://doi.org/10.1016/j.jart.2017.01.013>
- [44] AI. Khuri. S. Mukhopadhyay, 2010, *Response surface methodology*. *WIREs Computational Statistics*, 2(2): 128-149.
<https://doi.org/10.1002/wics.73>
- [45] Y. Yan, Y. Mao, B. Li, P. Zhou, 2020, *Machinability of thermoplastic polymers: PEEK, PI, and PMMA*. *Polymers (Basel)*, 13 (1): 69-83.
<https://doi.org/10.3390/polym13010069>
- [46] Cat. S60 Smartphone, User Manual. Caterpillar, 2016.
<https://www.catphones.com/download/User-Manuals/S60-Smartphone/S60-User-Manual-English.pdf>
- [47] G. Reichenbach, M. Bohley, FJP. Sousa Fabio, J. Aurich, 2018, *Micromachining of PMMA—manufacturing of burr-free structures with single-edge ultra-small micro end mills*, *Int. J. Adv. Manuf. Technol.* 96:3665–3677.
<https://doi.org/10.1007/s00170-018-1821-4>
- [48] K. Giasin, S. Ayvar-Soberanis, 2016, *An Investigation of Burrs, Chip formation, Hole Size, Circularity and Delamination during Drilling Operation of GLARE using ANOVA*, *Composite Structures*, 59:745-760.
<http://dx.doi.org/10.1016/j.compstruct.2016.10.015>
- [49] AI. Alateyah, Y. El-Taybany, S. El-Sanabary, WH. El-Garaihy, H. Kouta, 2022, *Experimental Investigation and Optimization of Turning Polymers Using RSM, GA, Hybrid FFD–GA, and MOGA Methods*. *Polymers*; 14 (17): 3585-3610.
<https://doi.org/10.3390/polym14173585>
- [50] BW. Yap, CH. Sim, 2011, *Comparisons of various types of normality tests*. *J. Statistical Computation and Simulation*, 81(12): 2141-2155.
<http://dx.doi.org/10.1080/00949655.2010.520163>
- [51] G. Derringer, R. Suich, 1980, *Simultaneous optimization of several response variables*, *J. Qual. Technol.* 12(4): 214-219.
<https://doi.org/10.1080/00224065.1980.11980968>
- [52] EM. Gutema, M. Gopal, HG. Lemu, 2022, *Temperature Optimization by Using Response Surface Methodology and Desirability Analysis of Aluminum 6061*. *Materials*. 15(17): 5892.
<https://doi.org/10.3390/ma15175892>

[53] S. Mammeri, K. Chaoui, K. Bouacha, 2023, *Manufacturing of testing specimens from tough HDPE-100 pipe: Turning parameters optimization*, JRESM, (10):513-536".
<http://dx.doi.org/10.17515/resm2023.38ma0714rs>

[54] M.Reyne, 1998, *Technologie des plastiques*, HERMES, Paris.

CHAPITRE IV

ETUDE DU PHENOMENE D'ABSORPTION DE QUELQUES SOLVANTS LORS DU VIEILLISSEMENT DES TUBES HDPE-100

IV.1. Introduction:

Les tuyaux en polyéthylène haute densité HDPE sont utilisés dans de nombreux systèmes (eaux usées, eau potable, irrigation, drainage, gaz naturel, pétrole...) en raison de leur durabilité et de leur fiabilité élevées, de leur entretien facile et de leurs coûts d'exploitation inférieurs à ceux de l'acier. En conséquence ils sont en contact avec des fluides qui provoquent des *ESC* (fissuration sous contrainte environnementale), notamment les solvants (hydrocarbures) qui sont des espèces agressifs pour les polymères (thermoplastiques, thermodurcissables, caoutchoucs, composites...). La diffusion dans les solides est nécessaire dans la technique et la science des matériaux et donc un sujet important de la physique du solide, de la physico-chimie, de la physico-métallurgie. L'activité de recherche dans le domaine de l'adsorption et de la diffusion des gaz et des produits chimiques dans les polymères amorphes a été très active ces dernières années. Les calculs effectués incluent les caractéristiques géométriques des volumes accessibles dans les matrices polymères pures et leur distribution et réarrangement avec le mouvement thermique; les études d'autodiffusion des milieux chimiques dans les polymères (polyéthylène, polypropylène, polyisobutylène) et les calculs des diffusivités à température ambiante. Les estimations se concentrent sur les pénétrants chimiquement simples [1].

L'objectifs de notre étude expérimentale de ce chapitre et de concevoir un programme expérimental pour étudier la sorption de ces solvants soit (E, M, TM, T, B et DCM), par un tuyau HDPE-100. Obtenir un modèle pour la sorption du solvants-HDPE, basé sur les équations exponentielles Fickiennes. Effectuer les calculs appropriés pour obtenir un ordre de grandeur du coefficient de diffusion.

IV.2. Absorption-désorption des liquides par le HDPE

Le concept de sorption regroupe l'adsorption et l'absorption. Il s'agit d'un processus qui consiste à introduire et à disperser des fluides/espèces dans un volume libre d'un polymère. Les polymères sont composés de longues chaînes moléculaires, qui sont des macromolécules formées par combinaison chimique ou polymérisation d'unités simples et de monomères. Les propriétés des polymères sont contrôlées par la composition chimique, la structure moléculaire, la vitesse de cristallisation et/ou la morphologie des cristallites [2]. La mobilité des espèces et la mobilité des chaînes polymères jouent un rôle essentiel dans le transport. Dans un tube en PHDE, un liquide peut s'adsorber et ensuite traverser les parois si sa molécule présente une masse faible et un encombrement stérique faible.

Choi et al discutent le vieillissement chimique à partir du concept de masse molaire [3-5]. Il existe de nombreuses propriétés chimiques, et la solubilité, la perméabilité et la résistance chimique sont brièvement discutées ici. La dernière catégorie comprend un large éventail de propriétés telles que la résistance à l'environnement, la résistance aux radiations, etc. En général, les plastiques présentent une excellente résistance à de nombreuses formes d'attaques chimiques, et mieux que de nombreux métaux, en particulier dans les acides ou les bases faibles. Cependant, ils sont attaqués par des acides oxydants forts. Les thermoplastiques sont également solubles par divers composés de solvants organiques. La solubilité de l'agent de diffusion dans le polymère affecte également la perméabilité à mesure que le poids moléculaire augmente. La solubilité réduit généralement la perméabilité. [6].

Les polyéthylènes sont des polymères hautement cristallin, les polymères hydrocarbures ont une solubilité étroite dans la plupart des solvants et pourtant totalement perméables à la plupart des gaz. Cependant, plus le polymère est cristallin, plus la perméabilité est faible, parce que le volume libre à travers lequel la molécule doit diffuser est diminué. Des polymères plus cristallins présentent une plus grande résistance chimique, car les carburants, graisses, huiles et même l'eau peut faire gonfler certains plastiques et adoucir. La solubilité du polymère dans divers solvants et la tendance d'un solvant à diffuser dans le polymère et à gonfler. D'autres facteurs, tels que les interactions entre les molécules. Le vieillissement dépend de la nature de l'environnement. La plupart des plastiques s'oxydent et se dégradent s'ils sont stockés pendant de longues périodes dans des milieux agressives [7]. La diffusion se produit principalement dans les régions amorphes, où de petits mouvements vibratoires se produisent le long des chaînes polymériques, les chaînes macromoléculaires, s'éloignent les unes des autres, laissant place à des molécules diffusantes. *Ghabeche 2015 et al* et autres. Conclure, lors de la simulation de la diffusion dans le polyéthylène, que la cristallinité réduit significativement la diffusion [8-11].

Il est néanmoins nécessaire d'ajouter quelques subtilités pour évaluer de manière précise la compatibilité chimique d'un plastique, *tableau VI.1* car sa résistance est généralement restreinte, notamment par la température et le temps d'exposition.

**Chapitre IV : Etude du phénomène d'absorption de quelques solvants lors du vieillissement des tubes
HDPE-100**

Tableau IV. 1. Compatibilité des polyéthylènes avec les solvants [12-14].

<i>PE</i> <i>Solvants</i>	<i>LDPE</i>			<i>HDPE</i>			<i>Commentaries</i>
	<i>140°</i>	<i>70°</i>	<i>20-50°</i>	<i>140°</i>	<i>70°</i>	<i>20-50°</i>	
Acétone	B	C	C	B	C	C	Des dommages pourraient parvenir. Non recommandé pour une utilisation poursuit.
Benzene	C	C		C	C	C	Des dommages pourraient parvenir. Non recommandé pour une utilisation poursuit.
Chloroform	C	C		B	C	B	Présentez un effet après 7 jours à 50 ° t endommagé. Non recommandé pour une utilisation poursuit.
Ethyl alcohol	A	A		A	A	A	montrer peu ou plus de dégâts après 30j.
Héxane	A	A		A	A	A	Le PEHD à 20° montre peu ou pas de dommage après 30j mais à 50°, montre un certain effet après 7j. LDPE déconseillé à aucune température.
L'alcool méthylique	A	A		A	A	A	Montre peu ou plus de dégâts après 30j
Chlorure de méthylène (DCM)	C	C		B	B	B	Présentez un effet après 7 jours à 50 ° t endommagé. Non recommandé pour une utilisation poursuit.
Phénol		C	C	C	C	C	Des dommages pourraient parvenir. Non recommandé pour une utilisation poursuit.
Toluène	C	C		B	B	B	Le PEHD à 20 montre un certain effet d'une exposition constante. PEHD et PEBD à 50 montre immédiatement des dommages non recommandés
Trichloréthylène	C	C		C	C	C	Des dommages pourraient parvenir. Non recommandé pour une utilisation poursuit.
Xylène	C	C		B	B	B	Le HDPE à 20 montre un certain effet d'une exposition constante. PEHD et PEBD à 50 montre immédiatement des dommages non recommandés

A	Bonne compatibilités. Effet mineur
B	Compatibilité adéquate. Effet modéré
C	Non recommandé. Effet grave.

La résistance chimique se définit par la réaction d'un matériau à un produit chimique lors d'un contact court ou prolongé. Plus un matériau réagit de manière intense lors de ce contact, plus il sera altéré par l'agent chimique pertinent. En revanche, une faible réaction

causera moins de dégâts, ce qui permettra au matériau de préserver ses caractéristiques initiales, comme ses propriétés mécaniques.

Un polymère qui reste stable en présence d'un solvant sera considéré comme chimiquement résistant à ce solvant. La résistance chimique est une caractéristique appréciée dans le domaine des polymères, car les plastiques sont fréquemment employés dans la production de bassins, de réservoirs et de pièces destinées à des environnements corrosifs où ils sont en contact direct avec divers produits chimiques. Pour sélectionner le plastique approprié en fonction d'une application spécifique, il est essentiel d'évaluer l'environnement dans lequel il devra fonctionner.

IV.3. Résultats

Une campagne d'essais de sorption a été effectuée sur des éprouvettes de dimensions (10x11x24 mm³), sont fabriquées à partir d'un tube extrudé et ont été vieilles chimiquement et suivies sur une période de 112 jours sur différentes périodes (7, 14, 21, 28, 48, 69 et 112 jours). Les courbes $\Delta M/M_0$ (\sqrt{t}) obtenus ont été comparés avec les courbes (*figure I.11, Chapitre I*). Si les courbes des différents phénomènes de sorption suivent ou non la loi de distribution de Fick.

IV.3.1. Comparaison de l'absorption de T, M et du mélange TM 50/50.

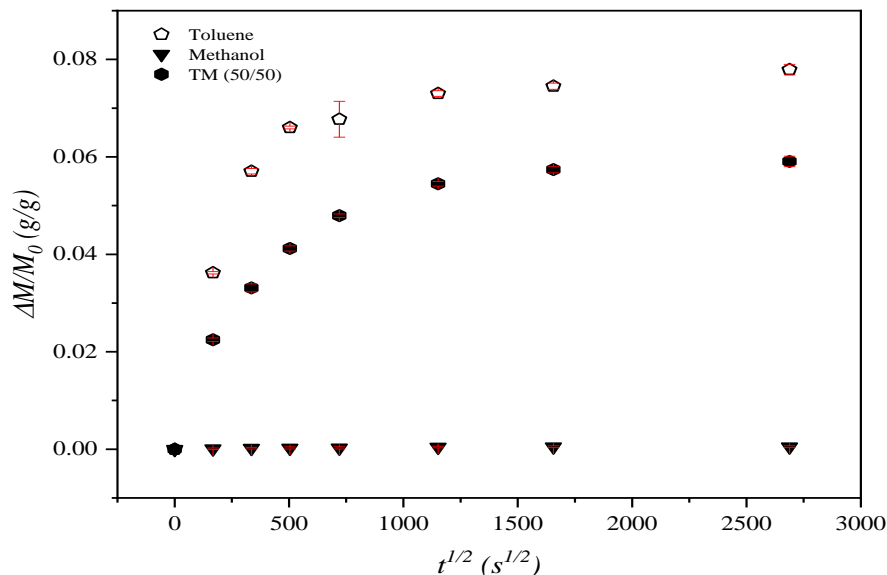


Figure IV. 1. Gain de masse en fonction de la racine du temps d'immersion pour les trois environnements (T, M et TM).

IV.3.2. Comparaison de l'absorption des six solvants

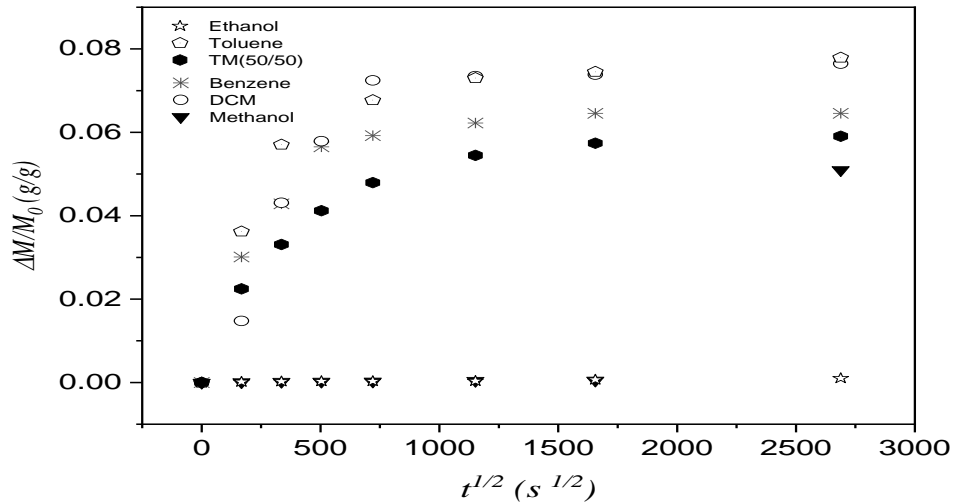


Figure IV. 2. Gain de masse en fonction de la racine du temps d'immersion pour les six environnements (E, M, TM, T, B et DCM).

IV.3.4. Evolution du temps de saturation

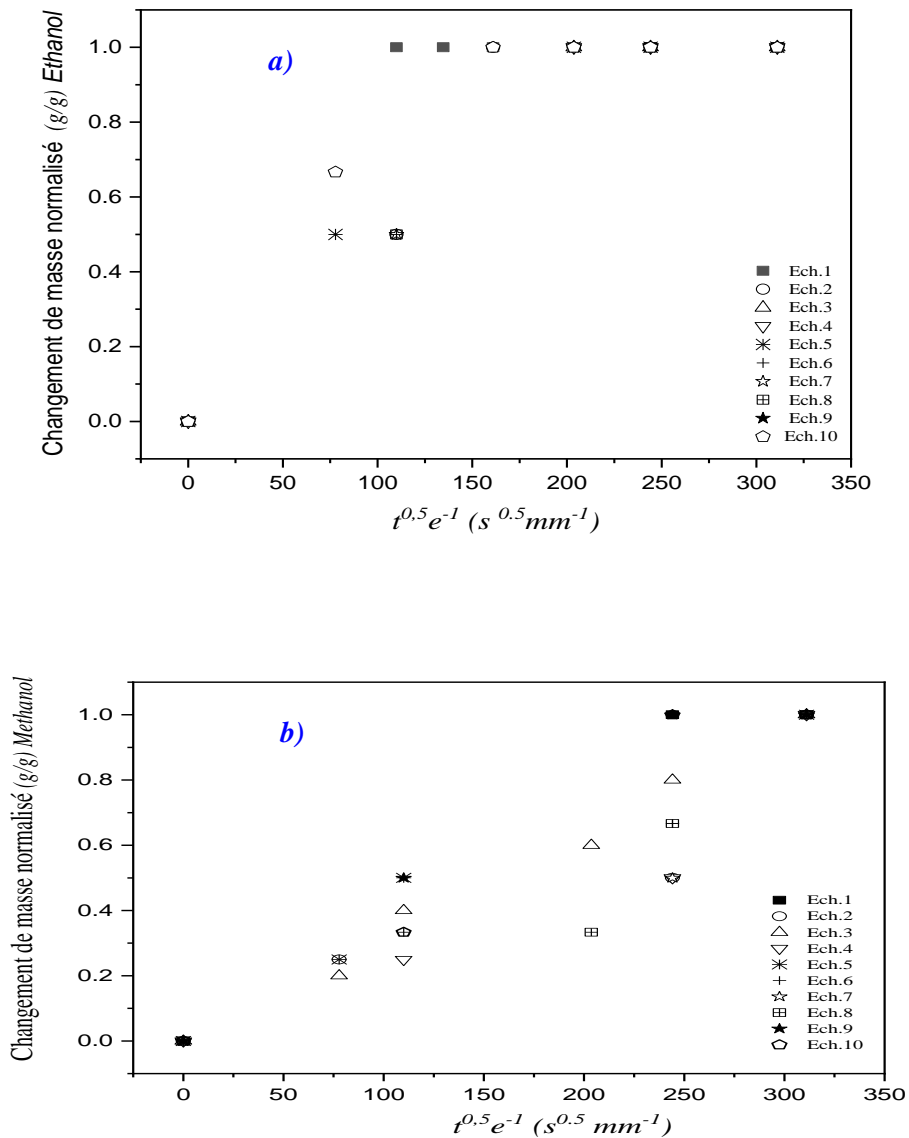
Tableau IV. 2. Evolution de la masse du HDPE dans les solvants organiques.

solvant de vieillissement	Ce travail		Littératures			
	Temps de début de saturation (jours) 25°C	Gain en masse (%)	Temps de Saturation	Gain en masse (%)	Résistance chimique du HDPE (20°C)	Références
<i>Ethanol</i>	14	0.10	6.76	14	haute résistance	[15]
<i>Méthanol</i>	14	0.051			haute résistance	
<i>T/M (50/50)</i>	48	5.90	7j (23°C)	3.81	résistance limitée	[16] [17] [18]
			7j (23°C)	1.16		
			6.25 j	8		
<i>Toluène</i>	48	7.79	0.28 j	7.5	résistance limitée	[19] [20] [21] [22] [2]
			(40°C)	6.4		
			3j (25°C)	7.9		
			11	5.3		
			100j (35°C)	0.11		
			(23°) 72h	6.4		
<i>Benzène</i>	48	6.45	42h	0.12	résistance limitée	[2]
<i>DCM</i>	48	7.65	26.7 h	0.12	résistance limitée	[2]

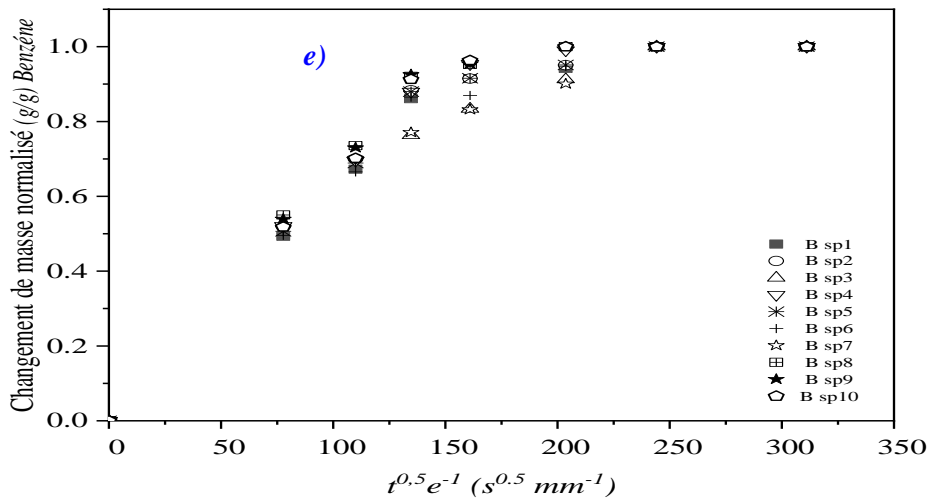
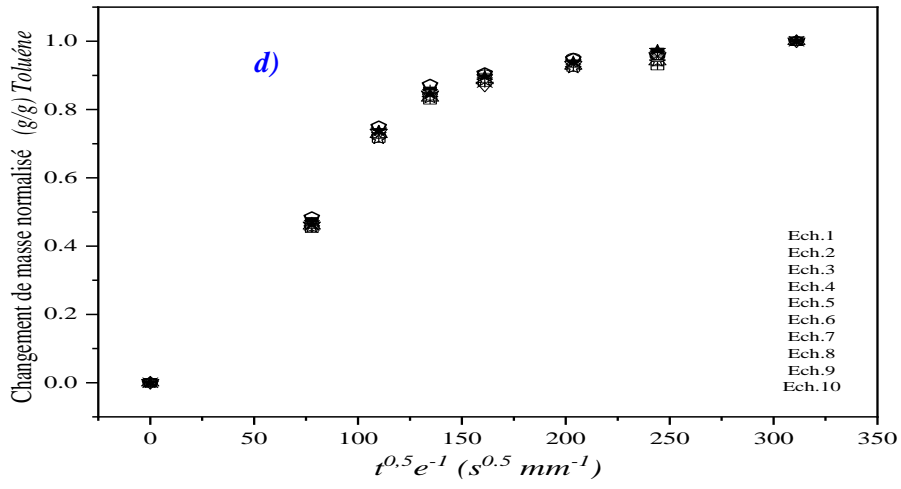
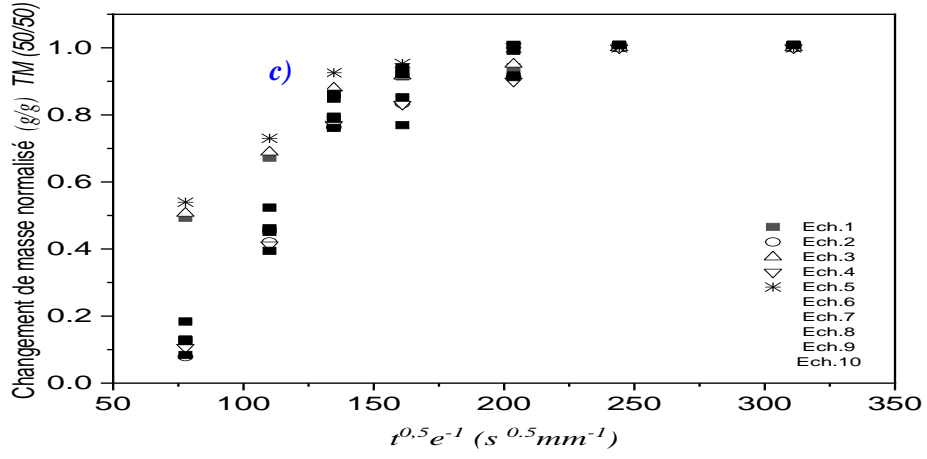
Le *tableau VI.2* au-dessus est un tableau comparatif, qui englobe les résultats de notre étude (temps de début de saturation (jour) à 25°C, Gain en masse (%)), et les résultats de la littérature (temps de saturation (jour) à différentes températures, Gain en masse (%) plus la résistance chimique du HDPE).

IV.5. Discussion et analyses des résultats

IV.5.1. Obtention du coefficient de diffusion « D »



Chapitre IV : Etude du phénomène d'absorption de quelques solvants lors du vieillissement des tubes
HDPE-100



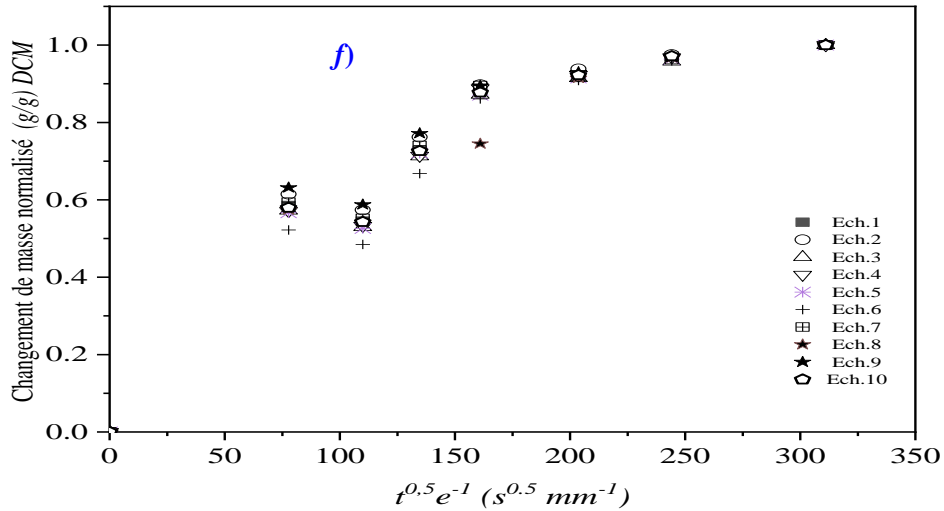


Figure IV. 3. Courbes expérimentales de sorption en fonction de la racine carrée du temps rapporté à l'épaisseur de l'échantillon du: *a)* Ethanol *b)* Méthanol *c)* TM *d)* Toluène *e)* Benzène et *f)* DCM.

Tableau IV. 3. Paramètres de corrélation pour le modèle exponentiel choisi.

$$M_t / M_\infty = A - B e^{-Ct}$$

Solvants	A	B	C	R ²
Ethanol	1.14664	1.12554	0.00075	0.95
Méthanol	1.12990	1.11049	0.00161	0.95
TM	0.99029	0.97918	0.00241	0.99
Toluène	0.96680	0.96814	0.00400	0.99
Benzene	1.02742	1.02581	0.00435	0.99
DCM	0.96031	0.90387	0.00316	0.92

Tableau IV. 4. Diffusivité (*D*)

Solvants	Diffusion (<i>D</i>) cm ² s ⁻¹ (ce travail)	Diffusion (<i>D</i>) cm ² s ⁻¹ (literature)	References
Ethanol	(1.64848±1,483) 10 ⁻⁸	(1.39) 10 ⁻⁶ (PEVA)	[23]
Méthanol	(1.94335±0.389109)10 ⁻⁸	(2.16) 10 ⁻¹⁰ (PET)	[2]
TM (50/50)	(3,1940 ± 0,050) 10 ⁻⁸	-	-

**Chapitre IV : Etude du phénomène d'absorption de quelques solvants lors du vieillissement des tubes
HDPE-100**

Toluène	$(3,57013 \pm 0,051) 10^{-8}$	$(4,33) 10^{-8}$ (HDPE)	[19]
		$(4.3-6.6) 10^{-8}$ (HDPE)	[21]
		$(5.1) 10^{-9}$ (HDPE)	[24,25]
		$(3.85) 10^{-7}$ (HDPE)	[24]
		$(3.85) 10^{-7}$ (HDPE)	[26]
		$(8,76) 10^{-8}$ (HDPE)	[27]
Benzène	$(4,8722 \pm 0,3204) 10^{-8}$	$(3.7) 10^{-10}$ (HDPE)	[24]
DCM	$(3,3646 \pm 0.03361) 10^{-8}$	$(6,8) 10^{-8}$ (HDPE)	[24]

PEVA : Polyéthylène Acétate de Vinyle

PET: Poly(ethylene terephthalate)

IV.5.2. Discussion et interprétation des résultats

Les spécimens immerger et retirer après (7, 14, 21, 28, 48, 69 et 112 jours) pour être pesés, et suivre la diffusion des solvants dans le polymère. (*annexes B.2*). La diffusivité du Benzène, TM (50/50), le toluène et le dichlorométhane, est très proche, pour le méthanol et l'Ethanol une diffusivité plus faible est enregistrée. On remarque que les courbes (*annexes B.2*), ressemblent à la courbe « LF » de la (*fig.I.11 chapitre I*). Le modèle exponentiel s'adapte de manière adéquate aux données de sorption pour les six solvants est considéré comme un comportement de type Fickien (R^2 élevé). (*équation I.1 chapitre I*) (loi de Fick).

Sur la (*figure IV.1*), on peut observer le gain de poids, et on remarque que l'évolution dans le temps est similaire pour le toluène et le TM 50/50. La saturation débute après une immersion de 1152 heures (après 48 jours), tandis que des taux très bas sont observés pour le méthanol.

Les courbes (*figures. IV. 2*) présentent le gain de masse en fonction de la racine du temps d'immersion pour les six environnements (E, M, TM, T, B et DCM), La saturation commence à > 14 jours d'immersion pour E et M. Par contre elle commence à > 48 jours, d'immersion pour TM, T, B, et DCM.

Dans le (*tableau VI.2*) Les résultats montrent que l'absorption se traduit par un gain de masse ($\Delta m / m_0$, %) en fonction de \sqrt{t} et varie de 0,051 % pour le méthanol jusqu'à 7.79 % pour le toluène. Les bornes supérieures obtenues en % masse sont les suivantes : (0.1), (5,9), (6,45) et (7,65) % pour E, TM, B et DCM respectivement. Les observations ont indiqué un

phénomène de rasage qui balayait toutes les caractéristiques de la surface d'origine avec un effet de gonflement notable. En outre, il est expliqué qu'un effet agressif à court terme peut provoquer une augmentation temporaire de la cristallinité du matériau, reflétant la migration de chaînes polymères courtes et leur réarrangement en une structure plus ordonnée.

En enregistrant la cinétique d'adsorption pour les éprouvettes dans les différentes solutions. Le modèle exponentiel correspond également à nos courbes, avec une bonne corrélation, les facteurs de corrélation R^2 montrent clairement que le modèle Fickien est bien adapté à la sorption des solvants au sein du HDPE. Les paramètres du Fit utilisés sont présentés dans le *tableau IV. 3*. M_∞ est la saturation du matériau après un temps infini « i » feuillets d'épaisseurs « e ».

L'analyse de la sorption des six solvants par le HDPE a été étudiée à la température ambiante et exprimés par l'absorption de la masse en fonction de la racine carrée du temps divisé par l'épaisseur de l'échantillon est indiqué sur (*figures. IV.3 a-f*).

L'immersion du HDPE dans les solvants paracheva très rapidement à une prise de masse importante. Ces résultats s'expliquent par la robuste affinité du toluène (*figure. IV.3.d*) envers les polyoléfinés, (les plastiques les plus courants, les plus connus de cette catégorie : le polyéthylène et le polypropylène) et aussi en relation avec leurs valeurs de paramètres de solubilité très proches ($18,2 \text{ MPa}^{1/2}$ pour le toluène à 25 °C , benzène $18,8 \text{ MPa}^{1/2}$ à 25 °C . et $15,8\text{--}17,1 \text{ MPa}^{1/2}$ pour le HDPE [26]). Ce paramètre de solubilité est un paramètre déterminant le type d'interactions qu'une molécule peut établir son environnement, Il est influencé par la nature du solvant, la nature du soluté, la pression et la température. On examine également que le gain de masse passe par un extremum puis il se stabilise on observe une augmentation de la masse du HDPE immergé dans le dichlorométhane, benzène, toluène et dans le toluène /méthanol attribué ce phénomène (*figures. IV.3. a-f*). En revanche la petite valeur de paramètre de solubilité : $\delta = 0,55 \text{ MPa}^{1/2}$ de l'éthanol, explique son petit taux d'absorption par le HDPE

La pente calculée de M_t/M_{infini} en fonction de la racine carrée du temps divisée par l'épaisseur (*figures. IV.3. a-f*) est utilisée pour analyser les données de diffusivité, conformément à cette relation. Les résultats de cette méthode gravimétrique sont semblables à ceux de la littérature *tableau IV. 4*. La diffusivité du TM 50/50 et seulement du toluène est très similaire, tandis que la diffusivité du méthanol est plus faible. L'influence de la teneur en méthanol dans le mélange (méthanol/toluène) sur l'absorption du solvant à l'équilibre mesurée

par gravimétrie pour le HDPE, diminue en ajoutant le méthanol ou toluène, $D_{\text{Toluènes}} = (3,57013 \pm 5,1444) 10^{-08} \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$, $D_{\text{TM}} = (3,1940 \pm 5,0550) 10^{-08} \text{ cm}^2\text{s}^{-1}$

• Les coefficients de diffusion « D » sont du même ordre que la littérature ($10^{-9} \text{ cm}^2/\text{sec}$ à $10^{-8} \text{ cm}^2/\text{sec}$). Ordre : $D_B > D_T > D_{\text{DCM}} > D_{\text{TM}} > D_M > D_E$.

IV.6. Conclusion

En réalité, la sorption consiste à mettre en contact le polymère avec le liquide étudié dans des conditions particulières, puis à suivre l'évolution de sa concentration dans le polymère au fil du temps. La diffusion des solvants (éthanol, méthanol, le mélange (toluène/méthanol (50/50)), toluène, benzène et dichlorométhane) dans le polyéthylène utilisé dans la fabrication des tuyaux de transport du gaz naturel a été étudiée à l'aide de la méthode gravimétrique. D'après la littérature la diffusion des solvants dans le polymère est souvent Fickienne [28] et autres. Et elle obéit à une loi exponentielle.

des expériences sont présentées pour évaluer la sorption, modéliser le phénomène et calculer le coefficient de diffusion (D); HDPE et les six solvants (E, M, TM, T, B et DCM). Les expériences de sorption montrent que l'absorption des quatre solvants (TM, T, B et DCM), par les échantillons de HDPE est très importante, et les résultats sont cohérents avec ceux de la littérature; Le liquide est absorbé dans les vides des sphérolites générant une contrainte interne sur les molécules de liaison, les réarrangements moléculaires résultants produisant des changements à la fois dans les phases amorphe et cristalline du polymère. En général, après contact avec les milieux considérés, la dégradation de la morphologie du HDPE est due aux effets de gonflement provoqués par la sorption des liquides. Le transfert dépend de la variation des espèces et des chaînes polymères.

Références bibliographiques

[1] P. Neogi, 1996, *Diffusion in polymers. p. cm. - (Plastics engineering ; 32)*. ISBN 0-8247-9530-X (alk. paper).

[2] T.M. Aminabhavi, H.G. Aminabhavi, Naik, 1999, *Molecular migration of low sorbing organic liquids into polymeric geomembranes*, Polymer International; 48 (5), p. 373-381.

[3] B-H. Choi, Z. Zhou, A. Chudnovsky, S.S. Stival, K. Sehanobish, C.P. Bosnyak, 2005, *Fracture initiation associated with chemical degradation: observation and modelling*, International Journal of Solids & Structures, 42, p. 681-695.

<https://doi.org/10.1016/j.ijsolstr.2004.06.028>

- [4] B.-H. Choi, A. Chudnovsky, R. Paradkar, W. Michie, Z. Zhou, P.M. Cham, 2009, *Experimental and theoretical investigation of stress corrosion crack (SCC) growth of polyethylene pipes*, *Polymer Degradation & Stability*, 94, p. 859-867.
- [5] Acioli-Moura. R. Acioli-Moura, X.S. Sun, 2008, *Thermal degradation and physical aging of poly(lactic acid) and its blends with starch*. *Polymer Engineering & Science*, 48(4), 829–83
- [6] Adda. Y. Adda, J. Philibert, 1966, *La Diffusion dans les Solides*, ed. by Institut National de Sciences et Techniques Nucléaires. Saclay. France, 2, 718 p.
- [7] C. Hall, 1981, *Polymer Materials: An Introduction for Technologists and Scientists*, Macmillan.
- [8] W. Ghabeche, L. Alimi, K. Chaoui, 2015, *Degradation of plastic pipe surfaces in contact with an aggressive acidic environment*, *Energy Procedia*, 74, p. 351-364.
- [9] L. Johansson, J. Löfroth, 1993, *Diffusion and interaction in gels and solutions. 4. Hard sphere Brownian dynamics simulations*, *The Journal of Chemical Physics*, 98 (9), p. 7471-7479.
- [10] A. Escobal, C. Iriando, I. Katimed, 1999, *Organic solvents adsorbed in polymeric films used in food packaging: Determination by head-space gas chromatography*, *Polymer Testing*, 18, p. 249-255.
- [11] P.D. Frayer, P.P.-L. Tong, W.W. Dreher, 1977, *The role of intercrystalline links in the environmental stress cracking of high density polyethylene*, *Polymer engineering and science*, 17 (1), p. 27 - 31.
- [12] *CDF Technical Memo Polyethylene Chemical Resistance Chart 2004.*
- [13] *Chemical Compability Refrance Chart*, visité le 18/07/2024
www.cplabsafety.com/chemical-compatibility-Chart
- [14] *HDPE Refrance*, Chart. King plastic.
- [15] Mahitha Udayakumar et al, 2020, *Temperature and Time Dependence of the Solvent-Induced Crystallization of Poly(l-lactide)*. *Polymers*, 12(5), 1065.
<https://doi.org/10.3390/polym12051065>
- [16] L. Alimi, K. Chaoui, W. Ghabeche et al., 2013, *Short-term HDPE pipe degradation upon exposure to agrssive environments*. *Matériaux Tech*; 101: 701-708.
<https://doi.10.1051/mattech/2013083>.
- [17] AJ. Whelton, AM. Dietrich, DL. Gallagher , 2010, *Contaminant diffusion, solubility, and material property differences between HDPE and PEX potable water pipes*. *J Environ Eng* 136(2):227–237.
[https://doi.org/10.1061/\(ASCE\)EE.1943-7870.0000147](https://doi.org/10.1061/(ASCE)EE.1943-7870.0000147)
- [18] L. Alimi, K. Chaoui, 2024, Etude de compatibilité d'une conduite de gaz en polyéthylène haute densité grade 80 avec une huile de frein synthétique à base de polyglycol. *Elastomère and plastics*; 0 (0) :1-29.

[19] IS. Voultzatis, CD. Papaspyrides, CJ. Tsenoglou, C. Roussis, 2007, *Diffusion of Model Contaminants in High-Density Polyethylen*. *Macromol Mater Eng* 292:272–284.
<https://doi.org/10.1002/mame.200600420>

[20] C. Malveau, F. Beaume, Y. Germain, D. Canet, 2001, *Analysis of Solvent Diffusion in High-Density Polyethylene Using NMR Imaging Techniques*. *J Polym Sci: Part B: Polymer Physics* 39: 2781–2792.
<https://doi.org/10.1002/polb.10030>

[21] M. Ahart, DL. Gallagher, P. Scardina, AM. Dietrich, 2016, *Industrial Spills and Water Distribution: Crude MCHM Sorption and Desorption in Polymer Pipes and Linings*. *J. Environ Eng. ASCE.*, 142(10):1–9.
[https://doi.org/10.1061/\(ASCE\)EE.1943-7870.0001116](https://doi.org/10.1061/(ASCE)EE.1943-7870.0001116)

[22] PF. Schoefft, RW. Lang, 2014, *Effect of liquid oilfield-related media on slow crack growth behavior in polyethylene pipe grade materials*. *INT J Fatig*; 72: 90-101.
<https://doi.org/10.1016/j.ijfatigue.2014.09.016>.

[23] J. Tireau, 2011, *Propriétés à long terme des gaines de polyéthylène haute densité utilisées pour les ponts à haubans*, thèse, Ecole Nationale Supérieure des Arts et Métiers, Paris, 284 p.
<https://pastel.archives-ouvertes.fr/pastel-00562683/document>

[24] T. V. Prasad, K.W. Brown, et J. C. Thomas, 1994, *Diffusion coeficients of organics in high-density polyethylene HDPE*, *Waste Manage. Res.*, 12, 61±71.

[25] C. L. CHOY, W. P. LEUNG, T. L. MA, 1984, *Sorption and Diffusion of Toluene in Highly Oriented Polypropylene*, *Journal of Polymer Science: Polymer Physics Edition*, Vol. 22,707-719.

[26] Bryan Guichard , Bastien Ledieu , Philippe Cassagnau, Eliane Espuche, 2023, *Impact of toluene sorption on oligomers and antioxydants migration from HDPE pipes*. *Polymer Testing* 124, 108052.
www.elsevier.com/locate/polytest

[27] Habas-Ulloa et al., 2011, *Aging of HDPE Pipes Exposed to Diesel Lubricant*. *Polymer-Plastics Technology & Eng.*, 50(15):1594-1599.
<https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-00785113>

[28] Y. Adda, J. Philibert, 1966, *La Diffusion dans les Solides*, ed. by Institut National de Sciences et Techniques Nucléaires. Saclay, France, 2, 718 p.

CHAPITRE V

ÉVOLUTION DU COMPORTEMENT MECANIQUE A TRAVERS LA PAROI D'UN TUBE HDPE EXTRUDE

V.1. Introduction

De nos jours, les matériaux de la famille des polymères occupent une position stratégique dans les différentes applications technologiques nouvelles telles que les télécommunications, l'électronique, les prothèses médicales, l'industrie de l'espace, l'aéronautique, les emballages agroalimentaires et pharmaceutiques, le transport et le stockage des fluides ainsi que les constructions civiles. Le développement de ces disciplines avec l'implication de nouvelles technologies exige encore des polymères plus performants comme c'est le cas des nouvelles applications des nanomatériaux en médecine ou en mécanique. Les polymères semi-cristallins tels le polyéthylène (PE), le polypropylène (PP) ou le polychlorure de vinyle (PVC) sont généralement bien appréciés par différentes applications industrielles telles les conduites de transport du gaz naturel ou d'eau sous pression, la fabrication par injection de corps de pompes ou le moulage de réservoirs de carburants sur la base de plusieurs couches [1,2]. Dans les réseaux de distribution d'eau ou de gaz naturel, les conditions de dimensionnement sont maintenues à des limites supérieures avec des températures de services dépassant les 100°C, des pressions l'ordre de 20 bars effectifs et des propriétés mécaniques nettement améliorées. A ces limites, il faut ajouter un comportement très intéressant vis-à-vis du phénomène de vieillissement dans plusieurs environnements agressifs [3-5].

Particulièrement, les tubes en polyéthylène de haute densité (HDPE), copolymérisés (polymérisation de 2 résines polymères en même temps) trouvent des domaines d'application encore plus pertinents en tant que solutions techniques, durables et surtout économiques par rapport aux métaux standards. Ces nouvelles applications impliquant des tuyaux en plastiques nécessitent un renforcement de la sûreté de fonctionnement et des méthodes de protection dans les industries du gaz, du pétrole et du nucléaire [6-8].

L'objectif de ce chapitre est d'appliquer une approche expérimentale dans le but d'étudier l'évolution des changements de propriétés mécaniques et morphologiques créées par le procédé de fabrication du tube HDPE. Cette approche consiste à préparer des filaments réguliers à travers la paroi du tube et d'établir les courbes de comportement contraintes-déformations. Ce type de résultat est intéressant car il permet d'avoir une idée sur les fluctuations des propriétés mécaniques et laisse la voie ouverte pour d'autres investigations en relation avec les hétérogénéités pouvant caractériser un tube en polyéthylène extrudé et son comportement dans le temps.

V.2. Revue sur l'hétérogénéité induite dans les tubes plastiques

Les études sur l'hétérogénéité dans les structures fabriquées en polymères par différents procédés sont variées et traitent différents problèmes tels la variabilité des propriétés de la structure, des propriétés mécaniques et des dimensions géométriques. Il y a aussi les études qui ont traité la distribution des contraintes internes, les défauts inhérents à la structure, les fluctuations dues aux méthodes de soudage et les changements causés par le temps et les environnements d'exploitation tels le vieillissement.

Les équations de dimensionnement font intervenir les dimensions géométriques telles que le diamètre extérieur ($2r$) et l'épaisseur (t) du mur du tube avec les propriétés mécaniques. A titre d'exemple, la norme *ISO-9080* pour les essais des tubes plastiques pressurisés, la contrainte circonférentielle σ_{hoop} est calculée à partir de l'équation :

$$\sigma_{hoop} = P \frac{2r-t}{2t} \quad \text{V.1}$$

Alors que pour la contrainte σ agissant sur la paroi du tube, elle toujours cadrée par une équation de la forme suivante afin d'assurer les conditions de sûreté en fonctionnement [27^{kias} art M&I] :

$$\sigma^2 \geq \frac{2(Kc)^2(1-\nu^2)}{\pi D} \quad \text{V.2}$$

Où D est le diamètre moyen et K_{Ic} est le facteur d'intensité de contrainte critique, appelé aussi la ténacité du matériau. Il est aussi pratique d'avoir une estimation de la contrainte résiduelle circonférentielle maximale moyennant un simple test destructif sur un anneau de tube. Si D_1 et D_2 sont les diamètres du tube avant et après sectionnement de l'anneau, et $E(t)$ le module de fluage au temps de relaxation t , l'équation V.3 présentée par *Broutman* dans son rapport de *GRI* donne une idée sur la contrainte résiduelle [9-11]:

$$\sigma_{max} = \frac{\pm E(t)h}{1-\nu^2} \cdot \frac{D_2(t)-D_1}{D_2(t)D_1} \quad \text{V.3}$$

Il est aussi intéressant de noter qu'il y a des travaux qui ont essayé de relier des paramètres de structure avec des propriétés macroscopiques. Ceci peut être une autre différente étape de la mise en œuvre d'essais concernant les tubes en HDPE dans le but d'investiguer les corrélations des propriétés mécaniques et thermodynamiques avec les paramètres de la morphologie tels que la cristallinité X , le poids moléculaire M_w et le nombre moyen de segments dans un lien moléculaire représenté par N . Dans le travail de *Krigbaum et*

al., une expression a été dérivée et appliquée dans le cas d'un polymère sphérolitique en déformation, exprimant le module d'élasticité initial E sous la forme [10] :

$$E = \frac{\rho RT}{M_0} \left[\frac{1}{5} \frac{1}{N(1-X)^3} \frac{\beta^2 \sin h\beta}{\sin \beta - \beta^2} + \frac{4}{5} \frac{\beta}{N^{\frac{1}{2}}(1-X)} \right] \quad \text{V.4.a}$$

Avec

$$\frac{\sin \beta}{\beta} = \exp\left[\frac{\Delta H_f}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_m^0}\right)\right] \quad \text{V.4.b}$$

Tous les symboles ont leur signification usuelle. Ces deux équations permettent d'apprécier l'influence directe de la morphologie représentée par X , N et ρ sur une propriété mécanique importante qui est la rigidité du polymère (E). Une autre approche a aussi été adoptée pour estimer la valeur du module suivant la direction d'une chaîne de polymère qui se cristallise essentiellement sous la forme d'un zigzag plan où sont impliquées seulement les déformations dues au recourbement et à l'étirement des liaisons. Donc, pour un polymère composé de « n » tiges, chacune de longueur « l » et l'ensemble joint par des ressorts de torsion, si « θ » est l'angle de liaison et « A » est la section normale supportée par chaque chaîne alors, le module d'élasticité est dérivé comme suit [10,11] :

$$E = \left[\frac{l \sin(\theta/2)}{A} \left[\frac{\sin(\theta/2)}{k_l} + \frac{l^2 (\cos(\theta/2))^2}{4k_\theta} \right] \right]^{-1} \quad \text{V.5}$$

où k_l et k_θ sont des constantes correspondants respectivement à l'étirement de la liaison et à la force de déformation angulaire. Cependant, des approches plus simples sont recherchées pour une analyse immédiate dans le cas des tubes plastiques.

Dans notre cas, les approches expérimentales sont limitées aux tubes extrudés et ayant fait l'objet d'opérations d'usinage afin de préparer des spécimens d'essais pour obtenir des propriétés à un niveau macroscopique. En général, 3 directions ont été investiguées suivants les moyens disponibles. Il s'agit de : (i) l'usinage de filaments par gorgeage ou rainurage à partir d'un tube [10-13], (ii) chariotage d'un tube de manière incrémentale pour fabriquer des arcs de différentes épaisseurs [13], (iii) combinaison du chariotage et de l'alésage pour obtenir des enveloppes de tubes de mêmes épaisseurs et la confection d'éprouvettes standards selon les normes ISO [15-20].

En 2002, *Kiass et al.* [9-11] sont les premiers à utiliser l'idée des filaments usinés dans la direction radiale pour étudier la variabilité des propriétés mécaniques à travers le mur d'un tube en HDPE-80 *figure. V.1*. Il a été constaté que les propriétés faisant intervenir des contraintes (de résistance) augmentent à mesure que l'on pénètre dans la paroi du tube en

allant du diamètre extérieur vers le diamètre intérieur, alors que les propriétés de déformation ne dévoilent pas de tendance concrète. Manifestement, en passant des couches internes aux couches externes du tube, le module d'élasticité (E) et la contrainte d'écoulement (σ_y) diminuent. Un plateau couvre la zone située entre 30 et 70 % d'épaisseur du tube est observé. Il serait probable que cette zone n'a pas été complètement affectée par le transfert thermique pendant l'extrusion car elle est située au cœur de la paroi. Les causes profondes d'un tel comportement sont attribuées à l'état de contrainte inhérent et à la distribution de la cristallinité sur l'épaisseur de la paroi en raison du refroidissement différentiel ayant engendré des gradients de température.

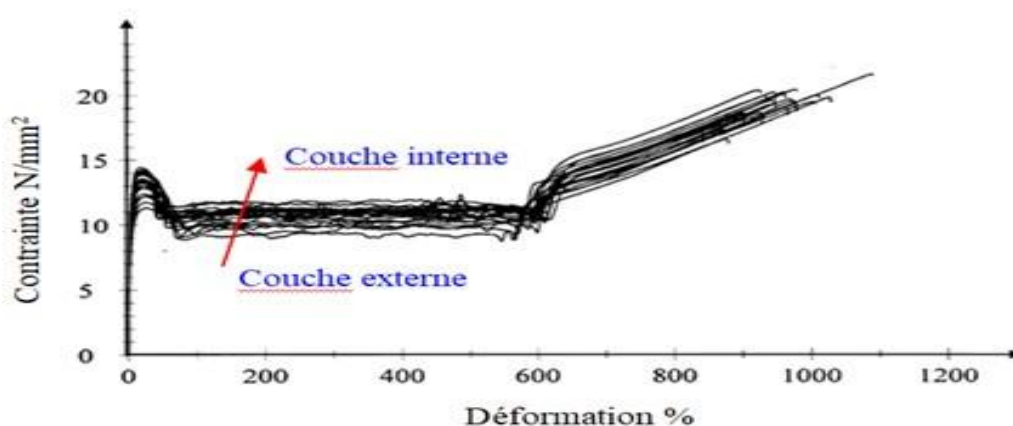


Figure V.1. Variabilité des propriétés mécaniques à travers l'épaisseur du tube [10].

Ceci est d'autant plus vrai pour les tubes fabriqués par extrusion et rapidement refroidis par des douches d'eau sur surface externe. La plupart des équations prévoient que E et σ_y augmentent avec la cristallinité, mais dans ce cas, il est important de souligner que le cas du cylindre est différent car un gradient de température contrôle le système thermodynamique transitoire pendant le refroidissement [10,13].

Sur la même lignée et en invoquant la question du vieillissement chimique, *Rehab-Bekkouche et al.* ont réalisé des expérimentations sur des filaments de tubes HDPE-100 [12]. Ils ont trouvé que le comportement mécanique ($\sigma-\epsilon$) des éprouvettes filaments est similaire à celles obtenues en utilisant des éprouvettes standards. L'étalement des courbes est une indication tangible sur l'hétérogénéité de la structure contenue dans la paroi du tuyau. Les variations entre les propriétés des couches internes et externes ne sont pas très grandes. A titre d'exemple, pour σ_y et ϵ_f , les variations sont respectivement 3.49 % et 14%, alors que σ_f et E elles sont de 2.18% et 3.58% respectivement [12].

Plusieurs études ont été réalisées par *Kaddeche* et qui ont touché à la ténacité du tube HDPE-100, à la résilience, aux contraintes résiduelles et au vieillissement dans une région particulière [13].

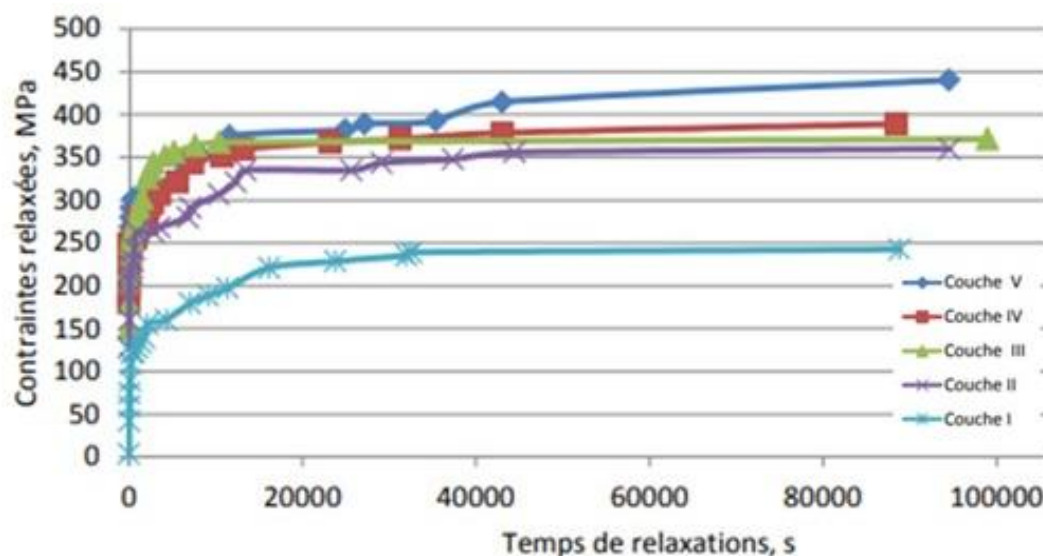


Figure V. 2. Exemple de l'évolution des contraintes résiduelles (après relaxation) à travers la paroi d'un tube HDPE-100 [13].

Le *tableau V.1* regroupe les valeurs de la ténacité J_{IC} et l'énergie de travail W_e des cinq couches d'un tube HDPE, les résultats confirment que la couche interne résiste mieux à la propagation de la rupture, c'est la couche la plus tenace.

Tableau V. 1. Valeurs des J_{IC} et W_e des cinq couches du tube.

Couche	Externe I	Ext-Moy II	Moyenne III	Moy-Int IV	Interne V
J_{IC} (J/m ²)	37.94	41.8	44.32	49.15	49.29
W_e (J/m ²)	20.19	28.31	34.40	41.20	43.30

Des éprouvettes standards suivant la norme *ASTM D-638* Type 4 ont été fabriqués pour le sens longitudinal du tube HDPE pour le transport d'eau. L'étude se donne comme objectif l'établissement de la répartition des propriétés mécaniques à travers le mur du tube à partir d'essais de traction et de choc. Il a été constaté que les propriétés des contraintes augmentent en allant de l'extérieur vers les couches internes du tube. Pour E et σ_y , les valeurs mesurées sont passées de 699 MPa à 926 MPa et de 27 MPa à 34 MPa respectivement. Par contre la déformation à la rupture, elle a diminué de l'intérieur vers l'extérieur de 151% à 130%. Aussi, une autre étude a été menée sur l'énergie critique de rupture (Ténacité : J_{IC}), il a été trouvé que la couche interne (37.94 kJ/m²) est plus tenace que la couche externe (49.23 kJ/m²). Enfin, la caractéristique de la résilience (essai de choc) à travers la paroi du tube

HDPE a été introduite pour les tubes en plastiques pour éprouvettes sous forme d'arc et en basant sur l'approche développée par *Niglia et al.* [14] et l'équation connue de G_C :

$$G_C = \frac{U}{BW\phi\left(\frac{a}{w}\right)} \quad \text{V.6}$$

où U : est l'énergie critique restituée, B : l'épaisseur de l'éprouvette, w : la largeur, a : profondeur de l'entaille, et ϕ un facteur de correction géométrique. Il a été montré que G_C varie légèrement au profil de la couche interne (8.18 kJ/m² ; une augmentation de ~4%). Par contre, dans le sens radial, la variation est nettement en faveur de la couche interne car G_C a évolué de 5 kJ/m² (couche externe) à 26 kJ/m² (couche interne).

Dans les travaux de *Alimi et al.* [15], une approche similaire a été utilisée mais sur la base d'éprouvettes standards issues d'un tube en HDPE-80 comme spécifié dans *l'ISO-527* [16]. Les détails de prélèvement sont illustrés dans la *figure V.3*, pour les 2 directions (circonférentielle ; θ et longitudinale ; z). L'étude a permis de révéler comment les propriétés mécaniques locales sont distribuées à travers la paroi tubulaire. En général, les mêmes tendances que les filaments ont été observées mais avec des valeurs différentes.

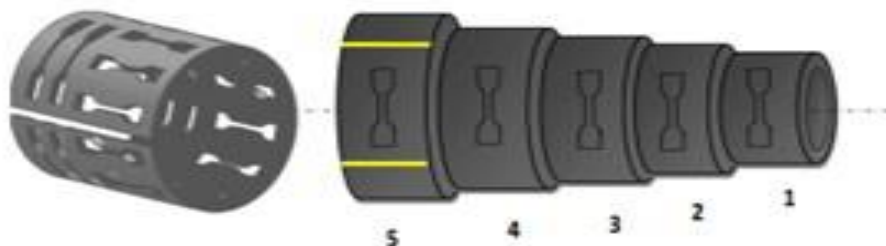


Figure V.3. Prélèvement des éprouvettes d'un tube HDPE dans les deux sens.

Par exemple, la *Figure V.4* montre le module E pour les 2 directions et les limites des valeurs sont bien respectées [16]. Les propriétés de contraintes augmentent en se déplaçant de la couche externe vers la couche la plus à l'intérieur ; ce qui peut être expliqué par les changements de cristallinité. La relation entre E et σ_y est gérée par une forte corrélation linéaire croissante. Il est conclu que ces variations de propriétés sont le résultat de la complexité de la hiérarchie structurale des matériaux semi-cristallins.

Les travaux de *Hamlaoui* ont abordé l'hétérogénéité des propriétés du tube HDPE-100 dans les directions L et θ tout en s'intéressant à la ténacité après usinage enveloppes et découpage des éprouvettes, selon la norme *NFT 51-014* [17]. Il a été trouvé que la valeur du module élastique longitudinal E et la contrainte σ_y au seuil d'écoulement diminuent de l'intérieur vers l'extérieur du tube (à travers l'épaisseur du tube) de 867 à 1077 MPa ($\Delta=19.5\%$) et de 20 à 22 MPa ($\Delta=9.09\%$) respectivement ; alors que la déformation à la

rupture, elle est restée quasiment inchangée. Sur les éprouvettes *SEN*, la ténacité J_{IC} obtenue par la méthode de *Begley-Landes* montre un écart moyen à la hauteur de 16.9% en faveur du cas L (longitudinal : 35.8 kJ/m²) sur le θ (transversal : 29.74 kJ/m²).

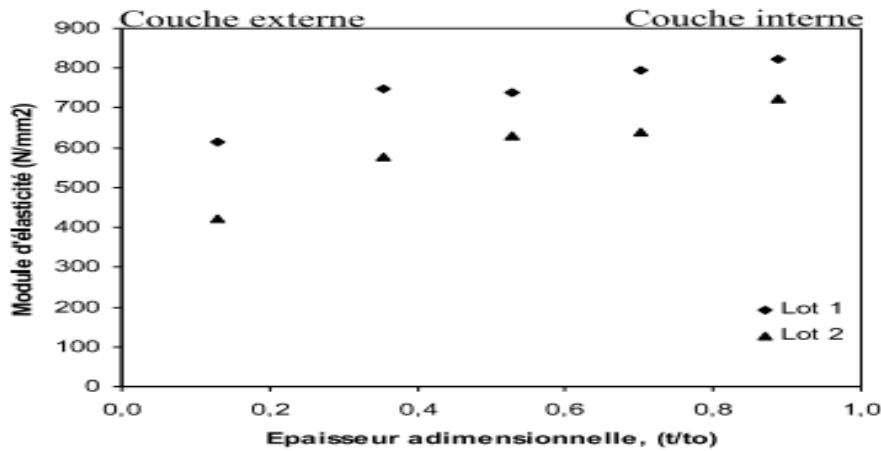


Figure V. 4. Evolution de E en fonction de t/t0, directions L (lot 1) et θ (lot 2) [16].

Ceci est expliqué par la contrainte d'étirement du tube chaud développée par l'extrudeuse et qui donne la possibilité d'orienter les chaînes moléculaires le long de la direction axiale. Il est admis qu'une structure en forme de *shish-kebab* s'installe de manière parallèle à l'axe et de sorte que le tube peut être fissuré le long de cette direction. Aussi, il a été montré qu'en augmentant la vitesse d'essai, la résistance à la fissuration augmente. Lorsque cette vitesse passe de 10 à 200 mm/min, il a été observé J_{IC} a augmenté d'environ 14% et les grandes vitesses favorisent des mécanismes de rupture plutôt fragiles. Sur la base des normes *ISO 527* et *ASTM D 638*, *Ghabeche* [18] a utilisé des éprouvettes de traction standards extraites des couches internes et externes tube HDPE. Aussi, il a été observé que la couche interne présente les meilleures propriétés mécaniques comme indiqué dans la *figure V.5*. Les paramètres E , σ_y et σ_f de la couche intérieure sont nettement supérieurs à ceux de la couche externe. Il s'agit respectivement de 1725 MPa, 17.1 MPa et 24.1 MPa par rapport à 871 MPa (écart : 49.5%), 15.55 MPa (écart : 10.4%) et 21.6 MPa (écart : 10.37%). En outre, l'observation de la surface après fabrication du tube, indique des variances morphologiques donnant des aspects de rugosité et de finish de surface complètement différents comme illustré par le *MEB* dans *figure V.6* [19].

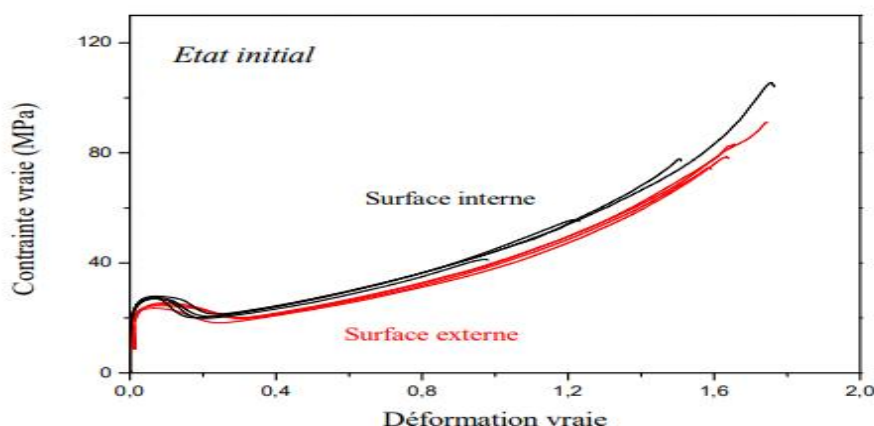


Figure V. 5. Variation des courbes σ - ϵ des éprouvettes des couches externes et internes [18].

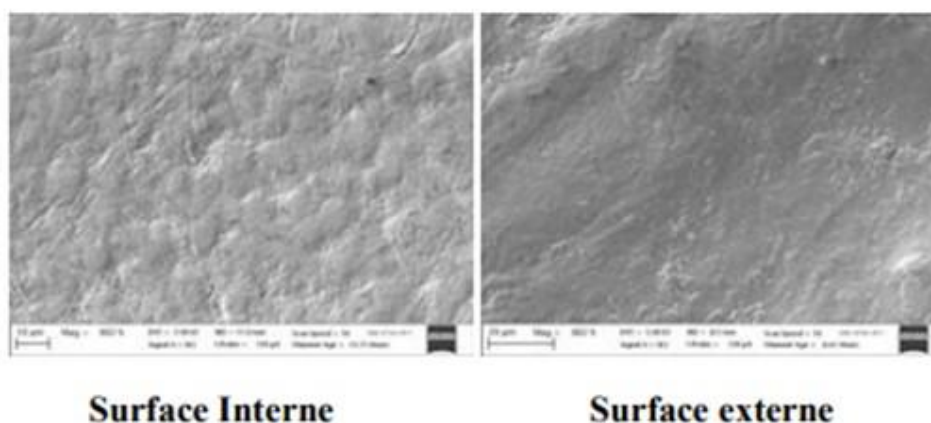


Figure V. 6. Morphologie des deux surfaces interne et externe d'un tube en HDPE.

Niou et al. ont traité la question de l'hétérogénéité des propriétés dans le cas du soudage bout-à-bout des tubes HDPE [20]. Un plan d'expérimentation basé sur des opérations successives de chariotage et d'alésage a permis de tester des éprouvettes standards contenant une soudure et prélevées sur trois couches concentriques pour des dimensions de tubes données. Ceci est illustré dans la *figure V.7*.

Il a été trouvé que le comportement σ - ϵ typique des matériaux semi-cristallins est préservé dans les matériaux soudés et des éprouvettes non soudées mais avec des caractéristiques limites différentes. Au niveau des couches intérieures de la soudure, les propriétés comme le module d'élasticité (E) et les contraintes σ_y et σ_f sont plus faibles, alors que dans les couches extérieures soudées, la tendance est inversée.

L'ordre des propriétés dans les cas de E et de σ_y pour le matériau non soudé est comme suit :

$$\sigma_{y_{CI}} > \sigma_{y_{CM}} > \sigma_{y_{CE}} \quad \text{V.7}$$

$$E_{CI} > E_{CM} > E_{CE} \quad \text{V.8}$$

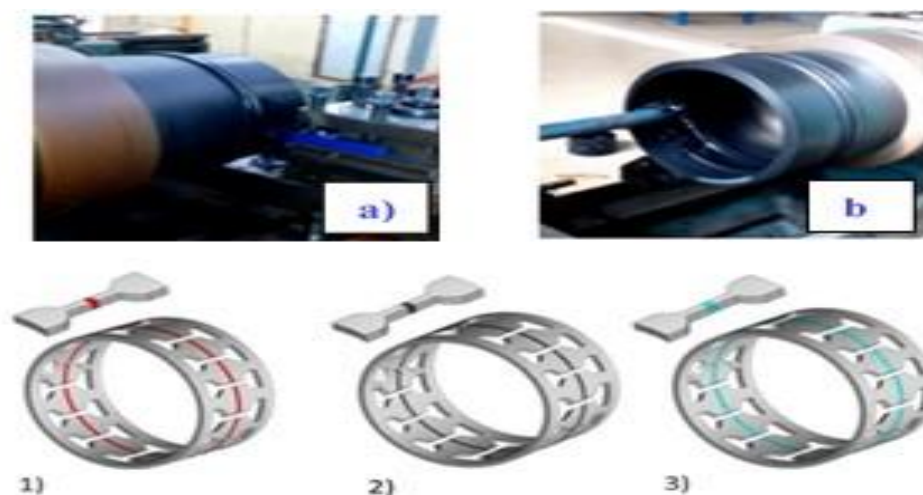


Figure V. 7. Opérations de (a) Chariotage (b) Alésage ; d'un pipe HDPE soudé bout-à-bout pour saisie d'éprouvettes des couches : (1) interne, (2) moyenne et (3) externe.

L'approche développée dans cette étude donne des indications cohérentes sur la qualité du soudage autour du joint et à travers l'épaisseur. Cette méthode a permis de détecter que 23 % des défaillances sont au niveau du cordon de soudure des couches les plus extrêmes c-à-d : (1) et (3), tandis que la couche intermédiaire (2) n'a révélé aucune défaillance sur la soudure. Les causes de ce comportement sont généralement expliquées par l'évolution de la structure lors de l'extrusion comme représenté par la cristallinité.

V.3. Approche expérimentale

Cette section a déjà été abordée dans *le Chapitre II*. Il est important de noter que les expérimentations utilisent des filaments usinés dans des conditions optimales pour réduire les déformations du matériau. Chaque filament usiné est supposé contenir toute l'histoire thermomécanique du tube lors de son extrusion. La *figure V.8* résume les différentes opérations conçues préparer les éprouvettes d'essai pour révéler à un niveau macroscopique les hétérogénéités enracinées dans le tube après extrusion et refroidissement.

Généralement, les longueurs totales des filaments se situent aux alentours des 12m, pour un nombre de couches équivalentes dépassant la vingtaine. Ces conditions donnent lieu à un lot d'éprouvettes conformes dépassant les 70.

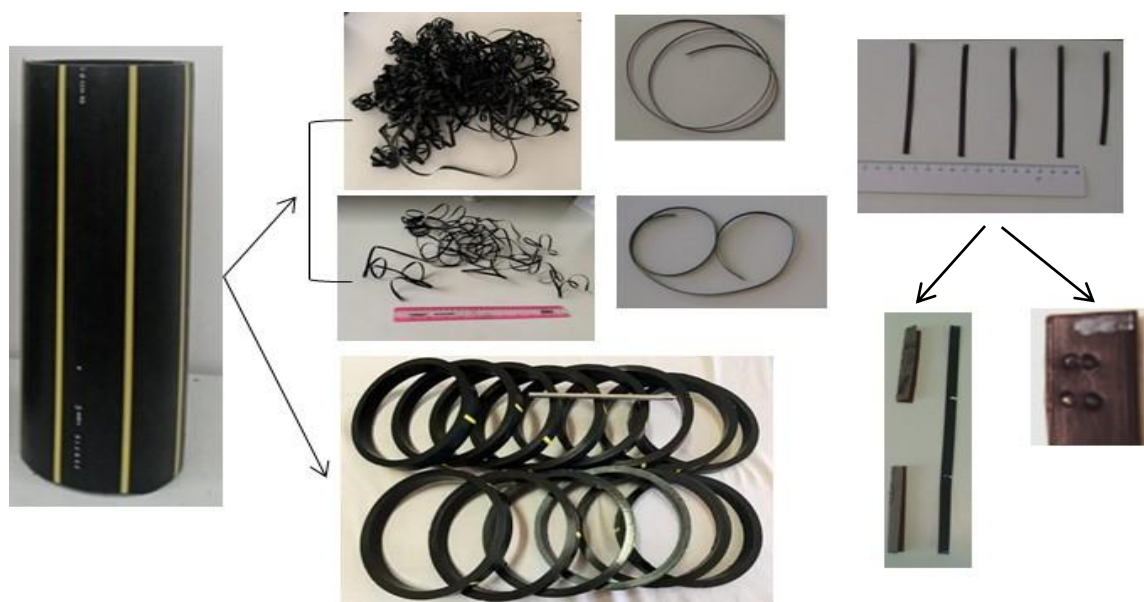


Figure V. 8. Résumé des différentes opérations conçues préparer les éprouvettes filaments. (Tube, Anneaux, Filaments complets, Couches filaments, spécimens filaments, identification avec perforation sur l'extrémité et les revêtements en papier émeri pour l'adhésion.

Un lot d'essais est constitué de tous les spécimens testés et issus du même filament. Ce qui se traduit par un nombre d'éprouvettes valides par couche entre 4 et 5 et chacune d'une longueur nominale exigée (L_S) de 120mm. Dans les calculs des différents diamètres et épaisseurs (géométriques) pour l'identification préalable des différentes couches avec un diamètre moyen (variable en fonction de l'épaisseur), il a été supposé que les portions manquantes aient été soit perdues durant les phases initiales ou finales du gorgeage, soit classées irrécupérables.

Le marquage de la ligne jaune de l'extrusion, sur les premières couches, est un repère de taille pour la phase initiale (surface externe). Il est constamment surveillé et analysé jusqu'à sa disparition pour estimer la portion perdue (ou l'équivalent approximatif en nombre de couches). Cette perte est aussi causée par le faux rond qu'il faut éliminer jusqu'à obtenir un filament régulier et continu. Il faut noter que les 2 extrémités du filament ont subi des déformations excessives (morphologiquement tordus et irréguliers) dues aux forces appliquées au démarrage et à la fin de l'usinage. Les détails sont indiqués dans l'Annexe A du filament préparé du tube tel que reçu (noté ici AR pour « As-Received »). Les estimations de ces pertes techniques dans différents filaments sont estimées à un minimum de 2 et jusqu'à un maximum de 5 couches pour boucler l'identification des positions dans la paroi. Nous avons

ajusté ces pertes sur les 2 côtés lorsque le repère du trait jaune est perdu en début d'usinage (couches externes) ou lorsqu'il n'est pas possible d'identifier de manière indiscutable la partie finale. Dans certain cas, des parties de filaments (début et fin) existent mais ne peuvent pas servir pour les essais mécaniques ; alors ils sont identifiés, décrits et gardés pour être exploités dans les mesures de paramètres de structure nécessitant peu de matière (*DSC, FTIR...*).

Chaque éprouvette est identifiée avec un marquage sous la forme d'un certain nombre de piqures (perforations) réalisées par une aiguille métallique et transperçant le bout supérieur du filament d'un côté à l'autre. Le nombre de trous évolue de 1 et peut atteindre 5. Lorsque $L_s < 120\text{mm}$, l'éprouvette devient un résidu qui sera exploité pour d'autres objectifs mais sera rangé avec les filaments de sa couche dans un même tube étanche lui-même clairement identifié. Le maintien des filaments entre les mâchoires des mords est assuré par des bouts de papier émeri pour éviter tout glissement. Les essais de traction ont été menés à une vitesse de 50mm/min et à la température ambiante. Toutes les éprouvettes de chaque filament sont testées dans un intervalle de temps limité par la journée pour limiter les effets de l'environnement du laboratoire.

V.4. Résultats

V.4.1. Observations au cours de la traction

Bien que leurs positions soient différentes dans la paroi du tube, les spécimens soumis à la traction monotone présentent tous un comportement d'étirement semblable caractérisé par des extensions et des strictions (*figure V.9*). Au début, l'éprouvette va subir la charge appliquée pour se s'étendre en formant une ligne verticale bien droite caractéristique de la portion élastique (*figure V.9.a*). D'autres observations sur les éprouvettes peuvent être notées sous les formes d'amincissements et d'étirements correspondants à des strictions singulières ou multiples, comme illustré dans les *figure V.9.b, c* et *d*. Les emplacements du commencement de ces changements de formes et leurs directions de propagation restent aléatoires le long de l'axe vertical de l'éprouvette tendue. Dans une majorité des cas, une zone rétrécie et bien resserrée prend place du milieu de l'échantillon et entame en même temps la propagation dans les 2 sens vers les deux mords tout en transformant la matière disponible. Dans d'autres cas, c'est l'inverse qui se produit et la striction commence du côté des mâchoires et évolue vers le milieu de l'éprouvette, formant un ou plusieurs « fuseaux » de matériau non encore complètement étiré et qui engendrent des perturbations sur le palier (ou le plateau d'étirage à froid) de la courbe contrainte-déformation.

Cette situation se termine lorsqu'il y a consommation totale de la matière disponible à l'étirage indiquée par la disparition des fuseaux et la nouvelle section du filament étiré redevient homogène (*figure V.9.e*). Dans la dernière phase, le filament va céder à la charge appliquée et se rompt laissant 2 fragments totalement déformés et plissés (*figure V.9.f*).

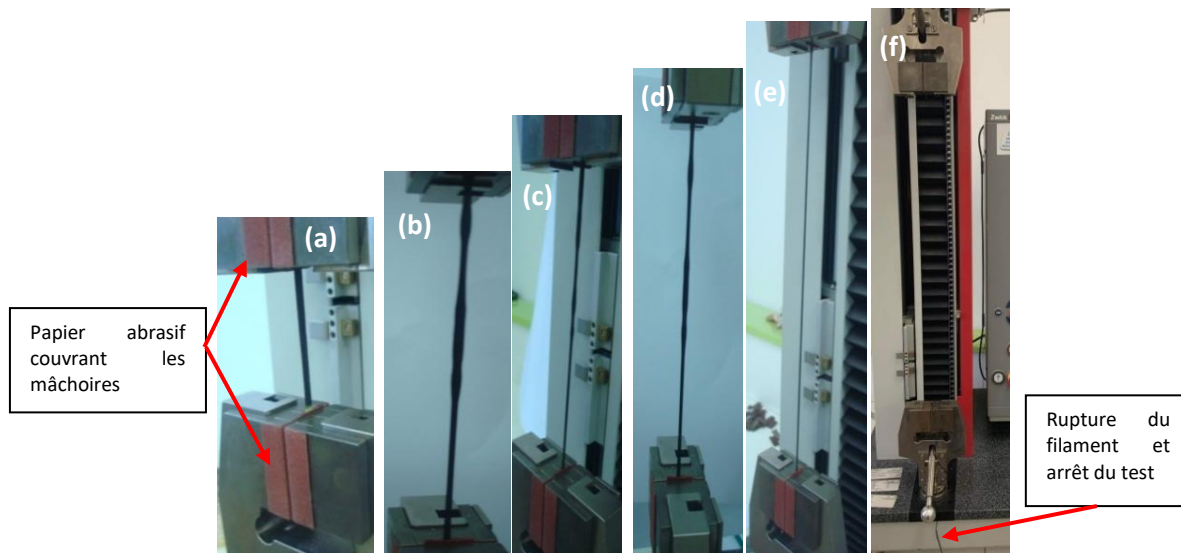


Figure V.9. Série de photographies du filament soumis à la traction monotone.

V.4.2. Comportement mécanique

La courbe contrainte-déformation comporte 3 zones distinctes mettant en œuvre l'écoulement viscoélastique, l'écoulement plastique et le phénomène de durcissement (*figure V.10*). Cette observation est devenue caractéristique des polyéthylènes copolymérisés soumis à la traction comme indiqué dans plusieurs études [9-13,16,18,20]. La zone (I) est généralement élastique et réversible alors que la zone (II) marque le début du comportement plastique au seuil de la contrainte maximale et l'écoulement plastique est initié suite à une première striction évoluant vers le point A. Les mécanismes moléculaires de déformation sont irréversibles au niveau des phases amorphe et cristalline faisant intervenir les molécules liens (ou Tie Molecules). Lors de l'étirage, les lamelles cristallines commencent à se fragmenter et les sphérulites à se déformer. À l'échelle macroscopique, la striction du matériau se produit transversalement au plan de la force de traction ; c'est le phénomène de l'étirage à froid le long du segment AB. Enfin, la dernière partie (Zone III) correspond à une orientation générale des chaînes macromoléculaires dans le sens de la contrainte exercée par la machine. Le premier palier représenté par le segment CD indique le durcissement plastique suivi par un écoulement ductile entraînant en fin de phase la rupture (F : séparation des 2 bouts) [21]. La structure globulaire est fortement modifiée et le matériau prend progressivement une conformation dite fibreuse. La destruction des liaisons dans la phase amorphe provoque à

terme, une cavitation autour des régions cristallines, conduisant à une rupture du matériau à des valeurs de contrainte nominales situées entre 21 et 28 MPa (point F). Ces valeurs sont données à titre indicatif bien que l'on s'attende à moins de dispersion car le filament est réduit à sa forme la plus amincie et la plus orientée en termes de chaînes macromoléculaires pouvant subir une fusion locale (large scale yielding phenomenon) [10,18,22].

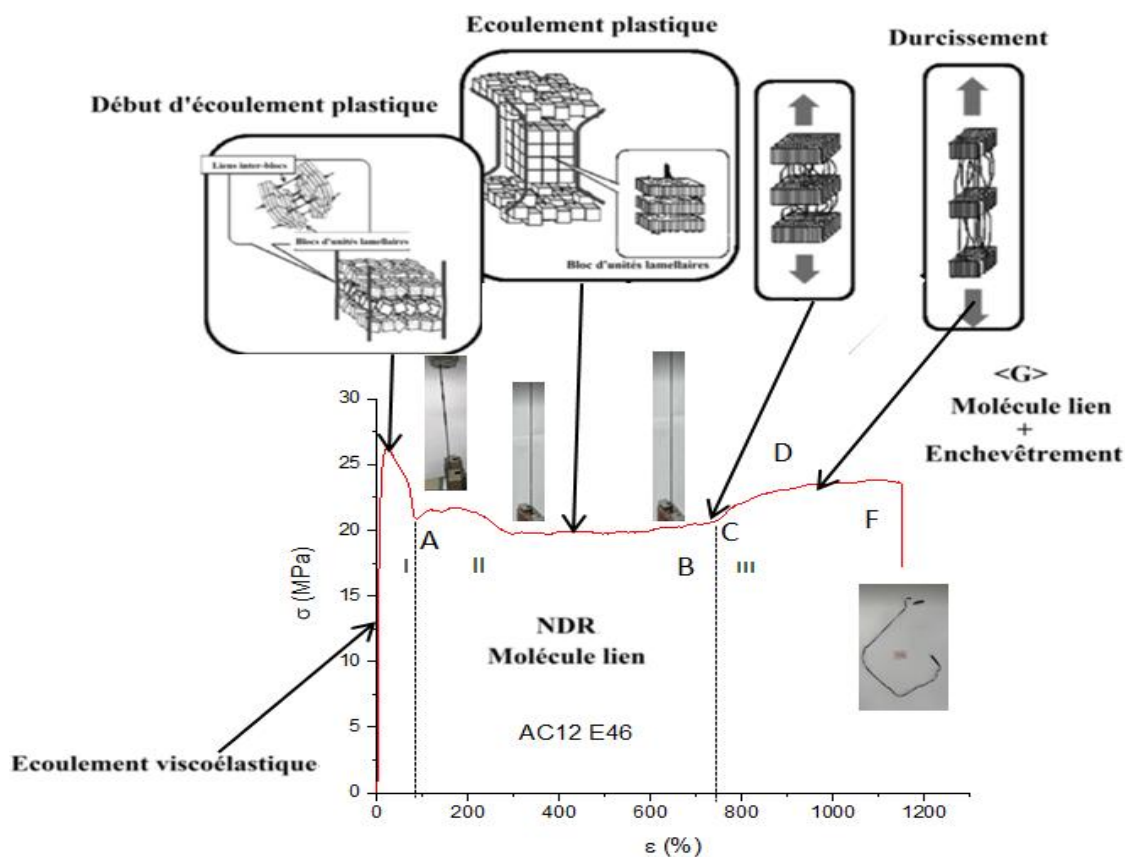


Figure V.10. Courbe σ - ϵ type d'un filament comme reçu (AR, Eprouvette 46 ; Couche N°12).

V.4.2.1. Vue intégrale du comportement de la paroi tubulaire

Comme expliqué ci-dessus, ce type d'expérimentations permet d'obtenir un nombre important d'éprouvettes retraçant le comportement à travers toute l'épaisseur du tube modelée et mise en forme lors de l'extrusion avec tous les échanges thermiques ayant eu lieu. La *figure.V.11* (représentant le cas AR : as-received), est une récapitulation d'une série de 79 essais de traction effectués dans les mêmes conditions de laboratoire. Les courbes sont de nature similaire mais laissent présager les plusieurs différences au niveau des points caractéristiques.

Ce type d'information a incité à investiguer de manière la notion d'hétérogénéité car elle offre une possibilité de mesures pratiques de différences mécaniques de façon macroscopique. Aussi, il y a la possibilité de relier ces variations directement avec des

paramètres de structure surtout pour les tubes en HDPE tels que la cristallinité et l'OIT dans les cas vierges ou vieillis. A priori, il est tout de suite remarqué que la couche interne (verte) a tendance à être au-dessus des 2 autres surtout en zones I et II. Alors, il peut être avancé que ses propriétés mécaniques sont meilleures en termes de contraintes et en termes de déformations.

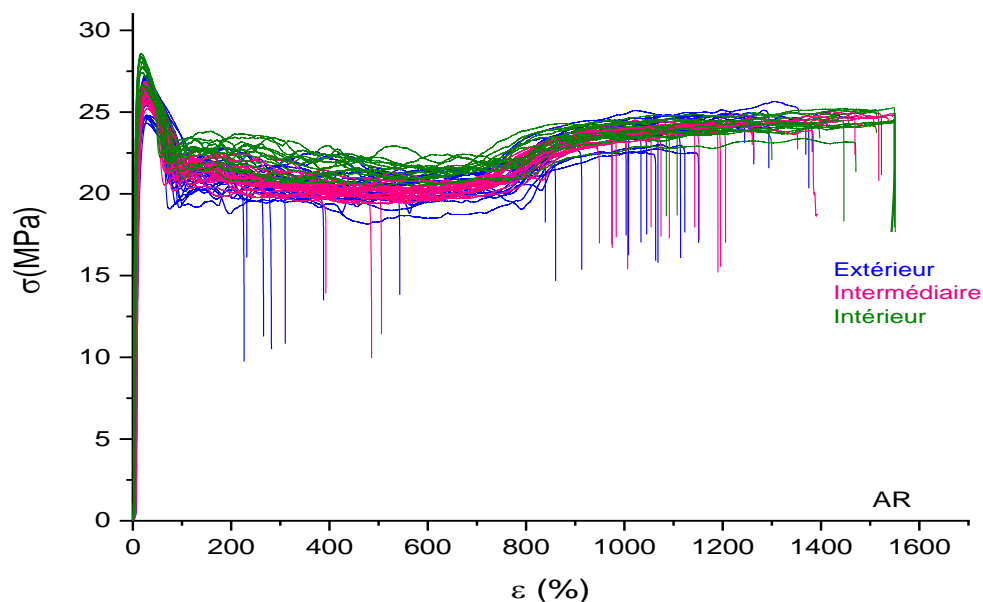


Figure V. 11. Evolution des courbes σ - ϵ à travers l'épaisseur du tube ($L \sim 12,50m$; 79 essais).

Cependant, la couche la plus externe est globalement restée en dessous (zones I et II). Il faut noter que c'est cette partie qui a été le plus refroidie par l'eau et aussi qui a été le plus soumise aux forces de contact compressives exercées par la filière de l'extrudeuse. En termes de contraintes résiduelles, la partie interne montre des contraintes positives (ring opening) alors que la partie bleue des contraintes compressives (ring closure) [23-25]. Enfin, la partie englobant les couches intermédiaires est restée d'une manière générale bien intercalée entre les 2 autres que ce soit en zone I ou II et même en III.

V.4.2.2. Vue détaillée du comportement mécanique

Dans cette section, nous avons considéré 5 niveaux de matière dans la direction radiale de la paroi du tube. Les détails de comportements de chaque portion (1 ; 2 ; 3 ; 4 et 5) sont illustrés afin de déceler les variances de réponses mécaniques au cours de la traction et préparer la recherche d'éventuelles liens avec les autres propriétés de la structure tout en incluant les effets causés par le mode de fabrication. Sur les 23 couches identifiées, nous avons sélectionné 5 ensembles de couches pour montrer quelques détails, comme indiqué dans le *tableau V.2.*

Les *figures V.12 (a-e)* montrent les comportements σ - ε par lots de couches relatifs à leurs positions dans le mur du tube suivant le *tableau V.2*. Dans chaque figure, les éprouvettes testées et les couches de prélèvement sont indiquées.

Tableau V. 2. Identification des couches du filament AR (testé).

Position (Figure V.12)	Couches	Identification N° des couches	Épaisseur approx., mm	Éprouvettes testées
1 (a)	Externe extrême	3 ; 4	0.8	E1-E8
2 (b)	Intermédiaire externe	7 ; 8	0.8	E19-E28
3 (c)	Moyenne	10 ; 11	0.8	E34-E43
4 (d)	Intermédiaire interne	14 ; 15	0.8	E48-E61
5 (e)	Interne extrême	18 ; 19 ; 20	1.2	E72-E79

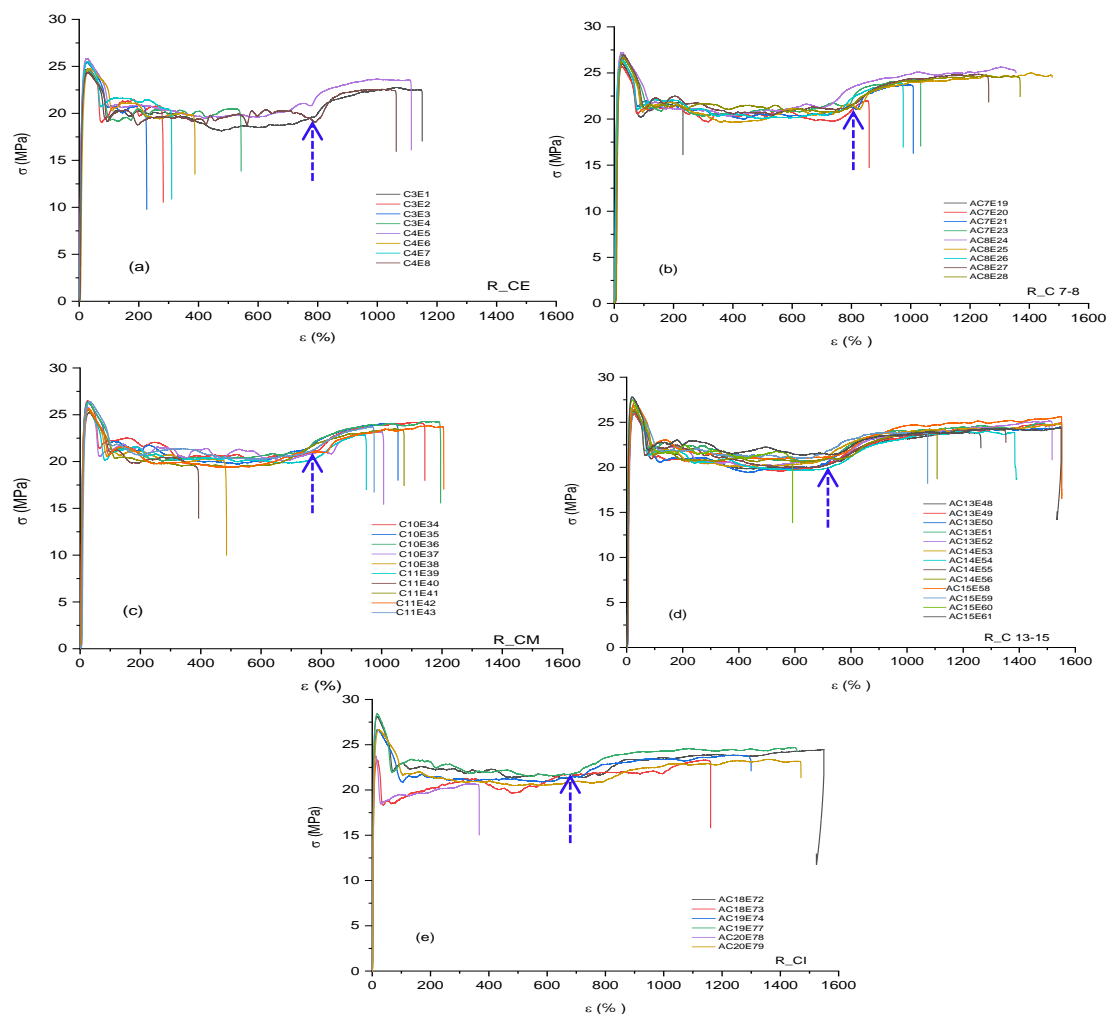


Figure V. 12. Représentation de 5 lots des courbes à travers la paroi selon la position : CE (3-4), (b) CE-I (7-8) (c) CM (10-11), (d) CI-I (14-15) et (e) CI (18-20).

Bien que la forme générale soit familière en termes de zones discernables à première vue, les formes des courbes de chaque lot commencent à se distinguer les unes des autres. A titre d'exemples, les contraintes maximales, les déformations à la rupture, les étalements des zones d'étirage à froid et même du durcissement plastique sont visiblement en changement. Si des repères sont fixés aux points caractéristiques d'un lot donné et en faisant le rapprochement avec les autres, les disproportions et les divergences deviennent mesurables ou estimables. Pour élucider cette simple comparaison entre les lots, la flèche verticale qui délimite la fin de l'étirage à froid et le début du durcissement n'est pas immobile en fonction des lots. La quantification de ces variations et la construction de courbes représentant les propriétés en fonction de l'épaisseur va clarifier un peu plus les évolutions enregistrées. La variation du nombre d'essais par lot est due à la répartition des éprouvettes entre les différents cas d'études qui sont nombreux (disponibilité du filament, filaments valides, natures de lots souhaités, durées, conditions d'essais, objectifs tracés...).

V.5. Discussion

Dans cette section, nous discutons 2 aspects importants découlant de l'étude expérimentale et qui peuvent mieux expliciter la question des hétérogénéités à travers la paroi d'un tube extrudé. Le premier est le comportement σ - ε puisque la méthode développée a permis d'accéder aux propriétés locales. Le second aspect est relatif aux propriétés de la structure. Bien que la littérature scientifique ait traité sous plusieurs formes ce sujet, cette étude offre une meilleure opportunité pour relier et essayer de corrélérer les 2 aspects caractérisés sur la même matière. Comme mentionné plus haut, c'est la contribution à la compréhension de l'hétérogénéité dans le mur du tube qui est convoitée en fin de compte.

V.5.1. Variabilité des propriétés mécaniques

V.5.1.1. Courbes contraintes-déformations

Les différents comportements mécaniques obtenus lors des essais de traction peuvent être divisés en 3 grandes zones dissemblables. Une zone réduite associée au comportement élastique du HDPE pour $\varepsilon < 50\%$, une zone d'étirement plastique avec striction ($100\% < \varepsilon < 800\%$) et enfin une zone (complexe) de durcissement plastique achevée par une rupture ($\varepsilon > 900\%$). Selon *Nitta*, le matériau se déforme de manière viscoélastique, ce qui mène à une rupture après un durcissement de très faibles déformations. C'est donc la phase amorphe qui subit une déformation, en raison de son module nettement inférieur à celui de la phase cristalline [21]. Par la suite, les lamelles cristallines commencent à être sectionnées, ce qui

conduit à un comportement plastique. En fonction de la microstructure du PE, la contrainte d'écoulement sera plus ou moins grave. Cela est suivi d'une phase de ramollissement. À ce point, le cisaillement des cristallites se disperse en avalanche et une contraction à grande échelle se crée dans l'éprouvette. Durant cette étape, on peut alors examiner de la cavitation. La microstructure initialement en lamelles évolue vers une microstructure fibrillaire : les lamelles se fragmentent en petits blocs cristallins, joints entre eux par des molécules. On fait alors référence à une transformation fibrillaire. Pendant le plateau, la striction se répartit le long de l'éprouvette, générant ainsi les mêmes mécanismes de déformation plastique à chaque emplacement de l'éprouvette. Une fois la striction complètement propagée, la structure est totalement fibrillaire [22].

Pour l'analyse des résultats de la traction par couche, la *figure V.12.a* de couches représentées chacun par une fine enveloppe cylindrique (~1 mm d'épaisseur) et respectivement situés à des diamètres moyens de 196 mm (couches les plus externes ; *figure V.12.a*), 188,6 mm (intermédiaires ; *figure V.12.c*) et 179,2 mm (les plus internes ; *figure V.12.e*). Dans tous les cas, les courbes contrainte-déformation (σ - ε) reproduisent certaines similitudes globales, notamment une zone élastique relativement étroite et une zone plastique élargie, comme c'est généralement le cas pour les polymères semi-cristallins. Physiquement, la dernière zone associe une part d'étirage à froid qui se déroule une contrainte presque constante (σ_{CD}). La phase finale comprend un durcissement plastique et une augmentation accrue en matière d'orientation du polymère « sur-étiré ».

Ce comportement a déjà été observé dans la littérature pour les filaments HDPE et les échantillons standards dans des conditions vierges et chimiquement vieilles [10,12,13,18,22]. Entre les couches externe et interne (*figure V.12.a* et *figure V.12.e*), on observe que les déformations mesurées ont augmenté de manière significative (de ~1100% à ~1500%) et que la résistance élastique augmente également (de ~25 MPa à ~28 MPa). En revanche, la partie d'étirage à froid (zone médiane) s'est plutôt rétrécie en faveur d'un durcissement plastique accru et d'une orientation de la structure.

Cela suggère que les couches internes sont beaucoup plus résistantes que les couches externes. Sans aucun doute, les conséquences du procédé d'extrusion des tubes sont à l'origine de ces variations qui pourraient être révélées grâce à une telle méthodologie expérimentale. En effet, le refroidissement brutal par d'intenses gerbes d'eau permet d'évacuer la chaleur emmagasinée de la masse volumineuse de polyéthylène alors que celle-ci est en phase de solidification. De plus, cette action ne permet pas une relaxation uniforme des contraintes du

matériau, c'est-à-dire que les couches internes restent suffisamment chaudes et subissent un refroidissement lent par convection naturelle contrairement aux couches externes. Ces conditions favorisent la genèse de contraintes internes (ou résiduelles) et des variances morphologiques dans la structure pour la géométrie extrudée en termes de parties cristallines et amorphes telles que réparties [22-25]. Ces résultats observés au niveau microstructural donnent lieu à des conséquences importantes sur les propriétés morphologiques ou physiques (mécaniques) au niveau macroscopique [10-13].

De plus, des approches théoriques ont été proposées pour modéliser statistiquement ou par éléments finis la présence de segments (Tie-Molecules) supposés assurer la transmission des contraintes au sein de la résine polymère et les effets sur le comportement σ - ε . La littérature montre qu'il est toujours difficile de mettre au point des relations mathématiques entre la microstructure du polymère et certaines propriétés mécaniques comme la limite élastique (σ_y) à sa réelle position [21-24]. Dans la littérature, il est avancé que σ_y est corrélative avec la cristallinité du polymère (χ_c) sur la base de déductions expérimentales mais sans interprétation physique. D'autres résultats faisant intervenir L_c et χ_c avec σ_y sont discutés avec les difficultés rencontrées pour le matériau PE [24].

V.5.1.2. Propriétés mécaniques

L'analyse quantitative des courbes (σ - ε) permet d'extraire plusieurs propriétés mécaniques liées à la résistance, à l'élasticité et à la ductilité du matériau HDPE en fonction de la position dans le mur du tube [26]. Les courbes (*figure V.13-19*) présentent, **entre autres**, les valeurs du module d'Young (E), de la limite élastique (σ_y), de la limite de déformation d'élasticité (ε_y) et de la déformation à la rupture (ε_f) en fonction de la position dans la paroi du tube. La *figure.V.13* représente la variation du module d'élasticité (E) en fonction de l'épaisseur adimensionnelle t/t_0 . Les résultats montrent que la variation est globalement constante avec un saut des valeurs du module à $t/t_0 \sim 0.55$ (environ de la moitié de l'épaisseur). Les valeurs de (E), du côté des couches externes, sont à ~ 600 MPa, alors que l'augmentation du module dans les couches internes est importante dans la seconde moitié (900-1200 MPa). La variation de E entre les couches les plus externes et les plus internes est (+40,1%). Par conséquent, ces couches se révèlent plus rigides et même plus résistantes au regard de la *figure.V.14*. de l'épaisseur mais qui s'accroît au-delà de $t/t_0 \sim 0.65$. Les valeurs de σ_y ont augmenté de manière remarquable, les couches les plus internes deviennent plus dures et plus résistantes ce qui confirme la convergence avec les propriétés structurales comme mentionné plus haut. Le maximum de variation propriété entre la paroi externe et la plus interne a été de

+10,3 %. Dans la littérature, il est connu que E et σ_y ont une corrélation linéaire qui les relient et qui confirme cette allure [15,16]. La *figure.V.15* retrace les variations de déformation limite et elle confirme ce changement d'allure à mi épaisseur. Seulement, les déformations évoluent dans le sens contraire des paramètres de contraintes (E et σ_y) avec un même niveau assez faible de dispersion. A ce stade, ce résultat peut indiquer que la méthode proposée sur la base de filaments

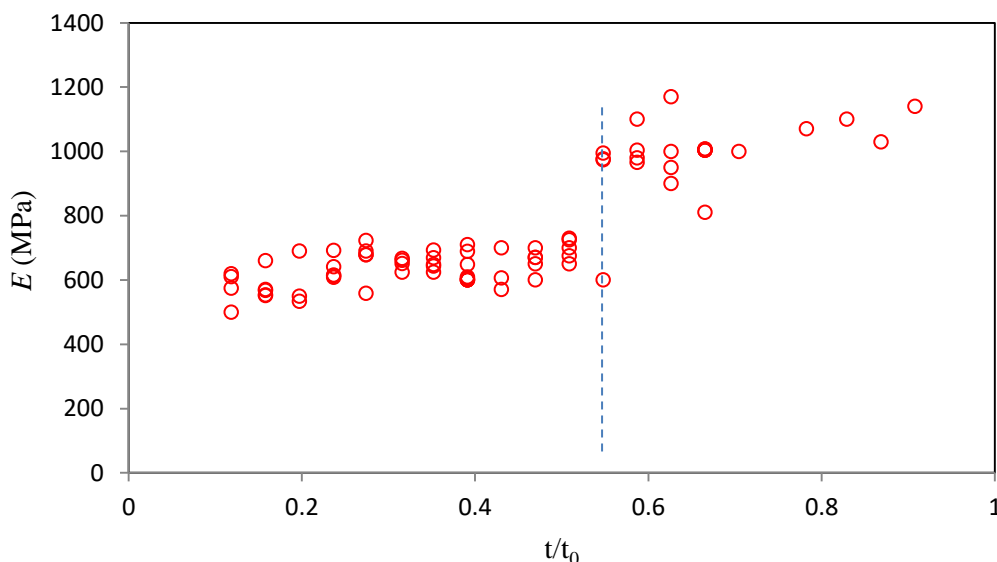


Figure V. 13. Evolution du module E en fonction de l'épaisseur adimensionnelle.

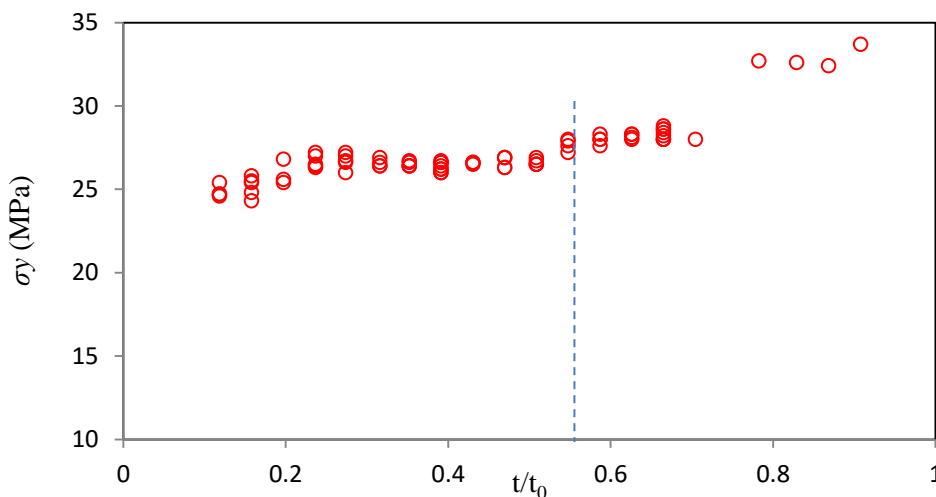


Figure V.14. Evolution de la limite élastique σ_y en fonction de l'épaisseur adimensionnelle.

Ces résultats corroborent les propriétés structurales telles que le degré de cristallinité et la morphologie (par exemple, épaisseur des lamelles, densité des molécules de liaison...) observés dans la littérature [10,13,16,18-20]. Aussi, la *figure.V.14* représentant σ_y en fonction de t/t_0 , elle indique une augmentation relativement faible dans la première moitié est une

approche qui est capable de faire ressortir les différences de propriétés macroscopiques et de pouvoir les corrélérer par la suite aux propriétés microstructurales. La variation maximale de la propriété pour ε_y entre les couches les plus externes et les plus internes est de +51,3% en faveur du côté interne.

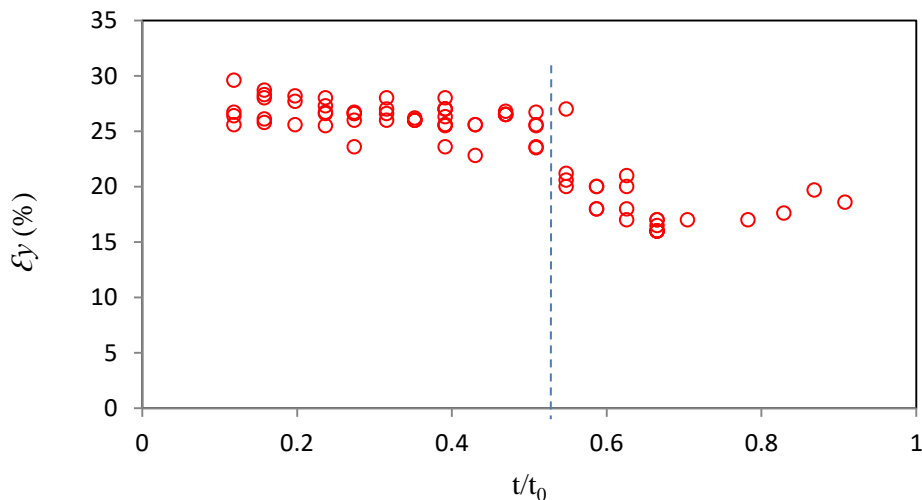


Figure V. 15. Evolution de ε_y en fonction de l'épaisseur adimensionnelle.

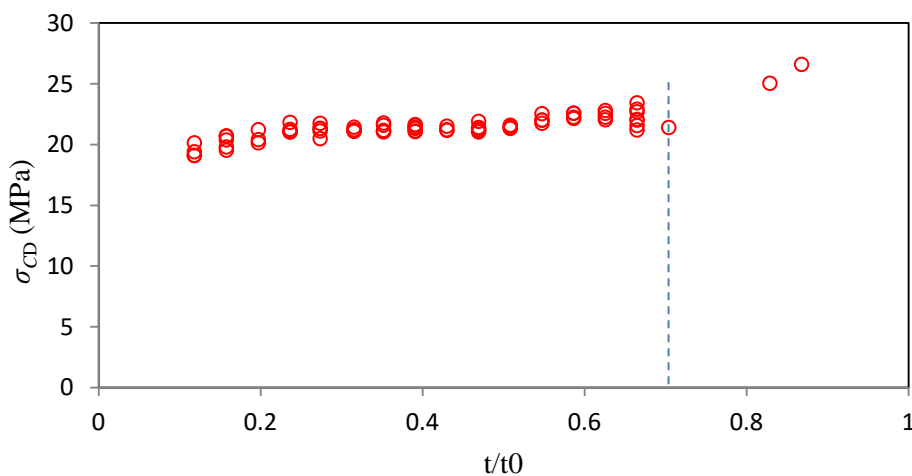


Figure V. 16. Variation de l'étirage à froid nominal σ_{CD} en fonction de t/t_0 .

La contrainte σ_{CD} du plateau de l'étirage à froid (ou cold drawing) est illustrée dans la *figure.V.16*. L'allure montre un accroissement relativement faible de la contrainte à l'étirage à froid nominal et qui est semblable à celui de σ_y (yielding). Il y a des changements d'allures à $t/t_0 \sim 0.55$ et à 0.7. Il faut noter que les données au-delà de 0.7 sont réduites car certains filaments se sont rompus prématurément ou bien des spécimens ont été considérés pour d'autres essais surtout de vieillissement chimique. En revanche pour l'étendue de l'étirage à froid nominal en termes de déformation ($\Delta\varepsilon_{CD}$), il est illustré dans la *figure V.17*. Cette

étendue est indiquée par le segment AB dans la *figure V.10*. Les mesures représentatives sont plutôt comprises dans la bande 700% – 800% car dans cet intervalle qu'elles sont le plus concentrées. En dessous de cette bande, il y a des dispersions occasionnées par les spécimens qui ont donné des comportements divergents et qui pourraient être ne pas être pris en compte dans cette analyse. Il est possible de détecter 2 changements de cap, l'un à $t/t_0 \sim 0.4$ et l'autre à ~ 0.7 . Cette propriété indique la capacité de matière à créer l'orientation par le phénomène de la striction qui est un changement de section uniforme se propageant durant l'étirement jusqu'à l'initiation du durcissement plastique.

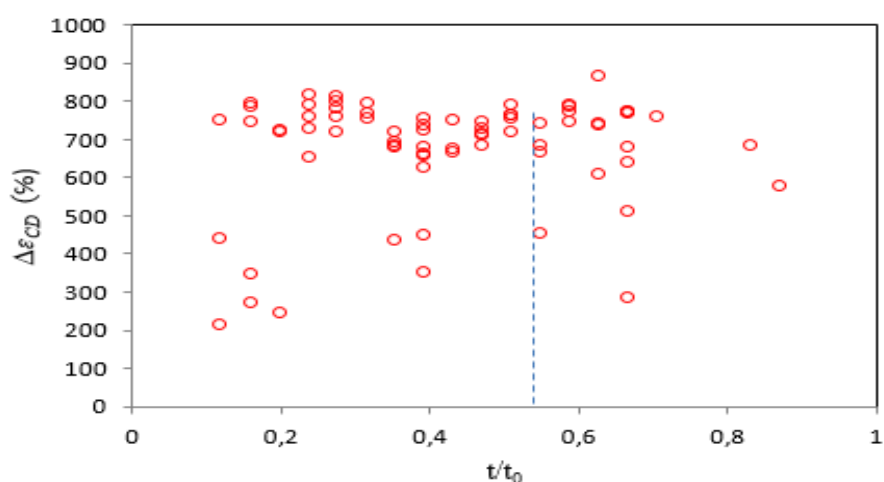


Figure V. 17. Variation de l'étendue de l'étirage à froid nominal $\Delta \epsilon_{CD}$ en t/t_0 .

Pour les 2 dernières propriétés du point de rupture (F : break point), à savoir, la contrainte nominale à la rupture σ_f et la déformation à la rupture ϵ_f . Leurs comportements sont exhibés dans les *figures.V.18* et *V.19* respectivement. La dispersion de la contrainte est beaucoup plus faible que celle de la déformation. La propriété σ_f semble suivre une certaine évolution comme remarqué précédemment et elle en conformité avec les observations précédentes. Par contre pour ϵ_f , une majorité de mesures est contenue dans l'intervalle 900% – 1500% jusqu'à une limite de 0.7 de t/t_0 .

Il est à noter que la limite physique du déplacement de la traverse supérieure est limitée par à une déformation de 1500%. En général, à mesure que la préparation du filament s'approche des couches internes, le filament (copeau) découpé va s'écouler dans une rainure profonde et rectangulaire favorisant probablement une extraction légèrement délicate par frottement sur les rebords de gorge dessinée par l'outil de coupe. Cette remarque peut être invoquée pour expliquer l'allure de la *figure V.12.e*.

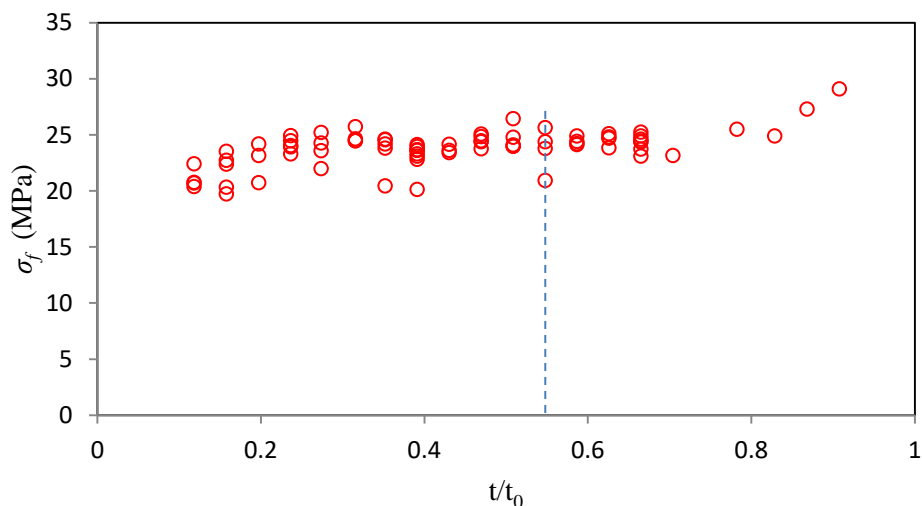


Figure V. 18. Evolution de la contrainte nominale à la rupture σ_f en fonction t/t_0 .

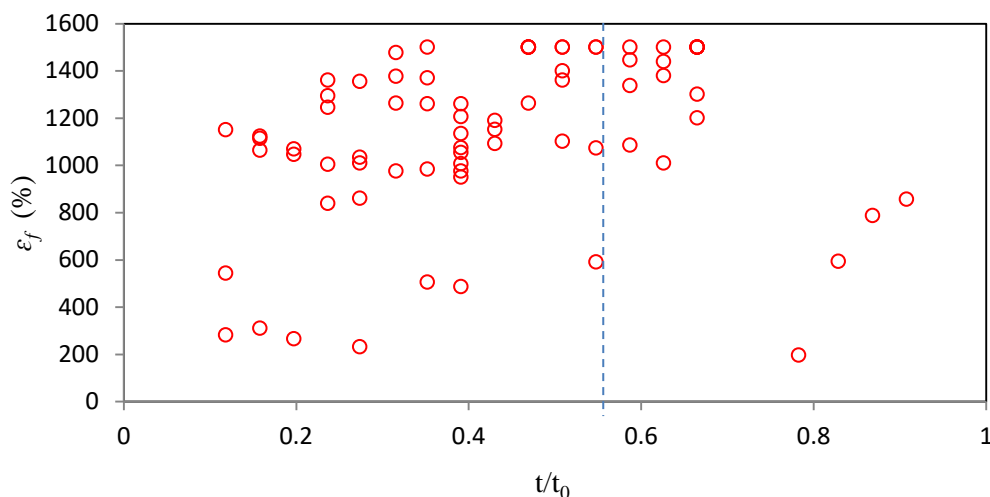


Figure V. 19. Evolution de la déformation à la rupture ϵ_f en fonction de t/t_0 .

Les ordres de grandeurs en termes de contraintes et de déformations sont respectés de manière satisfaisante bien que les paramètres soient mesurés à partir de filaments. Les ordres sont exprimés selon équations (V.9 et V.10) :

$$\sigma_y > \sigma_f > \sigma_{CD} \quad (\text{V.9})$$

$$\epsilon_f > \epsilon_{CD} > \epsilon_y \quad (\text{V.10})$$

L'élasticité impose une déformation limite la plus petite possible, pour un niveau de contrainte limite élevé et la ductilité exprimée par la déformation à la rupture est clairement la grande. Enfin, pour avoir une idée sur les mouvements des points Y (yield) et F(failure) décrits par les coordonnées : $Y(\sigma_y, \epsilon_y)$ et $F(\sigma_f, \epsilon_f)$, les *figure.V.20* et *figure.V.21* sont dressées. Il

s'avère que pour les couples de valeurs mesurées, les points Y se retrouvent sur une courbe linéaire décroissante alors que les points F forment aussi une courbe linéaire mais croissante. Dans les cas, il est conclu qu'il y a une proportionnalité l'une croissante et l'autre décroissante.

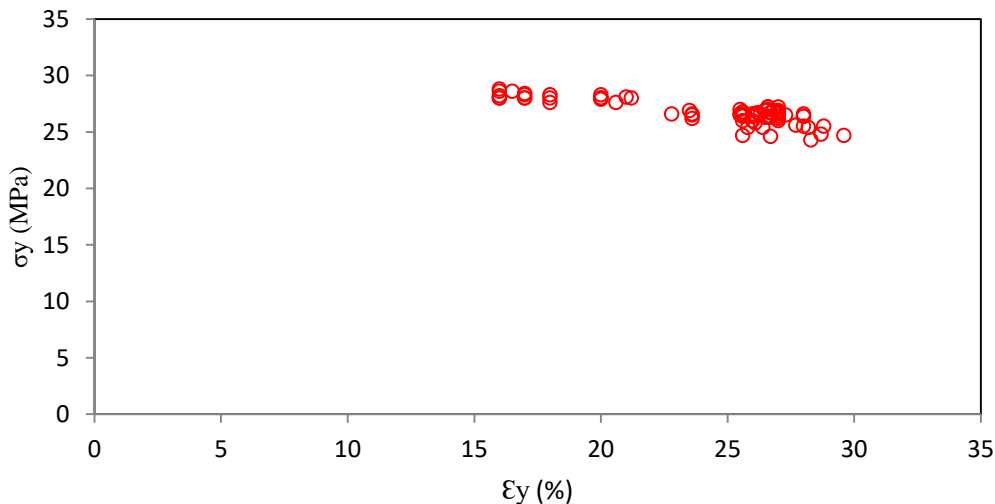


Figure V. 20. Variation de σ_y en fonction de ϵ_y pour l'ensemble des courbes.

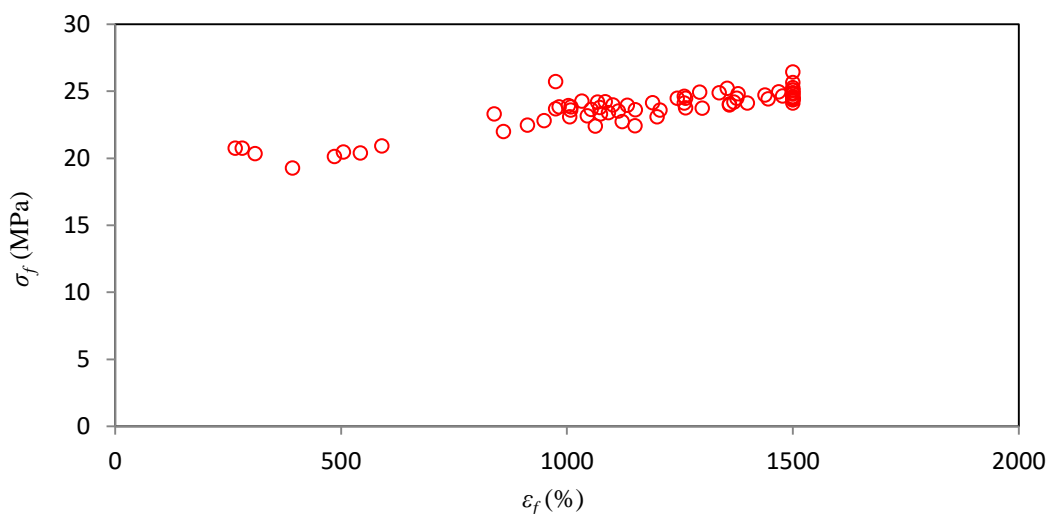


Figure V. 21. Variation de σ_f en fonction de ϵ_f pour l'ensemble des courbes.

V.5.1.3. Mécanismes de fissuration lors de la traction monotone

Bien qu'il ne soit pas facile d'expliquer ce qui se passe lors d'un essai de traction d'un point de vue macromoléculaire (*figure V.10*), les techniques de caractérisation des polymères ont permis de mieux comprendre quelques aspects importants au cours des trente dernières années. En utilisant la diffraction des rayons X, *Addiego et al.* [27] et *G'Sell* [28] ont conclu que la traction monotone du polyéthylène haute densité est associée à des changements de volume significatifs provoqués par des transformations locales de la chaîne polymère

affectant la structure semi-cristalline. La structure sous contrainte présente un mécanisme de propagation de fissure progressif au niveau sphérolitique suivi d'un phénomène de cavitation et par la suite d'une fibrillation intense limitant les mouvements conventionnels de la chaîne.

Il est également expliqué qu'une compétition s'oppose à l'augmentation de volume et au compactage des chaînes respectivement générées par la diminution de la cristallinité et l'orientation des chaînes se produisant notamment tout au long des phases d'étirage et d'écrouissage. Il est entendu que des processus à la fois homogènes et inhomogènes caractérisent la structure du HDPE. Dans le premier mécanisme, la dilatation des sphérolites est globale (multidirectionnelle) tandis que pour le suivant, la déformation ultérieure se produit inégalement favorisant la formation de craquelures (crazes).

De plus, les liaisons inter-lamellaires appelées molécules de liaison agissent généralement comme un moyen de ramener l'élan vers l'état d'origine du matériau lors du déchargement (voir *chapitre I, figures I.3 et I.4*). Ils contribuent à rassembler les charges actuelles des régions amorphes étendues vers les régions cristallines qui subissent une déformation plastique. Aussi, il est conclu que la concentration des contraintes sur des faiblesses structurales infinitésimales conduit à un mécanisme de fissuration inattendu qui développe une croissance lente des fissures (SCG : Slow Crack Growth). De plus, les lamelles fragmentées et les chaînes polymères dépliées contribuent à la structure fibrillaire qui constitue le matériau étiré (après l'emplacement ϵ_y jusqu'au début de l'écrouissage plastique désigné par la flèche bleue (*figure V.12*)). C'est une bonne raison de choisir le procédé de copolymérisation du HDPE car il favorise l'augmentation des molécules de liaison inter-cristallite et améliore la résistance à long terme des tuyaux [27-32].

V.5.2. Variation des propriétés structurales

V.5.2.1. Résultats et interprétation de l'analyse par spectroscopie infrarouge

L'analyse par spectroscopie infrarouge permet d'une part d'attribuer les modes de vibration caractéristiques du polyéthylène, et d'autre part d'identifier les modes de vibration caractéristiques de la phase cristalline et de la phase amorphe. Les analyses *IR* effectuées sur les échantillons du polyéthylène as-received de 3 couches différentes de la paroi (extérieure, intermédiaire et intérieure) sont présentées dans la figure *figure V.22*.

La figure illustre principalement les vibrations d'élongation symétrique et asymétrique des liaisons *C-H* du groupement méthylène CH_2 aliphatique vers 2916 cm^{-1} pour l'élongation asymétrique et à 2846 cm^{-1} pour l'allongement symétrique, une autre bande d'absorption vers

1458 cm^{-1} pour la vibration de déformation symétrique. Ainsi, une bande faible de déformation vers 717 cm^{-1} , visible pour les composés ayant un enchaînement assez long de plusieurs CH_2 comme chaîne de PE. En revanche, on observe la disparition totale sur le spectre IR de la couche intérieure des bandes attribuées à H_2O , centrée sur 1651 cm^{-1} environ, pour la couche externe et interne une bande large. Une autre bande située $>3500\text{cm}^{-1}$ correspond respectivement à la vibration de déformation d'angle et aux vibrations d'élongation symétrique et antisymétrique des liaisons O-H , ainsi la bande forte située près de 2360 cm^{-1} est due à la vibration d'élongation asymétrique de la molécule de dioxyde de carbone CO_2 [33-37].

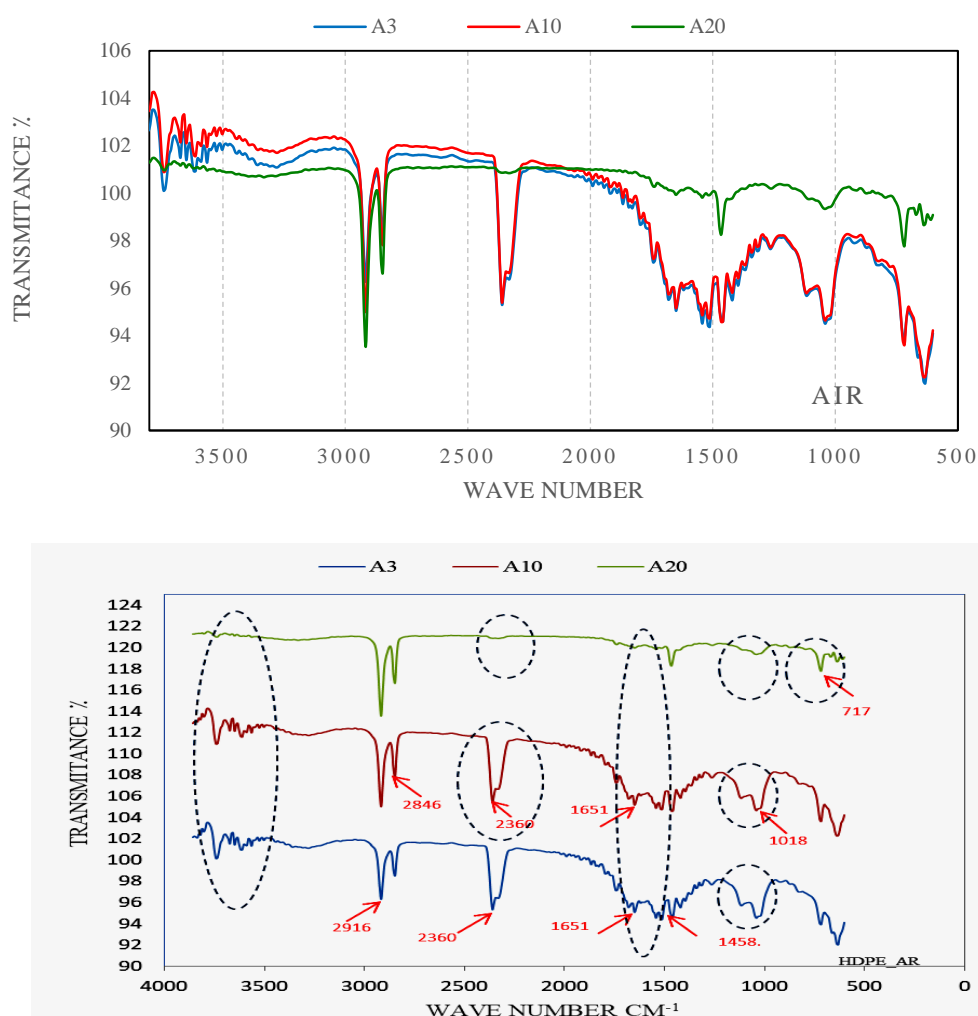


Figure V. 22. Spectres as-recieved des 3 couches : intérieure, intermédiaire et extérieure.

V.5.2.2. Résultats et interprétation de l'analyse enthalpique différentielle

L'analyse calorimétrique à balayage différentiel (*DSC*) est une méthode précise de calorimétrie qui permet de détecter les transitions de phases telles que la fusion ou les réactions chimiques dans un polymère sous l'effet d'une température croissante et/ou

décroissante. La réponse thermique d'un échantillon est comparée à celle d'une référence non réactive sous des conditions connues. Un thermo-gramme type du PE du tube considéré est présenté dans la *figure V.23*

Nous pouvons retirer beaucoup d'informations de la courbe DSC. L'ordinateur tracera la dissemblance entre les chaleurs des deux récipients en fonction de la température pendant le début du chauffage des deux récipients. C'est-à-dire, nous tracerons la chaleur absorbée par le polyéthylène en fonction de la température. La *figure V.7* représente la courbe DSC de la couche : extérieure (a). Les courbes DSC des couches : (b) intermédiaires (c) intérieure représentées dans les figures (*annexe D.1*). La mesure de l'enthalpie de fusion (ΔH_f) a été prise entre deux températures: T_f onset et T_f offset, ces bornes n'étant pas toujours facile à identifier, nous avons utilisé la ligne de base après fusion pour définir le pic de fusion.

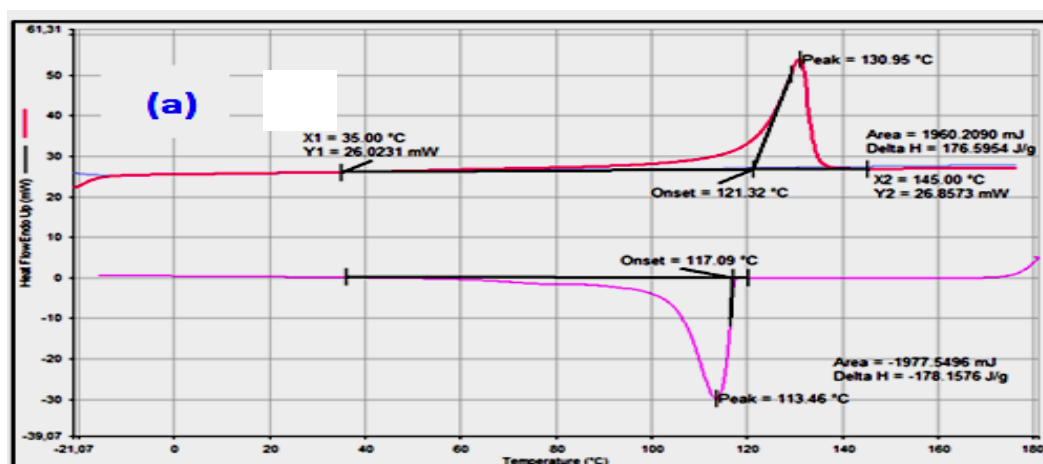


Figure V. 23 Courbe DSC type d'un thermo-gramme du HDPE pour la couche externe AR.

Dans les normes *ASTM E793* et *E794*, une représentation vers le bas est suggérée pour des phénomènes endothermiques. En revanche ; Les normes *DIN 51007* et *ISO 11357-1* exhortent la représentation des phénomènes endothermiques avec une amplitude orientée vers le haut. Afin d'obtenir des renseignements sur la physique des échantillons prélevés des trois couches, voir (*figure. V.23* et *figures, annexe D.1*) afin d'identifier les gradients de la microstructure.

- **Pics endothermiques** : représente généralement la fusion, la transition vitreuse. Le passage des chaînes de polymère d'un état cristallin arrangé à un état liquide désordonné peut se poursuivre sur une gamme de température plus ou moins large. Le HDPE comprend une phase amorphe et une phase cristalline. La fusion est caractérisée par l'enthalpie de fusion

ΔH_f . Le taux de cristallinité des trois couches (CE, CM et CI, a été calculé par l'équation (3)

$$[38] : X_c = \frac{\Delta H_f}{\Delta H_{f0}} 100 \quad (V.11)$$

Avec ΔH_f : l'enthalpie de fusion spécifique du HDPE et ΔH_{f0} : l'enthalpie de fusion du polyéthylène 100% cristallin (en J/g) égale à 290J/g.

La grandeur des cristallites L_c est attribuée par l'équation (V.12) :

$$L_c = \frac{2\sigma_e T_m^0}{\Delta H_{f0}(T_m^0 - T_m)} \quad (V.12)$$

Avec T_m^0 : température de fusion de l'état cristallin et σ_e : l'énergie libre de surface des lamelles cristallines égale à 9×10^{-6} J/cm².

- **Pics exothermiques** : Ils peuvent représenter la cristallisation, la polymérisation, l'oxydation ou la décomposition. Dans la [figure V.23](#), la réversibilité de la transformation est illustrée avec fusion à T_f et cristallisation à T_c .

Le [tableau V.3](#) présente les paramètres thermiques mesurés et les paramètres morphologiques calculés pour les 3 couches (extérieure, moyenne. et intérieure) de la paroi du tube. A cause de la modification des épaisseurs des lamelles cristallines, le processus de fusion prend place sur un vaste intervalle de température.

Tableau V. 3. Résultats DSC (T_c , T_f et ΔH_f) et de morphologie (X_c et L_c) à travers la paroi.

Couche	T_c (°C)	T_f (°C)	ΔH_f (J/g)	X_c (%)	L_c (n.m)
Extérieure (CE)	113.46	130.95	176.595	60.89	18.46
Moyenne (CM)	113.36	132.37	190.326	65.62	20.54
Intérieure (CI)	113.38	133.36	188.421	64.98	22.23

La température de la couche extérieure du tuyau PE était de 130.95°C, qui est moins élevée que celles des couche CM et CI : 132.37°C et 133.36°C respectivement. Cela signifie que le cristal se perfectionne CE vers CI (une augmentation de $\approx 2\%$). Autres chercheurs [\[16,18-20\]](#) ont étudié l'évolution de l'épaisseur des lamelles cristallines (L_c) lors de la thermo-oxydation du PE. L'approche a consisté à mesurer la température de fusion (T_f) à l'aide de la DSC. Ils ont observé une augmentation de T_f , à travers la paroi, qu'ils ont associée à un épaissement des lamelles cristallines pendant la thermo-oxydation. Les taux de cristallinité mesurés à travers le mur de tube HDPE-100 sont variables entre la paroi interne et la paroi externe. Ici, il faut revenir à l'histoire thermomécanique et au mode de refroidissement par chocs thermiques subis notamment par les surfaces externes des tubes. Par contre, les couches

internes prennent plus de temps pour se refroidir, pendant le mode d'extrusion. Ce résultat est en bonne accord avec ceux de [16,19,40] qui ont montré que le taux de cristallinité dans un tube de polyéthylène de haute densité est croissant dans l'épaisseur de l'extérieure vers l'intérieure. Pour notre cas une augmentation des valeurs de la cristallinité environ de 6.28% d'extérieure vers l'intérieur du tube, est probablement dû au gradient de température généré lors de la fabrication du tube à partir de la matière fondue. Dans les zones de refroidissement rapide on obtient une microstructure non sphérolitique à une faible X_c . Les valeurs obtenues (60.89% à 65.62%) sont conformes avec la littérature qui a étudié les tubes en PE à différentes épaisseurs [20,38-40].

Après calcul, les épaisseurs cristallines des trois couches, de l'extérieur vers l'intérieur, ont été évaluées à 18,46 nm, 20,54 nm et 22,23 nm respectivement. Ces changements s'expliquent par les distincts taux de refroidissement enregistrés. Lors d'un refroidissement progressif, il est prédit un nombre réduit de points de nucléation, laissant néanmoins raisonnablement de temps pour permettre un accroissement significatif des cristaux. Par conséquent, avec des lamelles plus épaisses, l'épaisseur cristalline des zones internes de la surface devient plus importante surtout pour les petits taux d'évacuation de la chaleur (procédé lent). En cas de SCG à température ambiante, la région amorphe est repérée au-dessus de sa température de transition vitreuse (T_g).

V.6. Conclusion

La question de l'hétérogénéité a été examinée en caractérisant des propriétés mécaniques et morphologiques à travers la paroi d'un tube HDPE de gaz sur la base d'un filament continu et uniforme usiné par gorgeage. La procédure de rainurage proposée et le protocole d'essai de filament établi se révèlent appropriés pour étudier les hétérogénéités mécaniques et quantifier les écarts. En outre, des analyses structurales peuvent être effectuées à des points ou des couches très localisées dans la paroi du tuyau (progression de la profondeur 0,4 mm). Dans tous les cas testés, les courbes contrainte-déformation en fonction de l'épaisseur de la paroi du tuyau reproduisaient les similitudes globales comprenant une zone élastique étroite et une zone plastique élargie généralement observées pour les polymères semi-cristallins. Cependant, ces courbes ont révélé des variances intéressantes en termes de propriétés mécaniques qui sont conformes aux observations sur la structure et même en accord avec les résultats de la littérature. Sur les propriétés mécaniques, 7 paramètres ont été mesurés et discutés (E , σ_y , ϵ_y , σ_{CD} , $\Delta\epsilon_{CD}$, σ_f et ϵ_f). Les évolutions obtenues à travers la paroi ont été corrélées avec les propriétés morphologiques mesurées (X_c , T_f , T_c ,

L_c et ΔH_f). Les résultats de FTIR ont aussi permis de caractériser la structure du PE à travers la paroi. Enfin, les résultats obtenus dans ce chapitre forment un point de démarrage pour plusieurs autres études futures telles que le vieillissement dans le temps et à travers la paroi du tube ou les calculs de fiabilité sachant que les paramètres de mécanique ou de structure peuvent être mis sous formes d'équations.

Références bibliographiques :

- [1] L. Cangemi, Y. Meimon, 2002, « *Une approche méso-macro continue pour la modélisation du comportement des polymères semi-cristallins à usage structural* », Mécanique et Industrie 3, 557-570.
- [2] J. M. Schultz, 1984, *Microstructural aspects of failure in semicrystalline polymers*, Volume24, Issue10, 770-785. <https://doi.org/10.1002/pen.760241007>
- [3] W. R Broughton et A. S Maxwell, 2007, *Accelerated Environmental Ageing of Polymeric Materials*. Measurement Good Practice Guide No. 103. National Physical Laboratory. ISSN 1368-6550.
- [4] Sixi Zha, Hui-qing Lan, Nan Lin, Tao Meng, 2023, *Degradation and characterization methods for polyethylene gas pipes after natural and accelerated aging*, Polymer Degradation and Stability, Volume 208, 110247.
- [5] X. Colin, L. Audouin, J. Verdu, M. Rozental-Evesque, B. Rabaud, F. Martin, F. Bourguine, 2009, *Aging of Polyethylene Pipes Transporting Drinking Water Disinfected by Chlorine Dioxide. I. Chemical Aspects*, Polym. Eng. Sci. Volume49, Issue7, Pages 1429-1437
<https://doi.org/10.1002/pen.21258>
- [6] Hao Wang, Jay Shah, Said-El Hawwat, Qindan Huang, Alireza Khatami, 2024, *A comprehensive review of polyethylene pipes: Failure mechanisms, performance models, inspection methods, and repair solutions*, Journal of Pipeline Science and Engineering, Volume 4, Issue 2, 100174
- [7] K. V. Gogolinskiy et al., 2022, *Study of physicochemical properties of polyethylene gas pipelines material with a prolonged service life*, Int. J. Press. Vess. Piping, Volume 200, , 104825
- [8] P. Krishnaswamy, 2007, *Review of literature on the use of polyethylene (pe) piping in nuclear power plant safety-related class 3 service water systems*, Report NRC, Contract Number DR-04-07-072, Columbus OH. UA
- [9] N. Kiass, K. Chaoui, 2002, *Evolution des Propriétés Mécaniques dans un champ de contraintes Résiduelles à travers la paroi d'un tube de gaz en HDOE*, Synthèse, Volume 8, Numéro 1, Pages 25-32
- [10] N. Kiass, R. Khelif, L. Boulanouar, K. Chaoui, 2005, *Experimental approach to mechanical property variability through a high-density polyethylene gas pipe wall*, Journal of Applied Polymer Science: Volume 97, Issue 1, Pages: 272-281.

- [11] N. Kiass, R.Khelif, B. Bounamous, A. Amirat, K. Chaoui, 2006, Etude expérimentale des propriétés mécaniques et morphologiques dans un tube de gaz en HDPE-80, *Mécanique & Industries*, EDP Sciences, 7, 423–432. DOI:10.1051/meca:2006056
<https://www.mechanics-industry.org/articles/meca/pdf/2006/04/mi0041-2004.pdf>
- [12] S. Rehab-Bekkouche, W. Ghabeche, M. Kaddeche, N. Kiass, K. Chaoui, 2009, *Mechanical behaviour of machined polyethylene filaments subjected to aggressive chemical environments*, MECHANIKA, Nr.3(77), 40-46.
- [13] M. Kaddeche, 2014, *Étude de la rupture du polyéthylène sous charge constante*, Thèse de doctorat, Dépt Génie Mécanique, Université de Guelma, 200 p.
- [14] J. Niglia, A. Cisilino, R. Seltzer, P. Frontini, 2002, *Determination of impact fracture toughness of polyethylene using arc-shaped specimens*, 69 (12):1391-1399
[https://doi.org/10.1016/S0013-7944\(02\)00008-5](https://doi.org/10.1016/S0013-7944(02)00008-5)Niglia
- [15] L. Alimi, K. Chaoui, W. Ghabeche et al., 2013, *Short-term HDPE pipe degradation upon exposure to aggressive environments*. *Matériaux & Techniques* 101: 701-708.
<https://doi:10.1051/mattech/2013083>
- [16] L. Alimi, 2016, *Comportement mécanique de nouvelles résines HDPE dans des milieux agressifs*. PhD Thesis, Mech Eng Dept, Badji-Mokhtar University of Annaba, Algeria.
- [17] N. Hamlaoui, 2018, *Etude expérimentale et numérique de l'évolution de la ténacité à travers la paroi d'un tube en polyéthylène type HDPE-100*, Thèse de doctorat, Mech Eng Dept, Badji-Mokhtar University of Annaba, Algeria.
- [18] W. Ghabeche, 2020, *Etude de l'effet des agents oxydants et réducteurs (ESC) sur le comportement mécanique des résines HDPE 100+ à court et long termes*, Thèse de doctorat, Dept de Physique, Badji-Mokhtar University of Annaba, Algeria.
- [19] W. Ghabeche, L. Alimi, K. Chaoui, 2015, *Degradation of plastic pipe surfaces in contact with an aggressive acidic environment*, *Energy Procedia*, 74, p. 351-364.
- [20] Niou S, Chaoui K, Azzouz S, Hamlaoui N, Alimi L, 2018, *A method for mechanical property assessment across butt fusion welded polyethylene pipes*. *Int J Adv Manuf Technol*.
<https://doi.org/10.1007/s00170-018-1908-y>
- [21] K-H Nitta, H. Nomura, 2014, *Stress-strain behavior of cold-drawn isotactic polypropylene subjected to various drawn histories*, *Polymer*, 55, p. 6614-6622.
22. R. Séguéla, 2007, *On the Natural Draw Ratio of Semi-Crystalline Polymers: Review of the Mechanical, Physical and Molecular Aspects*, 292(3), 235–244.
- [23] S. Humbert, O. Lame et G. Vigier, 2009, *Polyethylene yielding behaviour: What is behind the correlation between yield stress and crystallinity?*, *Polymer*, 50:3755 (3761).

[24] R. Seguela, 2004, *Critical Review of the Molecular Topology of Semicrystalline Polymers: The Origin and Assessment of Intercrystalline Tie Molecules and Chain Entanglements*, J. Polym. Sci. Part B: Polym. Phys.: Vol. 43 (2005)

DOI: [10.1002/polb.20414](https://doi.org/10.1002/polb.20414)

[25] K. Chaoui, A. Moet, A. Chudnovsky, 1988, *Strain gage analysis of residual stress in plastic pipes*. Journal of Testing and Evaluation 16(3):286-290.

<https://doi.org/10.1520/JTE10380J>

[26] S. Mammeri, K. Bouacha, K. Chaoui, W. Ghabeche, K. Berkas, 2025, *Filament manufacturing via external grooving of an HDPE pipe wall: RSM optimization and mechanical tests validation*. Res. Eng. Struct. Mater., 2025; 11(1): 73-96.

<http://dx.doi.org/10.17515/resm2024.150me0714rs>

[27] F. Addiego, A. Dahoun, C. G'Sell, JM. Hiver, 2006, *Characterization of volume strain at large deformation under uniaxial tension in high-density polyethylene*. Polymer, 47: 4387–4399

DOI: [10.1016/j.polymer.2006.03.093](https://doi.org/10.1016/j.polymer.2006.03.093)

[28] C. G'Sell, 1999, *Matrix on the plastic hardening at large strain of semi-crystalline polymers. Modelling and Simulation in Mater. Sci. & Eng.* 7(5): 817–828.

DOI [10.1088/0965-0393/7/5/313163](https://doi.org/10.1088/0965-0393/7/5/313163)

[29] X. Qian R. Lu et N. Brown, 1995, *The effect of crystallinity on fracture and yielding of polyethylene*. Polymer, 36, 4239–4244.

[30] F. Addiego, A. Dahoun, C. G'Sell, JM. Hiver, O. Godard, 2009, *Effect of microstructure on crazing onset in polyethylene under tension*. Polymer Eng. & Sci., 49(6): 1198- 1205.

DOI [10.1002/pen.21194](https://doi.org/10.1002/pen.21194)

[31] LC. Xiao KQ, Zhang, 2002, *The role of viscous deformation in the machining of polymers*, Int. J. Mech. Sci., 44 (11): 2317-2336.

[https://doi.org/10.1016/S0020-7403\(02\)00178-9](https://doi.org/10.1016/S0020-7403(02)00178-9)

[32] Y. Wang, D. Lin, M. Xiang, M. Cui, N. Liu, 2021, *Experimental study on aging performance of polyethylene gas pipelines*. 3rd Int. Conf. on Air Pollution & Environmental Eng., IOP Conf. Series: Earth and Environmental Science, 631: 012066.

Doi: [10.1088/1755-1315/631/1/012066](https://doi.org/10.1088/1755-1315/631/1/012066)

[33] P.Y. Zhang, Jar, X. Shifeng, and L. Li, 2019, *Quantification of strain-induced damage in semi-crystalline polymers: A review*, Journal of Materials Science, 54(1).

<https://doi.org/10.1007/s10853-018-2859-2>

[34] T. Zanasi, E. Fabbri, F. Pilati, 2009, *Qualification of pipe-grade HDPEs: Part I, development of a suitable accelerated ageing method*. Polym. Test., 28, 96–102.

[35] J. Almond, P. Sugumaar, M. Wenzel, G. Hill, 2020, *Determination of the carbonyl index of polyethylene and polypropylene using specified area with ATR-FTIR*, E-Polymers, vol. 20(1), , <https://doi.org/10.1515/epoly-2020-0041>

[36] C. Campanale, I. Savino, C. Massarelli, V. Uricchio, 2023, *Fourier Transform Infrared Spectroscopy to Assess the Degree of Alteration of Artificially Aged and Environmentally Weathered Microplastics*, *Polymers* (Basel), 15 (4).

<https://doi:10.3390/polym15040911>

[37] T. Kida, Y. Hiejima, K-H Nitta, Rheo-Raman, 2019, *Spectroscopic Study on Uniaxial Deformation Behavior of High-Density Polyethylene Solids with Various Molecular Weight Distributions*, *Macromolecules*, 52, p. 4590–4600

[38] L. Alimi, K. Chaoui, N. Hamlaoui, K. Bedoud, 2019, *Experimental study of chemically aged HDPE pipe material in toluene-methanol mixture and distilled water*. AIP Conf Proceedings 2123, 020006. <https://doi.org/10.1063/1.5116933>

[39] W. Ghabeche, K. Chaoui, N. Zeghib, 2019, *Mechanical properties and surface roughness assessment of outer and inner HDPE pipe layers after exposure to toluene methanol mixture*. *Int J Adv Manuf Technol.* 103:2207–2225.

<https://doi.org/10.1007/s00170-019-03651-z>

[40] M. Germain Clavier, 2017, *Étude à l'échelle moléculaire des propriétés mécaniques des polymères semi-cristallins*. Thèse Doctorat, Univ. Paris-Saclay.

CHAPITRE VI

VIEILLISSEMENT DU HDPE-100 DANS UNE SOLUTION EQUIMOLAIRE DE TOLUENE- METHANOL

-

VI.1. Introduction

Plusieurs facteurs, y compris les propriétés des matériaux, les procédés de fabrication, le temps d'exposition, les paramètres environnementaux, la nature et la concentration des contaminants, déterminent les dommages et l'étendue de la contamination des polymères. La perméabilité du polymère, qui est caractérisée par la diffusion du gaz, de la vapeur et même de certains liquides dans le tube en PE, peut entraîner le phénomène de vieillissement et les dégradations de propriétés s'ensuivent avec le temps [1].

La littérature a traité en profondeur les différents mécanismes de fissuration sous contrainte environnementale (SCG, voir Chap. I) et des méthodes d'essai fréquemment employées. Bien que la littérature soit diversifiée, elle a peu abordé les méthodes pour assoir la relation hétérogénéité-propriétés-vieillissement de manière expérimentale et aussi comment remédier aux défaillances liées à ESC. En revanche un nombre relativement important de références sont disponibles dans la littérature sous forme d'études, de brevets et de standards d'essais [1-6]. L'étude de l'impact des environnements agressifs sur le comportement mécanique des polymères a attiré l'attention depuis que les polymères sont considérés pour remplacer les métaux dans les applications techniques. Le PE est un polymère généralement insoluble dans tout solvant à température ambiante, mais il peut gonfler dans certains solvants [7-9]. Le mélange toluène/méthanol, selon les Réfs. [7,10-14]; entraînent des modifications significative des caractéristiques mécaniques du polyéthylène. Comprendre les mécanismes de réaction et de dégradation des conduites en PE est nécessaire pour proposer des stratégies de stabilisation et prédire la durée de vie sur la base d'essais de vieillissement accélérés [15].

L'objectif de ce chapitre est l'étude expérimentale de l'influence du mélange liquide Toluène-Méthanol (50-50) sur le vieillissement des tubes en HDPE. L'approche expérimentale est celle décrite dans le chapitre précédent sur la base de filaments physiquement exposés au milieu solvant. Les durées d'immersion sont (7j. 28j. 90j. et 210j.). De la même manière, les propriétés mécaniques et de structure sont analysés en fonction des couches dans la paroi du tube.

VI.2. Résultats

VI.2.1. Comportement (σ - ϵ) du HDPE vieillis dans TM (50/50)

Les figures VI.1-4 représentent toute les courbes, contraintes-déformations des spécimens vieillis dans le mélange TM (50/50) à différentes durées d'immersion à 7j, 28j, 90j et 210j. A chaque fois, les trois couches (CE, CM et CI) du tube sont considérées pour les

essais de traction sur des filaments HDPE-100 (sections rappelées VI.2.1.1 ; VI.2.1.2 ; VI.2.1.3 ; et VI.2.1.4. La vitesse d'essai est de 50 mm/min. Chaque essai est mené jusqu'à la rupture comme expliqué au *chapitre. II*.

VI.2.1.1. Après 7 jours de vieillissement

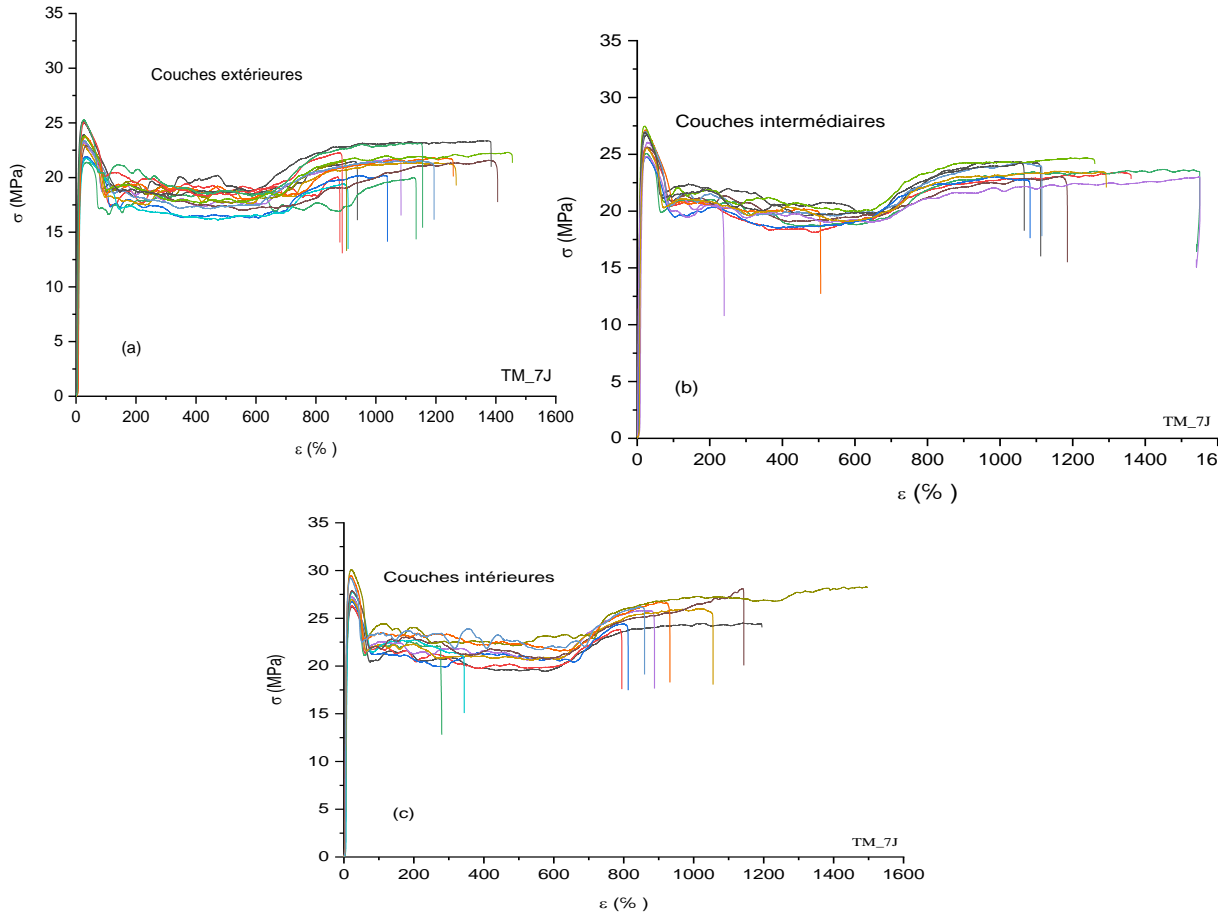


Figure VI. 1. Courbes σ - ε du HDPE-100. Immergé 7 jours dans le TM (50/50): (a) Couches extérieures, (b) Couches intermédiaires, et (c) couches intérieures.

Les figures (*annexe D.1 (a-d)*), représentent les courbes contraintes-déformations globaux des spécimens vieillis dans le Toluène-Méthanol (50/50) à différentes durées d'immersion (7j. 28j. 90j. et 210j.) pour les trois couches extérieures, intermédiaire, et intérieure du tuyau.

VI.2.1.2. Après 28 jours de vieillissement

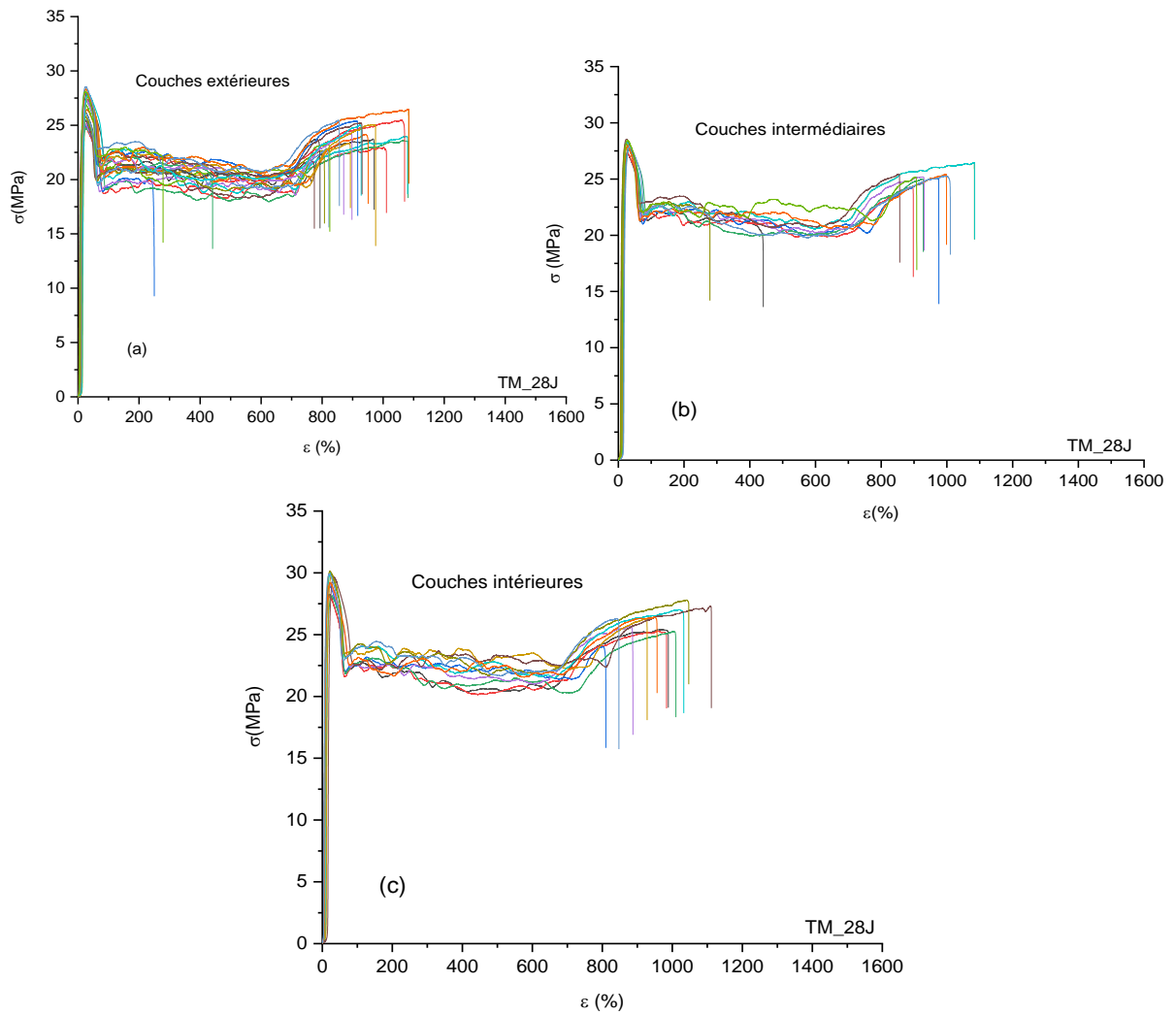


Figure VI. 2. Courbes contraintes déformation du HDPE-100. Immersé 28 Jours dans le TM (50/50). (a) Couches extérieures, (b) Couches intermédiaires, et (c) couches intérieure.

VI.2.1.3. Après 90 jours de vieillissement

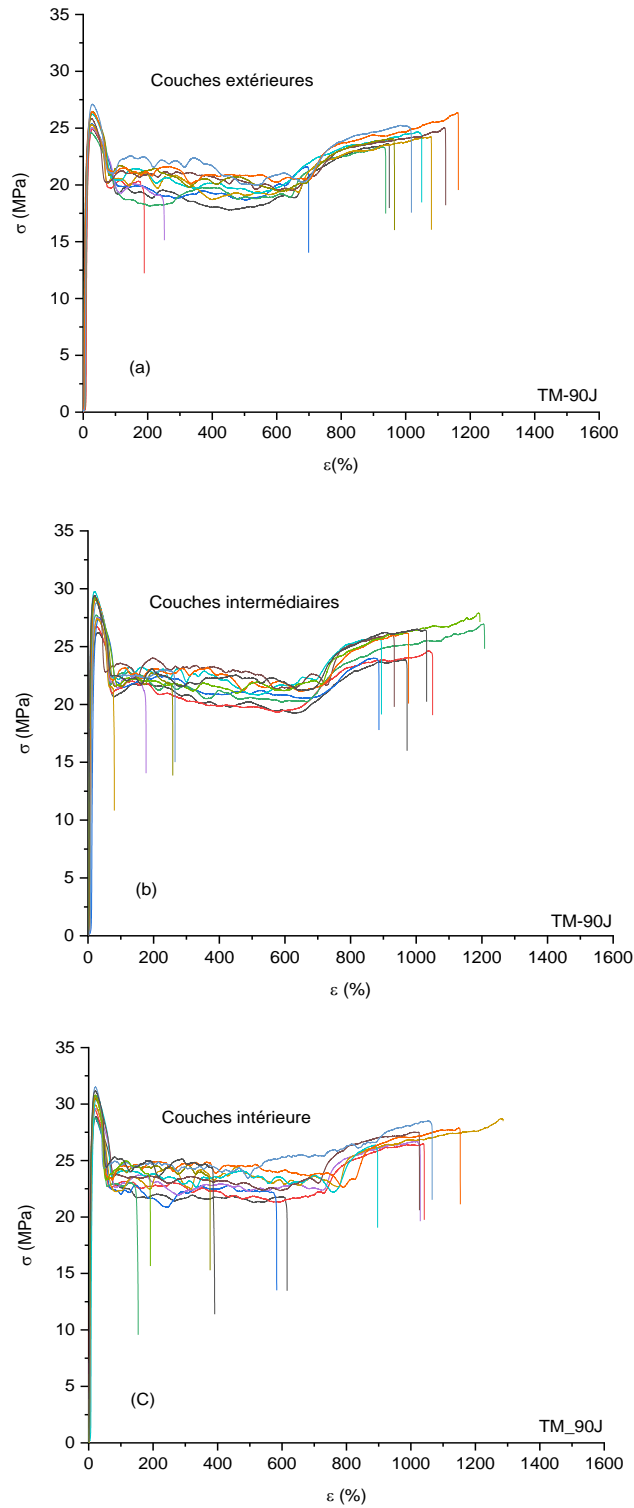


Figure VI. 3. Courbes contraintes déformation du HDPE-100. Immersé 90 Jours dans le TM (50/50). (a) Couches extérieures, (b) Couches intermédiaires, et (c) couches intérieure.

VI.2.1.4. Après 210 jours de vieillissement

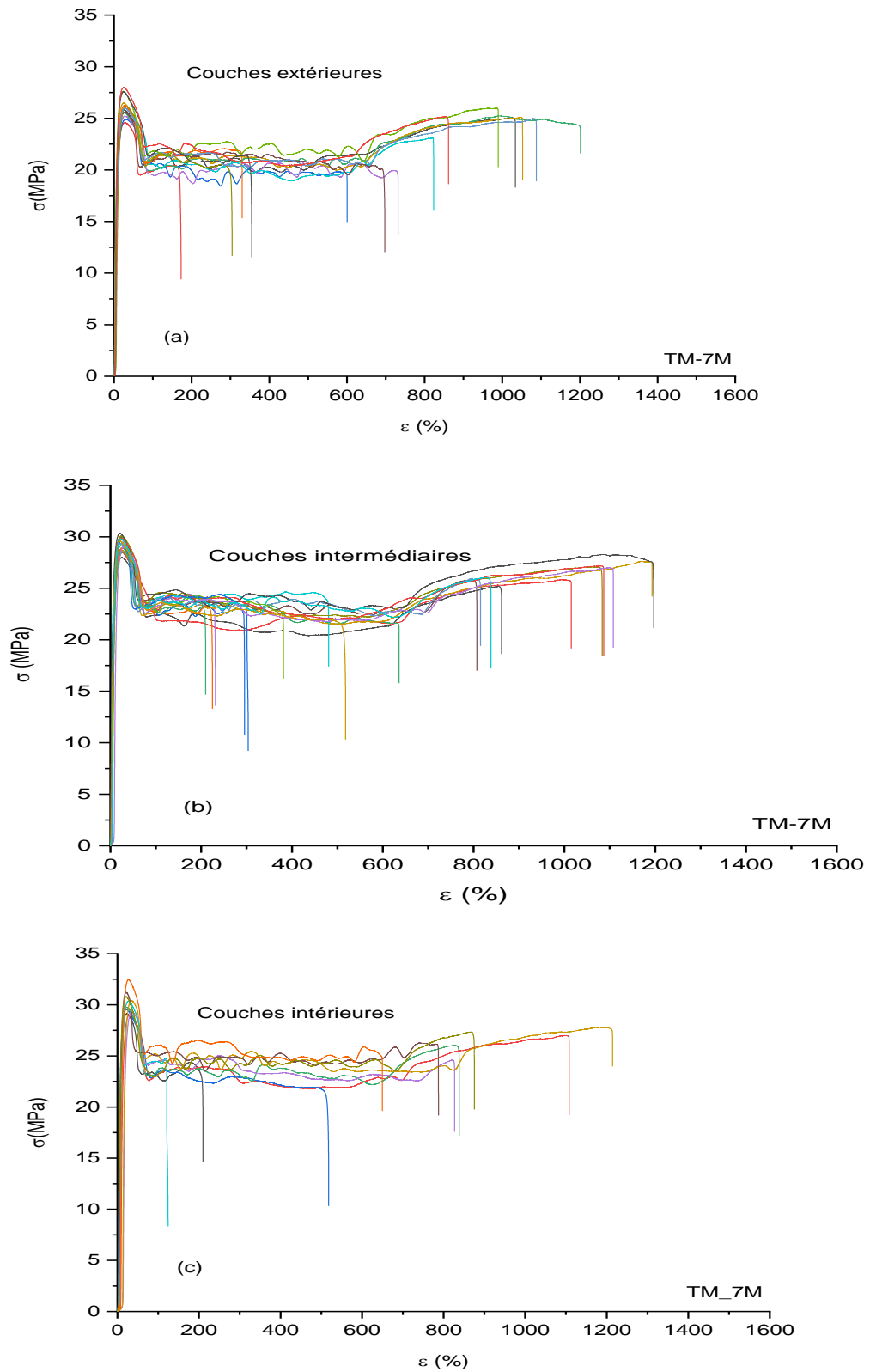


Figure VI. 4. Courbes contraintes déformation HDPE-100. Immersé 210 jours dans le TM (50/50) (a) Couches extérieures, (b) Couches intermédiaires, et (c) couches intérieures

VI.2.2. Variation des propriétés mécaniques du HDPE-100 Vieilli (TM (50/50))

L'analyse quantitative des courbes σ - ϵ permet de déterminer plusieurs caractéristiques mécaniques associées à la résistance, l'élasticité et la ductilité des matériaux. Dans le cadre de cette recherche, pour analyser les dissemblances de ces propriétés, les *figures VI.5-11*, illustrent les moyennes des multiples essais pour chaque couche, des propriétés mécaniques superposées du HDPE-100 immergé dans le TM (50/50), pendant les durées : 7j, 28j, 90j et 210j en fonction de la position adimensionnelle t/t_0 .

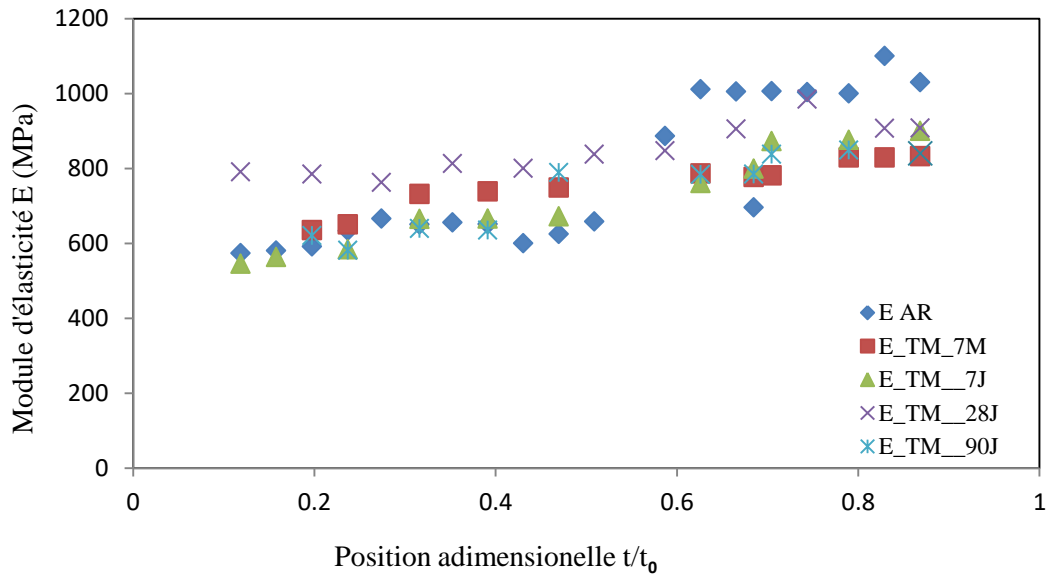


Figure VI. 5. Module d'élasticité E (MPa) superposées du HDPE-100 immergé dans le TM (50/50), pendant les durées : 7j, 28j, 90j et 210j en fonction de t/t_0 .

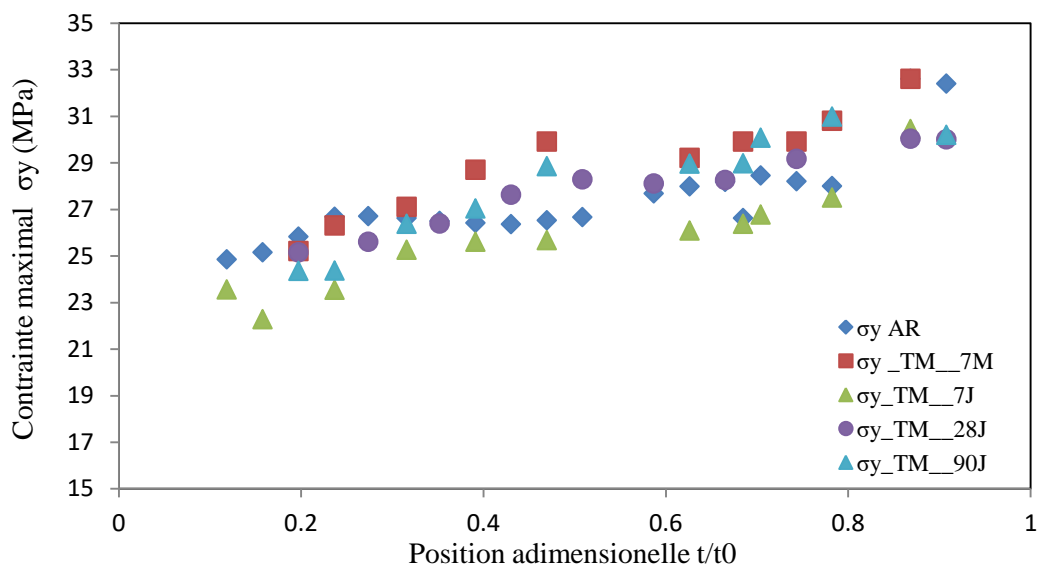


Figure VI. 6. Contraintes maximales σ_y à 7j, 28j, 90j et 210j superposées du HDPE-100 dans le TM (50/50) en fonction de t/t_0

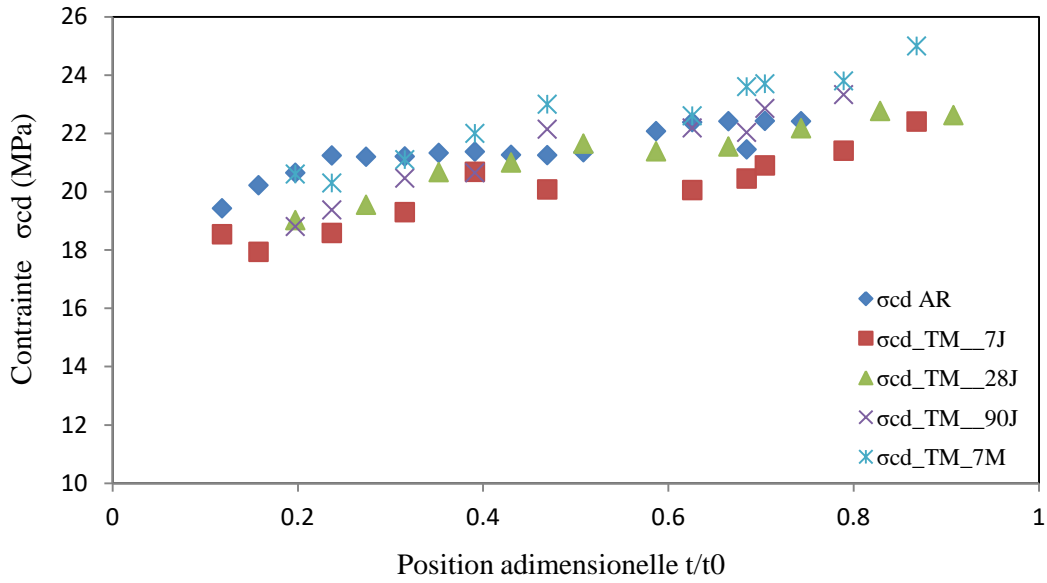


Figure VI. 7. Contrainte σ_{CD} superposées du HDPE-100 immergé dans le TM (50/50), pendant les durées : 7j, 28j, 90j et 210j en fonction de t/t_0

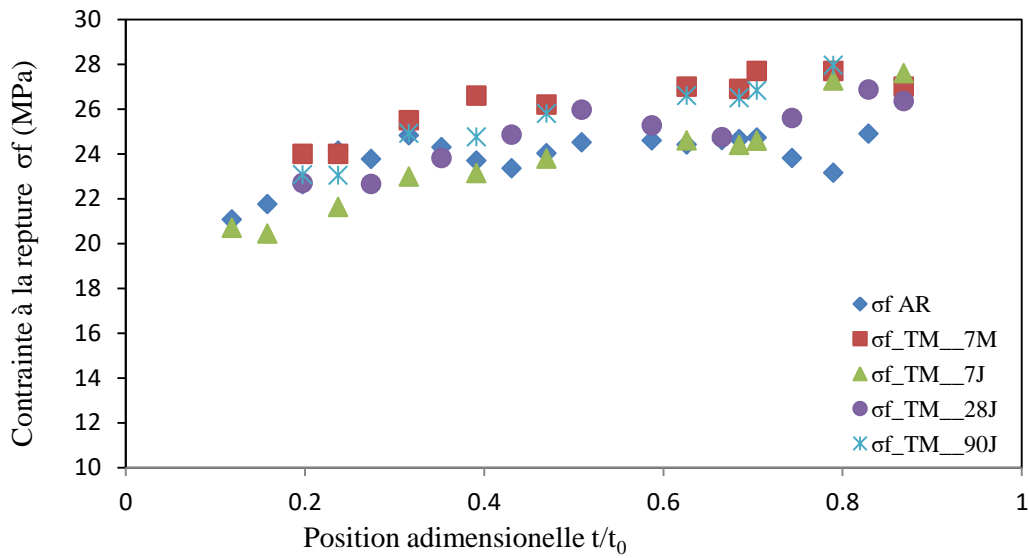


Figure VI. 8. Contrainte à la rupture σ_f superposées du HDPE-100 immergé dans le TM (50/50), pendant les durées : 7j, 28j, 90j et 210j en fonction de t/t_0

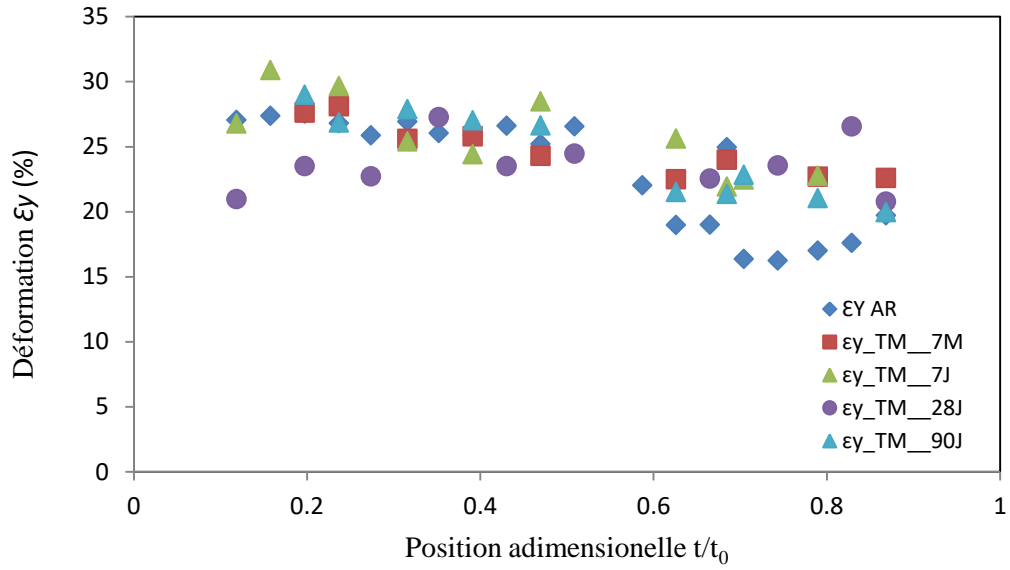


Figure VI. 9. Déformation au seuil d'écoulement ϵ_y (%) superposées du HDPE-100 immergé dans le TM (50/50), pendant les durées : 7j. 28j. 90j. et 210j. en fonction de t/t_0 .

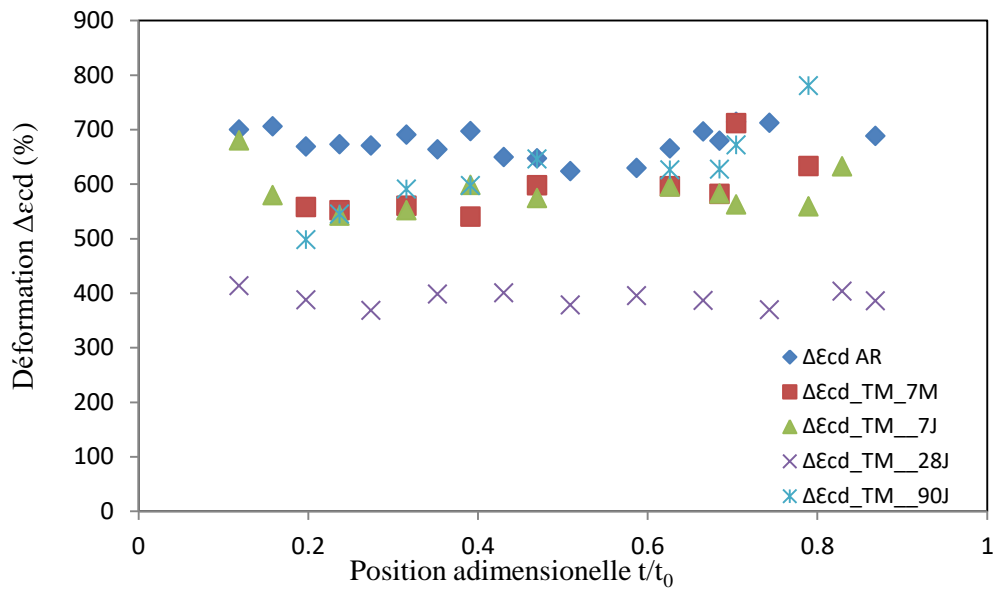


Figure VI. 10. Déformation $\Delta\epsilon_{cd}$ (%) superposées du HDPE-100 immergé dans le TM (50/50), pendant les durées : 7j. 28j. 90j. et 210j. en fonction de t/t_0

VI.2.3.1. Spectres HDPE vieilli (TM 50/50) durant (7j, 28j, 90j et 210j) en fonction des trois positions (CE, CM et CI)

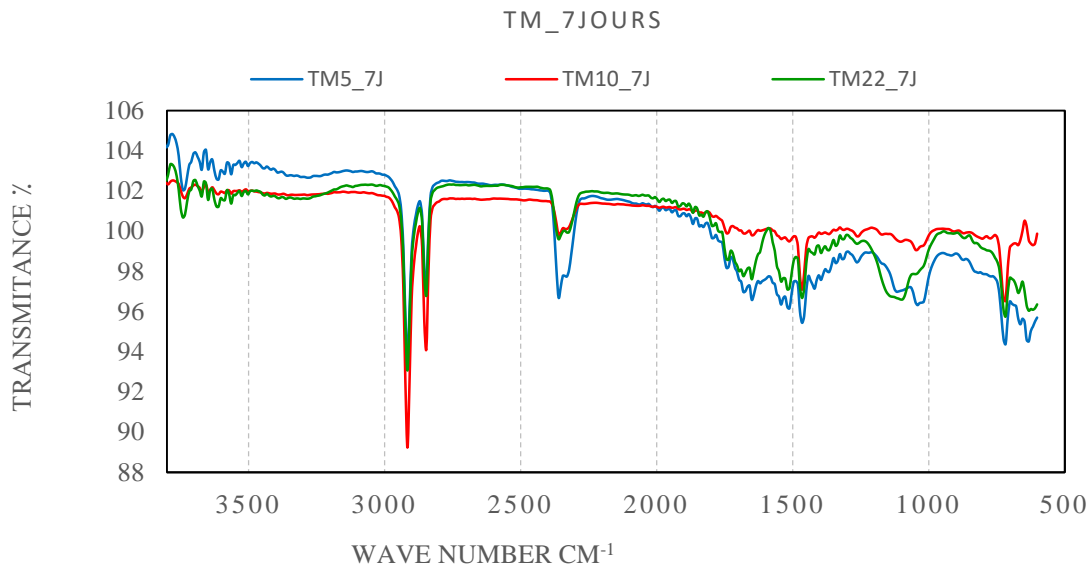


Figure VI. 12. Spectres du polyéthylène vieilli 7j dans le TM (50/50) des couches : intérieure, intermédiaire et extérieure.

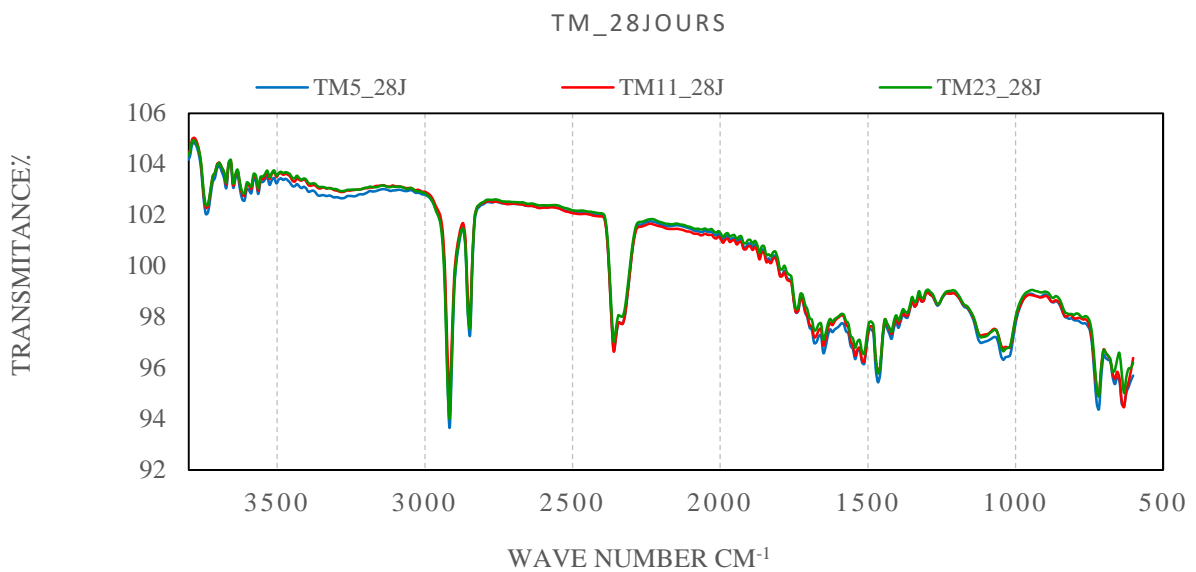


Figure VI.13. Spectres du polyéthylène vieilli 28j dans le TM (50/50) des couches : intérieure, intermédiaire et extérieure

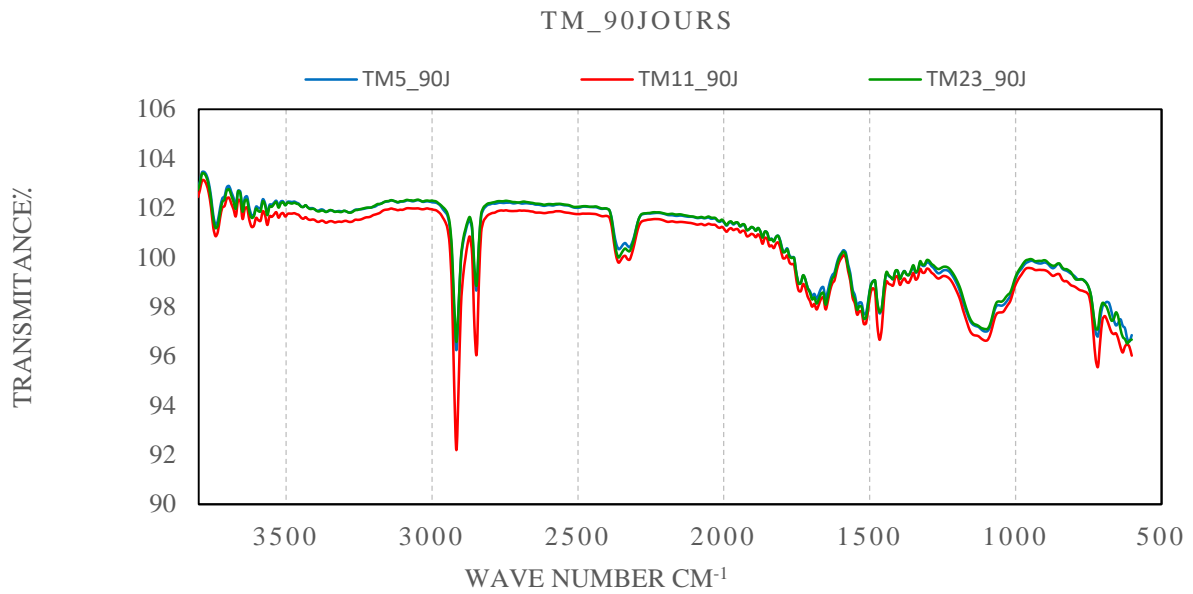


Figure VI.14. Spectres du polyéthylène vieilli 90j dans le TM (50/50) des couches : intérieure, intermédiaire et extérieure.

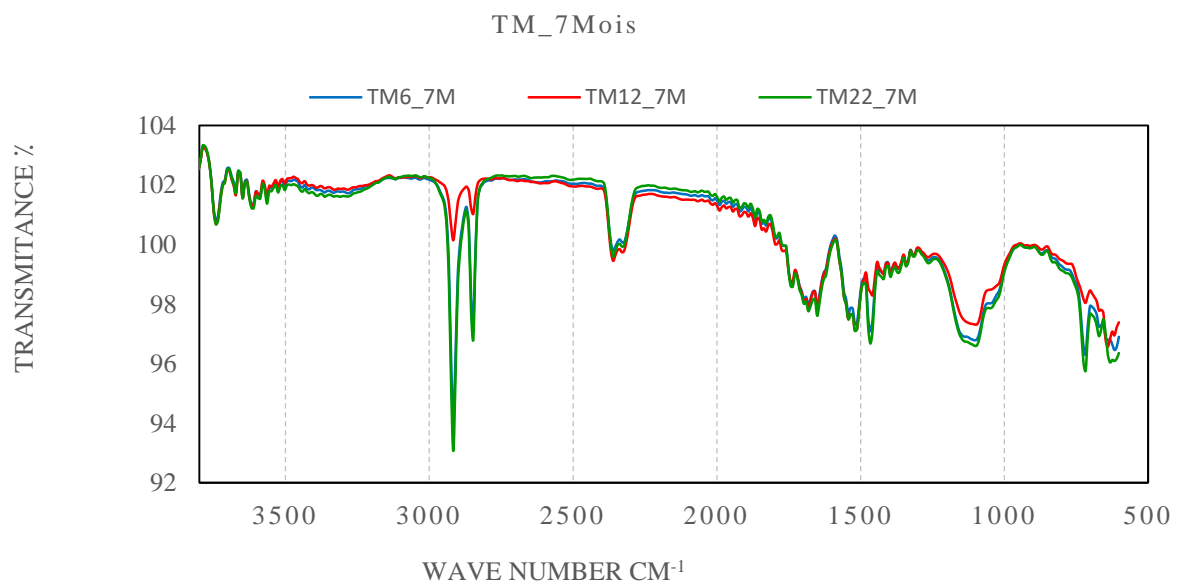
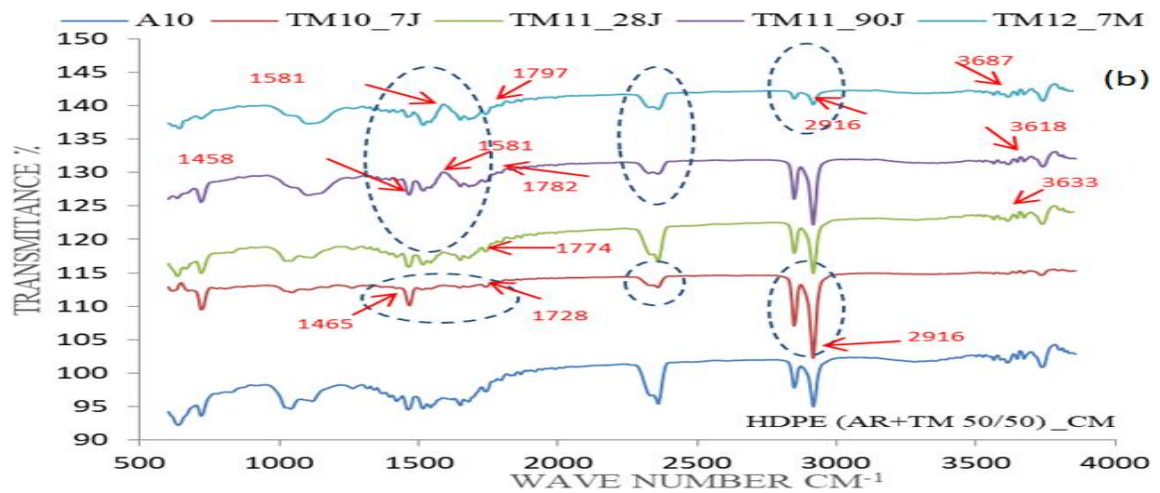
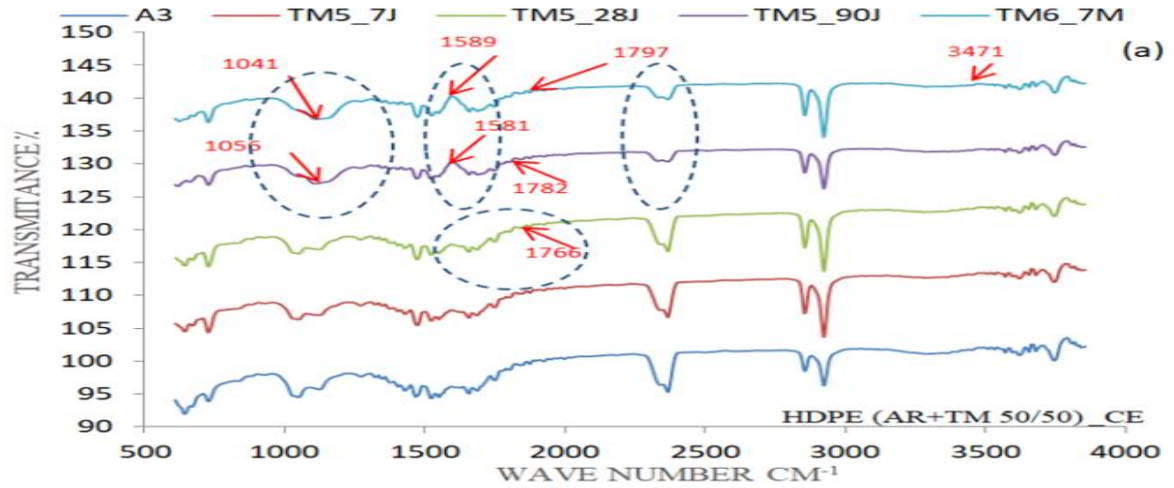


Figure VI.15. Spectres du polyéthylène vieilli 210j dans le TM (50/50) des couches : intérieure, intermédiaire et extérieure.

VI.2.3.2. Spectres HDPE non- vieilli et vieilli (TM 50/50) durant (7j, 28j, 90j et 210j) superposés des trois couches (CE, CM et CI)



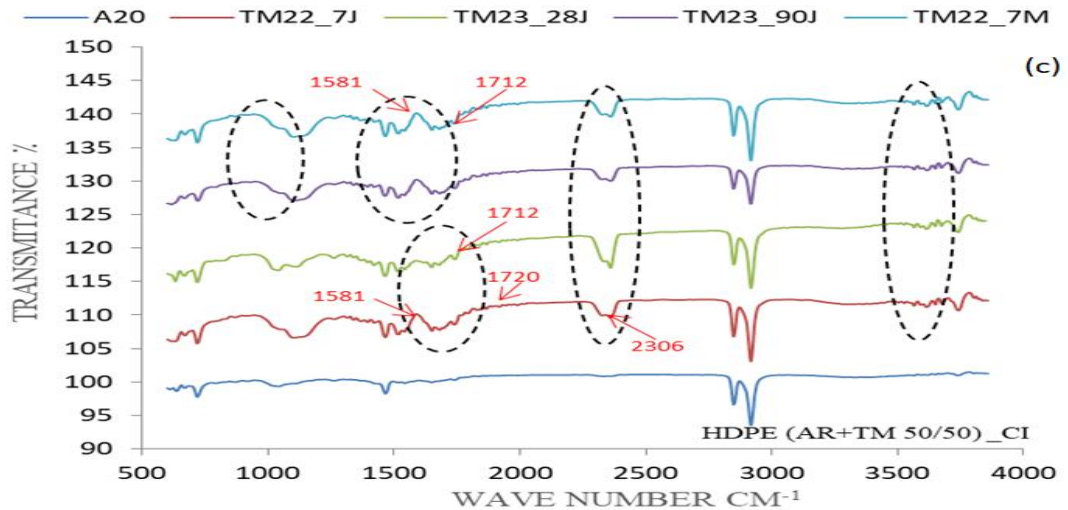


Figure VI. 16. Spectres FTIR superposés du HDPE-100 Vieilli dans le TM (50/50) des quatre durées, couches : (a) extérieures (b) intermédiaires (c) intérieures.

VI.2.3.3. Calcul de l'Indice de Carbonyle (IC) du HDPE

Les substances poléoiléfiniques peuvent être susceptibles à l'oxydation quand il exposé à l'air lors d'une utilisation à long termes. Le processus d'extrusion peut aussi consciemment causer l'oxydation pendant la fabrication. Ce processus induit des changements importants dans la composition chimique du matériau et ses caractéristiques physiques.

Un indice élevé de carbonyle dans le polyéthylène, signe de qualité inférieure du polymère et d'une mauvaise résistance aux conditions environnementales. On peut contrôler l'oxydation des polyoléfiniques par différentes méthodes. La méthode la plus fréquente pour l'analyse des réactions d'oxydation est la spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR). A partir des spectres (FTIR) on peut examiner les transformations dans la bande carbonyle (C=O) et guider l'évolution de la technique de l'indice de carbonyle (IC). On utilise typiquement l'IC pour surveiller la bande d'absorption des groupes carbonyle engendrées lors de la thermo-oxydation dans l'écart de 1700 à 1780 cm^{-1} , en estimant le rapport entre le pic carbonyle et le sommet de référence 1463 cm^{-1} [16-17] et (annexe A5). Au cours des quarante-cinq dernières années, l'IC a été étudié et considéré comme procédé généralement utilisée pour contrôler les améliorations physico-chimiques. Certainement, une multitude de variations dans la mesure de l'IC, plusieurs méthodes variées sont citée (annexe A5), illustrent plusieurs modèles distincts.

Dans le cas où le groupe carbonyle existant [18]:

Aldéhyde : Rechercher l'existence de la liaison C-H dans l'intervalle 2900-2750 cm^{-1} .

Ester : Rechercher le groupement C-O entre 1300 et 1000 cm⁻¹.

Acide : Rechercher une bande étendue spécifique du groupement –O-H dans l'écart de 3200-3400cm⁻¹.

Amides : Rechercher deux bandes N-H dans l'intervalle de 3500 cm⁻¹.

Anhydrides: Assimiler deux pics d'absorption C=O à 1810 à 1760 cm⁻¹.

Cétone : Si aucune distinct absorption particulier

Dans absence du groupe carbonyle:

Alcools : Rechercher une zone particulière du spectre pour le groupement –O-H dans l'intervalle 3400 à 3200 cm⁻¹.

Amines : Rechercher double bandes N-H dans 3500 cm⁻¹.

L'indice de carbonyle est calculé par le rapport des aires au-dessous des pics de 1780 à 1700 cm⁻¹ aux aires sous les bandes de 1495 à 1423 cm⁻¹ pour le cas du PE, (Equation (VI.1)), (courbes *annexe D.2*) comme indiqué dans les références [16-17] et (*annexe A.8*). Les résultats sont représentés sur la (*figure VI.17*).

$$CI_{PE} = \frac{\sigma_{1780} - \sigma_{1700}}{\sigma_{1495} - \sigma_{1423}} \quad (VI.1)$$

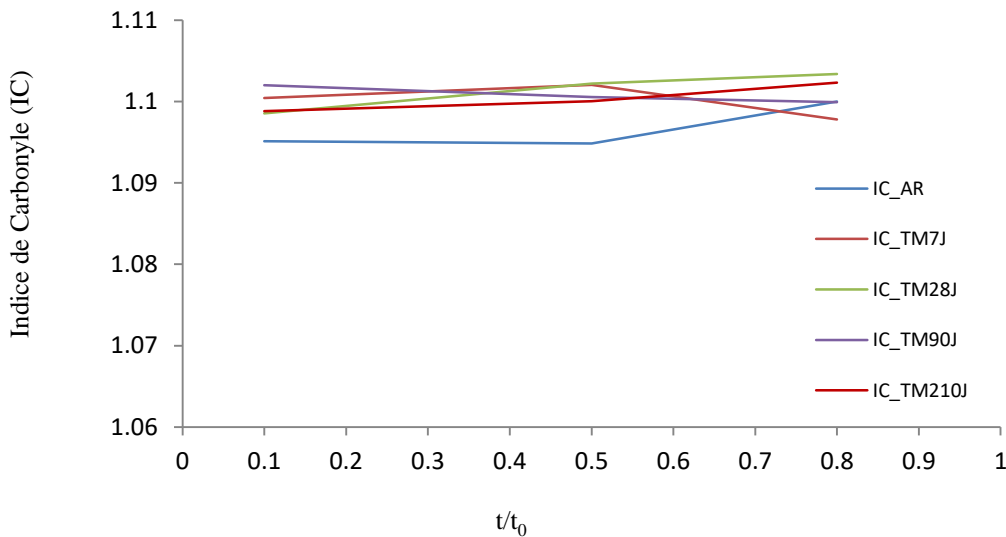


Figure VI. 17. Évolution de l'indice de carbonyle avec le temps de vieillissement dans le TM (50/50) en fonction de l'épaisseur adimensionnelle.

VI.2.4. Analyse par DSC (Cas TM 50/50)

La même procédure d'essai de caractérisation structurale gravimétrique des échantillons (AR), a été refaite pour les spécimens immergés sept mois dans le solvant (TM

50/50). Les figures; (*figure VI.18* et (*annexe D.3 (b-c)*)) symbolisent leurs courbes DSC d'un thermo-gramme HDPE-100 vieilli.

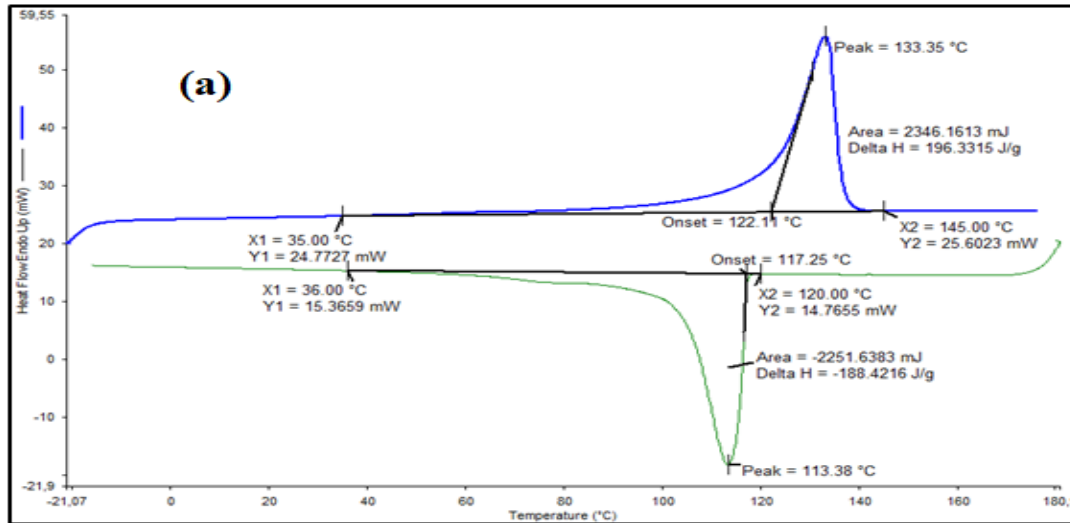


Figure VI. 18. Courbe DSC d'un thermo-gramme du HDPE. De la couche : (a) CE. Immérgé dans le TM (50/50) 210j.

VI.2.4.1. Température de Fusion T_f

Évolution de la température de fusion T_f en fonction de la position à travers l'épaisseur du tube HDPE pour les deux cas (AR et vieilli dans TM 50/50), et dévoilée sur la *Figure VI.19*.

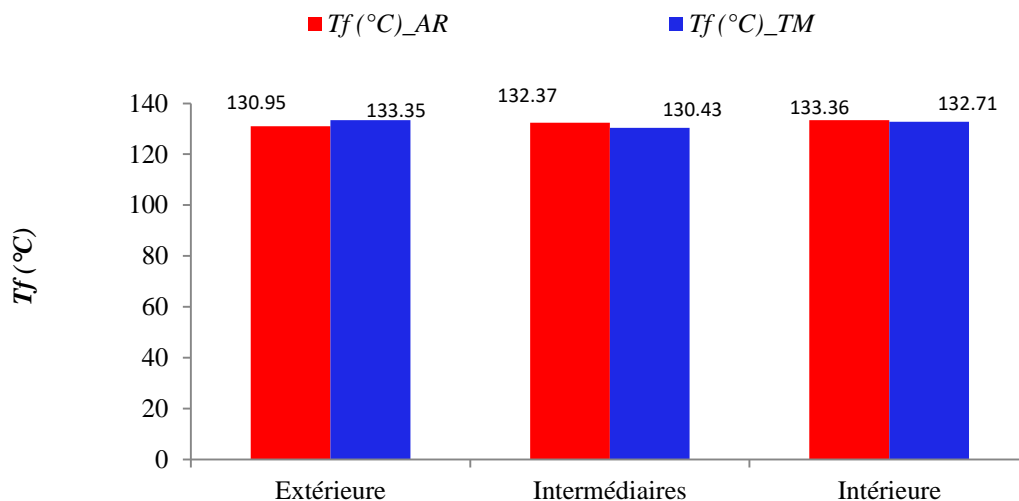


Figure VI. 19 Évolution de la température de fusion T_f à travers la paroi du tube HDPE (AR et vieilli dans TM 50/50)

VI.2.4.2. Cristallinité X_C

Évolution du Taux de Cristallinité (X_C) du PE en fonction de la position à travers l'épaisseur du tube HDPE pour les deux cas non- vieilli (AR) et vieilli dans (TM 50/50), et présentée sur la *Figure VI.20*.

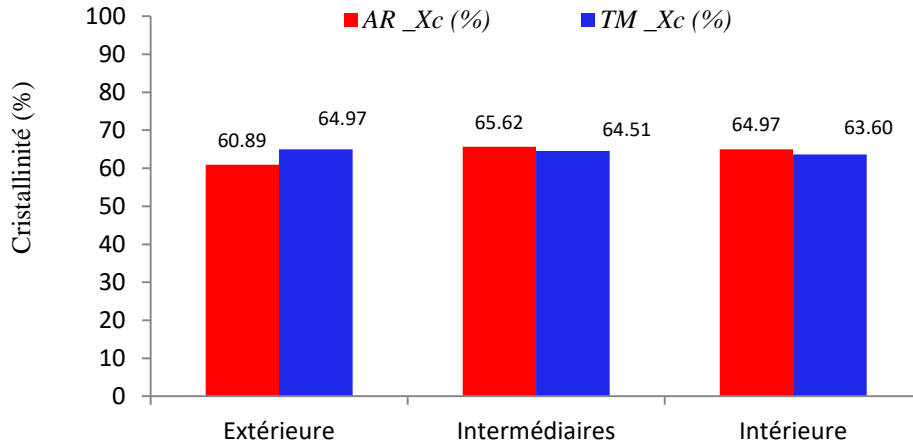


Figure VI. 20 Évolution de la cristallinité à travers la paroi du tube HDPE (AR et vieilli dans TM 50/50).

VI.2.4.3. Taille des lamelles cristallines L_c

Évolution de la grandeur des lamelles cristallines L_c du PE en fonction de la position à travers l'épaisseur du tube HDPE pour les deux cas non- vieilli (AR) et vieilli dans (TM 50/50), et présentée sur la *Figure VI.21*.

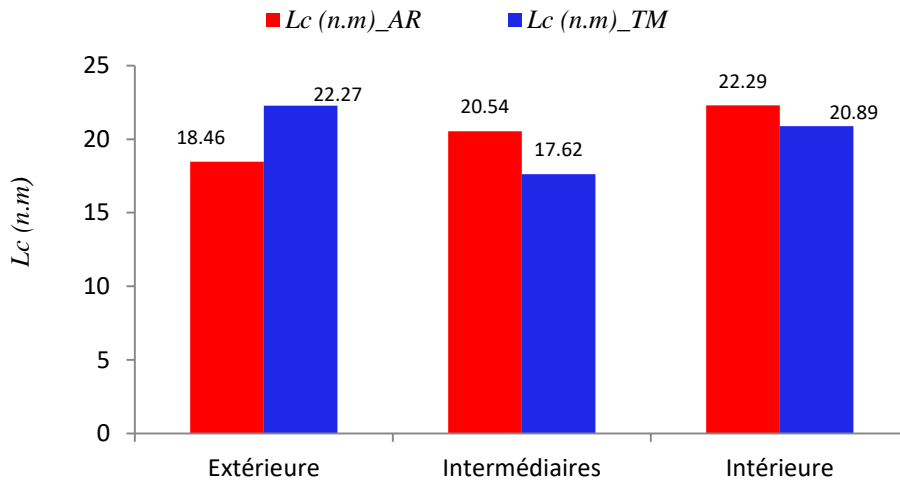


Figure VI. 21. Évolution de la taille des lamelles cristallines L_c à travers la paroi du tube HDPE (AR et vieilli dans TM 50/50).

VI.3. Discussion des résultats

VI.3.1. Comportement mécanique du HDPE-100 vieilli dans le TM 50/50

Le vieillissement fait référence à une collection de changements fonctionnels qui détruisent progressivement la capacité d'un objet ou d'un organisme à remplir sa fonction au fil du temps. De plus, le vieillissement se caractérise par une modification lente et irrévocable due à l'interaction avec l'environnement, la combinaison de contraintes mécaniques et de sa propre instabilité. Cette étude nous permet d'expliquer la distribution du vieillissement et de la déchéance des propriétés mécaniques à travers les parois des canalisations en HDPE. Le vieillissement demeure l'un des facteurs les plus ordinaires de défaillance dans les plastiques. C'est en grande partie la complexité du phénomène, avec des éléments tels que la compatibilité chimique (*tableau IV.1. chapitre IV*), la diffusion des liquides (*chapitre IV*), la création de craquelures. La détermination de la dégradation des propriétés mécaniques a été réalisée en utilisant une approche expérimentale à partir d'un filament continu, qui représente toute l'épaisseur du tube, coupé en spécimens. Ils ont été suggérés d'être immergés dans le solvant très agressif (mélange de Toluène/Méthanol) à température ambiante pour prévoir rapidement la défaillance du PE dans des conditions *ESC* et leurs interactions avec le polymère. Le phénomène *ESC* est caractérisé par l'accélération de la défaillance du spécimen au niveau de l'environnement actif.

Selon plusieurs chercheurs (*chapitre I*), cette absorption se déroule dans la phase amorphe. En raison de sa structure relativement ouverte et pourrait également se propager à l'intérieur des cristaux selon d'autres. La structure amorphe du polyéthylène est particulièrement délicate, ce qui aide la pénétration du fluide. Après la pénétration du solvant, il se dissout localement, ce qui emporte la fissuration et le faïençage du polyéthylène. En général, la rupture est précédée de la formation de fous initiés sur des sites où les contraintes sont concentrées dans des endroits où la microstructure est inhomogène [19] Voire (*chapitre IV*).

Afin de comprendre l'effet des solvants sur le comportement mécanique du HDPE-100, des tests de traction monotone, été effectué sur les spécimens vieillis, les courbes obtenus sont pareille à celle des courbes as-received, elles dévoilent une hétérogénéité des propriétés mécaniques à travers l'épaisseur du tube. Le processus de vieillissement du solvant restreint la durée de vie des polyéthylènes. La rupture liée à la force de traction, qui se développe plus rapidement dans le milieu chimique (TM (50/50)) à température ambiante.

Chapitre VI : Vieillissement du HDPE-100 dans une solution équimolaire de toluène-méthanol

À la première observation, l'allure des courbes vieillis obtenus par le logiciel *TestXpert* sont similaires à celle des courbes AR. Les caractéristiques qui symbolisent les contraintes ont évolué des couches externes vers l'intérieur, le comportement mécanique du HDPE-100 vieillis dans le solvant (TM 50/50), illustré par les courbes ($\sigma - \varepsilon$) (*figures VI. 1-4*), dévoile que l'écart entre CE, CM et CI augmente avec dispersions des courbes, à cause de la morphologie hétérogène du polyéthylène. On remarque aussi que ces écarts entre les couches sont minimisés en augmentant la durée du vieillissement (un décalage de 16.67% (cas 7j.) et de 12.5% (cas 210j.)). La zone de l'écoulement plastique, parachevant à ~600% de déformation.

Pour le cas du HDPE vieilli pendant 7j. (*figures VI. 1*) l'absence du durcissement. En revanche pour les autres cas (*figures VI. 2-4*), la plus parts des courbes de traction nominale (σ - ε) des filaments vieillis pendant (28, 90 210 j.) dans TM (50/50), on perdus la zone trois, qui représente le durcissement plastique du matériau, cela désigne que la fin de l'étirage plastique et le début du durcissement de ces couches est indiscernable.

Après vieillissement, les propriétés mécaniques du HDPE dans le solvant (TM) diffèrent des propriétés mécaniques d'éprouvettes non-vieillis (as-received). Le module d'élasticité E des échantillons AR reste le plus élevé sur l'ensemble de l'épaisseur. Il y a une différence de 573.73-11040 MPa entre les CE et les CI, ce qui confirme que les couches CI présentent une résistance plus cristalline que les CE.

La déformation de la troisième zone conventionnelle, qui commence à ~ 600%, est due au durcissement plastique du matériau par rapport à l'état initial. Ce durcissement entraîne une réduction de la rigidité des matériaux, ce qui entraîne une diminution du module d'élasticité longitudinal. Après le vieillissement du HDPE dans le TM, le module d'élasticité E diminue de : 21,05 % après 7 jours, de 20,43 % après 28 jours, de 26,31 % après 90 jours et de 27,19 % après 210 jours de vieillissement.

Selon *M. José et al.*, les alcools gonfler le polyéthylène en le dispersant à l'intérieur. La conséquence final emporte une réduction de l'énergie de surface libre et diminue la limite d'élasticité localisée en surface [4], ce qui a été remarqué pour le cas des éprouvettes immergé dans le TM (50/50), des couches les plus externes, une petite diminution de (-1.2 %). En revanche, pour toutes les autres valeurs à travers la paroi, et au fil du temps d'immersion, une augmentation de la limite élastique, expliquée par le durcissement du plastique. Mène des fois à une fragilisation inacceptable. Tandis que le durcissement diminue la capacité du polyéthylène a résisté à la déformation aux contraintes exercées de ce fait il a amoindri ε_f des

couches externes du HDPE vieilli dans le TM (50/50) durant 7j, 28j, 90j, et 210j, de 24.68%, 26.74%, 16.41%, 40.34%, respectivement. De plus, la contrainte d'étirage à froid est réduite grâce à l'effet de TM 50/50. L'application de l'étirage à froid se situe entre 150% et 600%. Lorsque le gonflement atteint le point de saturation, les propriétés mécaniques subissent des changements plus prononcés [20].

VI.3.2. caractéristiques physico-chimiques

VI.3.2.1. Par Spectroscopie Infrarouge à Transformée de Fourier (FTIR)

a) Analyse FTIR

Suite à des centaines de tests mécaniques réalisés sur des spécimens, qu'ils soient vieillis ou non. Des changements ont été aperçus dans les caractéristiques mécaniques. D'autres changements des caractéristiques pendant le vieillissement du PE sont les changements structuraux. La spectroscopie infrarouge est un outil crucial pour les caractériser de façon efficace. Des expériences FTIR (HDPE) ont été exécutées avec diverses durées de vieillissement dans le mélange TM (50/50), sur trois situations (extérieure, intermédiaire et intérieure) de l'épaisseur du tube. Les figures VI. 12-15 illustrent les spectres de transmission infrarouge du matériau HDPE non-vieilli et vieilli.

Il est possible d'identifier et de poser en parallèle les divers spectres des distinctes durées, non-vieillis et vieillis, comme on l'aperçoit dans les figures VI.16.a-c. La différenciation majeure entre les spectres des échantillons non vieillis et vieillis se manifeste par l'intensité des bandes et la disparition de certains pics. Les signaux de déformation et de flexion du CH₂ ainsi que l'impulsion des pics de courbure du C-H sont repérés respectivement à 1465 cm⁻¹ et 2916 cm⁻¹, tandis que la bande hydroxyle apparaît à 3471 cm⁻¹. On constate que la superficie de la bande OH s'accroît avec le temps de vieillissement, ce qui informe une rupture plus exprimée des chaînes du matériau HDPE.

Un nouveau spectre de transmission est identifiable entre 1581 cm⁻¹ et 1720 cm⁻¹, qui représente le groupe carbonyle (C=O). Ce dernier est associé à des groupes fonctionnels tels que les cétones, les lactones, des cétones ainsi que les aldéhydes. Cela illustre que le HDPE subit une oxydation, qui conduit à la dégradation du matériau, comme l'ont découvert Vogt et al. [21]. On considère le sommet à 1581-1720 cm⁻¹ comme le pic de transmission du groupe carbonyle (pour les cas HDPE vieilli 90j et 210j dans le mélange TM 50/50), tandis que le pic à 1465 cm⁻¹ est pris comme référence. Ces deux pics peuvent être utilisés pour illustrer commercialement l'indice de carbonyle. Comme le montre le spectre. On découvre constamment la existence de groupes carbonyle à la surface des tuyaux en polyéthylène.

Les modifications observer les plus notables dans les spectres d'absorption au rang de la bande carbonyle entre 1600 et 1780 cm^{-1} , une évolution attribuée à l'avancement du processus d'oxydation. Les groupes carbonyle spécifiques peuvent être disjoints en dissemblables contributions : cétone à 1693 cm^{-1} , acide carboxylique à 1710 cm^{-1} , (COOH) aldéhyde à 1726 cm^{-1} (C=O) et1 (C=O) ester à 1737 cm^{-1} (COOR). La bande d'absorption la plus marquée est (1728 cm^{-1}) pour le polyéthylène exposé au mélange TM 50/50 pendant les quatre durées dans les trois positions de la paroi (Extérieure, intermédiaire et intérieure. Par exemple, les aldéhydes et cétones représentent des produits typiques de l'oxydation des hydroperoxydes. Ce qui excite une fragmentation de la chaîne principale Ces hypothèses correspondent avec la littérature [22,23]. L'attribution et la description détaillée des principales bandes d'absorption sont fournies ou (*chapitre II*). L'observation de deux bandes différentes à 1720 cm^{-1} et 1712 cm^{-1} (CM et CI) adjointes à 1797 cm^{-1} pour le HDPE vieilli 210 jours (CE). Comme le montre les figures (VI.16.a- c.), on remarque continuellement l'existence de groupes carbonyle (CO) dans HDPE non-vieillis, à cause altérations laissés par la haute température pendant le processus d'extrusion.

Une autre distinction entre le HDPE (AR) et le HDPE vieilli : On a remarqué plusieurs différences ; on peut encore examiner des bandes liées aux étirements C-H dans l'endroit de 3100 cm^{-1} à 2800 cm^{-1} . On observe une réduction remarquable de l'intensité de l'absorption à 2916 cm^{-1} , figure (VI.16.b.), présentant la naissance de la défaillance de cette bande. Il a été observé qu'il n'y a plus de signes à partir des périodes de vieillissement allant de 28 jours à 90 jours, et à 210 jours. Les intervalles de 90 et 210 jours exhibent une diminution importante du spectre autour de 2306 cm^{-1} , attribuée à des liaisons doubles continues insaturées ($\text{C} \equiv \text{C}$) ou à des liaisons triples, en raison de l'influence du solvant sur le HDPE [24].

b) Indice de Carbonyle (IC) du HDPE.

L'analyse spectroscopique des échantillons a été effectuée à l'aide de l'ATR-FTIR sur une plage de 400 à 4000 cm^{-1} afin d'étudier les améliorations des groupes fonctionnels des spécimens suite à leur immersion dans le solvant pendant les quatre durées, en fonction de l'épaisseur adimensionnelle. L'indice carbonyle a été calculé par le rapport des bandes sous les pics d'après l'équation (VI.1), ce qui a permis d'estimer le changement des groupes fonctionnels pour inspirer l'indice carbonyle du PE vieilli.

L'analyse ART-FTIR et IC a permis de clarifier les transformations chimiques des éprouvettes vieillis et non vieillis, en particulier en ce qui concerne les mouvements de liaison des échantillons pour différentes durées d'immersion. Comme le montre la figure VI.16, il est

possible que variées réactions intermédiaires se soient produites pendant l'oxydation du polymère exposé au solvant ; ces réactions ont initié et formé la décadence du PE. La *figure VI.16* illustre l'augmentation de $I'IC$ des tuyaux due à la formation de groupements carbonyle (cétones, esters, acides carboxyliques et aldéhydes) suite à l'oxydation dans diverses durées de vieillissements.

VI.3.2.2. Par Analyse Enthalpique Différentielle (DSC)

Les courbes thermogravimétriques de PE sont montrées sur les (*figure VI.18* et (*annexe C.5.b-c*)). La température de l'échantillon est affichée sur l'axe des abscisses et le flux de chaleur sur l'axe des ordonnées. L'analyse calorimétrique différentielle ne permet pas d'effectuer une mesure directe de la cristallinité X_c , ou de la taille des lamelles cristallines L_c , mais en revanche les thermo-grammes indiquent les températures des pics caractéristiques comme la température de fusion (*figure VI.19*) et la température de cristallisation. Ce moyen permet d'identifier les propriétés particulières de chaque matériau, telles que la transition vitreuse, le point de fusion ou les enthalpies de réaction. Ces données permettent de calculer la cristallinité de notre matériau. Dans le cas HDPE vieilli dans le (TM 50/50) (*figure VI.20*), on observe une augmentation de la cristallinité de 6,28% dans les couches extérieures. L'augmentation de la cristallinité (X_c) dans les couches les plus amorphes (CE), est la conséquence de coupure des chaînes. *D. Hoekstra* a mesuré une augmentation ~ 15% (à la suite 30 jours de vieillissement UV) [25], et *S.A. Jabarin* a enregistré un accroissement de ~ 20,67% (en conséquence de 6 mois de vieillissement) [26].

D'autre part, on observe une baisse de la cristallinité de 1,7% dans CM et de 2,10 % dans CI, ce qui explique la modification des caractéristiques mécaniques de notre plastique. En particulier, on observe une baisse de E de 27,19%, une diminution de ϵ_f de 40,34% et une augmentation de σ_y de +14,11%. La vitesse de refroidissement a un impact significatif sur le niveau de cristallinité du HDPE. Ce rapport est associé à la dynamique de cristallisation, où le niveau de cristallinité a tendance à décroître lorsque la rapidité de refroidissement s'augmente. Quand le refroidissement se fait très brusquement, l'intégral de la structure cristalline est restreinte. Sous ces conditions de refroidissement ultra-rapide, il est même envisageable qu'un polymère généralement semi-cristallin accède à un état totalement amorphe [27].

Pour réaliser le suivi de l'évolution de l'épaisseur des lamelles cristallines (L_c) (*figure VI.21*), au cours du processus de thermo-oxydation du HDPE-100, on a utilisé des mesures de la température de fusion (T_f) obtenues par DSC. Une augmentation de la température de fusion T_f , qu'ils ont cédée à une grandiloquence lamelles cristallines (L_c). Pour éclairer ce

phénomène de grosseur des lamelles dans les couches superficielles, des recherches inspirent que la fragmentation de chaînes, qui se produit dans son lieu principal au sein de la phase amorphe, servirait ou libération de segments courts de chaînes. Ces segments, qui disposent d'une plus grande mobilité que les macromolécules de départ, posséderaient la capacité de se déplacer vers la surface de la phase cristalline et aider à un processus de cristallisation auxiliaire également connu sous la dénomination de « chimicristallisation » [28,29,30]. L'accroissement du durcissement repéré lors des tests de traction pourrait être attribué à cette «chimicristallisation». Au cours de (28j, 90j et notamment 210j), une réduction de la cristallinité dans les couches intermédiaires et internes est observée, ce qui justifie la dégradation des caractéristiques mécaniques sur le long terme de vieillissement.

VI.4. Conclusions:

Ce protocole expérimental a été élaboré dans le but d'analyser conjointement certains éléments. Il examine une courbe caractéristique de comportement mécanique après le vieillissement des spécimens de filaments, les caractéristiques mécaniques sont retranchées. La discussion des caractéristiques mécaniques est fondée sur le temps de vieillissement et la position définis dans la paroi du tube (épaisseur adimensionnelle : t/t_0). Il y a quatre durées de vieillissement : 7 jours, 28 jours, 90 jours et 210 jours. Ce vieillissement dans le mélange TM 50/50 à causer une plastification du HDPE, qui a imposé : une diminution du module d'élasticité des couches CI, élévation de la limite élastique, retrait du palier d'écoulement à froid. Et fragilisation du matériau.

L'analyse physico-chimique, s'appuie particulièrement sur l'examen spectroscopique de la variation chimique des polymères l'analyse du rapport entre les résultats de cet examen et la détérioration des propriétés des polymères vieillissants. Dans cette procédure, les spécimens sont exposés à un vieillissement accéléré dans le *TM 50/50*, puis soumis à l'assiste de la *spectrophotométrie infrarouge par transformée de Fourier (FTIR)*. Et l'essai thermogravimétrique (*DSC*). Ces méthodes se distinguent par leurs grandes efficacités et la multitude de renseignements auxquelles elles fournissent accès. L'aptitude du polymère à se cristalliser à partir de l'état fondu (cristallisable) est une caractéristique intéressante pour examiner les variations morphologiques et chiffrer la cristallinité à travers la paroi, en ce qui concerne le polyéthylène (*AR*) et vieillissant. La température de fusion est variable. Les valeurs de la cristallinité varient, augmentant de l'extérieur vers l'intérieur.

L'examen des recherches spectroscopiques accomplies par *ATR-FTIR* nous a attribué l'éventualité d'évaluer le niveau du vieillissement du PE immergé dans le mélange TM 50/50. Les essais des spectres de molécules vieilles pendant des périodes contrôlées de vieillissement nous conclure à affirmer que l'exposition au solvant était la cause la plus capital influençant et provoquant les processus de dégradation du HDPE. L'approximation des indices de dégradation sur différentes périodes de vieillissement (7 jours, 28 jours, 90 jours et 210 jours) a divulgué une détérioration accrue des chaînes atomiques. On analysant les spectres, du polymère après émergence dans le milieu agressif, apparaissions de nouveaux pics et disparition d'autres. Prouvant que plusieurs variables interférassent concurremment dans le processus de dégradation du polyéthylène. L'évaluation du niveau de vieillissement a été exécutée en calculant l'indice de carbonyle (*IC*), qui est connu pour son association avec l'évolution des propriétés mécaniques.

Références bibliographiques

- [1] Lloyd M. Robeson, 2012, *Environmental stress cracking: A review. Polym. Eng. & Sci., Published online in Wiley Online Library, Society of Plastics Engineers; pp. 1-15.*
<https://doi.org/10.1002/pen.23284>
- [2] B.H. Choi, A. Chudnovsky, R. Paradkar, W. Michie, Z. Zhou, P.M. Cham, 2009, *Experimental and theoretical investigation of stress corrosion crack (SCC) growth of polyethylene pipes*, *Polymer Degradation & Stability*, 94, p. 859-867.
- [3] PF. Schoeffl, RW. Lang, 2015. *Effet des milieux liquides liés aux champs pétrolifères sur le comportement de croissance lente des fissures dans les matériaux de qualité des tuyaux en polyéthylène*. *Int J Fatigue* 72: 90-101.
- [4] M. José et al, 1999, *Rôle d'un environnement actif d'utilisation dans un test de résistance aux fissures sous contrainte environnementale (ESCR) dans du polyéthylène étiré : Une spectroscopie vibrationnelle et une étude MEB*. *Polymère*, 40(7), 1629-1636.
- [5] Ghabeche W., K. Chaoui, 2021, *Environmental Stress Cracking of High-Density PE Pipe Materials: A Review* *SYNTHESE*, 27(2), 1-22.
(in French : *Revue des interactions physico-chimiques du polyéthylène extrudé sous forme de tubes avec des environnements agressifs*),
- [6] X. Colin, G. Minard, 2011, *Chemical degradation of polyethylene pipes due to water-based disinfectants*, *Society of Plastics Engineers (SPE)*.
<http://4spepro.org/pdf/003631/003631.pdf>
- [7] L. Alimi, K. Chaoui, 2024, *Compatibility study of high-density polyethylene grade 80 gas pipe with synthetic polyglycol-based brake oil*, *Journal of Elastomers & Plastics; Vol. 56(4) 405–433*. [journals.sagepub.com/home/jep. https://doi.org/10.1177/00952443241238451](https://doi.org/10.1177/00952443241238451)

- [8] A. Frank, G. Pinter, R.W. Lang, 2009, *Prediction of the remaining lifetime of polyethylene pipes after up to 30 years in use*. Polym. Test., 28, 737–745.
- [9] Y. Wang, D. Lin, M. Xiang, M. Cui, N. Liu, 2021, *Experimental study on aging performance of polyethylene gas pipelines*. 3rd Int. Conf. on Air Pollution & Env. Eng., IOP Conf. Series: Earth and Environmental Science, 631: 012066. [Doi:10.1088/1755-1315/631/1/012066](https://doi.org/10.1088/1755-1315/631/1/012066)
- [10] W. Ghabeche, L. Alimi, K. Chaoui, 2019, *Degradation of plastic pipe surfaces in contact with an aggressive acidic environment*, Energy Procedia, 74, p. 351-364. <https://doi.org/10.1016/j.egypro.2015.07.625>
- [11] C. Gagnard, Y. Germain, 2004. *Permeability of Semicrystalline Polymers to Toluene/Methanol Mixture*. Journal of Applied Polymer Science, Vol. 92, 676 – 682. <https://doi.org/10.1002/app.20184>
- [12] AJ. Whelton, AM. Dietrich, DL. Gallagher, 2010, *Contaminant diffusion, solubility, and material property differences between HDPE and PEX potable water pipes*. J Environ Eng 136(2):227–237. [https://doi.org/10.1061/\(ASCE\)EE.1943-7870.0000147](https://doi.org/10.1061/(ASCE)EE.1943-7870.0000147)
- [13] C. L. CHOY, W. P. LEUNG, T. L. MA, 1984, *Sorption and Diffusion of Toluene in Highly Oriented Polypropylene*, Journal of Polymer Science: Polymer Physics Edition, 22,707-719.
- [14] B. Guichard, B Ledieu , P. Cassagnau, E. Espuche, 2023, *Impact of toluene sorption on oligomers and antioxydants migration from HDPE pipes*. Polymer Testing 124, 108052. www.elsevier.com/locate/polytest
- [15] J. Lacoste, S. Therias, 2015, *Vieillissement des matériaux polymères et des composites*, l'Actualité Chimique n° 395. <https://www.researchgate.net/publication/281434513>
- [16] J. Almond, P. Sugumaar, M. N. Wenzel, G. Hill, 2020, *Determination of the carbonyl index of polyethylene and polypropylene using specified area with ATR-FTIR*, E-Polymers, vol. 20, no. 1, <https://doi.org/10.1515/epoly-2020-0041>
- [17] C. Campanale, I. Savino, C. Massarelli, V. Uricchio, 2023, *Fourier Transform Infrared Spectroscopy to Assess the Degree of Alteration of Artificially Aged and Environmentally Weathered Microplastics*, Polymers (Basel), 15 (4). <https://doi.org/10.3390/polym15040911>
- [18] Asep Nandiyanto, 2019, *How to Read and Interpret FTIR Spectroscopy of Organic Material*. [DOI:10.17509/ijost.v4i1.15806](https://doi.org/10.17509/ijost.v4i1.15806)
- [19] Imtiaz Afzal Khan, Kang Hoon, 2022, *Degradation analysis of polymeric pipe materials used for water supply systems under various disinfectant conditions*, Chemosphere. 291(1). <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2021.132669>

- [20] Ivan Kuryndin, Sergei Kostromin, 2021, *Organic solvents effect on the physical and mechanical properties of polyethylene*. Polyolefins Journal, 9, (1).
<https://doi.org/10.22063/POJ.2021.3005.1199>
- [21] H. Vogt, H. Enderle, F. U. Schulte, J. Hessel, 2009, *Thermal ageing of PE 100 pipes for accelerated lifetime prediction under service conditions*. Beijing: International Pipeline Exchange
- [22] BJ, JN. Holland, 2002, *Hay The thermal degradation of PET and analogous polyesters measured by thermal analysis-Fourier transform spectroscopy*. Polymer; 43(6):1835–47.
- [23] M. Erdmann, U. Niebergall, V. Wachtendorf, M. Böhning, 2020, *Evaluation of UV-induced embrittlement of PE-HD by Charpy impact test*, J. Appl. Polym. Sci., 137(6):1–14.
<https://doi.org/10.1002/app.49069>
- [24] D. Lui, F. Tange, N. Wung, 2021, *Ageing of polyethylene thermoplastic exposed to sulfuric acid corrosive environments*. ICAMMT'21, J. of Physics.
<https://doi.org/10.1088/1742-6596/1885/3/032061>
- [25] H.D. Hoekstra, J.L. Spoormaker, J. Breen, L. Audouin, J. Verdu, 1995, *UV-exposure of stabilized and non-stabilized HDPE films: physico-chemical characterization*, Polymer degradation and stability, 49 (2), p. 251-262.
- [26] S.A. Jabarin, E.A. Lofgren, 2003, *Photooxidative effects on properties and structure of high-density polyethylene*, Journal of Applied Polymer Science, 53, p. 411-423.
- [27] Neena Jaggi, 2006, *Fourier transform infrared spectroscopy*. Handbook of Applied Solid State Spectroscopy, (pp.411-450)
- [28] S. Humbert, O. Lame et G. Vigier, 2009, *Polyethylene yielding behaviour: What is behind the correlation between yield stress and crystallinity?* Polymer, 50:3755(3761).
- [29] Clémence Devillier, 2011, *Dégradation chimique du PE et influence sur le comportement, l'endommagement et la rupture en f luage: application à la durabilité des canalisations sous pression*, Thèse Doctorat Paris Tech, École doctorale n° 432 : Sciences des Métiers de l'Ingénieur , France.
<https://pastel.hal.science/pastel-00711486>
- [30] J. Tireau, 2011, *Propriétés à long terme des gaines de polyéthylène haute densité utilisées pour les ponts à haubans, thèse*, Ecole Nationale Supérieure des Arts et Métiers, Paris, 284 p.
<https://pastel.archives-ouvertes.fr/pastel-00562683/document>

CONCLUSION GENERALE

Conclusion générale

Conclusions générales

La finalité de cette recherche s'intéresse au phénomène de vieillissement de tubes en polyéthylène de haute densité dans des solvants. Les matériaux plastiques ont été convenablement préparés et utilisés afin de succéder aux matériaux métalliques, grâce à leurs propriétés supérieures et leurs coûts très compétitifs. Cependant, le recours aux opérations d'usinage est essentiel pour exécuter les assemblages des produits ou fabriquer des éprouvettes pour tester une propriété mécanique. Du fait de la grande ductilité et du point de fusion relativement faible des plastiques, le choix d'outils de coupe et des conditions de coupe sont décisives sur les impacts créés et leurs effets sur l'intégrité d'une pièce ou d'un spécimen.

Ce travail comporte 4 grandes parties complémentaires. Il s'agit de (1) l'optimisation des conditions de l'usinage des éprouvettes d'essais sous forme de filaments ; (2) d'étudier l'effet d'absorption de solvants ; (3) d'établir les comportements mécaniques à partir de filaments usinés et enfin (4) d'investiguer l'effet du solvant TM-50-50 (Mélange 50/50 de Toluène-Méthanol sur les propriétés des résines du HDPE sous forme filaments chimiquement vieillis.

Deux études de l'optimisation du régime de coupe des plastiques (1) sous chariotage et aussi (2) sous gorgeage ont permis d'obtenir les conditions idéales pour ne pas soumettre le plastique (HDPE-100) à des températures ou des contraintes pouvant influencer sa morphologie de façon exagérée. Les résultats sont obtenus sur la base d'une approche *Tagushi* conventionnelle pour les deux opérations d'usinage (chariotage et gorgeage : respectivement *L18*, *L9*), ainsi que des analyses *ANOVA* et de désirabilité pour l'optimisation des de sortie. L'avantage de cette étude est le nombre étendu de paramètres d'entrée et de sortie pour englober respectivement ; des paramètres de coupe classiques (V_c , f et ap) et les impacts des angles de coupe (γ) et de direction (κr) qui sont pris en considération comme paramètres complémentaires. En revanche, concernant les paramètres de sortie, une autre donnée enrichissante est introduite, comme dans certaines études de littérature, qui est la hauteur des courbures des filaments (L). Elle est rapportée pour apprécier et contrôler la régularité du filament usiné ainsi que les autres critères corrélatifs comme la mesure de la température lors de coupe et de la qualité de surfaces usinées. Les principales conclusions de l'opération de chariotage suivantes sont tirées:

Nous avons remarqué que des paramètres tels que l'avance (f) et la vitesse de coupe (V_c) ont une influence distinctive sur la température de coupe (T) ainsi que sur les critères de rugosité de surface (R_a , R_t). En prenant en compte le changement global de R_a et R_t , les effets

Conclusion générale

de f contribuent respectivement avec 51,92% et 63,67% des apports. Seuls 29,45 % pour Ra et 15,89 % pour Rt ont dévoilé les effets limités de Vc . Evidemment, la vitesse de coupe influence la température de coupe, suivie par celle de l'avance, avec des contributions respectives de 56,70% et 30,47%. En ce qui concerne le paramètre désigné par la hauteur des courbures du filament (L), il faut savoir que les effets primordiaux des facteurs de processus (cadence d'extrusion et vitesse de refroidissement) sont tous spécifiques à des degrés variables pour chaque produit et à chaque localisation sur le tube PE. L'apparence la plus remarquable est l'angle de direction (κr), qui représente 18,99 % des contributions à la modification totale, suivi par la profondeur de coupe (ap) avec 6,56 %. En outre, il est identifiable que l'élévation des courbures du filament (L) diminue énormément avec l'accroissement de l'angle de direction (κr). Il est conclu que lorsque l'angle de direction (κr) augmente, la quantité de chaleur à évacuer est augmenté provoquant un filament spiralé.

Les attributs de performance sont prévus pour les modèles *RSM*. Les valeurs R^2 (98,10 % à 99,63 %) pour les modèles quadratiques et exponentiels sont très satisfaisants. Les valeurs R^2 (98,10 % à 99,63 %) pour les modèles quadratiques et exponentiels sont assez élevées pour procurer des déterminations avec un niveau de confiance élevé. Le test *d'Anderson-Darling* ainsi que les diagrammes de probabilité comparés aux réponses espérées pour T , Ra , Rt et $\ln(L)$ estiment une attribution normale.

Les résultats optimaux sont approchés en imposant des bornes strictes sur les paramètres de sortie (L et Ra) car ces produits de coupe vont servir comme éprouvettes pour la mesure d'autres paramètres mécaniques pour l'étude de l'hétérogénéité à travers la paroi du tube. Il est déduit que l'adoption d'une vitesse de coupe de 160 m/min et d'une valeur L de 0,293 mm est acceptable et surtout réalisable dans ces conditions de travail. En outre, la solution déterminée privilégie un angle de direction droit (κr) avec un angle de coupe arrière (γ) négatifs, ce qui participe à diminuer les effets du frottement et de l'abrasion qui est un objectif recherché dans cette approche. Enfin, l'emploi de l'optimisation multi-objectif selon la technique de la désirabilité et les modèles quadratiques *RSM* est exposée comme une méthode appropriée pour maîtriser les caractéristiques de performance lors de l'enlèvement de matière ductile comme ce cas de conduites en HDPE résistant. Les paramètres optimisés pour le chariotage d'un tel polymère sont de 160 m/min, 0,5 mm par tour, 4 mm, (-6°) et 90°, pour Vc , f , ap , γ et κr respectivement. Ces résultats du chariotage sont satisfaisants pour la fabrication d'un filament aussi uniforme que possible avec L tendant vers zéro et ont guidé le travail sur le second travail consacré au gorgeage (cas particulier : $\kappa r=90^\circ$).

Conclusion générale

Pour identifier les seuils critiques des paramètres de coupe, nous avons utilisé une analyse de variance (*ANOVA*), qui a fourni les valeurs idéales de 137,0 m/min pour V_c , 0,4 mm/tr pour f et 4,0 mm pour ap . L'optimisation des paramètres influençant les performances a été réalisée grâce à la méthode de surface de réponse (*RSM*). Pour une désirabilité ($D=0,991$), les valeurs de rugosité de R_t (1,100 μm), R_a (0,223 μm) et de température T (36,448°C < 40°C) sont conformes et similaires à ceux rapportés dans la littérature lors des procédures de gorgeage des matériaux plastiques.

L'autre objectif de cette thèse vise à effectuer une double analyse : la première partie s'intéresse à déterminer l'absorption massique de plusieurs solvants par le HDPE et suivie d'une seconde partie sur l'étude du vieillissement chimique de la résine de polyéthylène copolymérisée. Les solvants sont mis en contact avec des éprouvettes de dimensions (10x10x24 mm³) issues de la paroi du tube. Elles ont subi un vieillissement chimique pendant diverses périodes de 7 jours jusqu'à 112 jours. Le protocole utilise des parallélépipèdes en polyéthylène, vieillis dans les solvants tels que l'Éthanol, le Méthanol, le Toluène, le mélange de Toluène-Méthanol, le Benzène et le Dichlorométhane. Il a été observé que la dégradation du HDPE dans les solvants mène à un gonflement (swelling) distinctif avec solubilisation de la résine de certains adjuvants, c'est-à-dire que la matière solide passe dans la solution et des particules restent accolées à la surface. Le modèle suit une loi de Fick justifiée par l'allure des courbes de l'absorption des solvants. De manière générale, le HDPE dans milieux analysés présente un comportement de type Fickien. Ce résultat est expliqué par les gains de poids attribués à des dégradations chimiques et/ou dégradations physiques du HDPE ayant affectées les surfaces exposées. D'après la cristallinité, les couches à l'extérieur sont amorphes et celles de la face interne sont plutôt cristallines. Les résultats exhibent les coefficients de diffusion qui se dressent dans la même gamme que ceux exhibés dans la littérature ($\sim 10^{-8}$ cm²/sec). Les valeurs des coefficients de diffusion sont de $1,94 \times 10^{-8}$ cm²/sec et $3,57 \times 10^{-8}$ cm²/sec respectivement pour le méthanol et le toluène, alors que le mélange TM (50-50) son coefficient de diffusion est de $3,19 \times 10^{-8}$ cm²/sec. Il est largement influencé par celui du toluène.

Pour comprendre la distribution des propriétés mécaniques ou de morphologies ainsi que les dégradations à travers les parois des canalisations en HDPE, des filaments représentant toutes les couches de la paroi (environ 80 éprouvettes) sont testés par traction monotone et d'autres soumis au vieillissement. Les courbes contraintes-déformations présentent des variances entre couches externes et internes sous plusieurs aspects. Les

Conclusion générale

déformations ont augmenté de manière distinctive (de ~1100% à ~1500%) et la résistance élastique a également augmenté (de ~25 MPa à ~28 MPa). En revanche, la zone intermédiaire (partie d'étirage à froid) s'est plutôt rétrécie en faveur d'un durcissement plastique.

L'analyse de ces résultats à travers la paroi du tuyau (autrement dit, de la couche externe à la plus interne), révèle que les tendances indiquent une augmentation de E , σ_y et ε_f tandis que ε_y montre un déclin manifeste. Ces observations sont aussi confirmées par les caractéristiques structurales tel le taux de cristallinité et la morphologie (épaisseur des lamelles et température de fusion). L'écart de E entre les couches les plus extérieures et les plus intérieures est de (+40,1%), ce qui reste important comme variation. Il est observé que la contribution de la moitié interne de la paroi, à presque mi-chemin, prédomine largement pour E (+34,2%). La limite d'élasticité σ_y a été augmenté de (+10,3 %), les propriétés liées à déformations sont dans des évolutions opposées. La variation de propriété la plus élevée entre les enveloppes les plus externes et les plus internes est celle relative à la déformation limite ε_y (-39,5%)

Le vieillissement est caractérisé par un changement lent et permanent due à l'interaction avec l'environnement agressif. Les courbes ($\sigma - \varepsilon$) des tests de traction monotone ont été réalisées sur les spécimens vieillis. Elles dévoilent que la différence entre CE (couches externes), CM (couches moyennes), et CI (couches internes) s'élargi avec la dispersion des courbes, en raison de la morphologie relativement hétérogène du polyéthylène (semi-cristallin). Également, il est observé que ces écarts entre les couches se réduisent à mesure que la période de vieillissement s'allonge (un décalage de 16.67% (cas 7j.) et de 12.5% (cas 210j.)). La zone de l'écoulement plastique, atteint environ ~600% de déformation, et c'est là où débute la déformation de la troisième zone conventionnelle, qui est le résultat du durcissement plastique du matériau par rapport à son état initial. Ce durcissement provoque une diminution de la rigidité des matériaux plastiques (polymère thermoplastiques), entraînant une baisse du module d'élasticité. Suite au vieillissement du HDPE dans le TM (50-50), la diminution du module d'élasticité E est de : 21,05 % après une semaine, 20,43 % après quatre semaines, 26,31 % après trois mois et 27,19 % après sept mois de vieillissement. Ceci a donné lieu à une plastification du HDPE qui causé dans les couches CI, une diminution du module E , une élévation de la limite élastique et un retrait sur le palier d'écoulement à froid impliquant une fragilisation du matériau.

Perspectives

Perspectives possibles suite à cette recherche:

- 1) Initier une étude de **fiabilité mécanique** sur la base de ces résultats en intégrant les processus de durée de vie, de mode de rupture, et d'endommagement associé. Le système obtenu sera résolu par le logiciel *PHIMECA* (analyses déterministe et probabiliste).
- 2) Réaliser des analyses sur les **mécanismes de dommage et de rupture** pour déterminer l'étendue des altérations de surface moyennant la microscopie (OM, SEM...). Eventuellement, ces résultats peuvent aussi être exploités dans la perspective 1).
- 3) Étudier de manière détaillée **la fonction (ou la propriété) « durabilité »** des tubes HDPE vieillis et en interaction avec des solvants organiques comme mentionné dans ce travail (*chapitre. 4*: E; M; T; T/M; B et DCM).
- 4) Poursuivre la procédure établie pour le cas T/M, pour une caractérisation similaire des cas : **Toluène, Benzène et Dichlorométhane**. Faire les comparaisons qui s'imposent en termes de durée de vie, propriétés mécaniques, structure et Vieillissement.

ANNEXES

Annexe

Annexes

Annexes A: (Chapitre II)

A.1. Filament As-Received (AR)

<i>N° de couche</i>	<i>Diamètre de l'extérieure vers l'intérieure</i>	<i>Langur de la couche</i>	<i>Nombre d'éprouvettes</i>
1	198	621.72	5.181
2	197.2	619.208	5.16006667
3	196.4	616.696	5.13913333
4	195.6	614.184	5.1182
5	194.8	611.672	5.09726667
6	194	609.16	5.07633333
7	193.2	606.648	5.0554
8	192.4	604.136	5.03446667
9	191.6	601.624	5.01353333
10	190.8	599.112	4.9926
11	190	596.6	4.97166667
12	189.2	594.088	4.95073333
13	188.4	591.576	4.9298
14	187.6	589.064	4.90886667
15	186.8	586.552	4.88793333
16	186	584.04	4.867
17	185.2	581.528	4.84606667
18	184.4	579.016	4.82513333
19	183.6	576.504	4.8042
20	182.8	573.992	4.78326667
21	182	571.48	4.76233333
22	181.2	568.968	4.7414
23	180.4	566.456	4.72046667
24	179.6	563.944	4.69953333
25	178.8	561.432	4.6786
Longueur filament usiné (mm)		12528.6	

Annexes

A.2. Découpe du filament immergé 7 jours et 90 jours dans le TM (50/50)

N	Diamètre de l'extérieure vers l'intérieure	Langur de la couche	Nombre d'éprouvettes	résidus (mm)	Durée D'immersion	Obs
1	198	621,72	5	21,72		perdus
2	197,2	619,208	5	19,208		perdus
3	196,4	616,696	5	16,696	7J	
4	195,6	614,184	5	14,184	7J	
5	194,8	611,672	5	11,672	90J	
6	194	609,16	5	9,16	7J	
7	193,2	606,648	5	6,648	90J	
8	192,4	604,136	5	4,136	7J	
9	191,6	601,624	5	121,624	90J	
10	190,8	599,112	5	119,112	7J	
11	190	596,6	5	116,6	90J	
12	189,2	594,088	5	114,088	7J	
13	188,4	591,576	5	111,576	60J	
14	187,6	589,064	4	109,064	7J	
15	186,8	586,552	4	106,552	60J	
16	186	584,04	4	104,04	7J	
17	185,2	581,528	4	101,528	90J	
18	184,4	579,016	4	99,016	7J	
19	183,6	576,504	4	96,504	90J	
20	182,8	573,992	4	93,992	7J	
21	182	571,48	4	91,48	90J	
22	181,2	568,968	4	88,968	7J	
23	180,4	566,456	4	86,456		perdus
24	179,6	563,944	4	83,944		perdus
25	178,8	561,432	4	81,432		perdus
langueur_totale filament		16458,624				
langueur_filament usiné		11957,12				

Annexes

A.3. Découpe du filament immergé 28 jours dans le TM (50/50)

<i>N</i>	<i>Diamètre de l'extérieure vers l'intérieure</i>	<i>Langur de la couche</i>	<i>Nombre d'éprouvettes</i>	<i>Résidus (mm)</i>	<i>Durée D'immersion</i>	<i>Obs.</i>
1	198	621,72	5	21,72		perdus
2	197,2	619,208	5	19,208		perdus
3	196,4	616,696	5	16,696	28J	
4	195,6	614,184	5	14,184	-	
5	194,8	611,672	5	11,672	28J	
6	194	609,16	5	9,16	-	
7	193,2	606,648	5	6,648	28J	
8	192,4	604,136	5	4,136	-	
9	191,6	601,624	5	121,624	28J	
10	190,8	599,112	5	119,112	-	
11	190	596,6	5	116,6	28J	
12	189,2	594,088	5	114,088	-	
13	188,4	591,576	5	111,576	28J	
14	187,6	589,064	4	109,064	-	
15	186,8	586,552	4	106,552	28J	
16	186	584,04	4	104,04	-	
17	185,2	581,528	4	101,528	28J	
18	184,4	579,016	4	99,016	-	
19	183,6	576,504	4	96,504	28J	
20	182,8	573,992	4	93,992	-	
21	182	571,48	4	91,48	28J	
22	181,2	568,968	4	88,968	-	
23	180,4	566,456	4	86,456	28J	
24	179,6	563,944	4	83,944		perdus
25	178,8	561,432	4	81,432		perdus
longueur _totale filament		16458.624				
longueur_ filament usiné		12610.03				

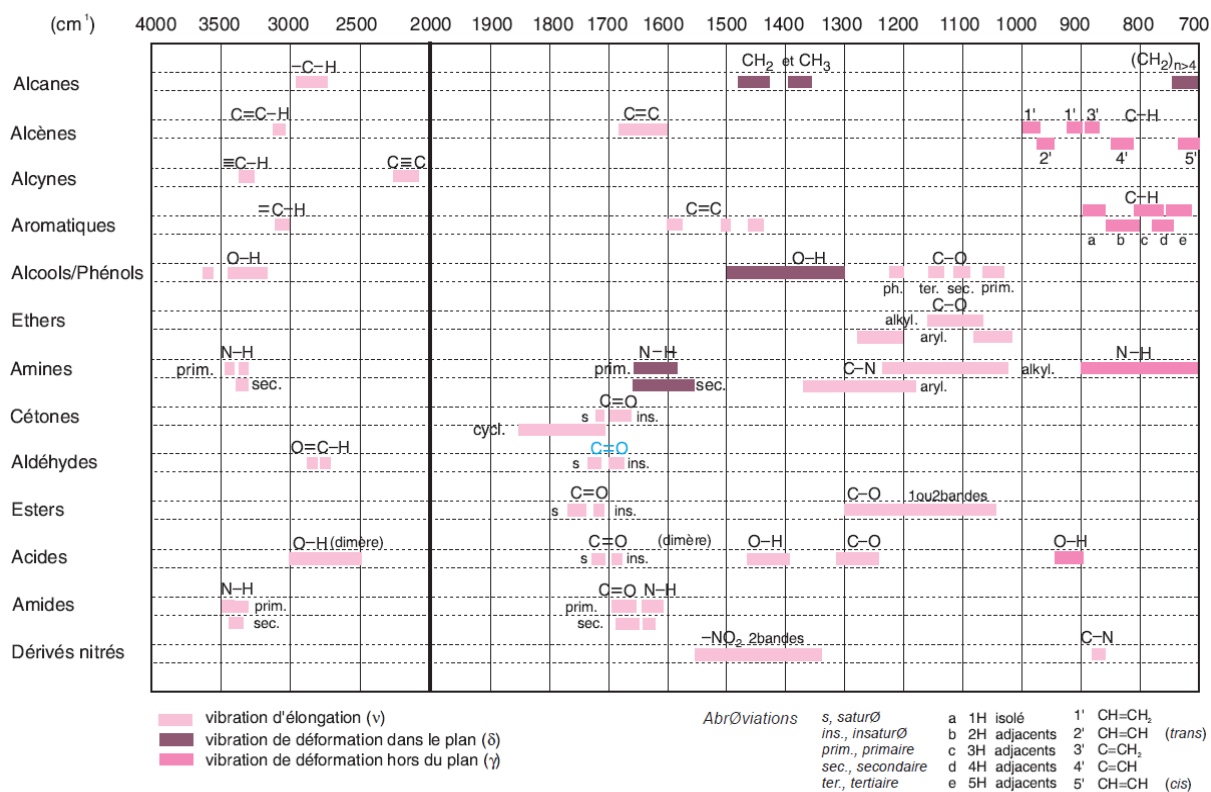
Annexes

A.4. Découpe du filament immergé 210 jours dans le TM (50/50)

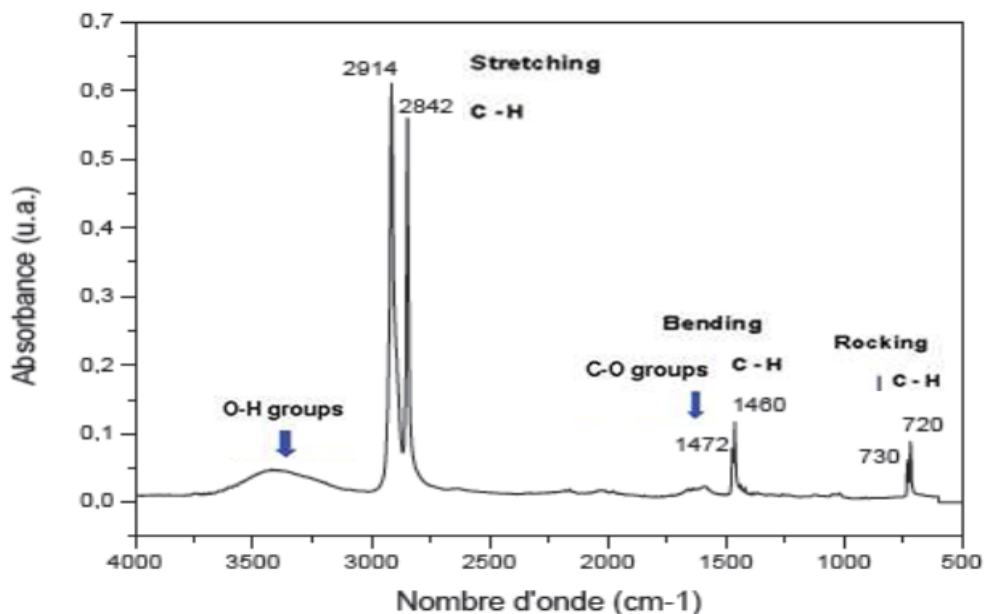
<i>N</i>	<i>Diamètre de l'extérieure vers l'intérieure</i>	<i>Langur de la couche</i>	<i>Nombre d'éprouvettes</i>	<i>Résidus (mm)</i>	<i>Durée</i>	<i>Obs.</i>
1	198	621,72	5	21,72		perdus
2	197,2	619,208	5	19,208		perdus
3	196,4	616,696	5	16,696	-	
4	195,6	614,184	5	14,184	-	
5	194,8	611,672	5	11,672	7M	
6	194	609,16	5	9,16	7M	
7	193,2	606,648	5	6,648	-	
8	192,4	604,136	5	4,136	7M	
9	191,6	601,624	5	121,624	-	
10	190,8	599,112	5	119,112	7M	
11	190	596,6	5	116,6	-	
12	189,2	594,088	5	114,088	7M	
13	188,4	591,576	5	111,576	-	
14	187,6	589,064	4	109,064	7M	
15	186,8	586,552	4	106,552	-	
16	186	584,04	4	104,04	7M	
17	185,2	581,528	4	101,528	-	
18	184,4	579,016	4	99,016	7M	
19	183,6	576,504	4	96,504	-	
20	182,8	573,992	4	93,992	7M	
21	182	571,48	4	91,48	-	
22	181,2	568,968	4	88,968	7M	
23	180,4	566,456	4	86,456		perdus
24	179,6	563,944	4	83,944		perdus
25	178,8	561,432	4	81,432		perdus
longueur _totale filament		16458.624				
longueur_ filament usiné		12286.4				

Annexes

A.5. Bandes d'absorption et liaisons



A.6. Spectre vierge du polyéthylène



Annexes

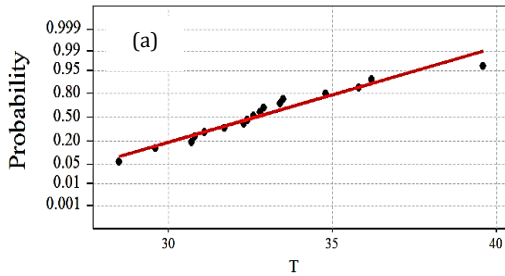
A.7. Collection des distinctes méthodes IC (PE)

Description de la méthodologie	Méthode instrumentale	Nombre d'ondes spécifiés (cm ⁻¹) (CI = X/Y)	Plage de valeurs CI
Rapport hauteur d'absorption	Transmission FTIR	1,714/720	0–1.2
Rapport de hauteur d'absorption maximale	Transmission FTIR	1,713/730	0–2.5
Rapport hauteur d'absorption	Transmission FTIR	1,720/720	0–1.6
Rapport hauteur d'absorption	Transmission FTIR	1,710/1,380	0-2
Rapport hauteur d'absorption	Transmission FTIR	1,714/1,463	0–0.8
Surface d'absorbance moyenne du pic de carbonyle sur référence ATR-FTIR	Absorbance ATR-FTIR	1,700/1,780/1,463	0–0.8
Rapport hauteur d'absorption	N'est pas publier	1,714/1,462	0–0.4
Rapport hauteur d'absorption	Absorbance ATR-FTIR	1,714/1,472	0–1.2
Rapport hauteur d'absorption	Absorbance ATR-FTIR	1,740/2,020	0–1.1
Rapport hauteur d'absorption	Transmission FTIR	1,850/1,630	0–15
Rapport hauteur d'absorption	Absorbance ATR-FTIR	2,700/2,750	0–0.8
Soustraction de la ligne de base	Absorbance ATR-FTIR	1,751/1,895	0–1.2
Rapport de hauteur maximale d'absorbance à l'intérieur plages données	N'est pas publier	1,708/1,720	2.5–20
Rapport hauteur d'absorption	Transmission FTIR	1,725/2,722	0.25–0.6

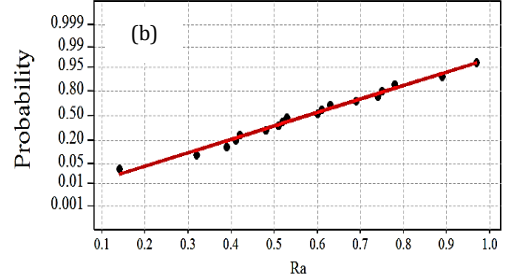
Annexes

Annexes B: (Chapitre III)

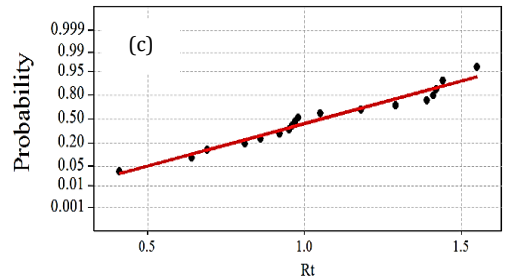
B.1. Courbes de probabilité normale pour : (a) T° , (b) Ra , (c) Rt et (d) $\ln(L)$



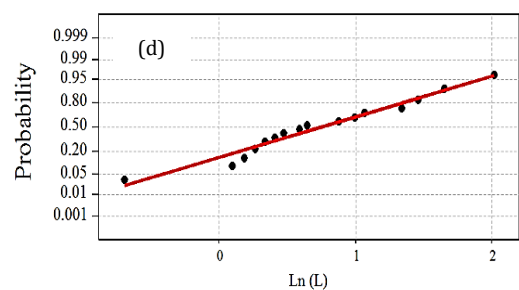
Mean : 32.6222
 StDev : 2.77882
 N : 18
 Anderson-Darling Normality Test
 A-D : 0.315
 P-Value : 0.513



Mean : 0.576667
 StDev : 0.207393
 N : 18
 Anderson-Darling Normality Test
 A-D : 0.125
 P-Value : 0.982

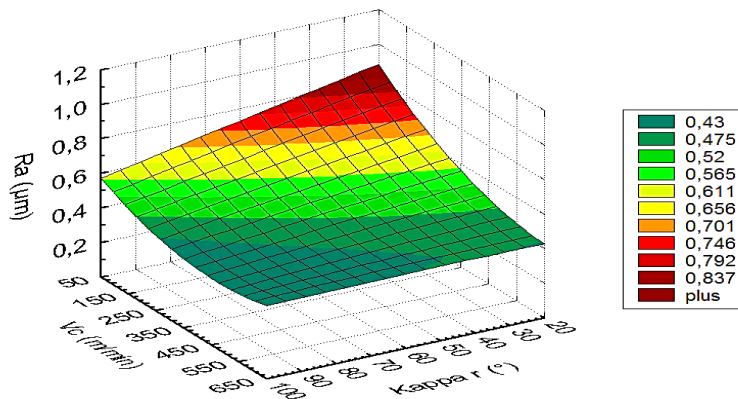


Mean : 1.05111
 StDev : 0.316783
 N : 18
 Anderson-Darling Normality Test
 A-D : 0.357
 P-Value : 0.415



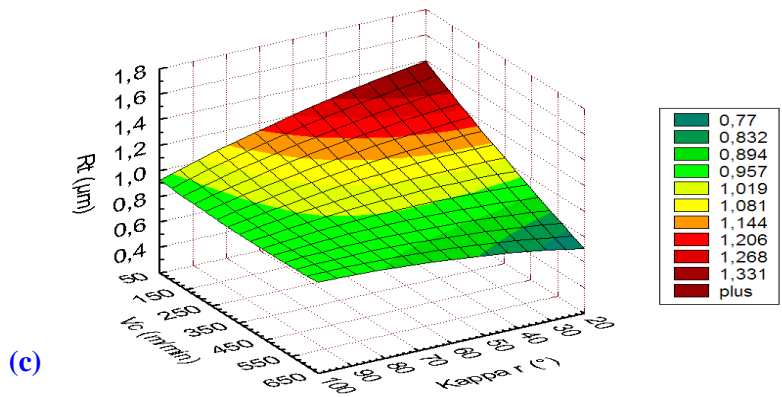
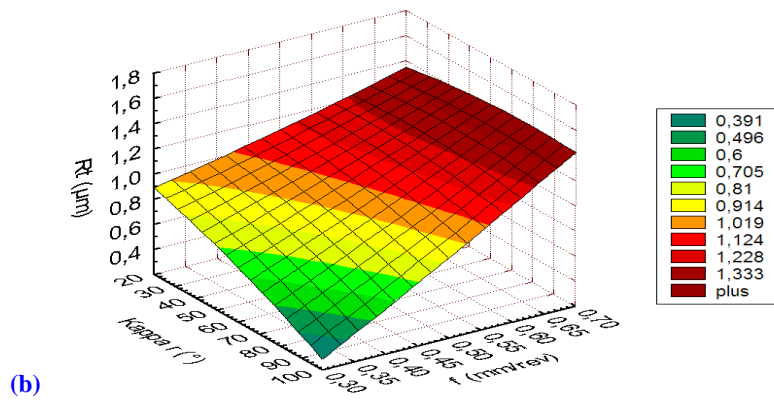
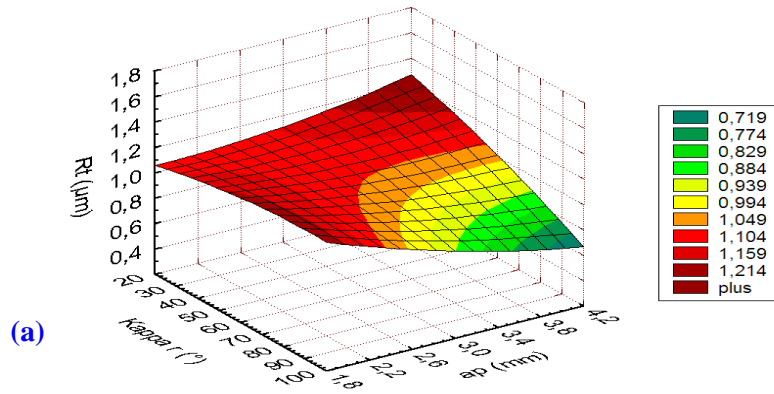
Mean : 0.744445
 StDev : 0.670501
 N : 18
 Anderson-Darling Normality Test
 A-D : 0.287
 P-Value : 0.579

B.2. Surface de réponse estimée pour Ra en fonction de Vc et κr .



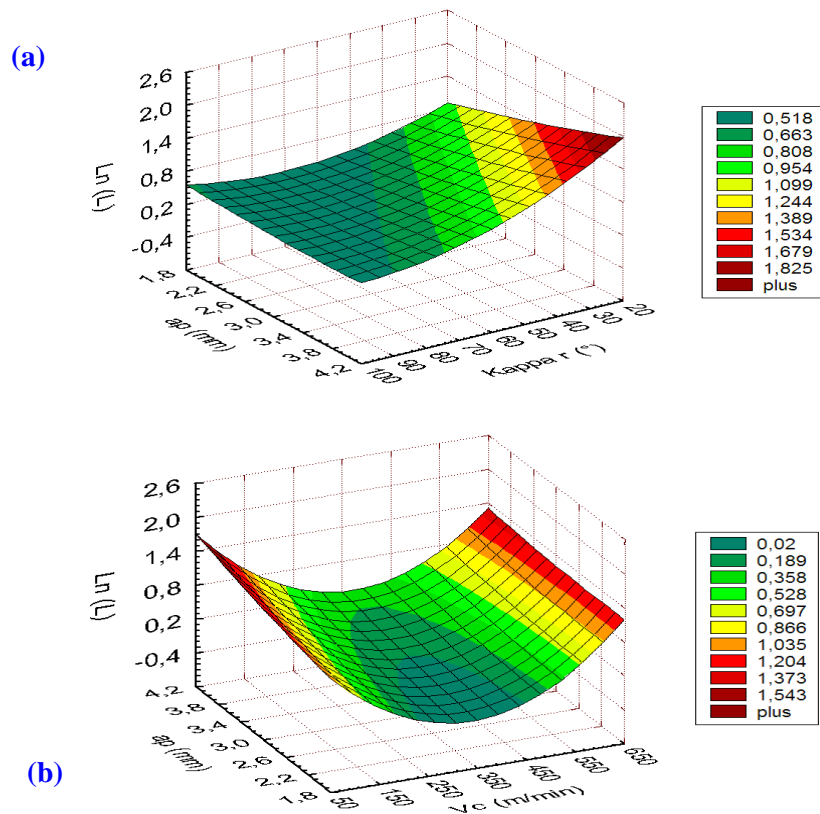
Annexes

B.3. Surface de réponse estimée pour R_t en fonction de (a) κr , a_p ; (b) κr , f ; (c) V_c , κr .



Annexes

B.3. Surface de réponse estimée pour $\ln(L)$ en fonction de (a) a_p , κr et (b) a_p , V_c



Annexes

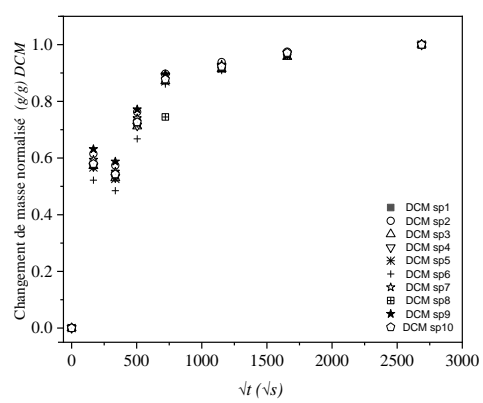
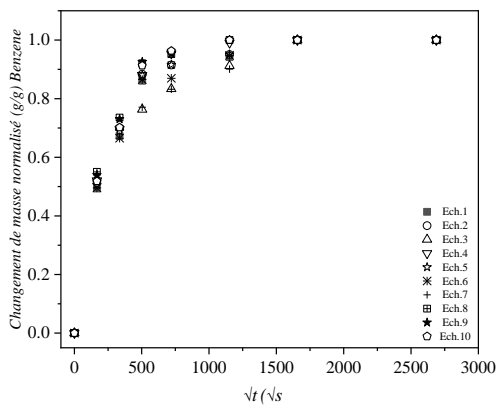
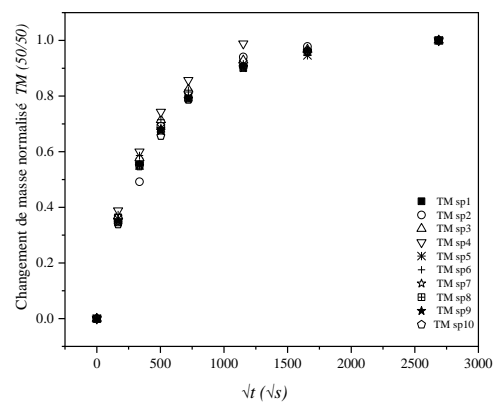
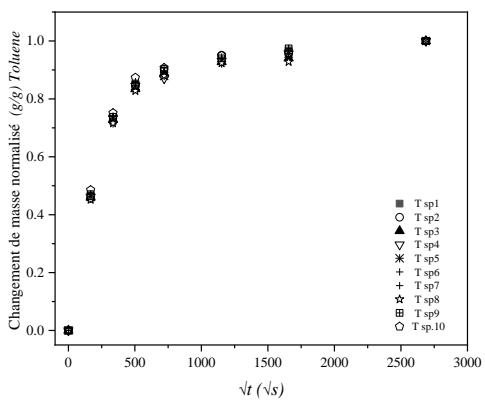
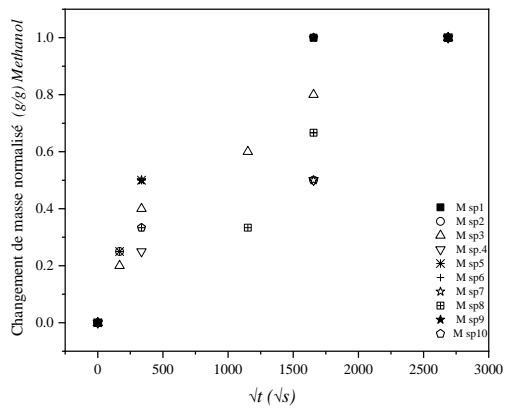
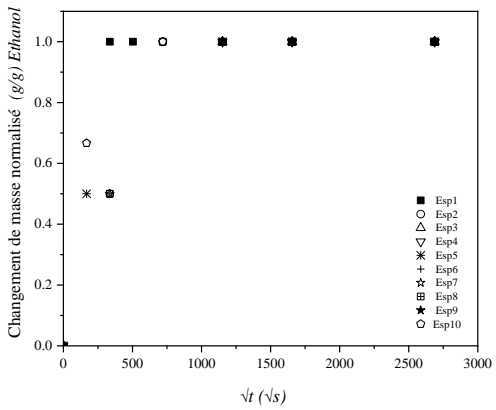
Annexe C : (Chapitre IV)

C.1. Volumes et masses des éprouvettes de sorption

<i>Eps</i>	<i>S</i>	<i>B</i>	<i>T</i>	<i>M</i>	<i>TM</i>	<i>E</i>	<i>DCM</i>
<i>Ep1</i>	m_0 (g)	3.027	3.212	3.164	3.117	$\frac{3.17}{4}$	3.066
	V_0 (cm ³)	3.168	3.168	3.300	3.168	$\frac{3.16}{8}$	3.168
<i>Ep2</i>	m_0 (g)	3.122	3.135	3.112	3.12	3.17	3.128
	V_0 (cm ³)	3.168	3.300	3.300	3.168	$\frac{3.30}{0}$	3.025
<i>Ep3</i>	m_0 (g)	3.068	2.958	3.126	3.11	$\frac{2.99}{6}$	3.174
	V_0 (cm ³)	3.025	3.025	3.300	3.168	$\frac{3.16}{8}$	3.300
<i>Ep4</i>	m_0 (g)	3.036	3.034	3.097	3.182	$\frac{3.02}{9}$	3.671
	V_0 (cm ²)	3.168	3.168	3.300	3.168	$\frac{3.30}{0}$	3.300
<i>Ep5</i>	m_0 (g)	3.142	2.956	3.24	3.105	$\frac{2.97}{3}$	3.063
	V_0 (cm ³)	3.168	3.300	3.300	3.168	$\frac{3.16}{8}$	3.168
<i>Ep6</i>	m_0 (g)	3.134	3.064	3.118	3.056	$\frac{3.20}{5}$	3.675
	V_0 (cm ²)	3.168	3.168	3.168	3.168	$\frac{3.16}{8}$	3.300
<i>Ep7</i>	m_0 (g)	3.275	3.16	3.169	3.162	$\frac{3.13}{3}$	2.971
	V_0 (cm ³)	3.168	3.300	3.300	3.168	$\frac{3.30}{0}$	3.168
<i>Ep8</i>	m_0 (g)	2.687	3.164	3.031	3.061	$\frac{3.10}{9}$	3.067
	V_0 (cm ³)	3.025	3.300	3.168	3.168	$\frac{3.16}{8}$	3.168
<i>Ep9</i>	m_0 (g)	3.17	2.972	3.139	3.171	3.16	2.912
	V_0 (cm ³)	3.168	3.168	3.300	3.168	$\frac{3.30}{0}$	3.168
<i>Ep10</i>	m_0 (g)	3.144	3.112	3.164	3.175	$\frac{3.16}{5}$	3.036
	V_0 (cm ³)	3.168	3.300	3.300	3.168	$\frac{3.16}{8}$	3.168
	m_{my} (g)	3.076	3.075	3.135	3.125	$\frac{3.11}{0}$	3.176
	V_{my} (cm ³)	$\frac{3.139}{4}$	$\frac{3.219}{7}$	$\frac{3.273}{6}$	3.168	$\frac{3.22}{1}$	3.193

Annexes

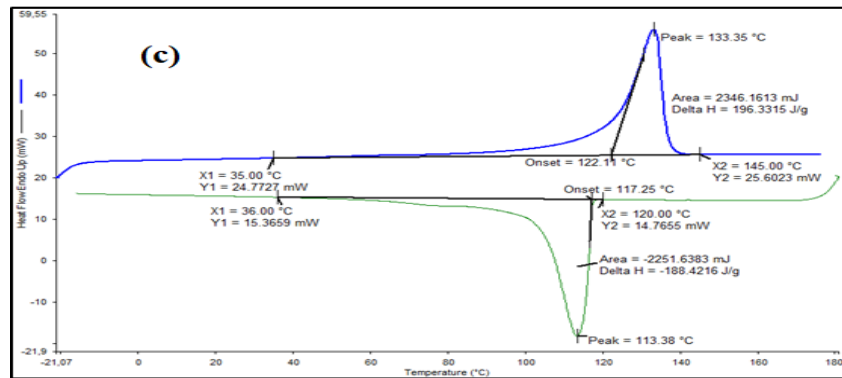
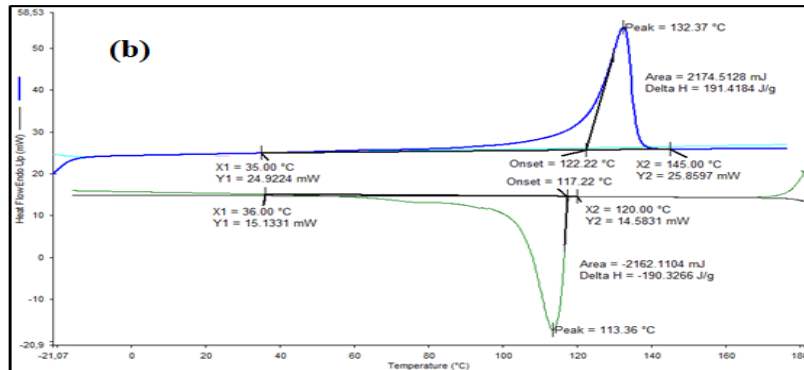
C.2. Gain de masse en fonction de la racine du temps d'immersion pour l'éthanol *E*, *M*, *TM* 50/50, *T*, *B*, *DCM*.



Annexes

Annexe D : (Chapitre V)

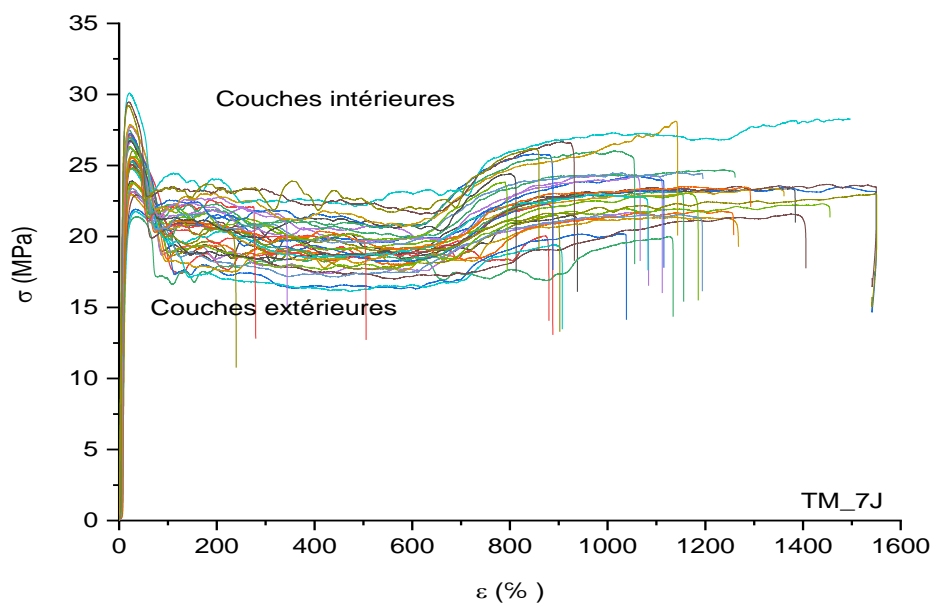
D.1. Courbes DSC d'un thermo-gramme du HDPE (AR). Des couches b) Intermédiaire c) intérieure.



Annexe E : (Chapitre VI)

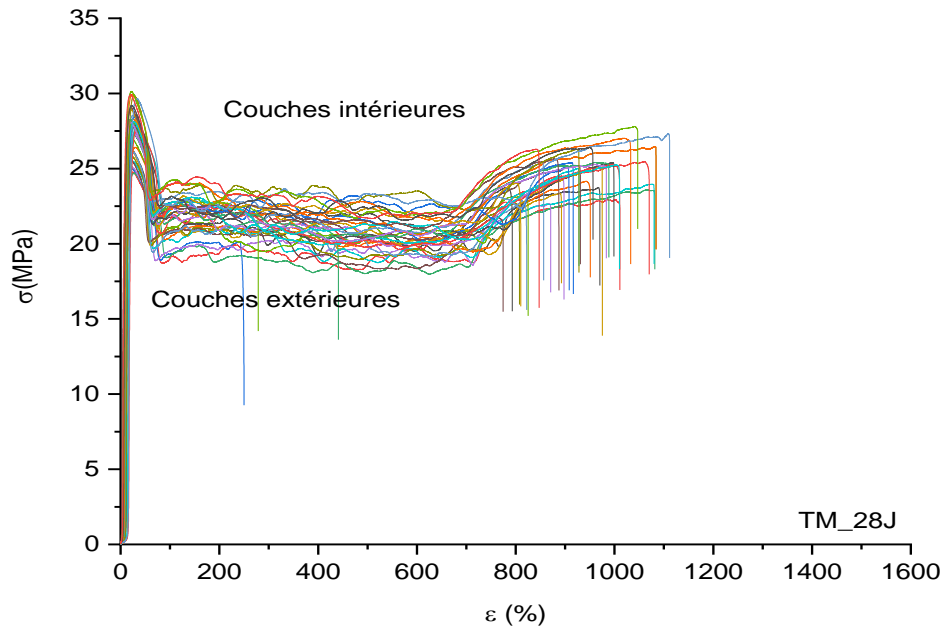
E.1. Les courbes contraintes déformation TM (50/50) (toutes les courbes)

a) 7 Jours

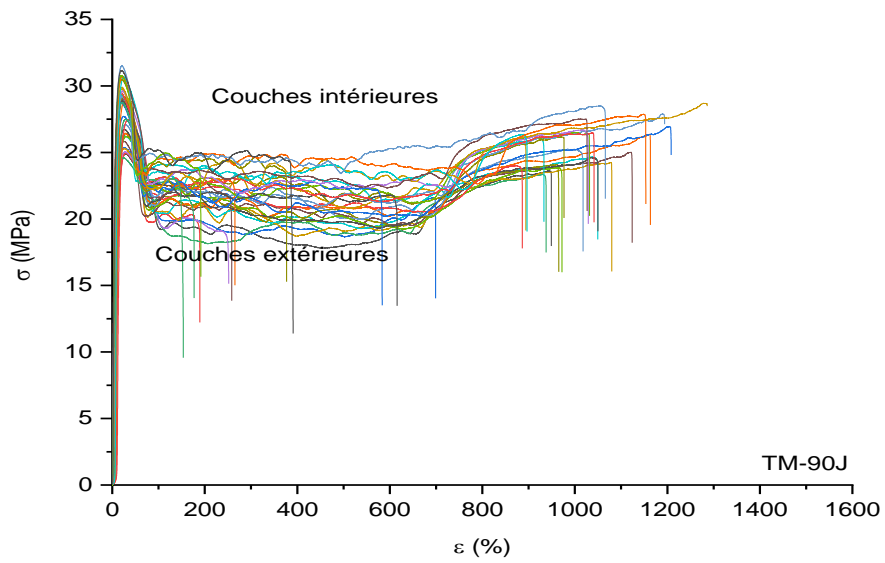


Annexes

b) 28 Jours

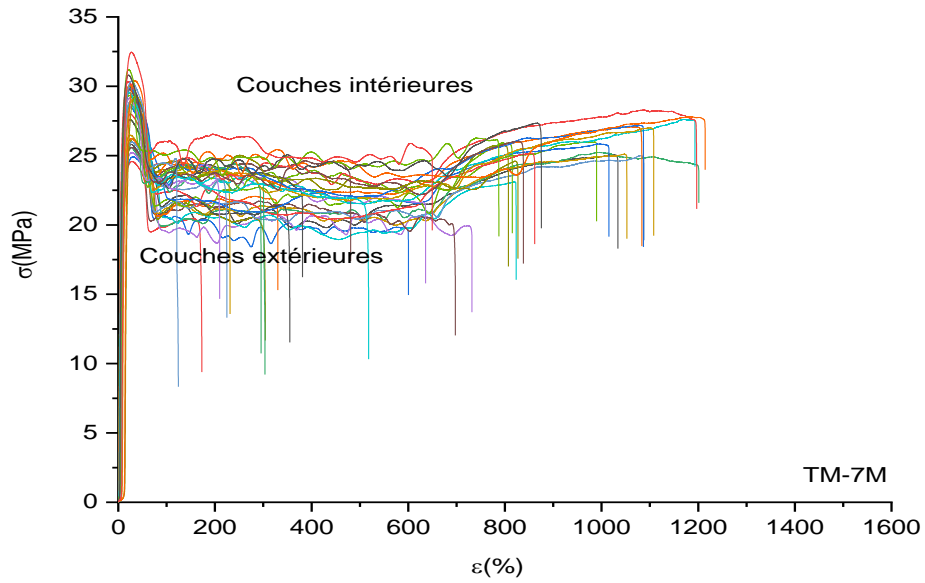


c) 90 Jours



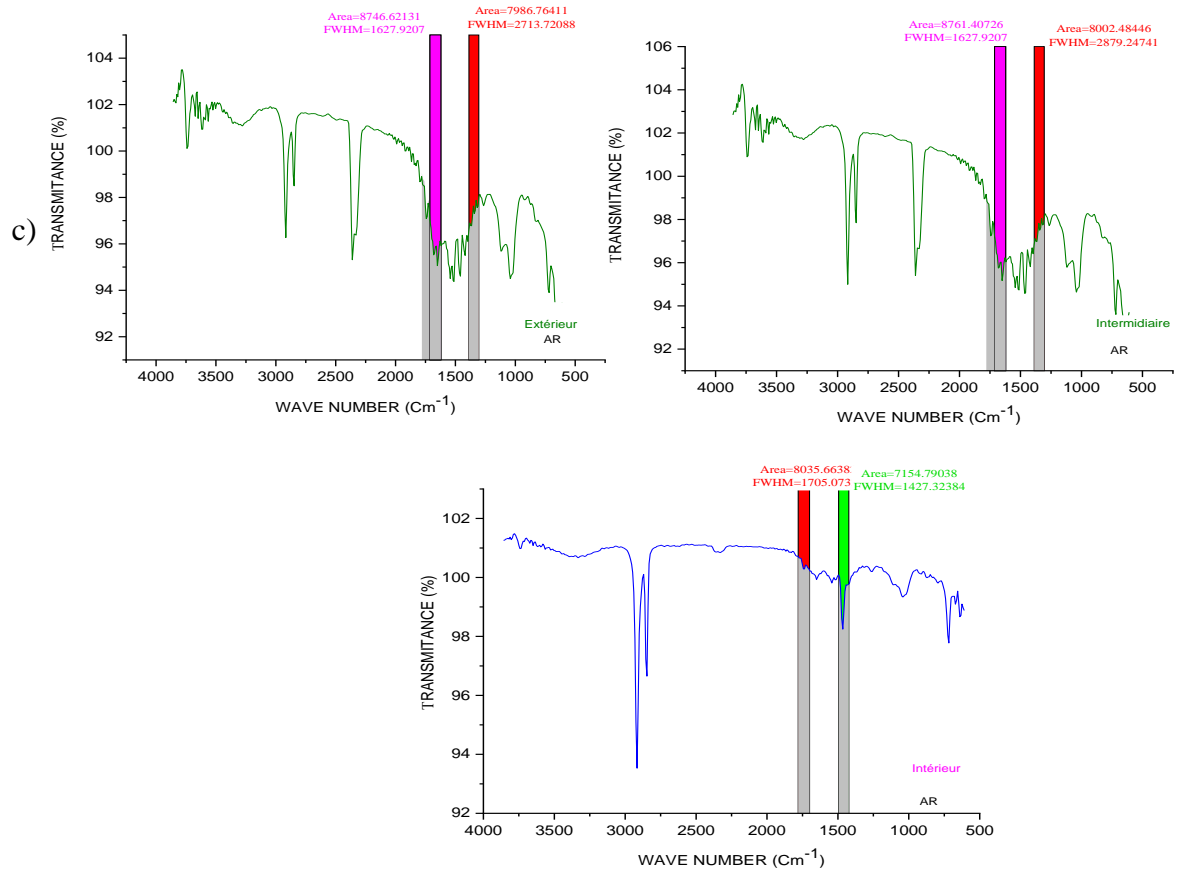
Annexes

d) 210 jours



E.2. Surfaces au-dessus de $(1780-1700 \text{ Cm}^{-1})$ (IC)

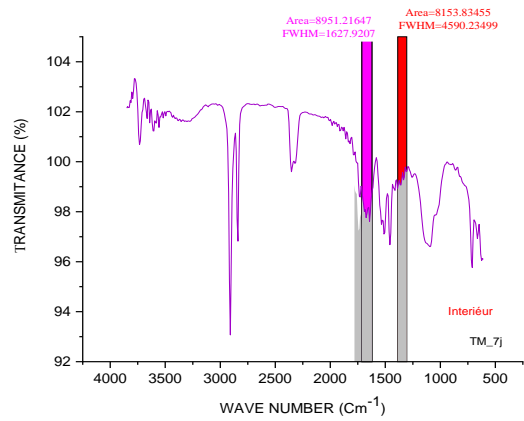
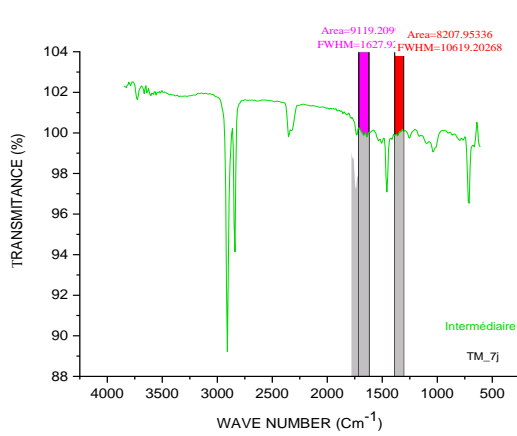
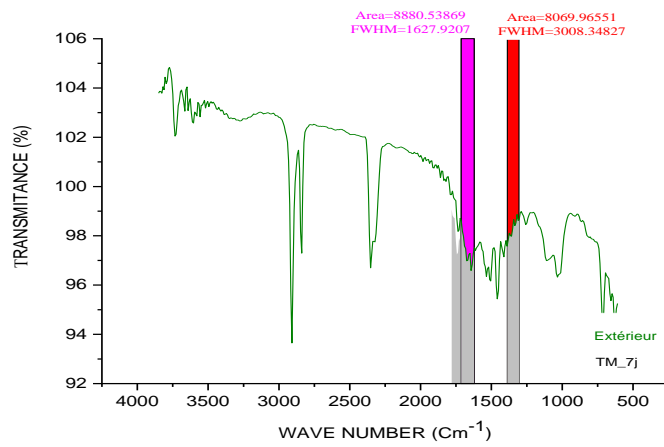
1. HDPE As-Recieved



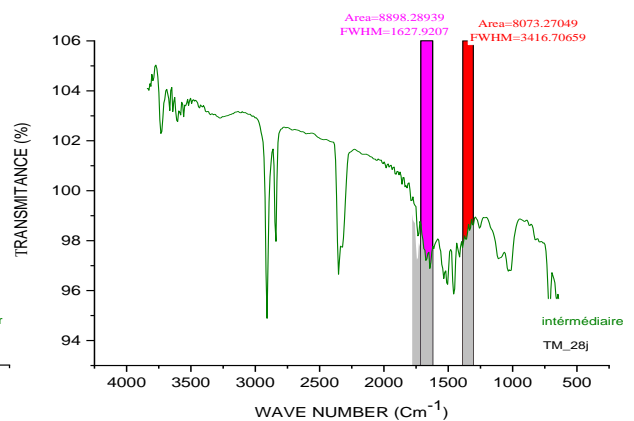
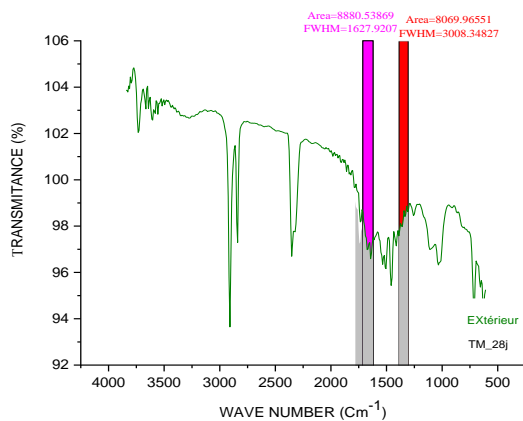
Annexes

2. HDPE vieilli (TM 50/50)

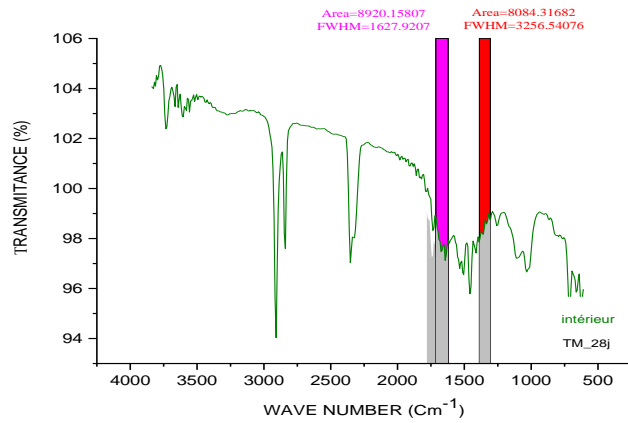
2.1. vieilli 7 jours



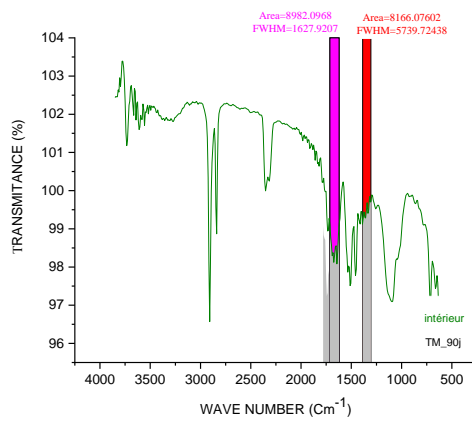
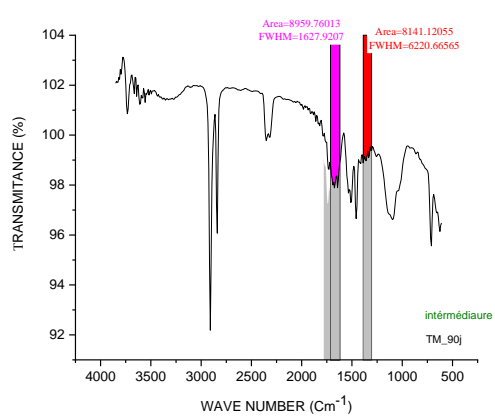
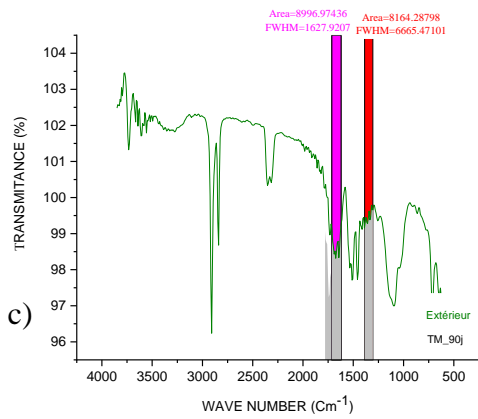
2.2. vieilli 28 jours



Annexes

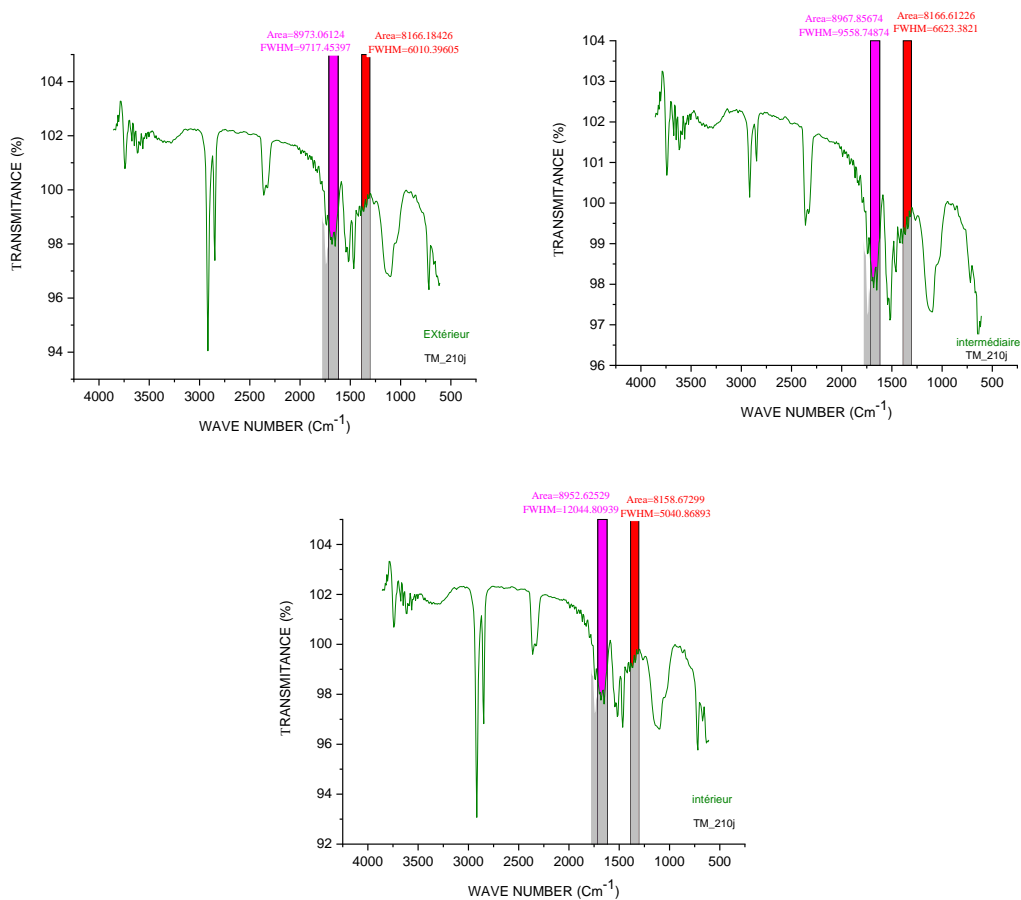


2.3. vieill 90 jours

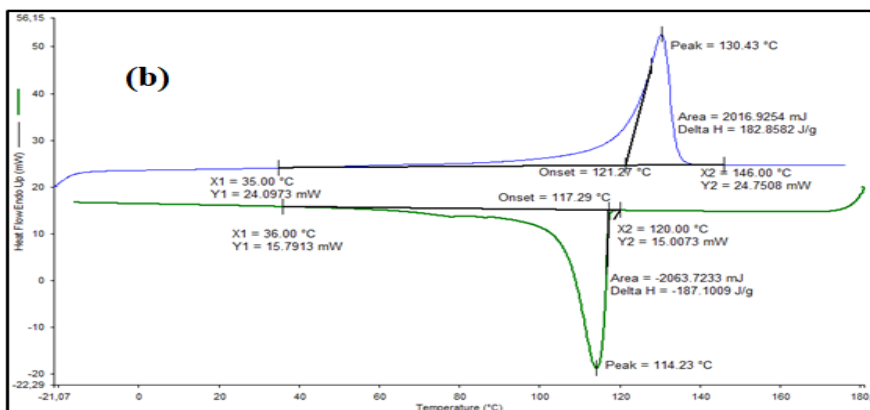


Annexes

2.4. vieillissement 210 jours



E.3. Courbe DSC d'un thermo-gramme du HDPE. Des couches : *b) intermédiaires c) intérieure. Immérgé dans le TM (50/50) 210j.*



Annexes

