Modélisation du vieillissement des PIV – Synthèse bibliographique

4.1 Modélisation du vieillissement des PIV et prévision de la durée de vie

4.1.1 Vieillissement et durée de vie

4.1.1.1 Définition de la durée de vie

La conductivité thermique du matériau de cœur à pression atmosphérique est environ cinq fois plus élevée que lorsqu'il est sec et sous vide, juste après fabrication. La conservation du vide initial et d'une faible humidité est donc primordiale pour assurer aux PIV une durée de vie compatible avec leur application comme isolation thermique dans les bâtiments [10, 13–15, 122, 123].

Sur la question du vieillissement des PIV, deux notions différentes doivent être considérées [10, 99, 124]. La première est le *vieillissement normal*, il consiste en une dégradation lente, continue et irréversible de la performance. La seconde, qui peut être appelée *dégradation fatale*, consiste en une diminution rapide et anormale de la performance du panneau, qui survient de manière prématurée en raison d'une dégradation inattendue du PIV. La *durée de vie* est un autre concept, c'est la durée entre la fabrication d'un panneau et le moment où un critère de fin de vie est atteint [10, 99, 124]. Deux définitions différentes de ce critère de fin de vie sont utilisés dans la littérature, la première étant la plus répandue [55] :

Définition 1 La conductivité thermique apparente du panneau devient supérieure à une valeur critique $\lambda_{crit,1}$ après une certaine durée d'utilisation Δt :

$$\lambda_{app}(t_0 + \Delta t) = \lambda_{crit,1} \tag{4.1}$$

Définition 2 La valeur moyenne de la conductivité thermique apparente du panneau sur toute sa durée d'utilisation devient supérieure à une valeur critique $\lambda_{crit,2}$ après une certaine durée d'utilisation Δt :

$$\frac{1}{\Delta t} \int_{t_0}^{t_0 + \Delta t} \lambda_{app}(t) dt = \lambda_{crit,2}$$
(4.2)

La valeur critique λ_{crit} est un choix arbitraire, qui peut être fixé à 8 ou 11 mW/(m·K) avec la définition 1 par exemple [13]. La conductivité thermique apparente dans les équations ci-dessus peut être calculée en considérant uniquement la conductivité thermique du matériau de cœur, ou bien la conductivité thermique totale incluant le pont thermique de l'enveloppe [55]. Cela ne fait que décaler les valeurs, puisque la valeur de la conductivité de pont thermique ne varie quasiment pas, même lorsque la conductivité thermique du matériau de cœur augmente.

Les deux critères ci-dessus sont équivalents lorsque deux conditions sont réunies : d'une part l'évolution de conductivité thermique est une fonction linéaire du temps, d'autre part les valeurs critiques sont telles que $\lambda_{crit,1} - \lambda_{app}(t_0) = 2(\lambda_{crit,2} - \lambda_{app}(t_0))$. Par exemple, si la conductivité (incluant le pont thermique) après la fabrication est de 5 mW/(m·K), et que l'augmentation de la conductivité thermique dans le temps est linéaire, une valeur critique de 11 mW/(m·K) avec la définition 1 est équivalente à une valeur critique de 8 mW/(m·K) avec la définition 2. En revanche, pour une évolution non linéaire, les deux critères ne sont pas équivalents. La courbe $\lambda_{app} = f(t)$ peut être concave ou convexe, et la valeur moyenne sur une durée déterminée, correspondant à l'intégrale sous la courbe, peut être notoirement différente de la valeur calculée en supposant une évolution linéaire. En particulier, comme l'illustre la figure 4.1, la comparaison de la performance de plusieurs panneaux sur une période donnée peut donner un classement différent selon que l'on considère la valeur maximale ou la valeur moyenne de la conductivité thermique.



FIGURE 4.1 – Différentes allures d'évolution de la conductivité thermique en fonction du temps : courbes linéaire, concave ou convexe, valeurs maximales et valeurs moyennes

La moyenne de la conductivité thermique a du sens lorsque l'on s'intéresse aux consommations d'énergies réelles du bâtiment. C'est bien l'intégrale de la conductivité (c'est-à-dire la valeur moyenne multipliée par la durée), qui permet de calculer la consommation totale (ou moyenne) sur une durée déterminée. D'un point de vue énergétique, la définition 2 doit donc être privilégiée, puisque c'est elle qui permet de comparer les efficacités réelles des isolants sur une durée déterminée.

Une autre remarque importante ici concerne la relation entre durabilité et performance. La performance est la moyenne de la conductivité thermique apparente sur la durée d'utilisation. La conductivité étant une fonction croissante du temps, la performance dépend de la durée d'utilisation considérée. Plus courte sera la durée de vie considérée, meilleure sera la performance, mais en augmentant la durée de vie, à comportement de PIV identique, la performance décroît. Pour un comportement de type amorti (allure convexe, $\lambda_1(t)$ sur la figure 4.1), l'augmentation de la durée considérée affecte peu la performance moyenne. En revanche pour un comportement de type exponentiel (allure concave, $\lambda_3(t)$ sur la figure 4.1), l'augmentation de la durée considérée a un très fort impact sur la performance moyenne, puisque la conductivité thermique augmente très rapidement en fin de vie. Réciproquement, la durée de vie d'un PIV dépend de la performance attendue. À évolution constante, plus le critère de fin de vie sera exigeant, plus courte sera la durée de vie. On ne peut donc parler d'une durée de vie intrinsèque ou d'une performance intrinsèque : chacune des valeurs est liée à la détermination de l'autre valeur.

4.1.1.2 Mécanismes de vieillissement

Le critère de fin de vie peut être atteint rapidement en raison d'une dégradation fatale du panneau (perforation ou déchirure de l'enveloppe, délamination au niveau de la soudure...), ou lentement par un processus de *vieillissement normal* au fil du temps. Ce chapitre se concentre sur le *vieillissement normal* au cours de la vie du PIV, qui consiste en une diminution lente et continue de la performance thermique du fait de l'augmentation de la pression et l'humidité à l'intérieur du PIV. Le but est d'estimer l'évolution de la pression, de l'humidité et de la conductivité thermique, afin de connaître la performance moyenne d'un PIV sur une durée de vie fixée (performance qui sera inférieure à la performance juste après fabrication), ou bien d'avoir une estimation de la durée qui peut s'écouler avant d'atteindre un critère de fin de vie défini, c'est-à-dire de la durée de vie du panneau à performance fixée.



FIGURE 4.2 – Courbe en U, décrivant la probabilité de fin de vie d'une population[10, 99]

La durée de vie est une valeur aléatoire, qui peut être décrite par la « courbe en U » sur la figure 4.2 (*bathtub curve* en anglais [10, 99]). Cette courbe peut se séparer en trois parties. La probabilité de dégradation fatale est élevée juste après la fabrication, cette période de *mortalité infantile* étant principalement due à des défauts dans les matériaux, des erreurs dans la production et les dommages mécaniques pendant le transport et l'installation. Vient ensuite une longue période avec une probabilité de défaillance faible, correspondant à la *durée de vie* moyenne des panneaux. À la fin de cette zone, le taux de défaillance augmente jusqu'à un pic très marqué. C'est la période pendant laquelle la plupart des panneaux ont leur fin de vie, la probabilité de survie au delà de ce pic est nulle.

En parallèle avec le processus de vieillissement lié à la perméation des gaz à travers l'enveloppe, plusieurs faits doivent être pris en compte pour estimer une durée de vie réaliste [10, 13, 14, 55, 99, 122, 124, 125] :

- 1. Le dégazage initial du matériau de cœur ou de l'enveloppe barrière aux gaz peut conduire à un décalage du niveau initial de pression ou d'humidité par rapport au niveau de fabrication.
- 2. Des produits dessicants (qui piègent la vapeur d'eau) et des *pièges à gaz* (*getters* en anglais, qui absorbent les autres gaz) peuvent être ajoutés au matériau de cœur, afin de décaler dans le temps le début de l'augmentation de pression et d'humidité. Dans le cas de la silice pyrogénée, l'augmentation de conductivité thermique commence à une pression d'environ 20 mbar, et ce matériau est particulièrement hydrophile, dessicants et *getters* ne sont donc presque jamais ajoutés aux PIV contenant ce matériau de cœur.
- 3. L'augmentation non linéaire de la perméation de l'air à forte température ou humidité, observée expérimentalement, peut fortement accélérer l'augmentation de la pression par rapport au calcul fait à débit constant.
- 4. La perméation gazeuse à travers les enveloppes barrières aux gaz est beaucoup plus rapide pour la vapeur d'eau que pour les autres gaz atmosphériques. La différence exprimée dans les mêmes unités peut être de 3 ordres de grandeur pour les membranes multicouches contenant des films polymères métallisés. La vapeur d'eau est responsable d'une augmentation de pression supplémentaire non négligeable et d'une augmentation du taux d'humidité dans le matériau de cœur, qui participeront conjointement à l'augmentation de la conductivité thermique apparente.
- 5. Les tranches, coins, et zones de soudure de l'enveloppe (qui peuvent être sur la tranche du PIV ou non) présentent en moyenne une densité de défauts plus élevée que la partie courante, ce sont des zones de faiblesse pour l'étanchéité à l'air et à la vapeur d'eau. Des débits de gaz supplémentaires localisés sur ces régions participent donc également à l'augmentation de la pression totale et de l'humidité.
- 6. Les propriétés de barrière aux gaz de l'enveloppe risquent de ne pas rester identiques pendant toute la durée de vie du panneau, puisqu'une dégradation des polymères, une corrosion des couches métalliques ou un phénomène de délamination peuvent se produire pendant toute la durée de vie du PIV. Une enveloppe dégradée verra ses propriétés barrières diminuer de façon irréversible, de sorte que les augmentations de pression et d'humidité seront accélérées.

Une approche de modélisation précise incluant tous ces phénomènes est nécessaire pour estimer de manière fiable la durée de vie d'un PIV.

4.1.1.3 Risques de dégradation prématurée pour l'enveloppe des PIV

La dégradation prématurée d'une enveloppe barrière aux gaz constituée d'une membrane multicouche de films polymères métallisés pourrait être due à différents facteurs [10, 14, 99] :

– Une température élevée. En particulier, une enveloppe barrière qui contient du polyéthylène ne doit pas être exposée régulièrement à des températures supérieures à T = 60 °C, et seules de courtes périodes d'exposition à T = 80 °C sont acceptables, autrement le polyéthylène perdrait ses propriétés initiales.

- Une humidité relative élevée. Cela peut induire l'oxydation des couches d'aluminium et l'hydrolyse des couches adhésives de polyuréthane, en particulier lorsque la sollicitation en humidité est combinée avec une température élevée.
- Un pH élevé. L'eau dans l'environnement direct doit avoir des valeurs de pH inférieures à 8,5 pour éviter une oxydation prématurée de l'aluminium.

Si ces conditions sont évitées, la dégradation de la membrane barrière aux gaz et du matériau de cœur n'est pas censée se produire, cependant une lente diminution de la performance thermique sera observée, en raison de la perméation aux gaz atmosphériques à travers l'enveloppe. La pression et l'humidité augmentent à une vitesse faible mais non négligeable, et la conductivité apparente totale augmente simultanément, provoquant un vieillissement plus ou moins important au cours du temps.

4.1.2 Modélisation de la perméation gazeuse à travers l'enveloppe barrière aux gaz

4.1.2.1 Taux de perméation à travers l'enveloppe barrière aux gaz

La plupart des laboratoires travaillant sur les membranes barrières aux gaz des PIV utilisent le modèle de sorption-diffusion pour la perméation de la vapeur d'eau et de l'air sec [10, 13–17, 55, 98, 104, 116, 122, 126]. C'est en effet un modèle très pratique pour l'identification des propriétés et pour la modélisation des transferts de masse.

Les hypothèses couramment utilisées sont répertoriées ci-dessous :

- 1. La phase gazeuse interne et la phase gazeuse externe sont des mélanges binaires et idéaux de vapeur d'eau et d'air sec, considérés comme des mélanges de gaz parfaits.
- 2. Pour chacun de ces gaz, le taux de perméation total GTR_{tot} (ou débit massique) est la somme d'une contribution surfacique de la partie courante GTR_{surf} sommée sur toute l'aire *A* des parties planes et d'une contribution linéique de la tranche GTR_{lin} sommée sur tout le périmètre de longueur *P* :

$$GTR_{tot} = A \cdot GTR_{surf} + P \cdot GTR_{lin} \tag{4.3}$$

3. Le débit massique depuis l'extérieur vers l'intérieur du PIV suit le modèle linéaire de sorption-diffusion. Le débit de gaz est donc proportionnel à l'écart de pression partielle. On définit $\Delta p_g = p_{out} - p_{ins}$, positif si la pression externe est supérieure, et *GTR* comme le flux pénétrant à l'intérieur du panneau. Les relations entre débits et écarts de pression s'écrit alors :

$$GTR_{surf} = \Pi_{surf} \Delta p_g \tag{4.4}$$

$$GTR_{lin} = \Pi_{lin} \Delta p_g \tag{4.5}$$

4. La perméance surfacique Π_{surf} et la perméance linéique Π_{lin} dépendent de la température, suivant une loi d'Arrhenius :

$$\Pi_{surf}(T) = \Pi_{surf}^{0} \exp\left(-\frac{E_a^P}{R}\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T^0}\right)\right)$$
(4.6)

$$\Pi_{lin}(T) = \Pi_{lin}^{0} \exp\left(-\frac{E_a^P}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T^0}\right)\right)$$
(4.7)



FIGURE 4.3 – Perméation gazeuse à travers l'enveloppe : flux d'air sec et de vapeur d'eau à travers la partie courante et la tranche

Une des difficultés rencontrées lorsque l'on s'intéresse à la modélisation de la perméation gazeuse à travers l'enveloppe, c'est la présence de ces quatre flux de masse distincts, comme l'illustre la figure 4.3. La partie courante de l'enveloppe (sur les deux faces) et la tranche (contenant généralement la soudure) sont censées obéir au modèle de sorptiondiffusion à la fois pour l'air sec et pour la vapeur d'eau, avec des coefficients de transfert différents pour chaque flux considéré. La modélisation complète nécessite donc la caractérisation différenciée des quatre flux, et des quatre perméances associées, chacune de ces perméances pouvant varier selon divers facteurs externes : température selon les hypothèses listées ci-dessus, mais aussi humidité relative, durée d'exposition à une atmosphère agressive... Ces caractérisations nécessitent un dispositif expérimental complexe et un plan expérimental fourni pour identifier séparément les différentes perméances, et leurs éventuelles variations.

4.1.2.2 Débit instantané d'air sec dans un PIV entier

Le débit total d'air sec ATR_{tot} est la somme d'un débit à travers l'enveloppe sur les deux faces (partie courante), et d'un débit à travers la tranche comprenant généralement la soudure. A partir des équations 4.3, 4.4 et 4.5, le débit total d'air sec peut être exprimé pour un état stationnaire et à température *T* et humidité relative ϕ fixées comme [10, 104, 122] :

$$ATR_{tot} = (A\Pi_{air,surf}(T,\phi) + P\Pi_{air,lin}(T,\phi))\Delta p_{air}$$
(4.8)

A et *P* sont respectivement l'aire totale (deux fois la superficie du panneau) et le périmètre sujets à la perméation de gaz, $\Pi_{air,surf}(T,\phi)$ et $\Pi_{air,lin}(T,\phi)$ sont les perméabilités surfaciques et linéiques à l'air sec de la partie courante et de la tranche, qui sont fonction de la température et de l'humidité relative. Une perméance globale peut être définie comme suit [10, 104, 122] :

$$\Pi_{air,tot}(T,\phi) = (A\Pi_{air,surf}(T,\phi) + P\Pi_{air,lin}(T,\phi))$$
(4.9)

Le débit total d'air sec a alors une expression simple :

$$ATR_{tot} = \Pi_{air,tot}(T,\phi)\Delta p_{air} \tag{4.10}$$

Dans les PIV utilisés comme isolants thermiques de bâtiment, les deux faces ne sont pas exposées à la même sollicitation en température et humidité, puisqu'ils sont censés jouer le rôle de barrière thermique entre un côté froid et un côté chaud. Si on modélise la tranche comme étant placée pour moitié d'un côté et pour moitié de l'autre, les équations suivantes peuvent être utilisées [104] :

$$\Pi_{air,tot} = \left[\frac{A}{2}\Pi_{air,surf}(T_{front},\phi_{front}) + \frac{P}{2}\Pi_{air,lin}(T_{front},\phi_{front})\right]$$
(4.11)

$$+\left[\frac{A}{2}\Pi_{air,surf}(T_{rear},\phi_{rear}) + \frac{P}{2}\Pi_{air,lin}(T_{rear},\phi_{rear})\right]$$
(4.12)

$$\Pi_{air,tot} = \Pi_{air,tot}(T_{front},\phi_{front}) + \Pi_{air,tot}(T_{rear},\phi_{rear})$$
(4.13)

La différence de pression partielle Δp_{air} peut être assimilée à la pression atmosphérique p_{atm} dans la quasi-totalisé des applications [104], puisque dans l'équation suivante, $p_{vap,out}$ et $p_{air,ins}$ sont bien plus petits que p_{atm} :

$$\Delta p_{air} = p_{air,out} - p_{air,ins} = (p_{atm} - p_{vap,out}) - p_{air,ins}$$
(4.14)

Néanmoins, pour des fortes humidités et des situations pour lesquelles $p_{vap,out} << p_{atm}$ n'est plus vrai ($p_{vap,out}/p_{atm} > 0,1$ à T = 50 °C et $\phi = 90$ % HR), ou bien pour des panneaux ayant subi un vieillissement important et donc une prise de pression non négligeable, l'approximation $\Delta p_{air} \approx p_{atm}$ ne doit pas être utilisée.

L'accroissement de la pression interne est calculée grâce à l'équation des gaz parfaits appliquée au volume poreux [10, 104, 122] :

$$\frac{\mathrm{d}p_{air}}{\mathrm{d}t} = \frac{ATR_{tot}}{\varepsilon V_{VIP}} \left(\frac{T_{meas}p_0}{T_0}\right) = \frac{\Pi_{air,tot}\Delta p_{air}}{\varepsilon V_{VIP}} \left(\frac{T_{meas}p_0}{T_0}\right) \tag{4.15}$$

où les valeurs de ATR_{tot} , $\Pi_{air,surf}$ et $\Pi_{air,lin}$ sont exprimées en conditions Standard de Temperature T_0 et Pression p_0 , ce qui explique pourquoi le facteur $\frac{T_{meas}p_0}{T_0}$ est ajouté, il permet de convertir les données volumiques en accroissement de pression à la température de mesure T_{meas} .

Le rapport entre le débit d'oxygène et le débit d'azote à travers les films polymères est estimé à $OTR/NTR \approx 4$ [10, 99]. Le débit d'air sec ATR, en prenant les concentrations d'azote et d'oxygène dans l'atmosphère, peut être estimé à 0,4 fois le débit d'oxygène OTR mesuré à 1 bar, dans le cas où seule la mesure de l'OTR est accessible, et non celle de l'ATR.

4.1.2.3 Débit instantané de vapeur d'eau dans un PIV entier

Les mêmes calculs peuvent être appliqués pour la perméation de la vapeur d'eau [10, 104, 122], mais puisque dans ce cas les unités de masse sont utilisées pour l'expression de la

Chapitre 4 : Modélisation du vieillissement des PIV - Synthèse bibliographique

perméance, le terme $\frac{T_{meas}p_0}{T_0}$ disparaît, et deux valeurs différentes pour la pression partielle de vapeur d'eau doivent être utilisées pour les deux faces. On considère que la variation du contenu en eau *u* du matériau de cœur est égale au débit total de vapeur d'eau, autrement dit on fait l'approximation que la masse d'eau restant sous forme de vapeur est nulle. Les perméances des faces avant $\Pi_{vap,front}$ et arrière $\Pi_{vap,rear}$, le débit total de vapeur d'eau $WVTR_{tot}$ et l'accroissement de la teneur en eau $\frac{du}{dt}$ sont égaux à :

$$\Pi_{vap,front} = \left[\frac{A}{2}\Pi_{vap,surf}(T_{front},\phi_{front}) + \frac{P}{2}\Pi_{vap,lin}(T_{front},\phi_{front})\right]$$
(4.16)

$$\Pi_{vap,rear} = \left[\frac{A}{2}\Pi_{vap,surf}(T_{rear},\phi_{rear}) + \frac{P}{2}\Pi_{vap,lin}(T_{rear},\phi_{rear})\right]$$
(4.17)

$$WVTR_{tot} = \Pi_{vap,front} \Delta p_{vap,front} + \Pi_{vap,rear} \Delta p_{vap,rear}$$

$$du \quad WVTR_{tot} \quad \Pi_{vap,front} \Delta p_{vap,front} + \Pi_{vap,rear} \Delta p_{vap,rear}$$

$$(4.18)$$

$$\frac{1}{\mathrm{d}t} = \frac{1}{m_{VIP,dry}} = \frac{1}{m_{VIP,dry}} = \frac{1}{m_{VIP,dry}} \tag{4.19}$$

La dernière équation peut être réécrite avec l'humidité relative au lieu de la pression partielle de vapeur d'eau :

$$\frac{\mathrm{d}u}{\mathrm{d}t} = \frac{\Pi_{vap,front}(p_{vap,sat}(T_{front})\Delta\phi_{front}) + \Pi_{vap,rear}(p_{vap,sat}(T_{rear})\Delta\phi_{rear})}{m_{VIP,dry}}$$
(4.20)

Afin de simplifier le calcul, l'hypothèse d'une pression de vapeur d'eau $p_{vap,ins}$ uniforme à l'intérieur du PIV est parfois faite, puisque la vapeur d'eau peut se diffuser facilement dans le matériau de cœur à forte porosité [104]. L'humidité relative à l'intérieur du PIV est donc caractérisée par une seule humidité relative ϕ_{ins} , liée à la pression partielle grâce à la pression de saturation $p_{vap,sat}(T_{mean})$ à la température moyenne $T_{mean} = (T_{front} + T_{rear})/2$ par la relation $p_{vap,ins} = \phi(u) p_{vap,sat}(T_{mean})$. Pour une isotherme de sorption linéarisée $u = k\phi$, on obtient :

$$\frac{\mathrm{d}u}{\mathrm{d}t} = p_{vap,sat}(T_{mean}) \frac{\Pi_{vap,front}(k\phi_{out,front} - u) + \Pi_{vap,rear}(k\phi_{out,rear} - u)}{km_{VIP,dry}}$$
(4.21)

ou bien en conditions homogènes :

$$\frac{\mathrm{d}u}{\mathrm{d}t} = p_{vap,sat}(T_{mean}) \frac{\Pi_{vap,tot}(k\phi_{out} - u)}{km_{VIP,dry}}$$
(4.22)

4.1.3 Vieillissement en conditions climatiques constantes

4.1.3.1 Intégration directe des taux d'augmentation de la pression et de l'humidité

Si le panneau est placé dans des conditions constantes et homogènes de température T et d'humidité relative ϕ , il est possible d'intégrer directement les équations donnant les

augmentations instantanées de pression et de masse afin d'obtenir l'évolution de la teneur en eau et de la pression au cours du temps[10, 122]. Pour la pression interne d'air sec, si l'approximation $\Delta p_{air} \approx p_{atm}$ est utilisée et que la condition initiale dans le PIV est $p_{air}(t = 0) = 0$, l'équation 4.15 peut être intégrée, elle donne alors :

$$p_{air}(t) = \frac{ATR_{tot}}{\varepsilon V_{VIP}} \left(\frac{T_{meas}p_0}{T_0}\right) t = \frac{\Pi_{air,tot}(T,\phi)p_{atm}}{\varepsilon V_{VIP}} \left(\frac{T_{meas}p_0}{T_0}\right) t$$
(4.23)

L'évolution est ainsi linéaire tant que la pression interne d'air sec reste négligeable devant la pression externe.

L'équation 4.19 peut également être intégrée, mais l'approximation $\Delta p_{vap} \approx p_{vap,out}$ ne doit pas être utilisée, compte tenu que (i) le débit de vapeur d'eau est beaucoup plus élevé que le débit d'air sec et (ii) la pression de vapeur d'eau à l'extérieur du PIV est beaucoup plus faible que la pression partielle d'air sec. Cette équation différentielle, utilisée sous la formulation 4.22, peut être intégrée pour donner [10, 14, 99, 122] :

$$u(t) = k\phi_{out} \left[1 - \exp\left(\frac{-\Pi_{vap,tot} p_{vap,sat}(T)}{km_{VIP,dry}} t\right) \right]$$
(4.24)

Il y a donc pour la perméation de la vapeur d'eau un régime asymptotique, qui tend à ce que la valeur de l'humidité relative interne rejoigne la valeur externe. Le régime asymptotique est également pris en compte pour l'augmentation de pression d'air sec par Tenpierik et Cauberg [55] [13], mais la plupart des auteurs considèrent que l'augmentation de la pression de l'air reste linéaire pendant toute la durée de vie du PIV.

Dans des conditions constantes et homogènes, l'augmentation de la conductivité thermique est calculée grâce à [10, 122] :

$$\lambda_{tot}(t) = \lambda_{evac} + Bu(t) + \varepsilon \frac{\lambda_g^0}{1 + \frac{p_{1/2,air}}{p_{air}(t)}}$$
(4.25)

où λ_{evac} est la conductivité thermique du PIV sous vide à l'état initial, u(t) et $p_{air}(t)$ sont calculées grâce aux équations 4.24 et 4.23.

La conductivité thermique de l'air, qui est fonction de la pression, peut être linéarisée dans la gamme des basses pressions, avec un coefficient de $\frac{\partial \lambda_{tot}}{\partial p_{air}} = 0,035 \text{ mW}/(\text{m}\cdot\text{K}\cdot\text{mbar})$ pour la silice pyrogénée [10, 14, 55, 99, 126, 127] :

$$\lambda_{tot}(t) = \lambda_{evac} + Bu(t) + \frac{\partial \lambda_{tot}}{\partial p_{air}} p_{air}(t)$$
(4.26)

Tenpierik et Cauberg [55] [13] et Wegger *et al.* [17, 123] séparent l'influence de la pression partielle d'air sec et de la pression partielle de vapeur d'eau dans l'expression de la conductivité thermique additionnelle :

$$\lambda_{tot}(t) = \lambda_{evac} + Bu(t) + \frac{\partial \lambda_{tot}}{\partial p_{vap}} p_{vap}(t) + \frac{\partial \lambda_{tot}}{\partial p_{air}} p_{air}(t)$$
(4.27)

La valeur de *B* est donc différente dans l'équation 4.26 et 4.27 puisque dans le premier cas le coefficient comprend l'effet de la vapeur d'eau, mais pas dans le second.

4.1.3.2 Régression numérique

Tenpierik et Cauberg [55] [13] ont proposé une régression sur les résultats de vieillissement obtenus en conditions climatiques constantes, afin de calculer la durée de vie Δt :

$$\Delta t \approx K_a \exp(K_b (\lambda_{crit} - \lambda_{init} - \lambda_{u,equi})) d_{VIP} \left(\frac{P}{A}\right)^{K_c} \frac{T^0}{T} \exp\left(\frac{E_{a,air}}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T^0}\right)\right)$$
(4.28)

 λ_{crit} et λ_{init} sont respectivement la valeur critique (durée de vie définition 1) et les valeurs initiales de la conductivité apparente, et $\lambda_{u,equi}$ est la conductivité thermique additionnelle due à l'eau sous forme adsorbée et sous forme de vapeur, à l'équilibre avec les conditions climatiques ambiantes. Cette valeur est déterminée par :

$$\lambda_{u,equi} = 0,029u(\phi) + \frac{\lambda_{vap}^{0}}{1 + \frac{p_{1/2,vap}}{\phi p_{vap,sat}(T)}}$$
(4.29)

Et *K_c* est déterminé par :

$$K_{c} = K_{0} + K_{1} \left(\frac{T^{0}}{T}\right) + K_{2} \left(\frac{T^{0}}{T}\right)^{2}$$
(4.30)

Les valeurs des paramètres de régression pour certains cas de la littérature sont énumérées dans le tableau 4.1. Les auteurs ont signalé un écart inférieur à 18 % quand ils ont comparé les résultats numériques de ce modèle à ceux du modèle d'intégration directe. Ce modèle est conçu pour une humidité relative externe constante $\phi = 50$ % HR, il n'est pas capable de prendre en compte une humidité relative externe variable.

Enveloppe	Ka	K_b	E_a	K_0	K_1	K_2
	$yr \cdot m^{K_c-1}$	m∙K/W	kJ/mol	adim.	adim.	adim.
MF3	$5,17 \times 10^{3}$	333	50	15,4	-31,3	15,1
AF (8μm)	$3,61 \times 10^4$	270	26	8,8	-17,8	8,2

TABLE 4.1 – Paramètres de régression pour le modèle de Tenpierik et Cauberg [55] [13]

4.1.4 Vieillissement en conditions climatiques variables

En conditions climatiques variables, les fluctuations de température et l'humidité ont un impact sur l'augmentation instantanée de la pression et de la teneur en eau. La dépendance en température de la perméance est décrite par une relation d'Arrhenius [10, 14, 99, 104, 124, 126, 127] :

$$\Pi_{air}(T) = \Pi_{air}(T^0) \exp\left(\frac{E_{a,air}}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T^0}\right)\right)$$
(4.31)

$$\Pi_{vap}(T) = \Pi_{vap}(T^{0}) \exp\left(\frac{E_{a,vap}}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T^{0}}\right)\right)$$
(4.32)

L'expression de la dépendance à l'égard de l'humidité est cependant inconnue, elle est donc négligée [104].

Dans le cas de conditions variables de température et d'humidité relative dans l'ambiance extérieure, trois méthodes sont proposées pour calculer les évolutions de pression et de contenu en eau du matériau de cœur avec des conditions aux limites dynamiques [10, 14, 99] :

- 1. L'utilisation des moyennes arithmétiques des conditions aux limites climatiques. Dans cette méthode très simple, les non-linéarités observées de la dépendance en température et en humidité des perméances sont évidemment négligées.
- 2. L'utilisation de la moyenne pondérée de la température. Concernant la perméation de l'air sec, à partir des équations 4.15 et 4.31, si la perméance est supposée être uniquement dépendante de la température, l'augmentation de la pression sur une période de Δt (par exemple une année) peut être calculée par :

$$\Delta p_{air}(\Delta t) = \sum_{\Delta t} \left(\frac{\Pi_{air,tot}(T(t))p_{atm}}{\varepsilon V_{VIP}} \left(\frac{T_{meas}p_0}{T_0} \right) dt \right)$$
(4.33)

$$\Delta p_{air}(\Delta t) = \left(\frac{T_{meas}p_0}{T_0}\right) \frac{\Pi_{air,tot}^0 p_{atm}}{\varepsilon V_{VIP}} \sum_{\Delta t} \left(\exp\left(\frac{E_{a,air}}{R}\left(\frac{1}{T(t)} - \frac{1}{T^0}\right)\right) dt\right)$$
(4.34)

$$\Delta p_{air}(\Delta t) = \left(\frac{T_{meas}p_0}{T_0}\right) \frac{p_{atm}}{\varepsilon V_{VIP}} \Pi_{air,tot}(T_{eff}) \Delta t$$
(4.35)

où la température moyenne pondérée, la température dite efficace T_{eff} , est la solution de l'équation suivante :

$$\sum_{\Delta t} \left(\exp\left(\frac{E_{a,air}}{RT(t)}\right) dt \right) = \exp\left(\frac{E_{a,air}}{RT_{eff}}\right) \Delta t$$
(4.36)

La température efficace T_{eff} est toujours supérieure à la moyenne arithmétique. Dans le cas de l'augmentation de la teneur en eau, le même schéma peut être utilisé, mais en plus de la température moyenne pondérée, une moyenne pondérée de la pression de vapeur d'eau extérieure est nécessaire.

3. L'intégration temporelle des augmentations instantanées de pression totale et de teneur en eau dans une simulation discrétisée en temps. Cette méthode est censée être la plus précise. L'évolution de la pression partielle d'air sec $p_{air}(t)$ et de la teneur en eau u(t) au cours du temps doivent être calculées par une intégration discrète des augmentations instantanées de la pression d'air sec et de la teneur de l'eau, calculées par les équations 4.15 et 4.19, où les perméances Π_{air} et Π_{vap} sont des fonctions de la température T(t) à l'instant t:

$$\frac{\mathrm{d}p_{air}}{\mathrm{d}t}(t) = \frac{\Pi_{air,tot}(T(t))\Delta p_{air}(t)}{\varepsilon V_{VIP}} \left(\frac{T_{meas}p_0}{T_0}\right)$$
(4.37)

$$\frac{\mathrm{d}u}{\mathrm{d}t}(t) = \frac{\Pi_{vap,front}(T(t))\Delta p_{vap,front}(t) + \Pi_{vap,rear}(T(t))\Delta p_{vap,rear}(t)}{m_{VIP,dry}}$$
(4.38)

Ces trois méthodes peuvent être utilisées pour calculer les valeurs de Δp_{air} et Δu après une certaine période d'utilisation Δt . La conductivité thermique est alors calculée grâce à l'équation 4.25.

Chapitre 4 : Modélisation du vieillissement des PIV - Synthèse bibliographique

Tenpierik [13] a également proposé un modèle qui prend en compte la variation de la température extérieure, de l'humidité relative et de la pression, afin d'estimer la durée de vie en conditions réelles, à partir de mesures de durée de vie dans des conditions de laboratoire. Dans les équations 4.23 et 4.24 rappellées ici :

$$p_{air}(t) = \frac{\prod_{air,tot}(T,\phi)p_{atm}}{\varepsilon V_{VIP}} \left(\frac{T_{meas}p_0}{T_0}\right)t$$
(4.39)

$$u(t) = k\phi_{out} \left[1 - \exp\left(\frac{-\Pi_{vap,tot} p_{vap,sat}(T)}{km_{VIP,dry}} t\right) \right]$$
(4.40)

les termes $\Pi_{air,tot}$, p_{atm} , $\Pi_{vap,tot}$ et ϕ_{out} sont les produits des conditions de laboratoire et d'un coefficient appelé *facteur de durée de vie*, qui est censé reproduire l'influence des conditions réelles. Le facteur de durée de vie lié à la température est calculé à partir de la loi d'Arrhenius, et le facteur de durée de vie lié à la pression externe reproduit le gradient de pression entre l'extérieur et l'intérieur du panneau. Une régression écrite $GTR = K_1 + K_{2,surf} \exp(K_{3,surf}\phi) + K_{2,lin} \exp(K_{3,lin}\phi)$ pour l'impact de l'humidité relative sur les débits de gaz est proposée, mais le manque de données expérimentales utilisables pour l'identification des paramètres est souligné.

4.2 Identification expérimentale des débits de gaz et des perméances

La perméance des enveloppes barrières aux gaz utilisées pour les PIV est très difficile à mesurer directement sur des échantillons d'enveloppe car la précision des appareils de mesures de perméation est dans la plupart des cas inférieure aux exigences pour ce genre d'échantillons [10]. En outre, dans un PIV, la perméation des gaz se produit à travers les parties courantes, grâce à un processus de perméation membranaire classique, et à travers la soudure (joint thermoscellé) de l'enveloppe. Ainsi, le débit total de gaz est non seulement fonction des propriétés de la membrane, mais également des propriétés de la soudure. C'est pourquoi la mesure des taux de perméation de gaz grâce à des expériences sur des PIV entiers semble être une bonne façon de comprendre le transfert de masse qui se produit sous différentes conditions de pression et d'humidité.

4.2.1 Schwab *et al.* : identification expérimentale des perméances (ZAE-Bayern)

Les perméances de trois enveloppes différentes ont été mesurées dans des conditions climatiques constantes au ZAE-Bayern pendant 300 jours, les résultats ont été publiés par Schwab *et al.* [16] [10]. Trois températures (T = 25, 45 et 65 °C) et deux humidités ($p_{vap} = 14$ mbar et $\phi = 75$ % HR) ont été combinées, soit un total de six conditions climatiques différentes (voir tableau 4.2), afin d'évaluer l'influence de ces paramètres sur les débits d'air sec et de vapeur d'eau. Trois membranes barrières aux gaz ont été testées comme enveloppe : une feuille d'aluminium laminée d'épaisseur 8µm (AF), et deux membranes multicouches faites de films PET métallisés, une de basse qualité (MF1) et une de haute qualité (MF2). Deux tailles de panneaux ont été utilisées, $10 \times 10 \times 1 \text{ cm}^3$ et $20 \times 20 \times 1 \text{ cm}^3$, afin de séparer l'influence des faces et de la tranche. Dans la condition T = 65 °C et $\phi = 75$ % HR, la majorité des panneaux a subi un vieillissement prématuré en raison d'une délamination de l'enveloppe.

4.2 Identification expérimentale des débits de gaz et des perméances

Chambre	Température	Pression partielle de	Humidité relative
climatique	T [°C]	vapeur d'eau p_{vap} [Pa]	ϕ [% HR]
1	25	1400	44
2	45	1400	15
3	65	1400	6
4	25	2380	75
5	45	7200	75
6	65	18780	75

TABLE 4.2 - Conditions climatiques pour les mesures de perméances par Schwab et al. [16]

L'augmentation totale de masse des panneaux, assimilée à l'augmentation de la teneur massique en eau du matériau de cœur, a été mesurée par une pesée régulière des panneaux. L'augmentation de la pression interne a été mesurée par la méthode du décollement de membrane, qui consiste à mesurer la pression extérieure qui produit le décollement de l'enveloppe, et qui est donc en équilibre avec la pression interne. La pression de vapeur d'eau a été calculée à partir de la teneur en masse d'eau et de l'isotherme de sorption du matériau de cœur, et l'augmentation de la pression d'air sec a été obtenue par soustraction de la pression partielle de vapeur d'eau interne à la pression totale interne. La pression partielle d'air sec, en supposant une isotherme de sorption linéaire $u = k\phi$, est calculée grâce à l'équation suivante :

$$p_{air} = p_{tot} - \phi(u) p_{vap,sat}(T) = p_{tot} - \frac{u}{k} p_{vap,sat}(T)$$
(4.41)

Le débit total d'air sec divisé par le périmètre, ATR_{tot}/P , est représenté sur la figure 4.4. Les enveloppes AF et MF2 ont une valeur identique de ATR_{tot}/P pour les panneaux de taille 10 × 10 et 20 × 20. D'après l'équation 4.8, cela signifie que $\Pi_{air,surf} \approx 0$ et $ATR_{tot} = P\Pi_{air,lin}(T,\phi))\Delta p_{air}$. La perméation d'air sec se fait donc principalement à travers la tranche de ces PIV, et une augmentation de la température ou de l'humidité relative conduit à une augmentation importante des ATR [10, 16].



FIGURE 4.4 – Débits d'air sec mesurés sur les PIV du ZAE-Bayern [10, 16]

Les énergies d'activation dérivées de ces mesures sont listées dans le tableau 4.3. Elles sont dans un domaine de valeur qui correspond bien aux polymères, i.e. [20 - 45 kJ/mol].

Chapitre 4 : Modélisation du vieillissement des PIV - Synthèse bibliographique

	AF	MF1	MF2
Énergie d'activation [kJ/mol] $E_{a,air}$	26 ± 2	40 ± 7	28 ± 3

TABLE 4.3 – Énergies d'activation pour la perméation à l'air sec des membranes AF, MF1 et MF2 [10, 16]

Pour la perméation de la vapeur d'eau, le transfert de masse se produit à la fois à travers les faces du panneau et la tranche. Les perméances surfaciques sont tracées sur la figure 4.5, mais elles sont calculées par l'équation $\Pi_{vap,surf} = WVTR_{tot}/(A\Delta p_{vap})$, de sorte qu'elles comprennent les débits dus à la tranche et sont donc surestimées. Ces valeurs sont donc des perméances pseudo-surfaciques, puisqu'elles ne correspondent pas uniquement aux débits des faces mais aussi à celui de la tranche.



FIGURE 4.5 – Perméances pseudo-surfaciques à la vapeur d'eau mesurées sur les PIV du ZAE-Bayern (calculées à partir du débit de masse total, y compris la contribution de la tranche) [10, 16]

Sur les perméances à l'air et à la vapeur d'eau, l'influence des conditions climatiques est nette. L'augmentation de la température ou de l'humidité conduit à une augmentation du débit massique. Les *ATR* peuvent être multipliés par un facteur 3 ou plus, lorsque la température est passée de T = 25 °C à 45 ou 65 °C, et par un facteur 2 ou plus lorsque l'humidité relative est passée de la valeur basse à la valeur haute.

L'influence de la température est moins importante pour la perméation de la vapeur d'eau que pour la perméation de l'air sec, en particulier pour les membranes MF1 et MF2, qui ont dans la plupart des cas une dépendance en température pour la perméance à la vapeur d'eau qui est très faible. Toutefois, la perméance à la vapeur d'eau est fortement dépendante de l'humidité relative pour les membranes MF1 et MF2, l'augmentation se situe dans la gamme [30 % - 200 %] lorsque l'humidité relative est passée de la valeur basse (humidité ambiante) à la valeur haute ($\phi = 75$ % HR). L'augmentation de WVTR est encore plus forte, puisque c'est le produit de la perméance et du gradient de pression de vapeur d'eau, ce dernier étant plus élevé à forte humidité. La membrane MF2, qui est la meilleure membrane MF, semble être la plus sensible à l'humidité relative, au sujet de ses propriétés de barrière à la fois à l'air sec et à la vapeur d'eau.

4.2.2 Simmler et Brunner : vieillissement expérimental en conditions climatiques constantes (EMPA)

L'EMPA a mené une campagne expérimentale de vieillissement de PIV dans quatre conditions climatiques, sur une durée de 48 à 175 jours, les résultats ont été publiés par Simmler et Brunner [14] [10, 99, 124] :

- 1. Une condition à température basse / humidité haute : T = 30 °C et $\phi = 90$ % HR
- 2. Une condition à température haute / humidité basse : T = 90 °C et $\phi = 4$ % HR
- 3. Une condition à température haute / humidité haute : T = 80 °C et $\phi = 80 \text{ \%}$ HR
- 4. Une condition cyclique : T = 80 °C et ϕ = 80 % HR durant 8h, puis T = 25 °C et ϕ = 50 % HR durant 4h

Les résultats pour les « petits » panneaux $(25 \times 25 \times 2 \text{ cm}^3)$ sont tracés sur la figure 4.6. Les augmentations similaires de pression et de contenu en eau pourraient suggérer que l'augmentation de la pression est principalement due à la pression de vapeur d'eau [14, 124]. La corrélation claire entre la pression de vapeur d'eau extérieure et les augmentations de pression et d'humidité peut suggérer que la pression de vapeur d'eau est la principale force motrice pour le transfert de gaz à travers la membrane [10, 14, 99]. De toute évidence, le cas T = 80 °C et $\phi = 80$ % HR n'est pas compatible avec une application à long terme. D'autre part, le vieillissement est plus rapide pour une condition cyclique, ce qui pourrait s'expliquer soit par des problèmes mécaniques sur l'enveloppe (cisaillement entre le polymère et le métal lors de l'expansion thermique différentielle, qui peut conduire à une délamination), soit par un phénomène de condensation cyclique sur le côté froid du PIV au cours des changements de température et d'humidité brusques et de grande amplitude (la pression de saturation peut être atteinte lorsque la température baisse rapidement) [14, 99].



FIGURE 4.6 – Évolution de la pression interne et du contenu en eau des petits panneaux $(25 \times 25 \times 2 \text{ cm}^3)$ dans différentes conditions [10, 14, 99, 124]

Ici aussi, l'influence majeure de la température et de l'humidité relative peut être observée sur la figure 4.6. En passant d'une humidité basse à une humidité élevée à température constante (de $\phi = 4$ % HR à $\phi = 80$ % HR, à T = 80 °C), ou d'une température basse à une température élevée à humidité quasi-constante (de T = 30 °C et $\phi = 90$ % HR à T = 80 °C et $\phi = 80$ % HR), conduit à une augmentation très forte de l'accroissement de la pression et du contenu en eau. L'accroissement de la pression est multiplié par un facteur 10 environ dans les deux cas. L'accroissement du contenu en eau est multiplié par un facteur proche de 30 lorsque la température est augmentée, et par un facteur quasi-infini lorsque l'humidité est augmentée, puisque dans le cas $\phi = 4 \%$ HR l'accroissement du contenu en eau est à peine mesurable. Il faut noter que la température et l'humidité sont très élevées ici, loin des conditions attendues pour l'isolation intérieure des bâtiments dans un climat tempéré.

Quantité	Unité	Localisation	MF3	MF4
WVTR _{surf}	$[g/(m^2 \cdot d)]$	faces	0,0030	0,0048
WVTR _{lin}	[g/(m·d)]	tranche	0,0008	0,0006
ATR _{surf}	$[g/(m^2 \cdot d)]$	faces	0,0034	0,0087
ATR_{lin}	[g/(m·d)]	tranche	0,0090	0,0018
du/dt	[%/y]	faces	0,050	0,080
du/dt	[%/y]	tranche	0,033	0,027
du/dt	[%/y]	total	0,083	0,107
dp/dt	[mbar/y]	faces	0,12	0,32
dp/dt	[mbar/y]	tranche	0,87	0,17
dp/dt	[mbar/y]	total	1,00	0,49

TABLE 4.4 – Débits identifiés pour les membranes MF3 et MF4 à T = 23 °C et $\phi = 50$ % HR, et accroissements annuels de pression et de contenu en eau pour un panneau de taille $100 \times 60 \times 2 \text{ cm}^3$ [10, 99]

Afin de séparer la contribution des parties courantes (faces) de celle de la tranche (périmètre), le vieillissement a été mené sur cinq dimensions différentes de panneaux, de $25 \times 25 \times 2 \text{ cm}^3$ à $100 \times 100 \times 2 \text{ cm}^3$, avec la condition T = 23 °C et $\phi = 50 \text{ \%}$ HR, pour des PIV ayant des enveloppes multicouches contenant des films polymères métallisés [10, 14, 99]. Les débits surfaciques GTR_{surf} et linéiques GTR_{lin} d'air sec et de vapeur d'eau ont été identifiés, ils sont rapportés dans le tableau 4.4. Pour la perméation de la vapeur d'eau, les contributions des faces et de la tranche sont toutes les deux importantes dans l'augmentation de la masse totale pour les deux enveloppes. Pour la perméation de l'air sec, la très faible contribution des faces, qui a été observée sur les mesures de ZAE, est seulement observée ici pour la membrane MF3, car dans les panneaux avec l'enveloppe MF4, la contribution des faces dans le débit total n'est pas négligeable. Toutefois, l'incertitude peut être jusqu'à 50 % pour la mesure de l'augmentation de pression, donc la pertinence de ces observations reste limitée sans mesures complémentaires [10, 14].

4.2.3 Synthèse

La variabilité des propriétés de barrière aux gaz en fonction des matériaux et des conditions climatiques est l'une des principales caractéristiques de ces membranes multicouches de polymères métallisés. Plusieurs valeurs mesurées de débits (*WVTR* ou *ATR*) et de perméances, recueillies dans l'Annexe 39 de l'AIE [10] ou dans la littérature, sont énumérées dans le tableau 4.5 pour la vapeur d'eau, et dans le tableau 4.6 pour l'air sec ou l'air humide.

Réf [10] Fraunhofer IVV	Méthode p.e. ^a	Échantillon - laminate (min) - laminate (max) - bilaminate (min) - bilaminate (max) - trilaminate (min) - trilaminate (max)	Nb de couches d'Al 1 2 3	Épaisseur d'Al par couche [nm] - - - - - - - - - - - -		$\begin{array}{c} \text{Perméance} \\ \text{surfacique} \\ \left[\frac{\text{kg}}{\text{m}^2.\text{s.Pa}} \right] \\ \hline 9,7 \times 10^{-14} \\ 7,9 \times 10^{-13} \\ 4,6 \times 10^{-14} \\ 1,4 \times 10^{-13} \\ 3,1 \times 10^{-14} \\ 2,5 \times 10^{-13} \end{array}$	$WVTR$ $\left[\frac{g}{m.d}\right]$	Perméance linéique [kg m.s.Pa] - - - - - - - - - - - -	T _{meas} [°C] 38 38 38 38 38 38 38 38 38	φ [% HR] 90 90 90 90 90 90 90
[10] Fraunhofer	p.e.	 bilaminate avant vieillissement (min) bilaminate avant vieillissement (max) 	2 2	- - -	0,01 ^b 0,06 0,03 0,14	$4,8 \times 10^{-13}$ $1,2 \times 10^{-13}$ $1,5 \times 10^{-13}$ $2,7 \times 10^{-13}$	- - -		23 38 23 38	85 90 85 90
IVV	- bilam. vieilli 28 j. 65 °C 75 % HR (min) - bilam. vieilli 28 j. 65 °C 75 % HR (max)	2 2	- - -	0,01 0,1 0,1 0,3	$4,8 \times 10^{-14}$ $1,9 \times 10^{-13}$ $4,8 \times 10^{-13}$ $5,8 \times 10^{-13}$			23 38 23 38	85 90 85 90	
[10, 122] ZAE - Bayern ^c	vieil. de PIV ^d	- MF1 - MF2	2 2	- - -	0,0025 0,035 0,0005 0,0086	$6,9 \times 10^{-14} 1,9 \times 10^{-13} 1,4 \times 10^{-14} 4,7 \times 10^{-14}$	- 0,0006 - 0,0003	$-3,3 \times 10^{-15}$ -1,6 × 10 ⁻¹⁵	23 23 23 23	15 75 15 75
[10, 16] ZAE - Bayern ^e	vieil. de PIV	- MF1 MF1 MF1 MF1 - MF2 MF2 MF2 MF2 MF2 MF2 MF2	2		0,0032 0,021 0,0088 0,081 0,0038 0,0006 0,0026 - 0,010 -	$\begin{array}{c} 2,7\times 10^{-14}\\ 1,0\times 10^{-13}\\ 7,6\times 10^{-14}\\ 1,3\times 10^{-13}\\ 3,0\times 10^{-14}\\ 5,2\times 10^{-15}\\ 1,3\times 10^{-14}\\ -\\ 1,6\times 10^{-14}\\ -\\ \end{array}$	0,0004 0,0009 - - 0,0002 0,0001 0,0009 0,0001 0,0018 0,0002	$\begin{array}{c} 3,1\times 10^{-15}\\ 4,4\times 10^{-15}\\ \\ \\ \\ \\ \\ \\ \\ \\ \\ \\ \\ \\ \\ \\ \\ \\ \\ \\ $	25 25 45 65 25 25 45 45 65	44 75 15 75 6 44 75 15 75 6
[10] EMPA [103] Fraunho- fer FEP	vieil. de PIV p.e.	- MF3 - MF4	3 3 1	30 100 120	0,003 0,0048 0,06	$2,5 \times 10^{-14} 4,0 \times 10^{-14} 1,2 \times 10^{-13}$	0,0008 0,0006 -	$6,6 \times 10^{-15} \\ 4,9 \times 10^{-15} \\ -$	23 23 38	50 50 90
[75] EDF R&D	m.m. ^f	- PET-a M1F20 - PET-a M1F40 - PET-a M1F60 - PET-a M1F75 - 1*PET-b M1F800 - 2*PET-b M1F800 - 3*PET-b M1F800 - triplex haute qualité	1 1 1 1 2 3 3	35 60 80 100 80 80 80 > 100	0,074 0,051 0,028 0,021 0,097 0,036 0,028 0,033	$2,9 \times 10^{-13} \\ 2,0 \times 10^{-13} \\ 1,1 \times 10^{-13} \\ 8,2 \times 10^{-14} \\ 3,8 \times 10^{-13} \\ 1,4 \times 10^{-13} \\ 1,1 \times 10^{-13} \\ 3,5 \times 10^{-14} \\ \end{cases}$			40 40 40 40 40 40 40 50	40 40 40 40 40 40 40 90

a. p.e. : procédé électrolytique selon la norme DIN 53 122-2

b. $WVTR = 0,01 \text{ g/(m^2 \cdot d)}$ est la sensibilité de l'appareil de mesure utilisé ici

c. Les valeurs des *WVTR* et perméances sont les valeurs reprises dans les publications originales

d. L'accroissement du contenu en eau est mesuré par pesée régulière des panneaux (accroissement de masse et prise d'eau sont assimilés)

e. Les valeurs des WVTR et perméances sont recalculées à partir des données brutes

f. m.m. : méthode manométrique

TABLE 4.5 – Valeurs des débits et perméances de vapeur d'eau pour plusieurs membranes barrières à base de films polymères métallisés, mesurées dans différentes conditions climatiques

Réf	Méthode	Échantillon	Nb de couches d'Al	Épaisseur d'Al par couche [nm]	Gaz	$GTR \text{ sur-} \\ \begin{array}{c} \text{facique} \\ \left[\frac{\text{cm}^3(\text{STP})}{\text{m}^2.\text{d}} \right] \end{array}$	$\begin{array}{c} \text{Perméance} \\ \text{surfacique} \\ \left[\frac{\text{kg}}{\text{m}^2.\text{s.Pa}}\right] \end{array}$	$\frac{GTR}{\left[\frac{cm^{3}(STP)}{m.d}\right]}$	Perméance linéique [<u>kg</u> [<u>m.s.Pa</u>]	T _{meas} [°C]	φ [% HR]
[10, 122]		- MF1	2	-	Air	0,008	$1,\!2\times10^{-18}$	0,0045	$6,6 \times 10^{-19}$	23	15
ZAE -	vieil.			-	avec	0,073	$1,7 \times 10^{-17}$	0,0008	$1,2 \times 10^{-18}$	23	75
Bayern ^a	de PIV ^b	ME2	2	-	vapeur	-	-	0,0013	$1,9 \times 10^{-19}$	23	15
		- MFZ	2	-	d'eau	0,016	$2,4 \times 10^{-18}$	0,0039	$5,8 \times 10^{-19}$	23	75
		- MF1		-		-	-	0,0076	$1,1 \times 10^{-18}$	25	44
		MF1		-		-		0,0098	$1,5 \times 10^{-18}$	25	75
		MF1	2	-		0,134	$2,0 \times 10^{-17}$	0,016	$2,3 \times 10^{-18}$	45	15
		MF1		-		-	-	0,031	$4,9 \times 10^{-18}$	45	75
[10, 16]	viel.	MF1		-	Air sec	-	-	0,035	$5,8 \times 10^{-18}$	65	6
ZAE -	de PIV ^c	- MF2		-	7111 300	-	-	0,0011	$1,9 \times 10^{-19}$	25	44
Bayern ^d		MF2		-		-	-	0,0012	$1,8 \times 10^{-19}$	25	75
		MF2	2	-		-	-	0,0019	$2,8 \times 10^{-19}$	45	15
		MF2		-		-	-	0,0043	$6,8 \times 10^{-19}$	45	75
		MF2		-		-	-	0,0035	$5,8 \times 10^{-19}$	65	6
[10]	vieil.	MF3	3	30	Airsec	0,0034	$5,0 \times 10^{-19}$	0,0091	$1,3 \times 10^{-18}$	23	50
EMPA	de PIV	MF4	3	100	III See	0,0088	$1,3 \times 10^{-18}$	0,0088	$2,7 \times 10^{-19}$	23	50
[103] Fraun- hofer FEP	Mocoon	-	1	120	O ₂	-	1,6×10 ⁻¹⁷	-	-	23	0
	mVIP ^e	- Standard	3	100	Air sec	0,020	$2{,}9\times10^{-18}$	-	-	-	-
[112]	-	< 2011			O2	-	$9{,}0\times10^{-18}$	-	-	-	-
Hanita	mVIP	- Métallis. améliorée	3	100	Air sec	0,0085	$1,\!3\times10^{-18}$	-	-	-	-
	-	- Avec Ormocer [®]	1	100	O ₂	-	$1,\!6\times10^{-18}$	-	-	-	-

a. Les valeurs des GTR et perméances sont les valeurs reprises dans les publications originales

b. L'accroissement de la pression est obtenue par la méthode du décollement de membrane

c. La distinction entre pression partielle d'air sec et pression partielle de vapeur d'eau est faite grâce à un calcul impliquant l'isotherme de sorption (contenu en eau du matériau de cœur en fonction de l'humidité relative)
 d. Les valeurs des *GTR* et perméances sont recalculées à partir des données brutes

e. Mesure de l'accroissement de pression dans un PIV à cœur métallique (mVIP) : le volume libre est réduit, et la prise de pression ainsi accélérée

TABLE 4.6 – Valeurs des débits et perméances à l'air et à l'oxygène pour plusieurs membranes barrières à base de films polymères métallisés, mesurées dans différentes conditions climatiques Afin d'illustrer la variabilité des débits de vapeur d'eau et d'air sec à travers différentes membranes multicouches de polymères aluminisés dans les mêmes conditions climatiques, les valeurs des WVTR et ATR proposées par le ZAE-Bayern et l'EMPA pour les quatre enveloppes MF étudiées sont reportées dans le tableau 4.7, pour T = 23 °C et $\phi = 50$ % HR. MF1 et MF2 sont constitués de deux films polymères métallisés, tandis que MF3 et MF4 sont fait de trois films métallisés. La couche supplémentaire pour MF3 et MF4 pourrait expliquer les meilleures performances, en particulier les débits surfaciques d'air sec et de vapeur d'eau plus faibles.

Réf	Type de barrière	WVTR _{surf}	WVTR _{lin}	ATR _{surf}	ATR_{lin}
		$[g/(m^2 \cdot d)]$	$[g/(m \cdot d)]$	$[\text{cm}^3(\text{STP})/(\text{m}^2 \cdot \text{d})]$	$[\text{cm}^3(\text{STP})/(\text{m}\cdot\text{d})]$
[16]	MF1 (2 films mét.)	0,0233	-	0,0160	0,0080
[16]	MF2 (2 films mét.)	0,0057	-	-	0,0039
[1.4]	MF3 (3 films mét.)	0,0030	0,0008	0,0034	0,0091
[14]	MF4 (3 films mét.)	0,0048	0,0006	0,0088	0,0018

TABLE 4.7 – Débits de vapeur d'eau et d'air sec dus aux faces des panneaux (respectivement $WVTR_{surf}$ et ATR_{surf}) et à la tranche (respectivement $WVTR_{lin}$ et ATR_{lin}) pour plusieurs enveloppes MF, dans les conditions T = 23 °C, $\phi = 50$ % HR, $p_{tot} = 1$ bar [10, 14, 16]

Le panel des propriétés barrières qui sont répertoriées dans ces tableaux permettent les observations suivantes :

- 1. Converties dans les mêmes unités, les perméances à l'air sec sont environ quatre ordres de grandeur plus faibles que les perméances à la vapeur d'eau. Les débits *ATR* et *WVTR* ne sont séparés que par deux à trois ordres de grandeur, puisque le gradient de pression partielle de vapeur d'eau est beaucoup plus faible que le gradient de pression d'air sec. Cela reste un écart très grand, qui explique pourquoi il est bien plus difficile de mesurer les propriétés barrières à l'air sec plutôt qu'à la vapeur d'eau. Le vieillissement de PIV semble être le seul moyen précis de mesurer la faible perméabilité à l'air sec des meilleures membranes barrières.
- 2. Le vieillissement de PIV est aussi le seul moyen de mesurer les perméances linéaires de la soudure sur la tranche du panneau.
- 3. La perméance à la vapeur d'eau diminue lorsque l'épaisseur du dépôt métallique augmente, d'après les mesures de Alaux [75], ce qui est cohérent avec l'idée d'une épaisseur de dépôt critique nécessaire pour atteindre la valeur de perméance minimale (voir le paragraphe 3.4.3.2). Sur les mesures de Simmler *et al.* [10], cependant, l'augmentation de l'épaisseur du dépôt métallique de 30 à 100 nm conduit à l'effet inverse : les propriétés de barrière diminuent d'un facteur 1,5 à 2,5 lorsque l'épaisseur augmente. L'augmentation de l'épaisseur du dépôt métallique peut contribuer à le rendre plus fragile, car la souplesse diminue lorsque l'augmentation augmente, ainsi l'apparition de nouveaux micro-défauts de type craquelure n'est pas exclue. D'autres facteurs peuvent également expliquer ce résultat, par exemple l'utilisation de différents polymères, ou le processus de fabrication de la membrane (pré-traitement des films polymères, type de colle, etc.).
- 4. L'augmentation du nombre de couches métallisées conduit à la diminution des perméances, selon une loi proche de la théorie du laminé idéal (voir l'équation 3.57, dans le paragraphe 3.4.2). Selon ce principe, l'impact relatif de chaque nouvelle couche diminue, la configuration à trois couches semble être un cas optimal choisi pour la plupart des membranes barrières de haute qualité.

Chapitre 4 : Modélisation du vieillissement des PIV - Synthèse bibliographique

5. Comme indiqué précédemment, les conditions climatiques ont un impact énorme sur les propriétés de perméation. Les débits de vapeur d'eau et d'air sec peuvent augmenter d'un facteur dix pour une augmentation de température ou d'humidité relative assez importante.

4.3 Vieillissement théorique et expérimental, prédiction de la durée de vie

4.3.1 Modélisation en conditions climatiques constantes

4.3.1.1 Schwab *et al.*: modélisation du vieillissement en conditions climatiques constantes (ZAE-Bayern)

Pour une simulation à long terme, les mesures de perméances à l'air sec et à la vapeur d'eau menées par Schwab *et al.* [16] ont été utilisées pour calculer l'augmentation de la pression, de l'humidité et de la conductivité thermique de PIV en conditions climatiques constantes et homogènes sur 25 ans par Schwab *et al.* [122] [10]. Le cas T = 23 °C et $\phi = 75$ % HR a été choisi (il convient de noter que les mesures en Réf [16] sont faites à T = 25 °C et $\phi = 75$ % HR, conditions proches de celles utilisées ici).



FIGURE 4.7 – Évolution de l'humidité relative et du contenu en eau dans le temps, pour T = 23 °C et $\phi = 75$ % HR [10, 122]

L'évolution de la teneur en eau, calculée grâce à l'équation 4.24, est tracée figure 4.7 pour les trois enveloppes et deux tailles de panneau. L'augmentation d'humidité est beaucoup plus faible pour l'enveloppe AF que pour les autres, et elle est presque parfaitement linéaire. Pour MF2, elle est légèrement amortie, et pour MF1 l'amortissement est net : la perméation de la vapeur d'eau est si élevée que le niveau $\phi = 75$ % HR est atteint après environ 20 ans pour le petit panneau.

L'évolution de la pression interne a également été calculée, grâce à l'équation 4.23, et la conductivité thermique totale grâce à l'équation 4.25. Les résultats pour les panneaux réalisés avec l'enveloppe MF2 sont par exemple représentés sur la figure 4.8. L'augmentation de



FIGURE 4.8 – Évolution de la conductivité thermique dans le temps, pour T = 23 °C et $\phi = 75$ % HR [10, 122]

conductivité due à la pression est linéaire, alors que l'augmentation de conductivité due à l'humidité est légèrement amortie, comme on pouvait s'y attendre en observant la figure 4.7

Le critère de fin de vie utilisé dans cette étude est une conductivité thermique maximale de $6 \text{ mW}/(\text{m}\cdot\text{K})$ à partir d'une valeur initiale de $4 \text{ mW}/(\text{m}\cdot\text{K})$. La période au bout de laquelle ce critère est atteint, et donc la durée de vie théorique, est rapportée dans le tableau 4.8.

Taille	AF	MF1	MF2
$50 \times 50 \times 1 \mathrm{cm}^3$	80 ans	5 ans	16 ans
$100 \times 100 \times 2 \mathrm{cm}^3$	245 ans	10 ans	38 ans

TABLE 4.8 – Durée de vie pour des PIV de différentes tailles et avec différentes enveloppes [10, 122]

En conditions climatiques constantes et homogènes (T = 23 °C et $\phi = 75$ % HR), un panneau de taille $100 \times 100 \times 2 \text{ cm}^3$ ayant une silice pyrogénée comme matériau de cœur et une enveloppe MF2 a une durée de vie de 38 ans, qui est acceptable pour les bâtiments.

4.3.1.2 Tenpierik et Cauberg : modélisation de la durée de vie en conditions climatiques constantes (TU Delft)

A partir du modèle présenté dans le paragraphe 4.1.3.2, la durée de vie de plusieurs PIV contenant de la silice pyrogénée a été calculée, en fonction de la taille du panneau, du type d'enveloppe, et de la température, par Tenpierik et Cauberg [55] [13]. La durée de vie d'un PIV (épaisseur 2 cm, matériau de cœur : silice pyrogénée, humidité externe constante $\phi = 50$ % HR, enveloppe multicouche de films polymères métallisés) en fonction du rapport périmètre / surface et de la température est représentée sur la figure 4.9. Chaque ligne correspond à une iso-durée de vie, la valeur en année correspondant à chaque ligne est inscrite sur la ligne. Le critère de fin de vie est une conductivité totale au-dessus de 8 mW/(m·K), pour une conductivité initiale de $\lambda_{tot} = 4$ mW/(m·K). L'influence très forte et non linéaire de la température d'utilisation est claire sur cette figure.



FIGURE 4.9 – Durée de vie d'un PIV en fonction du rapport périmètre / surface et de la température (épaisseur 2 cm, matériau de cœur : silice pyrogénée, humidité externe constante $\phi = 50 \%$ HR, enveloppe multicouche de films polymères métallisés) [55]

4.3.1.3 Kwon *et al.* : modélisation de la durée de vie en conditions climatiques constantes (KAIST)

Des matériaux alternatifs pour les PIV ont été proposés par Kwon *et al.* [35, 98], différents des choix de conception classiques à base de silice pyrogénée pour le matériau de cœur et de membranes multicouches de films métallisés pour l'enveloppe. La durée de vie a été estimée pour ce genre de PIV alternatif. Le design proposé utilise pour le matériau de cœur un réseau de tiges de polycarbonate, intégré dans une double enveloppe à base de feuilles d'aluminium laminées. Ce matériau de base est censé optimiser le transfert de chaleur par rapport à des structures aléatoires que sont les poudres, mousses, ou fibres de verre. Mais cette conception est très exigeante en terme de vide à atteindre et à maintenir : la pression doit rester inférieure à 1 Pa pour conserver une très faible conductivité thermique.

Afin de ralentir l'augmentation de pression, deux feuilles d'aluminium laminées sont utilisées comme double enveloppe barrière aux gaz, une interne et une externe. La durée de vie est évaluée en tenant compte de l'augmentation de pression liée aux phénomènes suivants : perméation gazeuse à travers la partie courante des enveloppes, perméation gazeuse à travers les soudures des enveloppes, dégazage du matériau de cœur en polycarbonate, et dégazage du polyéthylène sur la face intérieure de l'enveloppe interne. Même avec ce type de double enveloppe, l'augmentation de pression est si rapide et le matériau de cœur si sensible à la pression que la durée de vie prévue par les simulations de vieillissement ne dépassent pas 2 ans [98] dans un climat tempéré (T = 25 °C, humidité non précisée). Une piste d'amélioration proposée consiste à ajouter des produits dessicants et des *pièges à gaz (getters*) dans le matériau de cœur, afin de ralentir l'augmentation de pression. Une durée de vie plus longue que 20 ans peut être atteinte dans ce cas.

4.3.2 Modélisation en conditions climatiques dynamiques

4.3.2.1 Simmler et Brunner : modélisation du vieillissement en conditions climatiques dynamiques (EMPA)

La méthode utilisant la température moyenne pondérée a été appliquée par Simmler et Brunner [14, 99] [10] pour estimer le vieillissement d'un PIV utilisé en isolation sur une toiture de type terrasse. La température sur les deux faces d'un tel PIV a été calculée grâce à l'outil de simulation de bâtiment HELIOS. L'augmentation de pression de l'air à l'intérieur d'un PIV a été mesurée à plusieurs températures et à une humidité élevée ($\phi \approx 80$ % HR). A partir de ces données, la température efficace selon la loi d'Arrhenius a été calculée, grâce à l'équation suivante :

$$\sum_{i} \left(\exp\left(\frac{E_{a,air}}{RT_i}\right) \Delta t_i \right) = \exp\left(\frac{E_{a,air}}{RT_{eff}}\right) \sum_{i} \Delta t_i$$
(4.42)

où $E_{a,air} = 50 \text{ kJ/mol}$ est l'énergie d'activation calculée à partir des valeurs expérimentales de l'augmentation de pression, et les T_i sont les températures calculées avec HELIOS aux différents pas de temps. Les résultats sont rapportés dans le tableau 4.9. Étant donné que la gamme des températures est beaucoup plus étroite sur la face intérieure, la méthode de calcul de la moyenne (arithmétique ou selon la loi d'Arrhenius) n'a aucun effet, alors que l'effet est sensible sur la face extérieure, qui est exposée à une plus large gamme des températures.

Quantité	Unité	Face intérieure du PIV	Face extérieure du PIV
T_{max}	[°C]	22,5	44,1
T_{min}	[°C]	19,9	-18,2
T_{ave}	[°C]	21,5	11,9
T_{eff} (Arrhenius)	[°C]	21,5	16,0
dp/dt (moyenne)	[mbar/an]	2,6	1,6
dp/dt (Arrhenius)	[mbar/an]	2,6	1,8
du/dt (moyenne)	[%/an]	0,21	0,09
du/dt (Arrhenius)	[%/an]	0,21	0,14

TABLE 4.9 – Résultats de simulation de vieillissement pour un PIV sur toiture de taille $50 \times 50 \times 2 \text{ cm}^3$ [10, 14, 99]

L'augmentation de conductivité thermique prévue, calculée grâce à l'équation 4.43 (pour les paramètres numériques, voir l'équation 4.44), est tracée sur la figure 4.10. Si le critère de fin de vie est une augmentation de la conductivité thermique de 4 mW/(m·K), la durée de vie est de 31,6 ans dans le cadre des hypothèses considérées ici [10, 14, 99].

$$\Delta\lambda(t) = \frac{\partial\lambda}{\partial p}\frac{dp}{dt}t + \frac{\partial\lambda}{\partial u}u_{equi}(1 - \exp(-t/\tau))$$
(4.43)

$$\Delta\lambda(t) = 0.035 \times 2.1 \times t + 0.5 \times 6.4(1 - \exp(-t/35.6))$$
(4.44)



FIGURE 4.10 – Évolution de la conductivité thermique d'un PIV en toiture de taille $50 \times 50 \times 2 \text{ cm}^3$ pour des conditions en humidité élevée [10, 14, 99]

4.3.2.2 Schwab *et al.*: modélisation et validation expérimentale du vieillissement en conditions climatiques dynamiques (ZAE-Bayern)

Schwab *et al.* [104] [10] ont implémenté le modèle d'intégration discrète présenté précédemment dans le paragraphe 4.1.4 et ils ont comparé les résultats à des données expérimentales. Des PIV ont été intégrés dans quatre types de paroi différents, où la température et l'humidité relative ont été mesurées et enregistrées pendant un an (pas de temps de la mesure : 1 heure). Dans une construction en bois, trois PIV de dimension $64 \times 34 \times 1,3$ cm³, fabriqués à partir de trois enveloppes différentes (AF, MF1 et MF2) ont été installés dans une structure de paroi en bois comme isolation thermique extérieure. La gamme de températures mesurées était T = [-15 °C - 50 °C] sur la face avant (vers l'environnement extérieur) et T = [5 °C - 30 °C] sur la face arrière (vers l'intérieur de la maison), et la gamme des humidités relatives mesurées a été $\phi = [25 \%$ HR - 100 % HR] sur la face avant et $\phi = [25 \%$ HR -80 % HR] sur la face arrière. Les augmentations de masse et de pression des PIV ont été mesurées et enregistrées, avant l'expérience du vieillissement et trois fois au cours de l'année de l'expérience.

A partir des valeurs enregistrées de la température et de l'humidité relative, les gains de pression et de masse ont été calculées grâce aux équations 4.15 et 4.19. Les perméances utilisées ont été calculées à partir des expériences de vieillissement en conditions climatiques constantes [16] et ajustées à l'historique des températures grâce aux équations 4.31 et 4.32. La comparaison entre les résultats de ces calculs et les résultats expérimentaux sont présentés à la figure 4.11b pour l'augmentation de pression et 4.11a pour l'augmentation de masse (teneur en eau).

Les résultats du modèle pour l'augmentation de la pression sont en bon accord avec les valeurs expérimentales, compte tenu de l'incertitude. L'évolution de pression expérimentale est presque linéaire, mais avec un décalage à l'origine, autour de 0,2-0,3 mbar, probablement en raison d'un dégazage initial du matériau de cœur ou de l'enveloppe.

Pour l'augmentation de la teneur en eau, les résultats sont dans l'intervalle d'incertitude des mesures pour AF, mais les valeurs sont très faibles, on peut donc difficilement tirer une conclusion pour cette enveloppe. Pour MF1 et MF2, les valeurs calculées de la teneur en eau



(a) Évolution de la pression interne dans le temps (b) Évolution de la masse (contenu en eau) dans le temps

FIGURE 4.11 – Évolution de la pression interne et du contenu en eau dans le temps en conditions climatiques dynamiques, pour un PIV intégré en isolation extérieure dans une structure bois [10, 104]

sont largement surestimées, elles sont 100 à 200 % plus élevées que les données expérimentales. Ce grand écart peut être attribuable au fait que dans le modèle, la forte dépendance de la perméabilité à la vapeur d'eau à l'humidité relative n'a pas été prise en compte.

4.3.2.3 Brunner et Simmler : modélisation et validation expérimentale du vieillissement en conditions climatiques dynamiques (EMPA)

Brunner et Simmler [126, 127] [10] ont utilisé la méthode utilisant la température moyenne pondérée avec des données climatiques pour une comparaison avec des résultats expérimentaux. Plusieurs PIV de taille $25 \times 25 \times 2 \text{ cm}^3$ et $50 \times 50 \times 2 \text{ cm}^3$ ont été installés dans deux espaces identiques de forme carrée, situés sur un toit plat dans les environs de Zurich. Sur un des deux espaces, la température et l'humidité relative entourant les panneaux ont été mesurées et enregistrées, et les panneaux du second espace ont été retirés à intervalle régulier pour mesurer la pression interne et le contenu en eau. La comparaison du taux d'accroissement de la teneur en eau et de la pression mesurée sur plus de deux ans avec les résultats du calcul, en utilisant les moyennes arithmétiques ou pondérées de la température (température efficace) sont dans le tableau 4.10. Les données de perméabilité utilisées pour le calcul proviennent de mesures en laboratoire, faites à 80 % d'humidité relative.

Les données expérimentales pour les augmentations de pression sont en bon accord avec le calcul basé sur la température efficace, alors que le calcul basé sur la moyenne arithmétique de la température sous-estime l'augmentation de pression. Pour la teneur en eau, l'accord n'est pas aussi bon, le calcul basé sur la température efficace donne une valeur surestimée de 70 % à 80 %. Cet écart pourrait être dû aux différences de valeur pour l'humidité relative entre l'espace où la température a été mesurée et l'espace où les panneaux ont été retirés, puisque l'ouverture répétée peut avoir participé au séchage des PIV. Le caractère transitoire du phénomène de perméation de la vapeur d'eau peut être une deuxième raison, puisque les périodes avec température et humidité élevées sont courtes, et que l'état d'équilibre du transfert peut ne pas être pleinement établi [126].

Taille de PIV	Quantité	Unité		Calculs		Mesures
			Intérieur	Extérieur	Moyenne	(774 jours)
$25 \times 25 \times 2 \text{ cm}^3$	$\Delta p_{air}(T_{eff})$		2,70	2,75	2,73	$2,7 \pm 0,2$
25 × 25 × 2 till	$\Delta p_{air}(T_{ave})$	mbar/an	2,50	1,63	2,07	
$50 \times 50 \times 2 \mathrm{cm}^3$	$\Delta p_{air}(T_{eff})$	iiiDai/aii	2,03	2,06	2,05	27 ± 0.2
	$\Delta p_{air}(T_{ave})$		1,88	1,23	1,56	$2,7 \pm 0,2$
$25 \times 25 \times 2 \text{ cm}^3$	$\Delta u(T_{eff})$		0,25	0,27	0,26	0.15 ± 0.02
$23 \times 23 \times 2011$	$\Delta u(T_{ave})$	07 massa/an	0,23	0,15	0,19	$0,15 \pm 0,03$
$50 \times 50 \times 2 \mathrm{cm}^3$	$\Delta u(T_{eff})$	% masse/ an	0,17	0,18	0,18	0.10 + 0.2
	$\Delta u(T_{ave})$		0,16	0,10	0,13	$0,10 \pm 0,2$

Chapitre 4 : Modélisation du vieillissement des PIV – Synthèse bibliographique

TABLE 4.10 – Évolutions de la pression partielle d'air sec et du contenu en eau, obtenues par mesure et par calcul à partir des données météo, pour des PIV utilisés en terrasse [126]

4.3.3 Vieillissement expérimental

4.3.3.1 Mukhopadhyaya et al.: vieillissement expérimental de PIV (NRC)

Mukhopadhyaya *et al.* [15] [10] ont mené une campagne expérimentale de vieillissement sur onze PIV, six ayant une feuille d'aluminium laminée, les cinq autres avec une membrane multicouche de films polymères métallisés, dans plusieurs conditions climatiques :

- 1. Conditions de laboratoire : T = 21 °C et $\phi = 50$ % HR (spécimens 9 et 10)
- 2. Humidité élevée : $T = 23 \text{ °C et } \phi = 90 \text{ \% HR}$ (spécimen 4)
- 3. Humidité élevée et température élevée : T = 32 °C et $\phi = 90$ % HR (spécimens 6 et 12)
- 4. Conditions cycliques : T = 21 °C et $\phi = 90$ % HR, puis T = 32 °C et $\phi = 90$ % HR (spécimens 3 et 8)
- 5. Cycle de surpression : 5 bars, puis 3 bars de pression externe (spécimens 2, 5, 7 et 11)



FIGURE 4.12 – Évolution de la résistivité thermique des PIV de la campagne expérimentale de vieillissement de PIV par Mukhopadhyaya *et al.* [15] [10]

La conductivité thermique de chaque panneau a été mesurée avant et au cours du vieillissement. Les résultats sont reportés sur la figure 4.12. Les conditions climatiques extérieures ont eu une faible influence sur la conductivité thermique, et la surpression n'a fait que compacter les panneaux, mais n'a pas induit de vieillissement accéléré. Les augmentations de la pression interne et du contenu en eau ont été mesurées uniquement au bout de deux ans, période pendant laquelle la plupart des panneaux ont été soumis à plusieurs conditions de vieillissement différentes. L'absence de mesures régulières de la pression et de l'humidité empêche de comprendre le motif de chacun des profils de vieillissement des PIV [10].

4.3.3.2 Wegger et al.: vieillissement expérimental accéléré de PIV (SINTEF/NTNU)

Des expériences de vieillissement de PIV ont été menées par Wegger *et al.* [17, 123], avec l'idée d'accélérer le processus de vieillissement afin d'obtenir plusieurs années de vieillissement en beaucoup moins de temps. Les conditions utilisées pour ces expériences étaient les suivantes :

- 1. Température élevée, selon le CUAP 12.01/30 (voir ci-dessous la signification) : 8 jours de cycles 8h à T = 80 °C / 16h à -15 °C, puis deux périodes de 90 jours à T = 80 °C.
- 2. Conditions climatiques cycliques, selon le NT Build 495 (voir ci-dessous la signification) : un cycle de 4 × 1 h comprenant chauffage (T = 63 °C), humidification, gel (T = -20 °C) et dégel en conditions de laboratoire.
- 3. Humidité et température : stockage dans une étuve (T = 70 °C) avec réservoir d'eau (humidité entre 90 et 100 % HR) pendant trois périodes de 30 jours.

« CUAP » signifie *Common Understanding for Assessment Procedure*, il s'agit d'une procédure de normalisation européenne pour les produits innovants qui ne sont pas couverts par une norme spécifique européenne, mais qui apportent néanmoins une amélioration significative à l'industrie. NT Build 495 est une méthode d'essai utilisée dans les pays nordiques, conçue pour étudier la dégradation des matériaux et composants positionnés verticalement dans l'enveloppe du bâtiment.



FIGURE 4.13 – Évolution de la conductivité thermique de PIV du vieillissement expérimental mené par Wegger *et al.* [17, 123]

La résistivité thermique et l'épaisseur de chaque panneau ont été enregistrées avant et pendant le vieillissement. Les résultats, exprimés en conductivité thermique, sont tracés sur

la figure 4.13. Les parties en pointillé des courbes correspondent à une défaillance prématurée du panneau, et la valeur finale est indiquée sur la figure (car les valeurs seraient hors cadre si l'échelle était respectée pour ces points). Malheureusement, de la même manière que pour les mesures du NRC, le manque de mesures régulières de la pression et de l'humidité, à l'intérieur mais aussi à l'extérieur des panneaux (pour les conditions du CUAP, l'humidité relative n'est pas spécifiée), empêche de quantifier les phénomènes de perméation gazeuse qui engendrent le vieillissement des panneaux.

4.3.4 Synthèse

À partir des travaux de modélisation et des résultats expérimentaux présentés dans cette section, il est possible de tirer les conclusions suivantes :

- 1. Les études présentes dans la littérature utilisent toutes un critère de fin de vie correspondant à une valeur maximale de la conductivité du PIV λ_{tot} . Ce critère n'est pas le plus pertinent lorsque l'on s'intéresse aux consommations énergétiques totales d'un bâtiment sur une période donnée, puisque ce qui rentre en jeu dans ce cas c'est l'intégrale des dépenditions thermiques, et donc l'intégrale de la conductivité thermique sur la période considérée. La valeur moyenne a donc beaucoup plus de sens que la valeur maximale en terme d'efficacité énergétique. Plus on s'écarte d'un comportement linéaire, plus l'écart entre les performances jugées par le critère de valeur maximale ou par le critère de valeur moyenne est grand, comme l'a illustré la figure 4.1 en tout début de chapitre. Les résultats ont néanmoins été reportés avec leur mode d'analyse originale, c'est-à-dire en considérant la valeur finale.
- 2. La modélisation du vieillissement de PIV a été réalisée pour des conditions climatiques constantes. Il en a été déduit que l'utilisation de PIV en application de longue durée dans les bâtiments est possible si certaines conditions sont respectées. Au moins trois critères doivent être respectés : les propriétés barrières de l'enveloppe doivent être suffisamment bonnes (meilleurs produits disponibles dans la gamme des membranes multicouches à base des films polymères métallisés), le rapport périmètre / aire des panneaux doit être faible (valeur préférable : $P_{vip}/A_{vip} < 4$, par exemple $100 \times 100 \times 2 \text{ cm}^3$), et les conditions climatiques doivent rester dans une gamme modérée de sollicitations en température et humidité (température inférieure à T = 23 °C et humidité inférieure à $\phi = 75$ % HR). Dans ces conditions, pour une conductivité de PIV initiale de $\lambda_{tot} = 4 \text{ mW}/(\text{m-K})$, l'augmentation de la conductivité thermique est estimée à $\Delta \lambda_{tot} = 2 \text{ mW}/(\text{m-K})$ pour 38 ans dans le modèle proposé par Tenpierik et Cauberg [55]. Dans les deux cas, la durée de vie et la dégradation entre la performance initiale et la performance finale sont compatibles avec une application bâtiment.
- 3. La modélisation du vieillissement a également été menée pour des PIV utilisés comme isolants extérieurs sur une toiture, en conditions dynamiques censées être représentatives des conditions réelles dans un climat tempéré (température moyenne pondérée inférieure à T = 22 °C) et pour une taille de panneau intermédiaire ($50 \times 50 \times 2 \text{ cm}^3$). Les résultats sont légèrement moins optimistes que pour les conditions constantes présentées ci-dessus, l'augmentation de la conductivité thermique est estimé à $\Delta \lambda_{tot} = 4 \text{ mW}/(\text{m-K})$ pour 30 ans dans le modèle proposé par Simmler et Brunner [14].
- 4. La comparaison entre les résultats de simulations et les mesures sur des PIV utilisés pour de l'isolation extérieure, en conditions climatiques dynamiques, conduit à des

observations analogues pour les deux études différentes présentées par Schwab *et al.* [104] (PIV intégrés dans une paroi verticale en bois) et Brunner et Simmler [126] (PIV sur une toiture). La prévision de l'augmentation de la pression est plutôt bonne, avec une erreur entre simulation et expérience inférieure à 25 %. En revanche l'augmentation de la teneur en eau est systématiquement surestimée dans les simulations, de 50 % à 200 % au-dessus de la valeur expérimentale. Cet écart met en évidence le manque de modélisation réaliste de la perméation de la vapeur d'eau, en particulier la forte influence de l'humidité relative sur la perméance à la vapeur d'eau, fait expérimental qui n'est pas implémenté dans les modèles présentés ici.

5. Les campagnes expérimentales de vieillissement de PIV présentent une complexité certaine, d'autant plus lorsqu'elles sont destinées à valider les modèles et les résultats de simulation. En effet, pour des expériences où la conductivité thermique est la seule propriété qui est mesurée, comme c'est le cas pour les mesures rapportées par Mukhopadhyaya *et al.* [15] et Wegger *et al.* [123], il n'est pas possible de distinguer l'influence de l'air sec de l'influence de l'eau (sous forme de vapeur d'eau ou d'eau adsorbée sur le matériau de cœur). Il n'est donc pas possible de vérifier la validité des hypothèses concernant la perméation de l'air sec et de la vapeur d'eau à travers l'enveloppe, et la fiabilité du modèle ne peut être estimée par ce type de mesures.

4.4 Conclusion

Les panneaux d'isolation sous vide sont des systèmes d'isolation thermique très efficaces, capables d'augmenter l'efficacité énergétique des bâtiments en utilisant une empreinte au sol minime. Mais la haute performance thermique d'un PIV ne doit pas cacher la question de sa durabilité. La durée de vie n'est assurée que si la capacité à maintenir une faible pression et un faible taux d'humidité sur une durée suffisante est prouvée, puisque la performance thermique est principalement due au vide et à la faible teneur en humidité dans les PIV.

Un modèle semi-empirique de transfert thermique peut être utilisé pour prédire la conductivité thermique d'un PIV contenant de la silice nanoporeuse en fonction de la température, de la pression interne et de la teneur en eau du matériau de cœur. À chaque mode de transfert thermique (radiatif, conductif, gazeux et pont thermique de l'enveloppe) correspond une expression analytique simple. L'augmentation de conductivité thermique due au vieillissement d'un PIV est la somme de deux contributions. La première est liée à l'augmentation de la pression totale à l'intérieur du panneau, selon la relation de Knudsen. La seconde est liée à l'augmentation de l'humidité, qui peut être modélisée avec une bonne approximation par une fonction linéaire de la teneur en eau dans le matériau de cœur. Les paramètres de ces fonctions peuvent être obtenus expérimentalement. La pente de ces fonctions doit être aussi faible que possible pour assurer une durée de vie maximale. Avec des pentes faibles, l'augmentation de la pression ou de la teneur en eau conduirait à une augmentation faible de la conductivité. Pour la modélisation du vieillissement, la distinction des débits d'air sec et de vapeur d'eau à travers l'enveloppe barrière aux gaz est nécessaire pour prédire l'évolution de la pression interne et de l'humidité, afin d'obtenir une estimation de la durée de vie.

La théorie de transfert de masse pour la perméation des gaz atmosphériques à travers les enveloppes de PIV est basée sur le modèle de sorption-diffusion, initialement conçu pour

Chapitre 4 : Modélisation du vieillissement des PIV - Synthèse bibliographique

la perméation à travers des membranes polymère homogènes. Ce modèle a été adapté aux membranes barrières aux gaz utilisées comme enveloppes pour les PIV, qui sont des membranes multicouches contenant des films polymères métallisés. Les débits de gaz sont, dans ce modèle, proportionnels au gradient de pression partielle de chaque gaz considéré, vapeur d'eau et air sec. La dépendance en température de la perméation de l'air sec à travers un film polymère aluminisé est principalement due aux propriétés de polymère, selon une thermo-activation de type Arrhenius. Pour la perméation de la vapeur d'eau, la dépendance en température semble être due à la fois au film polymère servant de substrat aux films métallisés, et à des interactions entre les molécules d'eau et la couche de dépôt métallique. La dépendance à la température semble être correctement implémentée dans les modèles de perméation, tandis que l'influence de l'humidité n'est pas prise en compte, en dépit d'une nette influence observable sur de nombreuses données expérimentales.

Des simulations ont été menées, sur la base de données expérimentales, afin d'estimer la durée de vie en conditions climatiques constantes ou dynamiques. Les modèles de transferts de masse et de transferts thermiques ont été utilisées dans ces simulations. La modélisation des transferts de masse appliquée à la perméation de l'air sec et de la vapeur d'eau permet de prévoir l'augmentation de pression et d'humidité dans les PIV au cours du temps. La modélisation des transferts thermiques est utilisée pour la prédiction de la conductivité thermique apparente des PIV en fonction de la température, de la pression interne et de la teneur en eau du matériau de cœur. Pour de bonnes propriétés barrière, des panneaux de grandes tailles et dans un climat aux sollicitations modérées, la durée de vie prévue est compatible avec une application de construction. L'augmentation de la conductivité est en effet estimée à des valeurs inférieures à 4 mW/(m·K) pour 50 ans, en prenant une conductivité initiale entre 4 et $5 \,\mathrm{mW}/(\mathrm{m}\cdot\mathrm{K})$ selon les études. Sur de courtes durées, le comportement est proche d'une évolution linéaire. En revanche, pour un vieillissement important, l'augmentation de la contribution de l'eau s'amortit, du fait de l'équilibre entre humidité externe et humidité interne qui est approché. Plus le contenu en eau du matériau de cœur augmente, plus une approche en valeur moyenne de λ_{tot} et non pas en valeur maximale se justifie, afin de rendre compte de l'impact réel sur la consommation énergétique du bâtiment.

La comparaison des simulations numériques et des expériences de vieillissement dans des conditions climatiques dynamiques a montré un bon accord pour l'augmentation de la pression, alors que l'augmentation d'humidité est dans les simulations systématiquement surévaluée par rapport aux résultats expérimentaux. Selon les durées de vie prévues par les simulations numériques, on peut déduire que des conditions en température et humidité modérées sont compatibles avec des applications de longue durée (par exemple isolation thermique intérieure pour des bâtiments en climat tempéré ou froid). Les simulations donnent des résultats conservatifs, c'est-à-dire une durée de vie estimée qui est inférieure à la valeur réelle. Dans des conditions plus extrêmes, telles que l'isolation extérieure, ou l'isolation de combles, où la température et l'humidité peuvent atteindre des valeurs élevées, l'utilisation de PIV ne peut pas être conseillée en toute sécurité aujourd'hui. Pour ces applications, le modèle conservatif aura tendance à prévoir un vieillissement prématuré tandis que le vieillissement réel peut être suffisamment lent pour assurer la durée de vie requise.