

Augmentation de données régularisée par la physique pour le vieillissement thermo-oxydant de résines époxy

A. Assi¹, E. Goncalves da Silva¹, A. Ammar², M. Gigliotti³, M. Beringhier²

¹ DPMM, Institut Pprime, ISAE-ENSMA, Chasseneuil Cedex, ali.assi@ensma.fr; eric.goncalves@ensma.fr

² Arts et Métiers Institut of Technology, LAMPA, F-49035 Angers, amine.ammar@ensam.eu, marianne.beringhier@ensam.eu

³ University of Pisa, 56126, Pisa, Italy, marco.gigliotti@unipi.it

Résumé — Une stratégie de modélisation hybride est proposée pour représenter l'évolution des propriétés mécaniques locales d'une résine époxy soumise à un vieillissement thermo-oxydant en fonction du temps de vieillissement et de la pression partielle d'oxygène. L'approche combine des données expérimentales de nano-indentation et un modèle cinétique d'oxydation au moyen de réseaux de neurones régularisés par la physique, en s'appuyant sur l'épaisseur de la couche oxydée. Un jumeau hybride est ainsi établi avec un nombre réduit de données et évalué dans différentes situations.

Mots clés — thermo-oxydation, modélisation hybride, augmentation de données.

1 Introduction

Les résines époxy sont largement utilisées dans des applications de structure en raison de leur faible densité et de leur résistance en fatigue relativement élevée [16]. Cependant, sous hautes températures et sous environnements oxydants, ces matériaux subissent un vieillissement thermo-oxydant, à l'origine de coupures de chaînes menant à de la fragilisation [9, 20, 19], à l'initiation de fissures [19, 14], à des déformations résiduelles (retrait) [19, 7] et à la dégradation de leurs propriétés mécaniques [13]. Cette dégradation est principalement gouvernée par une interaction multi-physique entre diffusion d'oxygène et réactions chimiques modifiant le réseau polymère.

Les modèles mécanistiques présents dans la littérature décrivent la thermo-oxydation au moyen de cinétiques chimiques [9, 5, 8, 6, 3], tandis que la nano-indentation permet de caractériser expérimentalement les propriétés mécaniques locales dans les résines vieilles. Cependant, il n'existe pas de modèle physique fiable reliant directement les cinétiques d'oxydation au module d'indentation élastique local (*EIT*). La réponse mécanique est en général obtenue de manière empirique ou phénoménologique [18, 17], ce qui limite la généralité et le sens physique de ces approches.

Les récents développements de la modélisation basée sur les données ont ouvert de nouvelles perspectives pour relier les observations expérimentales et modèles physiques. Les approches purement basées sur les données nécessitent toutefois de larges jeux de données d'entraînement et généralisent difficilement en dehors du domaine expérimental, en raison de l'absence d'une modélisation physique intégrée. Pour dépasser cette limitation, les approches de modélisation hybrides incorporent des connaissances physiques dans les méthodes basées sur les données, de manière à préserver le sens physique et à réduire la taille du jeu de données nécessaire. Dans ce contexte, les réseaux de neurones informés par la physique (PINN) ont été développés, ils intègrent directement dans l'apprentissage les modèles (souvent des EDP), les lois de comportement et les conditions aux limites [21, 10].

Cependant, dans de nombreux problèmes réels, y compris pour la réponse mécanique des polymères vieillis sous thermo-oxydation, les équations constitutives ne sont que partiellement connues ou reposent sur des modèles empiriques. Dans ce cas, les réseaux de neurones régularisés par la physique (PRNN) constituent une approche plus générale, dans laquelle des connaissances et des corrélations issues de modèles physiques sont intégrées comme régularisation au lieu d'une forme d'EDP explicites [12].

Pour pallier l'absence de modèle physique donnant accès direct à la réponse mécanique en thermo-oxydation, nous proposons un cadre de modélisation hybride combinant les mesures de nano-indentation issues de [17] et le modèle mécanistique de thermo-oxydation présenté en détail dans [2]. Un PRNN est ensuite entraîné de façon à intégrer les corrélations physiques dans le processus d'apprentissage et

à réaliser une augmentation de données physiquement cohérente, où les informations issues du modèle mécanistique enrichissent les données expérimentales limitées pour des pressions partielles d'oxygène et des temps de vieillissement non testés expérimentalement. Cette intégration permet de construire un jumeau hybride, capable de prédire la réponse mécanique locale sous différentes conditions thermo-oxydantes tout en préservant la cohérence physique.

La méthodologie proposée permet l'exploitation de jeux de données limités et réduit ainsi le nombre d'essais nécessaires pour son utilisation. A noter que ces essais sont particulièrement coûteux en raison du vieillissement isotherme à haute température.

La Figure 1 décrit le schéma conceptuel de l'approche hybride développée et les sections suivantes présentent la méthodologie et les principaux résultats obtenus. Les résultats présentés sont une partie du travail publié par les mêmes auteurs dans *Computational Materials Science* [1].

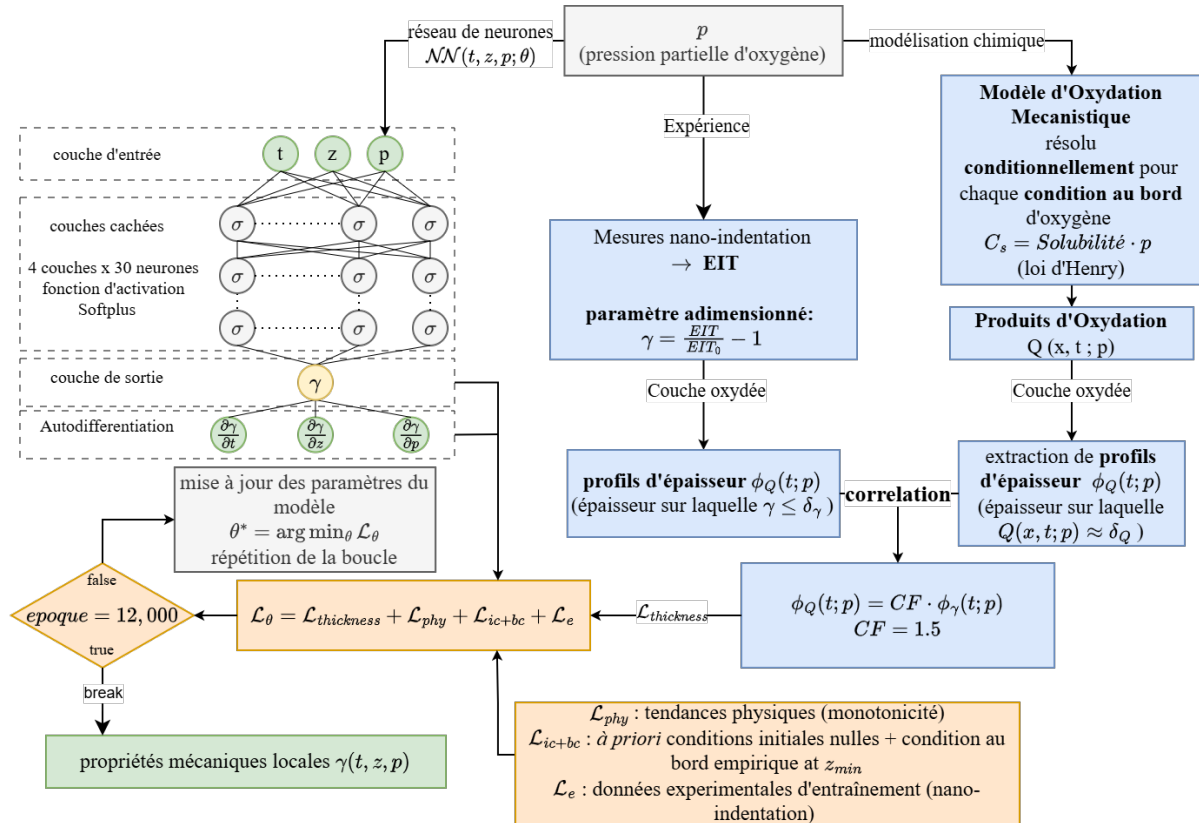


FIGURE 1 – La méthodologie mise en œuvre, partant de la condition aux limites dépendant de la pression partielle d'oxygène. Le modèle mécanistique et les données expérimentales de nano-indentation sont liés par l'épaisseur de la couche oxydée, qui sert de régularisation physique pour un réseau de neurones apprenant l'effet de la thermo-oxydation sur les propriétés mécaniques locales

2 Augmentation de données basée sur la physique et jumeau hybride

2.1 Modèle mécanistique d'oxydation

La thermo-oxydation dans les résines époxy est modélisée par un système diffusion-réaction 1-D décrivant la diffusion et la consommation d'oxygène, dérivée d'un mécanisme d'oxydation radicalaire en chaîne. Les équations du modèle, dont la forme détaillée, les constantes physiques et les cinétiques, ainsi que les conditions initiales et aux limites, sont données dans [2], peuvent être écrites sous la forme du modèle de diffusion-réaction de l'oxygène :

$$\frac{\partial [O_2](x, t)}{\partial t} = D_{O_2} \frac{\partial^2 [O_2](x, t)}{\partial x^2} - r(x, t) \quad (1)$$

où D_{O_2} est le coefficient de diffusion de l'oxygène et $r(x, t)$ désigne le taux de consommation d'oxygène résultant des réactions radicalaires. Cette formulation fournit les champs spatio-temporels $[O_2](x, t)$

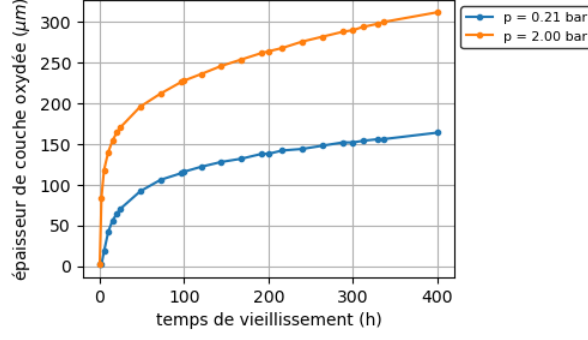


FIGURE 2 – Épaisseur de la couche oxydée $\phi_Q(t; p, \delta_Q)$ prédite par le modèle mécanistique en fonction du temps de vieillissement $t(h)$ et de la pression partielle d'oxygène p pour $\delta_Q = 0.05 \mu\text{m}$.

et permet d'obtenir les profils de concentration des produits d'oxydation $Q(x, t; p)$ pour une pression partielle d'oxygène donnée p à l'aide de l'équation (2).

$$Q(x, t; p) = \int_0^t r(x, \tau), d\tau \quad (2)$$

À partir des profils de $Q(x, t; p)$, l'épaisseur de la couche oxydée $\phi_Q(t; p, \delta_Q)$ est déduite comme étant égale à la profondeur pour laquelle Q atteint le seuil δ_Q :

$$\phi_Q(t; p, \delta_Q) = \min\{x \in [0, L] \mid Q(x, t; p) \leq \delta_Q\} \quad (3)$$

Les simulations ont été réalisées avec le solveur de MATLAB pour les systèmes raides ode23s, comme proposé dans [4], pour $p \in [0.21, 2]$ bar et des temps de vieillissement allant jusqu'à 400 h. Les profils d'épaisseur obtenus présentent une croissance rapide suivie d'une saturation non linéaire vis-à-vis du temps et de la pression (Figure 2).

2.2 Corrélation avec les mesures de nano-indentation

Les essais de nano-indentation réalisés dans [17] sur une résine époxy Tactix à 150 °C sous deux pressions partielles d'oxygène ($p = 0.21$ bar et $p = 2$ bar) constituent le jeu de données de référence. La variation du module d'indentation élastique local (EIT) est exprimée à l'aide du paramètre adimensionné $\gamma(x, t, p)$ défini par :

$$\gamma(x, t, p) = \frac{EIT(x, t, p)}{EIT_0} - 1 \quad (4)$$

où EIT_0 correspond au module d'indentation d'un échantillon à l'état vierge [17]. Une épaisseur équivalente de couche oxydée ϕ_γ est définie à partir du profil de γ en fonction de l'épaisseur, de manière similaire à (3), en utilisant un seuil $\delta_\gamma = 5\%$:

$$\phi_\gamma(t; p, \delta_\gamma) = \min\{x \in [0, L] \mid f_\gamma(x, t, p) \leq \delta_\gamma\} \quad (5)$$

où $f_\gamma(x, t, p)$ est une fonction d'interpolation construite à partir de données expérimentales discrètes. Une corrélation entre ϕ_γ et ϕ_Q est alors identifiée et validée pour les deux pressions testées (Figure 3) :

$$\phi_\gamma = C_F \phi_Q \quad C_F = 1.5 \quad (6)$$

Elle permet d'établir un lien entre le modèle chimique et les essais mécaniques, permettant ainsi l'augmentation des données expérimentales.

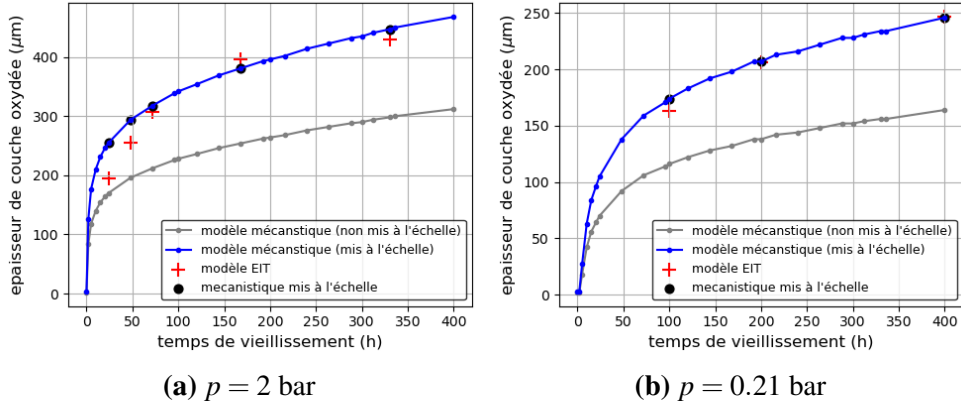


FIGURE 3 – Comparaison entre les épaisseurs de couche oxydée expérimentales (croix rouges) et simulées (courbe grise) pour deux pressions partielles d’oxygène : (a) $p = 2$ bar, $MAE = 28.33\mu\text{m}$ (8.94%) où MAE est l’erreur absolue moyenne et (b) $p = 0.21$ bar, $MAE = 4.15\mu\text{m}$ (2.02%). La courbe bleue représente les résultats de simulation mis à l’échelle par $C_F = 1.5$. Les erreurs sont calculées comme l’écart entre les points expérimentaux et les données simulées pour un même temps de vieillissement t .

2.3 Jumeau hybride et réseau de neurones régularisé par la physique

Un jumeau hybride est construit afin d’apprendre les résultats de nano-indentation sur la résine Tactix vieillie à 150 °C, à partir des données expérimentales fournies par [17] et du lien établi avec le modèle mécanistique avec la corrélation proposée de l’épaisseur de la couche oxydée. Un réseau de neurones régularisé par la physique est conçu pour modéliser l’expérience, le lien avec le modèle mécanistique basé sur l’épaisseur de couche oxydée, ce dernier est introduit dans le réseau de neurones par un terme de régularisation physique pour augmenter le jeu de données expérimental.

La fonction de perte (loss function) totale minimisée pendant l’apprentissage est la somme pondérée des termes de perte présentés dans le Tableau 1.

TABLE 1 – Termes de la fonction perte du PRNN : définition et signification physique

| | Termes de la fonction de perte | Signification physique |
|----------------------------------|---|--|
| $\mathcal{L}_{\text{data}}$ | $\frac{1}{N_e} \sum_{i=1}^{N_e} [\gamma(t_i, x_i, p_i; \theta_\gamma) - \gamma_e(t_i, x_i, p_i)]^2$ | Écart entre les prédictions du modèle et les mesures expérimentales de nano-indentation |
| $\mathcal{L}_{\text{thickness}}$ | $\frac{1}{N_t} \sum_{i=1}^{N_t} [C_F \phi_Q(t_i, p_i; \delta_Q) - \phi_\gamma(t_i, p_i; \delta_\gamma)]^2$ | Contrainte de corrélation entre les épaisseurs de couche oxydée ϕ_Q (modèle) et ϕ_γ (mécanique) |
| \mathcal{L}_0 | $\frac{1}{N_0} \sum_{i=1}^{N_0} [\gamma(t_0, x_i, p_i; \theta_\gamma) + \gamma(t_i, x_i, p_0; \theta_\gamma)]^2$ | Conditions initiales : échantillon vierge, non vieilli à $t = 0$ et à $p = 0$ |
| \mathcal{L}_b | $\frac{1}{N_b} \sum_{i=1}^{N_b} [\gamma(t_i, x_{\min}, p_i; \theta_\gamma) - \gamma_{\max}(t_i, p_i)]^2$ | Condition au bord imposée par la loi empirique $\gamma_{\max}(t, p)$ |
| $\mathcal{L}_{\text{phys}}$ | $\frac{1}{N_r} \sum_{i=1}^{N_r} [(\max(0, \partial_x \gamma))^2 + (\min(0, \partial_t \gamma))^2 + (\min(0, \partial_p \gamma))^2]$ | Contraintes de monotonie $\partial_x \gamma < 0$ $\partial_t \gamma > 0$ $\partial_p \gamma > 0$ |

Le réseau de neurones, généré à l’aide de Tensorflow, comporte une couche d’entrée avec 3 entrées

TABLE 2 – Erreurs d’inférence et sur les profils d’épaisseur pour chaque expérience.

| Expérience Test set (t, p) | Erreur d’inférence | | | Profil d’épaisseur (L2-norme relative) | | |
|---------------------------------|--------------------|--------|-------|--|---------------|-------------|
| | RMSE | MAE | R^2 | $p = 1$ bar | $p = 1.5$ bar | $p = 2$ bar |
| Random 80-20% | 0.016 | 0.0111 | 0.993 | 1.37% | 2.33% | 3.47% |
| $(168, 2), (100, 0.21)$ | 0.0193 | 0.0142 | 0.995 | 2.84% | 2.74% | 4.21% |
| $(330, 2), (100, 0.21)$ | 0.0526 | 0.0312 | 0.969 | 1.76% | 2.97% | 3.64% |
| $(330, 2), (400, 0.21)$ | 0.0587 | 0.0364 | 0.959 | 2.16% | 3.29% | 3.8% |

(x, t, p) , une couche de mise à l’échelle min–max, 4 couches cachées de 30 neurones chacune, et une couche de sortie pour la quantité scalaire $\gamma(x, t, p)$. La fonction d’activation Softplus est utilisée pour garantir une sortie strictement positive. L’optimisation est réalisée avec l’algorithme ADAM, avec un taux d’apprentissage standard 1×10^{-3} .

La convergence est atteinte après 12000 itérations d’apprentissage, pour un temps de calcul de 231.8 secondes sur CPU. La configuration du réseau de neurones retenue est sélectionnée après plusieurs essais itératifs sur différentes architectures et jeux d’hyperparamètres, c’est celle qui donne le meilleur compromis entre stabilité de l’apprentissage et précision des prédictions par rapport aux données expérimentales disponibles et des contraintes physiques.

Les paramètres du réseau sont optimisés en minimisant itérativement l’erreur quadratique moyenne (MSE) sur les coordonnées issues du jeu de données (données de référence) et sur des points de collocation virtuels générés par Latin Hypercube à l’intérieur du domaine pour les termes de la fonction de perte physiques, et de manière uniforme sur les bords et les conditions initiales.

3 Résultats et discussion

3.1 Entraînement et validation du jumeau hybride

Le jumeau hybride est entraîné à partir des données de nano-indentation disponibles pour deux pressions partielles d’oxygène ($p = 0.21$ bar et $p = 2$ bar). Deux stratégies d’apprentissage sont étudiées.

Cas 1. Les données des deux pressions sont utilisées. Certains temps de vieillissement sont réservés comme points de test non vus pendant l’entraînement pour évaluer la capacité de généralisation en temps du réseau. Le modèle reproduit avec précision les gradients de module d’indentation en fonction de la profondeur et du temps de vieillissement pour les deux valeurs de pression (Figure 4a). Les erreurs sont reportées dans le Tableau 2, où l’on observe que la racine de l’erreur quadratique moyenne, RMSE, reste inférieure à 0.06 et $R^2 > 0.95$ pour l’ensemble des jeux de test, ce qui confirme la capacité du modèle à interpoler et extrapoler dans le domaine de vieillissement considéré.

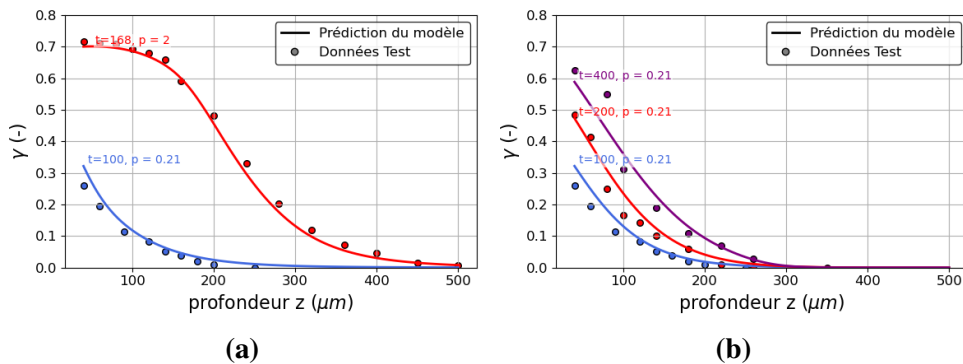


FIGURE 4 – Prédiction sur des données de test après l’apprentissage avec (a) le cas 1 et (b) le cas 2

Cas 2. Le modèle est entraîné uniquement sur le jeu de données à $p = 2$ bar et il est utilisé pour prédire le cas $p = 0.21$ bar. Bien que les données d'apprentissage soient limitées à une seule valeur de pression, le jumeau hybride atteint $R^2 = 0.97$ et une RMSE de 0.036 sur le jeu de test à $p = 0.21$ bar (Figure 4b), en reconstruisant correctement la forme du profil et l'épaisseur de la couche oxydée, avec un léger écart dans la zone saturée.

Le jumeau hybride permet ainsi une généralisation en temps et en pression d'oxygène. La corrélation via l'épaisseur de la couche oxydée joue le rôle de contrainte physique efficace, permettant au modèle de reproduire les effets de l'oxydation malgré un nombre très limité d'essais.

3.2 Discussion

L'utilisation de l'épaisseur de couche oxydée comme lien entre le modèle cinétique chimique et les mesures de module d'indentation est validée comme terme de régularisation, capable d'augmenter un jeu de données de nano-indentation limité et irrégulier avec une quantité suffisante d'informations physiques pour reproduire l'expérience sous des conditions de pression partielle d'oxygène et de temps de vieillissement non testées.

Une comparaison entre le jumeau hybride entraîné et le modèle empirique construit dans [17] (dont la configuration peut être obtenue dans cette référence) est présentée dans le Tableau 3. On observe que le jumeau hybride présente des erreurs plus faibles pour la prédiction de $\gamma(x, t, p)$ sur des conditions de vieillissement exclues de son apprentissage que celles obtenues avec le modèle empirique sur ces mêmes conditions.

TABLE 3 – Comparaison entre les erreurs de prédiction du jumeau hybride et celles du modèle empirique.

| Modèle | RMSE | |
|-----------------------|----------------|-------------------|
| | (168 h, 2 bar) | (100 h, 0.21 bar) |
| jumeau hybride | 0.0239 | 0.0235 |
| modèle empirique [17] | 0.1727 | 0.0357 |

4 Conclusion

Une stratégie de modélisation hybride a été développée pour prédire la variation des propriétés mécaniques locales d'une résine époxy soumise à un vieillissement thermo-oxydant, en l'absence de modèle mathématique fiable décrivant directement cette réponse. Le réseau de neurones régularisé par la physique proposé intègre les cinétiques d'oxydation issues du modèle mécanistique et les essais de nano-indentation au travers de corrélations physiques et d'une régularisation basée sur l'épaisseur de la couche oxydée, ainsi que sur des principes concernant le phénomène de vieillissement.

Le jumeau hybride reproduit avec précision les profils de module d'indentation pour différentes pressions partielles d'oxygène et différents temps de vieillissement, y compris lorsqu'il est entraîné sur des jeux de données limités et sparses. Comparé à la formulation empirique diffusion-réaction établie dans [17], il fournit des erreurs de prédiction plus faibles et s'étend à des conditions thermo-oxydantes non couvertes par l'expérience.

La méthodologie proposée constitue une étape vers une modélisation efficace des effets de la thermo-oxydation sur les propriétés mécaniques locales des résines époxy. En exploitant le jumeau hybride pour augmenter un jeu de données limité et irrégulier, un nombre réduit de mesures expérimentales suffit pour reconstruire des jeux de données de plus grande taille, ce qui permet de diminuer significativement l'effort expérimental.

Dans de futurs travaux, l'approche sera étendue à d'autres matrices polymères, pour lesquelles les paramètres cinétiques sont connus, afin d'évaluer plus largement la capacité de généralisation de cette stratégie à différents matériaux.

Références

- [1] A. Assi, E. Goncalves da Silva, A. Ammar, M. Gigliotti, M. Beringhier. *Physics-regularized data augmentation for effects on local mechanical properties of an epoxy resin ageing under thermo-oxidative environment*,

- Comput. Mater. Sci., 114166, 2025.
- [2] X. Colin, F. Essatbi, J. Delozanne, G. Moreau. *Towards a general kinetic model for the thermal oxidation of epoxy-diamine networks. Effect of the molecular mobility around the glass transition temperature*, Polym. Degrad. Stab., 109314, 2020.
 - [3] X. Colin, F. Essatbi, J. Delozanne, G. Moreau. *A new analytical model for predicting the thermal oxidation kinetics of composite organic matrices. Application to diamine cross-linked epoxy*, Polym. Degrad. Stab., 109513, 2021.
 - [4] X. Colin, B. Fayolle, L. Audouin, J. Verdu. *About a quasi-universal character of unstabilised polyethylene thermal oxidation kinetics*, Polym. Degrad. Stab., 67–74, 2003.
 - [5] X. Colin, C. Marais, J. Verdu. *A new method for predicting the thermal oxidation of thermoset matrices : Application to an amine crosslinked epoxy*, Polym. Test., 795–803, 2001.
 - [6] X. Colin, C. Marais, J. Verdu. *Kinetic modelling and simulation of gravimetric curves : Application to the oxidation of bismaleimide and epoxy resins*, Polym. Degrad. Stab., 545–553, 2002.
 - [7] X. Colin, A. Mavel, C. Marais, J. Verdu. *Interaction between cracking and oxidation in organic matrix composites*, J. Compos. Mater., 1371–1389, 2005.
 - [8] X. Colin, C. Marais, J. Verdu. *Kinetic modelling of the stabilizing effect of carbon fibre on thermal ageing thermoset composites*, Compos. Sci. Technol., 117–127, 2005.
 - [9] X. Colin, J. Verdu. *Strategy for studying thermal oxidation of organic matrix composites*, Compos. Sci. Technol., 411–419, 2005.
 - [10] S. Cuomo, V. S. di Cola, F. Giampaolo, G. Rozza, M. Raissi, F. Piccialli. *Scientific Machine Learning through Physics-Informed Neural Networks : Where we are and what's next*, J. Sci. Comput., 88, 2022.
 - [11] A. Ghaderi, V. Morovati, Y. Chen, R. Dargazany. *A physics-informed multi-agents model to predict thermo-oxidative/hydrolytic aging of elastomers*, Int. J. Mech. Sci., 107236, 2022.
 - [12] K. Kobayashi, S. B. Alam. *Physics-regularized neural networks for predictive modeling of silicon carbide swelling with limited experimental data*, Sci. Rep., 2024.
 - [13] M. C. Lafarie-Frenot. *Damage mechanisms induced by cyclic ply-stresses in carbon–epoxy laminates : Environmental effects*, Int. J. Fatigue, 1202–1216, 2006.
 - [14] M. C. Lafarie-Frenot, S. Rouquié, N. Q. Ho, V. Bellenger. *Comparison of damage development in C/epoxy laminates during isothermal ageing or thermal cycling*, Compos. Part A Appl. Sci. Manuf., 662–671, 2006.
 - [15] Y. Li, Y. Pang, B. Shan. *Physics-guided data augmentation for learning the solution operator of linear differential equations*, Proc. IEEE 8th Int. Conf. Cloud Comput. Intell. Syst. (CCIS), 2022.
 - [16] M. Minervino, M. Gigliotti, M. C. Lafarie-Frenot, J. C. Grandidier. *The effect of thermo-oxidation on the mechanical behaviour of polymer epoxy materials*, Polym. Test., 1020–1028, 2013.
 - [17] M. Minervino. *Effets de la thermo-oxydation sur le comportement mécanique de matériaux composites pour applications aéronautiques*, PhD Thesis, ISAE-ENSMA, Nov. 2013.
 - [18] L. Olivier, N. Q. Ho, J. C. Grandidier, M. C. Lafarie-Frenot. *Characterization by ultra-micro indentation of an oxidized epoxy polymer : Correlation with the predictions of a kinetic model of oxidation*, Polym. Degrad. Stab., 489–497, 2008.
 - [19] K. Pochiraju, G. Tandon, G. Schoeppner. *Interaction of oxidation, stress and damage in high temperature polymeric matrix composites*, Am. Soc. Compos. Tech. Conf., 871–881, 2008.
 - [20] S. Putthanarat, G. Tandon, G. Schoeppner. *Influence of aging temperature, time, and environment on thermo-oxidative behavior of PMR-15 : Nanomechanical characterization*, J. Mater. Sci., 6714–6723, 2008.
 - [21] M. Raissi, P. Perdikaris, G. E. Karniadakis. *Physics-informed neural networks : A deep learning framework for solving forward and inverse problems involving nonlinear partial differential equations*, J. Comput. Phys., 686–707, 2019.