

# LA SPÉCIFICATION DES GÉOMEMBRANES DE POLYÉTHYLÈNE VIS-À-VIS DE LA DURABILITÉ

## THE SPECIFICATION OF DURABILITY REQUIREMENTS FOR POLYETHYLENE GEOMEMBRANES

Eric BLOND<sup>1</sup>, Guy ÉLIE<sup>2</sup>, Dominique KAY<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Groupe CTT – Division Geosynthétiques (SAGEOS), St-Hyacinthe (Québec), Canada

<sup>2</sup> Solmax International, Varennes (Québec), Canada

**RÉSUMÉ** – Après avoir survolé la spécificité des géomembranes parmi les autres produits à base de polymères et les différents modes de dégradation possibles d'une géomembrane de polyéthylène, une comparaison des exigences de durabilité de la spécification standard GRI GM13 utilisée en Amérique du Nord avec celles des normes d'application européennes (notamment EN 13492) est conduite. Il est montré que leur contenu technique est qualitativement similaire, bien qu'adapté aux besoins des manufacturiers dans le premier cas et à ceux des utilisateurs dans le deuxième cas. L'impact potentiel du manque d'exigences précises de la norme EN 13492, relativement à la fréquence du contrôle en usine des produits, est cependant discuté.

**Mots-clés** : géomembrane, polyéthylène, durabilité, spécification, conformité

**ABSTRACT** – An overview of the technical requirements of geomembranes is first conducted and compared with those of other polymeric materials. The degradation mechanisms of polyethylene are then presented. The durability requirements specified in GRI GM13 as well as in EN 13492 are then compared. It is shown that the technical requirements are overall similar, although they are respectively built to serve the manufacturers (GRI GM13) or the users (EN 13492). However, the lack of specific testing frequencies of EN 13492 is discussed as well as its potential effects on actual materials conformance to the European standard.

**Keywords**: geomembrane, polyethylene, durability, specification, conformance

### 1. Introduction

La part de marché des géomembranes de polyéthylène n'a cessé d'augmenter depuis leur introduction dans les années 1970. En effet, ces matériaux offrent un complément économique à l'étanchéité argileuse, en offrant une barrière d'étanchéité active disposant d'une faible variabilité intrinsèque, contrairement aux matériaux naturels. Le concept d'étanchéité synthétique, associé à une stratégie de contrôle de la qualité très serrée tant lors de la production qu'à la livraison et l'installation, a donc facilement pénétré le marché de l'étanchéité et fait maintenant partie des conceptions classiques.

Cependant, si l'utilisation de polymères dans le domaine de la construction est généralisée, les exigences de durabilité peuvent être très différentes d'une application à l'autre. Ainsi, les durées de vie requises pour des géomembranes peuvent parfois excéder 100 ans. De plus, les conséquences associées à une rupture d'étanchéité peuvent être dramatiques en termes de coûts et de dommages à la santé humaine, contrairement à des applications moins nobles.

Dans ce contexte, l'industrie des géomembranes s'est intéressée très tôt à la compréhension des mécanismes de dégradation du polyéthylène dans le contexte spécifique de leur application, ainsi qu'aux moyens de les contrôler. Dans le cadre de cette démarche, de nombreuses recommandations relatives à la conception d'ouvrages de confinement ont été produites, et la formulation du produit a été améliorée année après année. Progressivement, les critères de contrôle de la qualité du produit fini se sont recentrés vers les mécanismes de dégradation du polyéthylène les plus pertinents pour les applications environnementales, en plus des propriétés habituellement considérées pour des applications traditionnelles de matériaux de construction.

Dans ce document, les spécificités du marché des géomembranes seront comparées à celles d'autres applications des polymères dans un premier temps. Les modes de dégradation propres au polyéthylène seront ensuite décrits, à la suite de quoi les pratiques de spécification et de contrôle de la durabilité des produits européennes et nord-américaines seront comparées et discutées.

## 2. Les polymères et la singularité de leurs applications environnementales

### 2.1. Grands domaines d'application des polymères

Les polymères, et tout particulièrement le polyéthylène, constituent une des principales révolutions techniques du XX<sup>ème</sup> siècle. Ils sont utilisés pour un nombre extraordinaire d'applications et à tous les échelons de la vie. On peut par exemple citer :

- le domaine alimentaire (procédés de fabrication d'aliments, emballages...);
- les textiles et l'habillement ;
- la santé et la médecine (prothèses, outils de chirurgie) ;
- le matériel de maison (meubles, vaisselle, accessoires...);
- l'électronique et les communications (téléphonie, informatique) ;
- l'automobile et les moyens de transport ;
- la production industrielle (tuyauterie, valves, réservoirs...);
- le transport d'énergie (gainés de câbles électriques) ;
- le mobilier urbain (permanent ou temporaire) ;
- le bâtiment (drains, pare-vapeur, toiture, fenêtres...);
- le génie civil, dont les applications environnementales.

Le fait que ces matériaux aient progressivement remplacé la plupart des solutions traditionnelles, ou encore permis d'ouvrir de nouveaux horizons technologiques, est essentiellement lié à la possibilité de développer un polymère ou une combinaison de polymères qui pourra répondre à quasiment n'importe quel cahier des charges. En effet, il est en théorie possible de conférer à un polymère une structure moléculaire lui procurant des propriétés intrinsèques spécifiques, puis de le mettre en forme de telle façon que le produit fini sera en mesure de rencontrer les exigences du cahier des charges.

Le fait d'omettre la définition adéquate du cahier des charges, qui aurait pour conséquence probable l'utilisation d'un type de polymère à mauvais escient, mènera probablement à une rupture catastrophique. À titre d'exemple, on peut citer l'utilisation d'un objet conçu pour l'intérieur d'une maison (pièce de mobilier d'intérieur, jouet, etc.) à l'extérieur de la même maison. Le cahier des charges dudit objet n'incluant qu'une exposition réduite au rayonnement solaire, il est fréquent que le produit ne soit pas conçu pour résister au rayonnement solaire, sa durée de vie utile s'en verra de ce fait grandement réduite s'il est exposé.

Ainsi, si il est théoriquement possible de développer n'importe quel produit avec un matériau polymérique, le succès de cette démarche repose cependant dans une définition adéquate du cahier des charges. Pour certaines applications, l'esthétique sera un facteur déterminant (couleur, lustre). Dans d'autres cas, l'odeur pourra jouer un rôle essentiel (simili-cuir utilisés en automobile). La résistance à la déchirure, la perméabilité aux gaz et l'élongation à la rupture sont des critères de choix essentiels au choix des emballages alimentaires. Dans tous les cas, l'obtention des propriétés recherchées avec un minimum de matières premières et la facilité de mise en œuvre seront des critères décisionnels.

### 2.2. Survol d'un cahier des charges typique de géomembrane de polyéthylène

Dans le domaine environnemental, les principaux critères de sélection d'une formulation appropriée des polymères utilisés pour la fabrication des géomembranes peuvent être classés en trois grandes catégories :

- contraintes de mise en forme : le produit doit pouvoir être fabriqué en grande largeur et doit pouvoir être assemblé sur chantier, en tenant compte des compétences de la main d'œuvre locale et de la disponibilité d'outils adaptés ;
- contraintes fonctionnelles : le produit doit pouvoir résister aux contraintes mécaniques, chimiques ou autres associées à sa fonction ;
- durabilité : le produit doit maintenir ses propriétés dans son environnement de service, pendant une période excédant la durée de vie anticipée de l'ouvrage.

Les contraintes de mise en œuvre et les contraintes fonctionnelles du polyéthylène sont gérées par le choix d'un type de polyéthylène adapté (résine de base). Cet aspect a fait l'objet d'innombrables travaux depuis plusieurs décennies, en fait depuis la première apparition des géomembranes. En effet, l'ingénierie des géomembranes repose en très grande partie sur la maîtrise de leur mise en œuvre et

sur la façon de gérer leur interaction avec leur environnement immédiat : résistance chimique, poinçonnement hydrostatique, angle de frottement à l'interface, qualité des soudures, etc.

Les contraintes de durabilité sont quant à elles gérées d'une part lors de la sélection de la résine de base, d'autre part lors de la formulation détaillée du produit par le fabricant. Afin de conférer au produit fini la durabilité requise, celui-ci procède en effet à l'adjonction d'additifs chimiques à la résine de base, dans une proportion variant de 2 à 5%, tous additifs confondus.

Il faut souligner que les exigences de durabilité des géomembranes de polyéthylène constituent la principale singularité de ce matériau en comparaison avec les autres applications des polymères. En effet, la durée de vie attendue pour une géomembrane diffère très largement de celles que l'on peut rencontrer dans d'autres applications, tel qu'illustré dans le tableau I.

Tableau I. Durée de vie utile et conséquences d'une rupture par type d'application

Application	Durée de vie utile	Conséquences d'une rupture prématurée
Emballages	Jours >> semaines	Aucune
Jouets, accessoires	Semaines >> années	Pas significatives
Automobile	Décennie	Économiques (modéré)
Transport d'énergie	Quelques décennies	Économiques (moyen à élevé)
Bâtiment et génie civil	Quelques décennies	Économiques (élevé)
Environnement	Quelques décennies >> siècle(s)	Économiques (élevé) + santé humaine

Compte tenu de ces éléments, il apparaît évident que la connaissance précise des mécanismes de dégradation du polyéthylène et de la façon de les gérer est un élément essentiel au succès de ces matériaux pour les applications environnementales. Ces éléments sont décrits dans les paragraphes suivants, ainsi que la façon de les gérer à l'étape de la spécification des produits.

## 2. Principales propriétés du polyéthylène et mécanismes de dégradation

### 2.1. Structure moléculaire

Dans le domaine du génie civil ou environnemental, les polyéthylènes sont couramment utilisés non seulement pour la fabrication de géomembranes mais aussi pour d'autres produits géosynthétiques, comme les géo-espaces, les géogrilles, ou les tuyaux. Cependant, tant la résine de base que le type d'additifs utilisés varient du tout au tout.

Le polyéthylène (PE) est un polymère constitué de grosses molécules formées par l'assemblage (polymérisation) de motifs structuraux identiques correspondant à la petite molécule (monomère) utilisée pour leur synthèse. Le PE résulte de la polymérisation de l'éthylène ( $C_2H_4$ ). La figure 1 présente la structure du PE qui est composé de carbone "C" et d'hydrogène "H".

Les méthodes industrielles de synthèse de l'éthylène peuvent conduire à des structures moléculaires comportant, soit des segments de chaînes ramifiées à une chaîne principale (polyéthylène basse densité), à une structure très linéaire avec très peu de ramifications (polyéthylène haute densité) ou à une structure linéaire avec de courtes ramifications (polyéthylène basse densité linéaire).

Les propriétés du produit fini sont entre autres influencées par les paramètres suivants :

- la longueur des chaînes moléculaires, qui dépend du degré de polymérisation (nombre  $n$  sur la figure 1), c'est-à-dire le nombre  $n$  de fois que le monomère  $CH_2-CH_2$  s'additionne le long des chaînes. Typiquement, le degré de polymérisation des résines utilisées en industrie est très élevé et mène à des masses moléculaires moyennes supérieures à 200 000 g/mol.;
- la distribution de masse moléculaire, c'est-à-dire la distribution des longueurs de chaînes dans un mélange (figure 2), ou encore la distribution des nombres  $n$  de la figure 1 dans un ensemble de molécules.

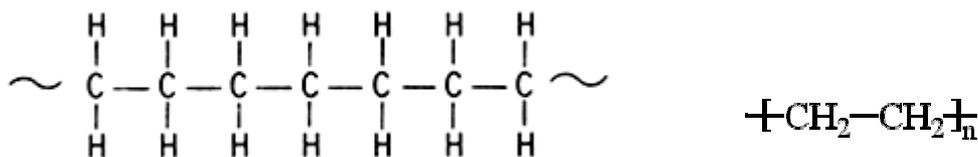


Figure 1. Composition chimique du polyéthylène.

On peut en outre souligner que les polyéthylènes sont des polymères à structure semi-cristalline, c'est à dire que la résine est constituée :

- d'une fraction amorphe, pour laquelle les chaînes de polymère n'ont pas d'orientation spécifique, et
- d'une fraction cristalline qui est constituée de chaînes organisées en groupes compacts et orientés.

Le taux de cristallinité, utilisé pour caractériser cette propriété, dépend de l'aptitude des chaînes à former des cristaux. Cette caractéristique est essentiellement influencé par la structure moléculaire de la résine (longueurs des chaînes, distribution de masse moléculaire, linéarité des chaînes, etc.), mais aussi par le processus de fabrication et notamment la vitesse de refroidissement imposée lors de la mise en forme du produit.

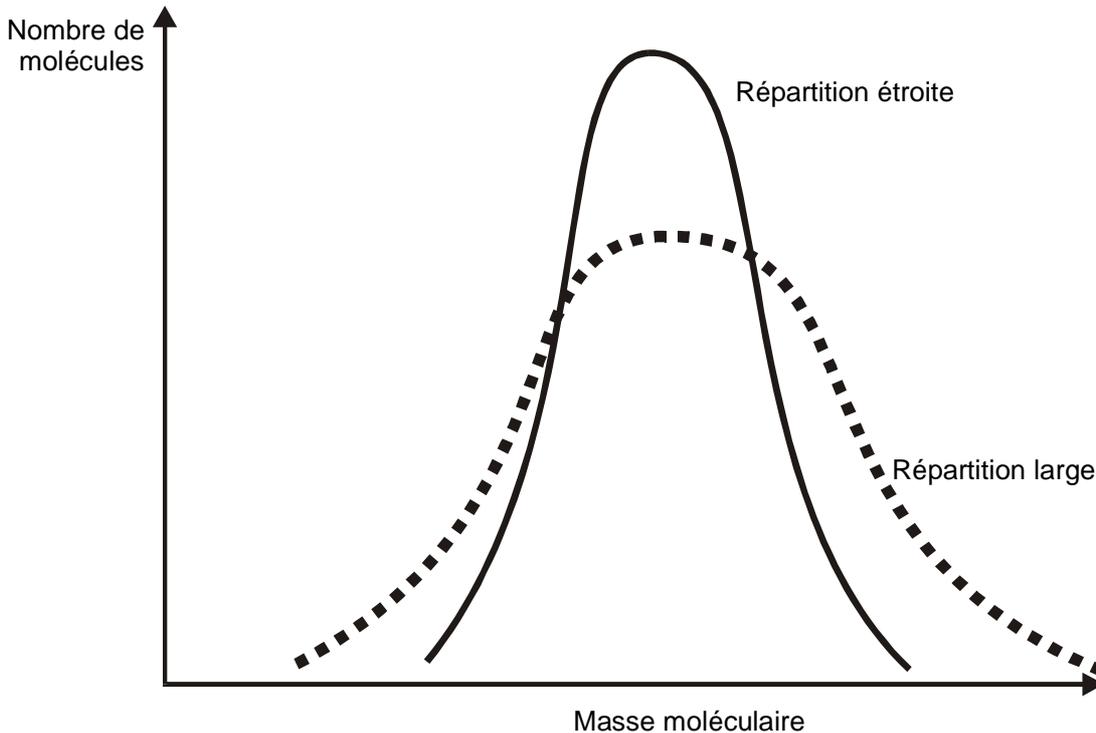


Figure 2. Distribution de masse moléculaire.

## 2.2. Mécanismes de dégradation

### 2.2.1. Généralités

Du fait de leur nature non polaire, les polyéthylènes sont très résistants aux agressions chimiques. Ils exhibent une très faible perméabilité à l'eau comme aux gaz et sont quasiment insolubles à une température inférieure à 60°C. Ils ne sont attaqués ni par les acides (à l'exception de certains acides oxydants), ni par les alcalins, ni par les solutions salines.

Si la phase cristalline est quasi-imperméable à l'infiltration de composés chimiques, la phase amorphe est quant à elle un peu plus sensible. Par exemple, les hydrocarbures halogénés comptent parmi les quelques composés chimiques susceptibles de dégrader sévèrement les polyéthylènes. Certains autres composés, comme les huiles minérales, les hydrocarbures aromatiques et aliphatiques ou les agents fortement oxydants peuvent aussi affecter le polyéthylène lors d'exposition prolongée. Ces agents chimiques peuvent provoquer le gonflement, la plastification et la micro-fissuration du polyéthylène. Les agents chimiques à potentiel oxydant élevé en forte concentration peuvent aussi provoquer la rupture de chaîne. La diffusion et l'extraction de certains types d'additifs peut aussi devenir problématique pour certaines applications.

Du fait de son taux de cristallinité très élevé, le polyéthylène haute densité (PEHD) est plus résistant aux agressions chimiques que le polyéthylène à basse densité linéaire (PEBDL). Cependant, les PEHD peuvent être sensibles à la fissuration sous contrainte en présence de certains agents, ce qui n'est pas

le cas du PEBDL. Le phénomène de fissuration sous contrainte est décrit de façon plus détaillée en 2.2.2.

L'oxydation (thermo-oxydation, photo-oxydation, oxydation chimique) est le principal mécanisme de dégradation de nature chimique (affectant l'intégrité des molécules de polyéthylène). Ce phénomène est décrit de façon plus précise en 2.2.3 et 2.2.4. Une stabilisation adéquate impliquant l'ajout d'additifs tels que les antioxydants ou des stabilisateurs UV permet cependant de conférer au produit une durabilité satisfaisante.

La température de transition vitreuse du polyéthylène étant très faible (de l'ordre de  $-70$  à  $-120^{\circ}\text{C}$ ), la mobilité des chaînes est relativement aisée. Par conséquent, des phénomènes tels que la post-cristallisation, le fluage ou la relaxation sont susceptibles de se produire, particulièrement pour le PEBDL.

### 2.2.2. La résistance à la fissuration sous contrainte

La fissuration sous contrainte consiste en la rupture fragile d'un échantillon de matériau mis sous tension, en présence d'un agent chimique accélérateur. Ce mode de rupture diffère du fluage dans le fait que, bien que la contrainte soit appliquée sur une surface relativement importante, la déformation se produit sur une petite section et conduit à plus longue échéance à une rupture complète du matériau. De plus, le niveau de contrainte associé à une rupture du matériau est généralement inférieur à la moitié de la résistance au seuil d'écoulement du matériau.

À l'échelle moléculaire, ce type de rupture se produit dans la phase amorphe du polymère. En effet, du fait de la structure semi-cristalline du polyéthylène, un certain nombre de molécules de la phase amorphe établissent une liaison entre deux éléments cristallins voisins l'un de l'autre. Cette liaison est assurée par l'enchevêtrement de molécules les unes au travers des autres. Lorsque ce polyéthylène est mis sous contrainte en présence d'un agent lubrifiant, une rupture par fissuration sous contrainte peut se produire : les molécules de liaison se trouvent étirées jusqu'à ne plus pouvoir assurer la liaison entre les deux lamelles cristallines qu'elles maintenaient ensemble, tel qu'illustré sur la figure 3. Les figures 4 et 5 montrent quant à elles une vue microscopique de la section d'une pièce de polyéthylène rompue par fissuration sous contrainte, ainsi qu'une géomembrane fissurée par le même procédé.

Une des caractéristiques de la rupture par fissuration sous contrainte est qu'elle laisse une surface de rupture relativement lisse au toucher, dans la mesure où les éléments cristallins du polyéthylène n'ont pas été affectés.

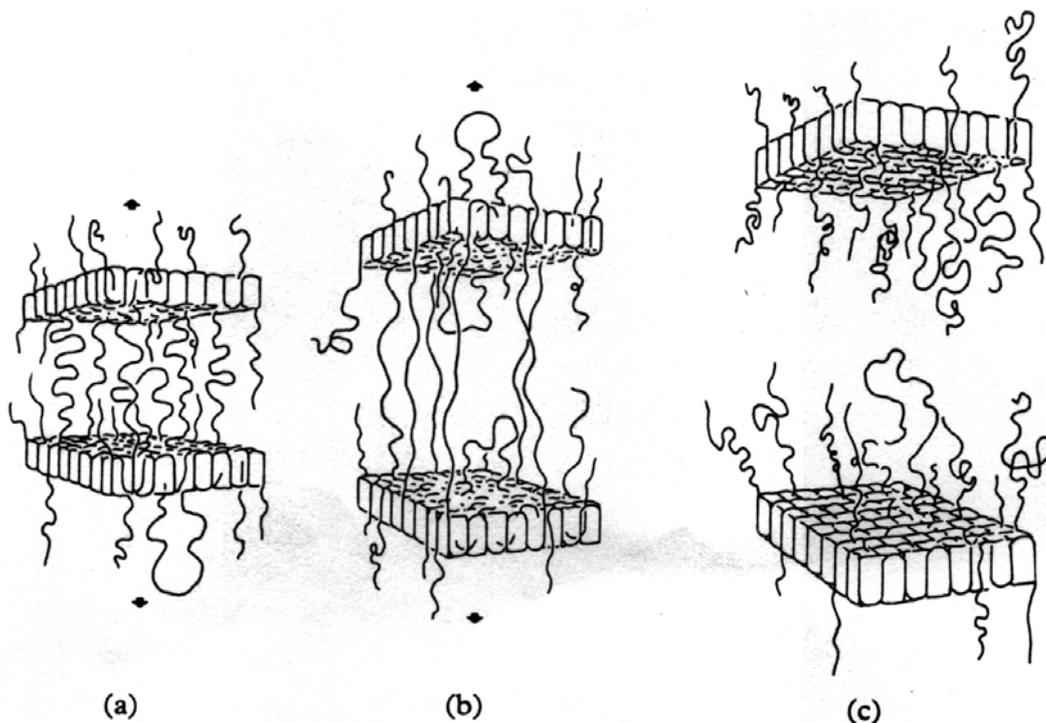


Figure 3. Illustration du mécanisme de rupture par fissuration sous contrainte : (a) lamelles de la phase cristalline liée par les molécules de liaison, (b) processus de séparation des phases, (c) propagation de la rupture entre les lamelles (d'après Lustiger et Markman, 1985)

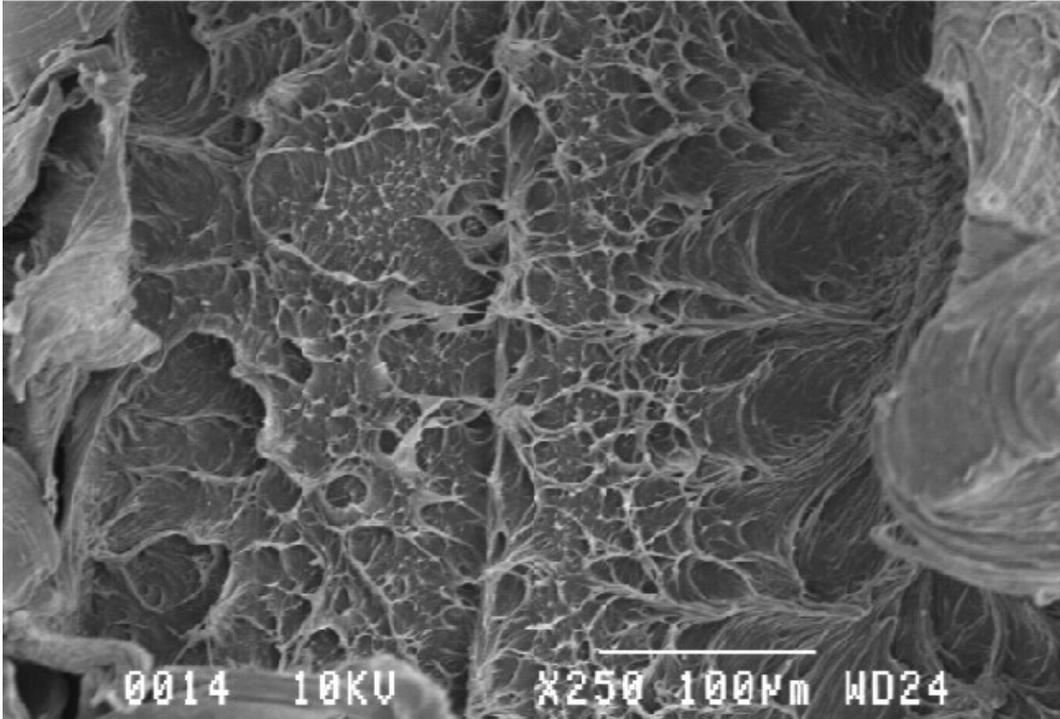


Figure 4. Vue microscopique d'une rupture par fissuration sous contrainte

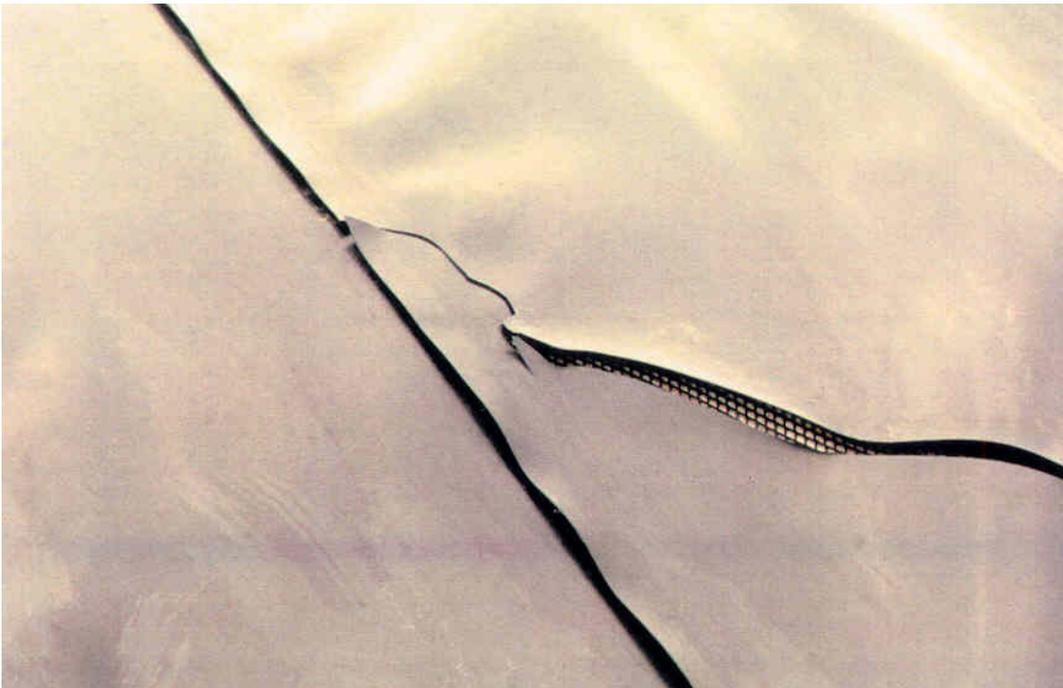


Figure 5. Rupture par fissuration sous contrainte d'une géomembrane

Hsuan (2000) a conduit une étude exhaustive du phénomène de rupture par fissuration sous contrainte. Suite à ces travaux, une courbe de rupture typique liant le temps de rupture observé dans un essai ASTM D5397 à la contrainte appliquée a pu être construite, laquelle est reproduite sur la figure 6. Cette courbe peut être séparée en essentiellement deux droites distinctes de pentes différentes et décrivant des modes de rupture différents :

- pour des niveaux de contrainte variant entre environ 20 et 45% de la résistance au seuil d'écoulement du produit, la rupture est de type fragile, c'est à dire correspondant au mode de fissuration sous contrainte étudié. À ces niveaux de contrainte, le taux de séparation des molécules illustré sur la figure 3 est plus rapide que le taux de fluage du matériau ;
- pour des niveaux de contrainte supérieurs, le mode de rupture dominant est le fluage. Dans ce cas, le phénomène de fissuration sous contrainte n'apparaît plus dominer le mécanisme de dégradation du produit.

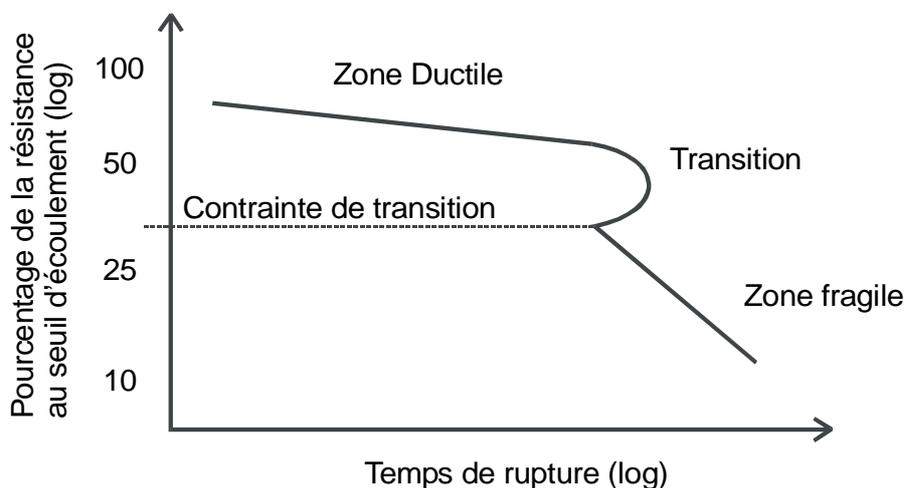


Figure 6. Courbe illustrant le temps de rupture et la transition ductile / fragile de géomembranes PEHD (d'après Hsuan, 2000).

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, ainsi que d'autres propriétés propres aux molécules de polyéthylène en dehors de la portée de ce document (nombre d'arborescences, etc.). Une approximation classique passe par l'observation de la densité de la résine d'une part (laquelle est influencée par l'ensemble des autres paramètres) et du taux de cristallinité.

### 2.2.3. Oxydation thermique

L'oxydation thermique du polyéthylène est initiée par l'énergie provenant d'une température élevée. Elle implique l'altération des liaisons moléculaires au sein des chaînes de polymère.

Une liaison moléculaire est caractérisée par une énergie de liaison, qui est dépendante du type d'élément impliqué dans cette liaison (par exemple carbone – carbone, carbone – hydrogène, etc.), ainsi que des autres liaisons moléculaires avoisinantes. Plus l'énergie de liaison est élevée, plus la liaison est stable. Le tableau II propose des valeurs d'énergie de liaison impliquées dans la stabilité de différents polymères utilisés couramment dans les géosynthétiques.

Tableau II: Énergies de liaison moléculaires typiquement rencontrées dans les polymères utilisés pour la fabrication de géosynthétiques (d'après R.B. Atlas Inc).

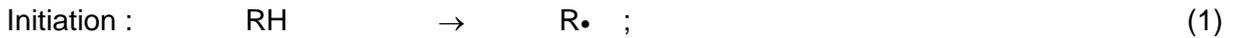
Bond	Énergie de liaison (Kcal/mol)
C=O	174
C-C (aromatique)	124
C-H (méthane)	102
C-Cl (Methyl Chloride)	84
RO-OR (Hydroperoxide)	36

L'énergie procurée par la chaleur induit une vibration à l'échelle de la molécule. La probabilité de dissociation augmente au fur et à mesure que l'énergie de vibration augmente et se rapproche de l'énergie de liaison. Cette éventuelle rupture d'une liaison peut mener à la fragmentation de la chaîne moléculaire et à la formation de radicaux libres, qui peuvent alors réagir avec les liaisons environnantes et propager la dégradation.

La dégradation thermique se produit normalement à l'étape de la mise en forme du produit où la résine est portée à des températures élevées. Les modifications de structures ainsi causées affectent non seulement les propriétés finales de la résine, mais sensibilisent également cette dernière à d'autres types de dégradation susceptibles de survenir ultérieurement, comme la photo-oxydation.

En présence d'oxygène, la dégradation thermique conduit à la thermo-oxydation, qui a été décrite de façon exhaustive par Hsuan et Koerner (1998). De façon générale, le mécanisme de réaction accepté implique trois étapes de réactions en chaîne, soit des réactions d'initiation, de propagation et de terminaison :

- la réaction d'initiation peut être causée par l'oxygène, le cisaillement, la chaleur, les résidus de catalyseurs ou toute combinaison de ces facteurs. Cette réaction cause la rupture d'une liaison chimique et la formation d'un radical libre (réaction 1).



- le radical libre ainsi formé réagit rapidement avec l'oxygène dissous dans le polymère et forme un radical peroxyde très réactif (réaction 2), qui arrache facilement un atome d'hydrogène d'une chaîne voisine pour former un hydroperoxyde et un autre radical libre (réaction 3) ;



En plus du radical libre R• régénéré par la réaction 3, les hydroperoxydes formés par cette réaction se décomposent facilement en radicaux libres sous l'action de la chaleur ou des radiations. Leur durée de vie dans les conditions de mise en forme est très courte et ils se décomposent en radicaux RO• et •OH. Ces deux radicaux peuvent attaquer d'autres chaînes et accélérer la vitesse de dégradation (cycle d'auto-oxydation).

Les réactions de propagation se poursuivent jusqu'à ce que les radicaux soient neutralisés, soit par couplage entre eux, soit par l'action d'un antioxydant.

Dans la continuité de ces travaux, Hsuan et Koerner décrivent aussi les différentes étapes de l'oxydation typiquement observables pour des polyoléfines (essentiellement les polyéthylènes et polypropylènes). Essentiellement, la thermo-oxydation débute avec une période d'induction pendant laquelle aucun changement significatif des propriétés du matériau n'est généralement observé. Puis, au fur et à mesure que l'oxydation de matériau se produit, cette première étape est suivie d'une période dite d'accélération, pendant laquelle le polymère réagit relativement rapidement avec l'oxygène. Cette période correspond aussi au moment où les propriétés mécaniques du matériau commencent à diminuer (figure 7).

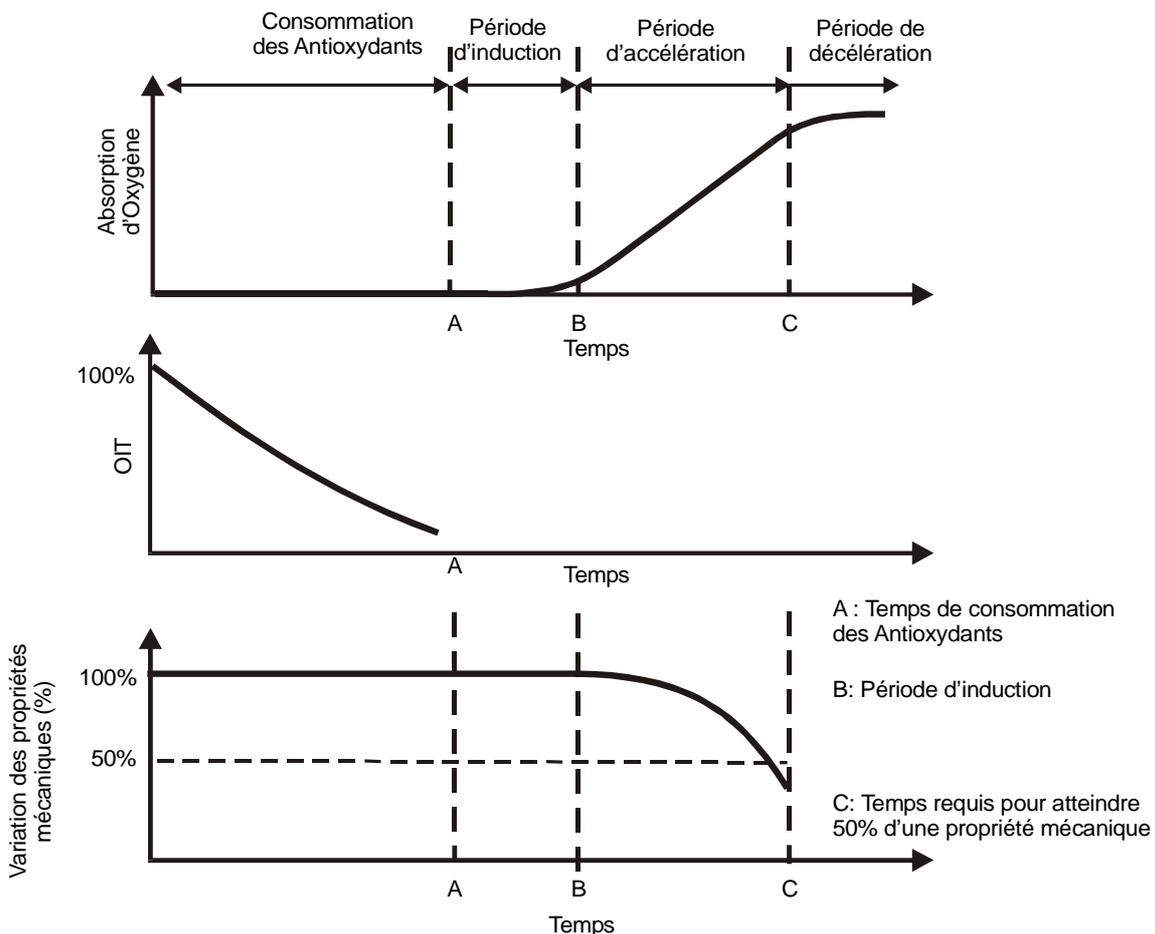


Figure 7. Les différentes étapes de la dégradation par thermo-oxydation du polyéthylène

Des antioxydants sont ajoutés à la résine dans le but d'augmenter la durée de la période d'induction. En pratique, ceux-ci augmentent donc la résistance à la dégradation thermique du polyéthylène, c'est à dire leur durée de vie utile en présence de chaleur. Les antioxydants sont présentés de façon plus précise au chapitre 2.3.

#### 2.2.4 Photo-oxydation (résistance aux ultra-violets)

La photo-dégradation est un procédé similaire à la dégradation thermique, cependant la source d'énergie induisant la dégradation provient du rayonnement ultra-violet plutôt que de la chaleur.

De nombreuses variables influencent la vitesse de dégradation par photo-oxydation. L'intensité de la radiation et la perméabilité à l'oxygène sont les plus importantes, mais d'autres facteurs tels que la température et l'humidité jouent aussi un rôle significatif.

La distribution du rayonnement UV à la surface de la terre et au sein même d'une région donnée varie énormément. En effet, la filtration des rayonnements offerte par l'atmosphère sera dépendante de la position sur la terre et de la composition de l'atmosphère (figure 8), tandis que l'angle du matériau avec les rayons incidents (angle des pentes et leur orientation), la présence d'écrans (poussières, végétation...), de surfaces réfléchives situées à proximité (vitrage de bâtiments, eau), le couvert de neige en hiver et de nombreux autres facteurs locaux influenceront sur l'intensité réelle de la radiation.

En outre, la température du produit a une influence sur la mobilité des molécules, ainsi que sur la cinétique des réactions chimiques impliquées dans le mécanisme de dégradation. Aussi, la température effective d'un produit exposé à un rayonnement ultra-violet aura une incidence directe sur la vitesse de dégradation.

De même que pour la dégradation thermique, des additifs sont utilisés pour réduire la sensibilité à la photo-oxydation des géomembranes de polyéthylène afin d'augmenter leur durée de vie. La section 2.3 fait un survol des différents types des stabilisants utilisés.

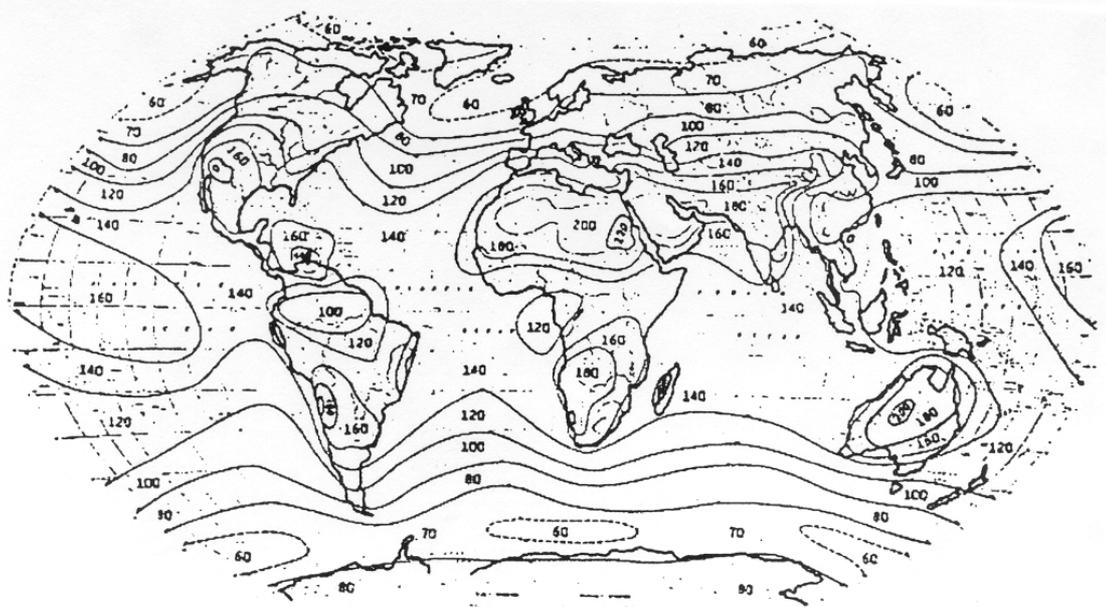


Figure 8. Distribution annuelle moyenne de la radiation solaire sur la terre (kLy)  
(d'après Van Wijk et Stoerzer, 1986)

#### 2.2.5. Résumé

Compte tenu des éléments présentés au chapitre 2, les principales propriétés susceptibles d'affecter la durabilité du polyéthylène peuvent être résumées tel que suit :

- excellente résistance à de nombreuses classes d'agents chimiques ;
- risque de dégradation micro-biologique quasi-inexistant ;
- pour le PEHD (haute densité) : sensible à la fissuration sous contrainte ;
- sensible à l'oxydation, qui reste la principale cause de dégradation du polyéthylène. Celle-ci peut être thermique (thermo-oxydation) ou liée à un rayonnement ultra-violet (photo-oxydation).

D'un point de vue pratique, les autres sources de dégradation potentielle peuvent être considérées comme ayant un effet nul ou marginal sur les géomembranes de polyéthylène.

### 2.3. Additifs

Tel que décrit précédemment, le phénomène de fissuration sous contrainte est essentiellement géré lors de la sélection du type de résine et notamment de la distribution de poids moléculaire.

Par contre, la résistance à l'oxydation, qu'elle soit associée à une exposition à la chaleur (thermo-oxydation) ou liée à un rayonnement ultra-violet (photo-oxydation) est gérée par l'adjonction d'additifs à la résine de base. Ceux-ci peuvent être composés de pigments, d'absorbeurs UV et de désactivateurs de radicaux libres (antioxydants).

Les pigments et les absorbeurs UV agissent comme des écrans, en absorbant les radiations UV avant qu'elles ne causent de dommages, l'énergie reçue étant transformée en chaleur. Un additif de ce type traditionnellement utilisé dans la fabrication de géomembranes de polyéthylène est le noir de carbone. Celui-ci est ajouté lors de la production du matériau et dispersé dans la masse même de la résine. Le pourcentage de noir de carbone est choisi de telle façon que le rayonnement UV ne soit pas en mesure de pénétrer dans le matériau au delà d'une très faible profondeur, sans toutefois altérer les autres propriétés du produit. Sa dispersion est contrôlée de façon à ce qu'aucun agglomérat ne crée de zones susceptibles de créer une concentration de contraintes, notamment vis-à-vis de la problématique de la fissuration sous contrainte.

Les antioxydants protègent le polymère en inhibant ou retardant une des étapes du processus d'oxydation. Certains types d'antioxydants captent les radicaux libres avant qu'ils n'attaquent les chaînes, d'autres agissent comme donneur d'hydrogène en se sacrifiant à la place des chaînes. Ces mécanismes de stabilisation conduisent à la formation de produits stables inoffensifs pour le polymère. Les anti-oxydants peuvent être de plusieurs natures et agir à différentes températures suivant la fonction que l'on veut leur donner, tel qu'illustré sur la figure 9. Leurs mécanismes de fonctionnement sont variables selon qu'ils interviennent lors de la mise en forme du produit ou pendant la période de service.

Les HALS (Hindered Amine Light Stabilizers), de plus en plus utilisés dans la formulation des géomembranes de polyéthylène, diffèrent des antioxydants phénoliques par leur mécanisme cyclique et régénérateur durant le processus de stabilisation. Les HALS conservent donc leur efficacité beaucoup plus longtemps que les antioxydants phénoliques.

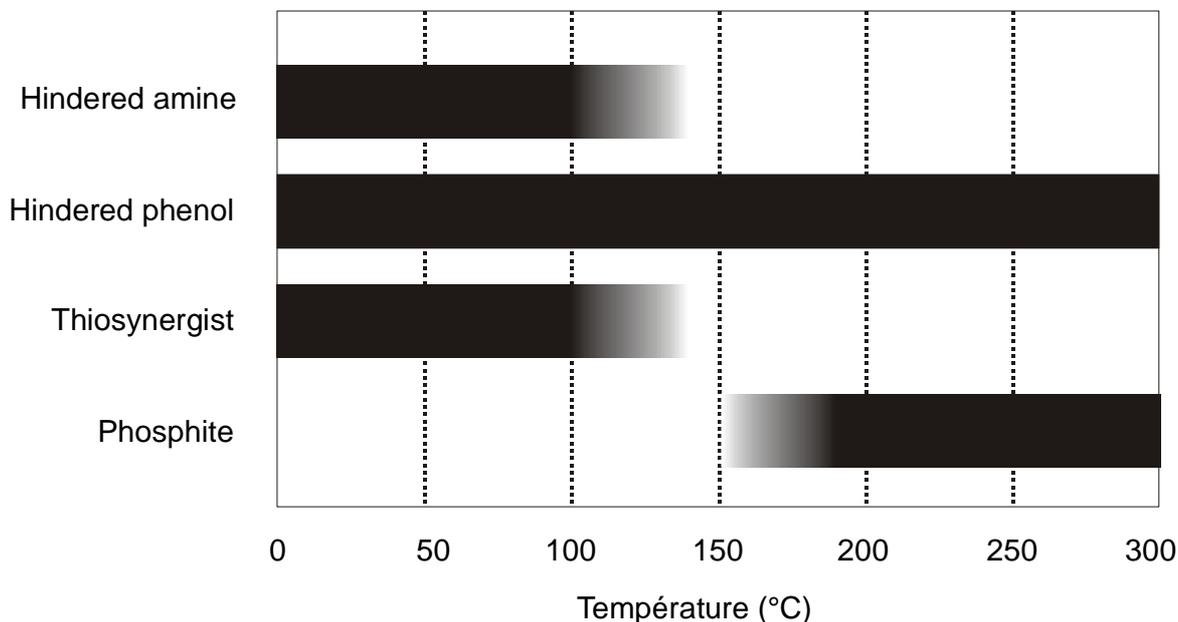


Figure 9. Température de fonctionnement de différents types d'antioxydants (d'après Fay et King, 1994)

### 3. Conception et spécification des géomembranes de polyéthylène vis-à-vis de la durabilité

Il a été exposé ci-dessus que les exigences de durabilité associées aux applications environnementales des polymères constituent un des critères de conception originaux du cahier des charges d'un tel matériau, les autres applications impliquant des périodes de service nettement plus courtes.

En outre, il a aussi été identifié que le contrôle de la durabilité des géomembranes passe par la gestion de deux paramètres : la résistance à l'oxydation (thermo-oxydation ou photo oxydation) et la résistance à la fissuration sous contrainte. D'un point de vue pratique, il n'est pas possible de

déterminer de corrélation systématique entre les propriétés d'une géomembrane et sa durée de vie sur site, exprimée en années, du fait de la variabilité des expositions solaire, thermique, chimique, mécanique ou autre susceptibles d'être rencontrées par une géomembrane.

### 3.1. Approche Nord-Américaine

La méthode qui fut retenue en Amérique du Nord pour l'élaboration d'une formulation optimale de géomembrane est basée sur une approche à la fois statistique et empirique, laquelle a impliqué la combinaison de différentes actions. D'une part, la performance réelle de géomembranes installées dans des sites d'enfouissement a été évaluée après plusieurs années (ou décennies) de services. Ces matériaux ont ensuite été échantillonnés puis ont fait l'objet d'études de laboratoire orientées vers l'analyse des propriétés reliées aux modes de dégradation des polyéthylènes (oxydation et fissuration sous contrainte). Enfin, des facteurs de corrélation empiriques ont été définis, liant la performance réelle observée à des propriétés intrinsèques représentatives du produit vis-à-vis du facteur de dégradation considéré.

Ces études ont finalement permis l'élaboration d'une spécification standard, publiée par le « Geosynthetic Institute » sous le nom de GRI GM13 dans la deuxième moitié des années 1990. Ce document résume de façon synthétique les différentes exigences devant être respectées pour assurer une formulation adéquate des géomembranes de polyéthylène, permettant d'assurer une performance et une durabilité supérieure ou égale à celle qui fut observée sur site dans un contexte d'application typique. Ces exigences visent le contrôle de la production des géomembranes, celles-ci incluent par le fait même des recommandations très précises relatives à la fréquence de contrôle des matières premières. Il est important de souligner que les propriétés reportées sont des indicateurs de performance et non des garanties de performance. Tel que discuté plus haut, il n'est pas possible de corréler la performance d'un matériau en laboratoire avec sa durabilité une fois soumis à des conditions de service normales.

Cependant, le tableau de propriétés décrit dans la spécification GRI GM13 présente l'avantage de couvrir l'ensemble des contraintes issues du cahier des charges d'une géomembrane de polyéthylène : contraintes de mise en œuvre (à l'exception des soudures, couvertes dans une autre spécification), contraintes liées à la performance et contraintes de durabilité, tel que synthétisé dans le tableau III.

De plus, cette spécification est construite en se basant sur les fréquences de contrôle de la production requises en usine, suite à l'analyse de l'influence potentielle de chacun des éléments intervenant sur les propriétés du produit fini. Ainsi, les essais impliquant le choix d'une catégorie de résine de base ou un type d'additif sont réalisés à une fréquence minimale (à chaque formulation). Les essais permettant de contrôler les propriétés de la résine effectivement livrée sont réalisés pour chacun des lots de résine livrés. Finalement, les essais permettant de contrôler le bon ajustement des équipements de production sont réalisés à plus grande fréquence, voir à chaque rouleau.

Tableau III. Lecture des propriétés requises dans la spécification GRI GM13

Propriété	Aspect contrôlé			Fréquence de contrôle
	Qualité (conformité) de production	Performance (ingénierie)	Durabilité	
Épaisseur	X			1 / Rouleau
Densité	X			90 000 kg
Traction	X	X		9 000 kg
Déchirure	X	X		20 000 kg
Poinçonnement	X	X		20 000 kg
Résistance à la fissuration sous contrainte			X	1 / lot <sup>(*)</sup>
Contenu de noir de carbone	X		X	9 000 kg
Dispersion de noir de carbone	X		X	20 000 kg
OIT	X		X	90 000 kg
Vieillessement au four			X	1 / formulation
Vieillessement aux ultra-violets			X	1 / formulation

<sup>(\*)</sup> : 1 lot = 1 wagon de résine = ± 70 000 à 90 000 kg de résine

### 3.2. Approche Européenne

La gestion de la durabilité des géomembranes de polyéthylène semble être une préoccupation récente des administrations européennes. En effet, les propriétés de produit décrites dans les spécifications ou certifications encore courantes se limitent généralement au contrôle de propriétés géométriques ou mécaniques, mais ne couvrent pas la durabilité.

L'apparition des normes d'application NF EN 13361, NF EN 13491 et NF EN 13492 en 2005 constitue un bond en avant dans la direction de la maîtrise de la durabilité des géomembranes. Selon une lecture Nord-Américaine du contenu générique de ces normes, présentée dans le tableau IV, celles-ci constituent en effet un cahier des charges assez complet, dans la mesure où tous les paramètres susceptibles d'être impliqués dans la fabrication, la mise en œuvre, l'interaction avec l'environnement ou la durabilité des géomembranes sont considérés.

Ainsi, ces normes d'application permettent la comparaison de matériaux de nature différente (polyéthylène, PVC, bitumineuse ou bentonitique), vis-à-vis des contraintes susceptibles d'être rencontrées dans le contexte de l'application, tout en fixant des exigences de durabilité minimales. Aussi, un marquage CE basé sur ces normes d'application permettra à un ingénieur de disposer d'un outil de conception formidable, dans la mesure où deux géomembranes de nature différente pourront être comparées selon un canevas d'évaluation identique.

Globalement, la différence fondamentale entre la spécification GRI GM13 et les normes d'application européennes peut être résumée en un seul fait : La spécification GRI GM13 est construite pour faciliter la gestion de la qualité de leur produit aux fabricants de géomembrane PEHD, tandis que les normes d'application européennes sont construites pour faciliter l'application de géomembranes aux utilisateurs.

Dans les deux sous-chapitres suivants, les différences et similitudes des deux approches sont analysées du point de vue des exigences techniques relatives à la durabilité, d'une part, et vis-à-vis des risques de non-conformité associées aux fréquences de contrôle, d'autre part.

Tableau IV. Lecture des propriétés exigées dans les normes d'application européennes des géomembranes de polyéthylène

Propriétés		Aspect contrôlé		
		Qualité (conformité) de production	Performance (ingénierie)	Durabilité
Physiques	Épaisseur	X		
	Masse surfacique	X		
Hydrauliques	Perméabilité à l'eau		X	
	Perméabilité aux gaz		X	
Mécaniques	Résistance en traction	X	X	
	Allongement à la rupture	X	X	
	Poinçonnement statique	X	X	
	Éclatement	X	X	
	Déchirement	X	X	
	Frottement		X	
Thermique	Souplesse à basse température		X	
	Dilatation thermique		X	
Durabilité	Vieillesse climatique			X
	Micro-organismes			X
	Oxydation			X
	Fissuration sous contrainte			X
	Solubilité à l'eau			X
	Résistance chimique			X
	Pénétration des racines			X
	Réaction au feu		X	

### 3.3. Discussion

#### 3.3.1. Comparaison des exigences techniques relatives à la durabilité

D'un point de vue qualitatif, l'approche Nord-Américaine propose des valeurs minimales devant être vérifiées par une géomembrane de polyéthylène pour que celle-ci soit en mesure de fonctionner dans un environnement classique.

Par contre, l'approche retenue dans les normes d'application européennes étudiées est plutôt orientée vers la documentation de propriétés pertinentes pour l'utilisateur relativement à l'utilisation d'une géomembrane. Cette approche est donc orientée vers l'ingénierie de projet et non vers les activités internes des manufacturiers. Ses principaux usages potentiels seraient donc les suivants :

- comparaison des propriétés de produits de nature différente ;
- proposition d'un canevas de spécification de produit ;
- assurance d'une durabilité minimale, quel que soit le produit.

Compte tenu de cette différence fondamentale entre les objectifs respectifs des deux documents, il est compréhensible que les exigences de la spécification GRI GM13 soient mieux ciblées que celles des normes d'application européennes, tel que décrit dans le tableau V. Cependant, en analysant en détail les exigences spécifiées à l'annexe B des trois normes d'application européennes étudiées, on constate que celles-ci présentent des critères d'évaluation qui peuvent différer de façon significative de ceux de la spécification GRI GM13, tel que synthétisé dans le tableau V.

Tableau V. Comparaison qualitative des critères d'évaluation de la durabilité

Aspect évalué	Amérique du Nord : GRI GM13	Europe : NF EN 13361, 13491, 13492
Vieillesse climatique	1600 heures Indice de mesure : OIT (HP)	3000 h (pour 1 an à l'extérieur) ou 75 000 h (pour 25 ans à l'extérieur) Indice de mesure : essai de traction
Oxydation	90 jours à 85°C Indice de mesure : OIT	90 jours à 85°C Indice de mesure : essai de traction
Fissuration sous contrainte	300 heures Indice de mesure : temps de rupture	200 heures Indice de mesure : temps de rupture
Micro-organismes	Non applicable	Indices de mesure : observation visuelle et/ou essai de traction
Solubilité à l'eau		
Résistance chimique		
Pénétration des racines		
Réaction au feu		

En effet, bien que présentant des objectifs similaires, les méthodes d'évaluation diffèrent essentiellement par le fait que les indices de dégradation utilisés sont ou bien orientés vers l'intégrité physique du produit (normes européennes) ou l'observation du temps d'induction à l'oxydation (OIT) qui est un indice de dégradation spécifique au polyéthylène (spécification GRI GM13). De plus, le type d'évaluation requis par la spécification GRI GM13 est restreint aux seules contraintes pertinentes pour le polyéthylène.

L'utilisation d'une approche visant l'observation de l'intégrité physique du matériau, dans le cas des normes d'application européennes, est lié à la diversité des mécanismes de dégradation des différents produits couverts. Il est donc essentiel d'utiliser un indice de mesure unique et comparable, excluant de ce fait des outils de mesure comme le OIT.

Cependant, dans le cas du polyéthylène, cette approche a l'inconvénient d'alourdir de façon significative le programme d'évaluation du matériau. En effet, la justesse scientifique de l'approche nécessite la modélisation en laboratoire de la totalité de la contrainte modélisée et conduit de ce fait à la réalisation d'essais de vieillissement accéléré pendant de très longues périodes (jusqu'à 75 000 heures = 8,5 années en laboratoire pour une exposition aux UV jugée représentative de 25 ans de service).

Bien que l'approche scientifique soit imparable, cette approche laisse les auteurs perplexes quant à leur potentiel d'utilisation réel dans un contexte de contrôle de qualité, pour les raisons suivantes :

- le coût associé à la réalisation de certains des essais de contrôle spécifiés est prohibitif ;
- du fait de l'évolution très rapide des technologies, des matières premières et plus simplement de l'usure des équipements de production, on peut considérer qu'à toutes fins pratiques, lorsque certaines des évaluations de laboratoire seront achevées (après 8,5 années), le produit évalué ne

sera plus sur le marché – tout au moins sous la forme ou avec la formulation qui aura été évaluée.

Du fait du coût associé à de telles évaluations et de l'évolution rapide des technologies, qui rendraient désuets les résultats obtenus avant même qu'ils soient produits, la seule méthode réaliste permettant d'évaluer la conformité d'une géomembrane de polyéthylène à certaines sections des normes d'application européennes s'avère donc de procéder à des évaluations indirectes adaptées à ce type de produit, en se réclamant de l'article A.3.2 de la norme d'application. Cette approche peut par ailleurs être réalisée en établissant des ponts avec la spécification GRI GM13, combinant ainsi les besoins des utilisateurs identifiés dans les normes d'application et les méthodes de contrôle actuelles des manufacturiers établies dans la spécification GRI GM13.

À titre d'exemple, on peut citer l'exigence relative à la durabilité de géomembranes susceptibles d'être exposées pendant 25 ans, qui exige en théorie la réalisation d'une exposition en laboratoire pendant 75 000 heures. L'utilisation d'indices de mesure scientifiques comme le OIT en remplacement de l'essai de traction permet de projeter à très long terme le comportement du polyéthylène. Cette approche, largement documentée dans la littérature, procure une justification scientifique à l'adoption d'un programme d'essai alternatif, impliquant la réalisation d'essais identiques à ceux spécifiés par la norme GRI GM13 sur une durée de 1600 heures plutôt que 75 000 heures.

### 3.3.2. Fréquences de contrôle

Du fait du coût de contrôle relativement modeste associé aux évaluations en laboratoire requises pour le respect de la spécification GRI GM13, celle-ci est appliquée à la lettre par les manufacturiers de géomembrane Nord-Américains. En effet, la validation expérimentale de la conformité d'une nouvelle formulation ne nécessite pas une décision administrative à caractère stratégique, du fait de son coût relativement faible. En pratique, ces essais sont réalisés à chaque fois qu'un changement significatif de la formulation du produit survient : matières premières, additifs chimiques, équipement de production, etc., et les résultats recherchés, incluant le respect des critères de durabilité, sont disponibles après environ 3 mois.

La norme d'utilisation européenne est par compte beaucoup plus flexible au sujet des fréquences de contrôle. Celle-ci exige l'adoption d'un plan de contrôle de la qualité sans qu'aucune vérification scientifique externe ne valide sa pertinence. Dans ce contexte, il est possible qu'une décision administrative du manufacturier, requérant par exemple la baisse des coûts d'opération, mette en péril la vérification de la conformité réelle du produit aux exigences de la norme. La façon dont la norme est actuellement écrite ne procure à un éventuel auditeur aucun outil lui permettant d'établir que le manufacturier est en situation de délit sans procéder à des essais de laboratoire parfois très onéreux – ce qui ne sera donc pas réalisé.

À titre d'exemple, on peut citer le cas de la résistance à la fissuration sous contrainte, dont l'exigence est établie selon la norme D5397 aussi bien dans la spécification GRI GM13 que dans la norme d'application européenne. Du point de vue expérimental, cet essai, dans sa version courante, présente la faiblesse importante d'impliquer l'utilisation d'un agent chimique dont la vente est interdite dans plusieurs sinon la totalité des pays européens (Alkasurf CO-630). Il n'est donc à toutes fins pratiques pas possible, pour un manufacturier européen, de se mettre en conformité avec la norme d'application européenne sans faire réaliser cet essai à l'extérieur de la communauté européenne, impliquant par le fait même des coûts plus importants et une perte de contrôle de l'information. Dans ce contexte, il apparaît probable que la fréquence de contrôle qui sera établie dans le manuel qualité d'un manufacturier sera aussi minimale que possible.

Par contre, cet essai étant essentiellement influencé par la distribution de masse moléculaire de la résine de base utilisée, le résultat est susceptible de varier à chaque livraison de résine. La validation de la conformité du produit impliquerait donc en théorie un contrôle systématique de chaque livraison, tel que recommandé par la spécification GRI GM13.

Ainsi, si les normes d'application européennes apparaissent être un outil formidable tant pour les utilisateurs que pour le développement du marché des géomembranes, celles-ci devraient présenter des exigences précises relatives aux fréquences de contrôle des propriétés en usine. Les annexes A, dédiées à cette problématique, sont en effet très vagues, le manufacturier devant proposer un plan de contrôle et le justifier, mais aucun critère de vérification précis n'étant identifié.

### 3.3.3. Approche recommandée

La spécification GRI GM13 est reconnue en Amérique du Nord ainsi que dans de nombreux autres régions du monde comme une référence vis-à-vis de la spécification de ce type de produit. En effet, de nombreux devis relatifs à des projets localisés en Afrique, au Moyen Orient, en Asie, dans les Balkans ainsi qu'en Europe définissent déjà les géomembranes de polyéthylène comme associées à cette référence.

Du fait de l'adoption probable des normes d'application européennes par l'ISO à courte échéance (de par le 'Vienna Agreement') et de l'influence que celles-ci auront alors de facto sur les marchés mondiaux, il semblerait pertinent d'assurer que les utilisateurs de par le monde se baseront sur un document aussi précis et fiable que possible.

Compte tenu des éléments discutés dans les paragraphes précédents, on peut conclure que les exigences techniques proposées dans les normes d'application européennes sont non seulement justifiées techniquement mais peuvent être mises en relation relativement facilement avec les pratiques actuelles de la plupart des manufacturiers, établies selon la spécification GRI GM13.

Cependant, il paraît essentiel d'améliorer les exigences relatives aux fréquences de contrôle, la formulation actuelle semblant trop laxiste, du point de vue scientifique.

Par conséquent, si une référence à la norme européenne semble techniquement adaptée pour l'établissement des critères de choix d'une géomembrane dans un devis de construction, les auteurs souhaiteraient recommander aux ingénieurs responsables de la rédaction de tels devis de se préoccuper des fréquences de contrôle effectivement respectées par les manufacturiers pour s'assurer du respect de ces exigences.

## 4. Conclusion

Dans le cadre de ce document, la spécificité des géomembranes de polyéthylène a tout d'abord été mise en perspective avec les autres applications traditionnelles des polymères. Il a été montré que les applications des polymères impliquent généralement des périodes de service dont l'envergure est plus faible de un à quelques ordres de grandeurs, par comparaison à celles requises pour une géomembrane. Aussi, la durabilité s'avère constituer une des propriétés critiques de ce type de matériau.

Une rapide revue des mécanismes de dégradation propres aux polyéthylènes a ensuite été conduite, ce qui a permis de mettre en évidence que les principaux facteurs susceptibles d'affecter leur durabilité sont l'oxydation (thermo-oxydation ou photo-oxydation) et la fissuration sous contrainte. Les moyens de gérer des modes de dégradation lors de la formulation d'un produit ont ensuite été exposés.

Une comparaison de la spécification Nord-Américaine GRI GM13 et des normes d'application NF EN 13361, NF EN 13491 et NF EN 13492 vis à vis des exigences de durabilité a ensuite été conduite. Il a été montré que bien que celles-ci soient construites en se basant sur des philosophies de pensée différentes, les modes de dégradation spécifiques au polyéthylène sont adéquatement identifiés dans les deux cas et que les exigences techniques sont complémentaires.

Cependant, les auteurs voudraient souligner l'importance d'un meilleur encadrement de la fréquence de contrôle des matériaux lors de la production. En effet, l'absence d'exigences précises pourrait mener à la réalisation d'un contrôle incomplet, qui pourrait mener à la livraison de matériaux non conformes aux exigences des utilisateurs, tout particulièrement vis-à-vis des exigences relatives à la durabilité. Il est donc recommandé de considérer l'amélioration des recommandations émises par les normes d'application NF EN 13361, NF EN 13491 et NF EN 13492 à cet effet. Dans le cas des géomembranes polyéthylène, une référence à la spécification GRI GM13 pourrait être considérée comme une piste de solution intéressante.

## 5. Références bibliographiques

- Atlas R.B. (2004). Weathering testing guideline (*private document*)
- Kay D., Blond E., Mlynarek J. (2004). Geosynthetics durability: a polymer chemistry issue, *Proceedings of the 58<sup>th</sup> Canadian Geotechnical Society Conference, Quebec 2004*
- Kay D., Blond E. (2005). A guide to assess the durability of "plastic" materials used in civil engineering, *Proceedings of the 6<sup>th</sup> Transportation Specialty Conference, Canadian Society of Civil Engineers, Toronto.*

- Fay J. J., King III R. E. (1994). Antioxidants for geosynthetic resins and applications, *Proceedings of 8th GRI Conference, Geosynthetics Resins, Formulations and Mfg.*, Hsuan & Koerner Editors, IFAI, pp. 77-95.
- Hsuan Y.G., Koerner R.M. (1998). Antioxidant depletion lifetime in high density polyethylene geomembranes, *Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering*, Vol. 124, No. 6, June, pp. 532-541.
- Hsuan Y. G. (2000). Data base of field incidents used to establish HDPE geomembrane stress cracking resistance specification. *Geotextiles and Geomembranes*, Vol. 18, pp. 1-22.
- Lustiger, Markman (1985). Importance of tie molecules in preventing polyethylene fracture under long term loading conditions, *Proceedings 9th Plastic Fuel Gas Pipe Symposium, New Orleans, LA, Nov. 1985*, pp. 132-140
- Van Wijk W., Stoerzer M. (1986). UV stability of polypropylene, *Third International Conference on Geotextiles, Vienne, Austria*, pp. 851-855.