



HAL
open science

Analyse acoustique et physico-chimique du couplage de solides élastiques : étude de l'adhésion dans les collages structuraux

Camille Gauthier

► **To cite this version:**

Camille Gauthier. Analyse acoustique et physico-chimique du couplage de solides élastiques : étude de l'adhésion dans les collages structuraux. Acoustique [physics.class-ph]. Université du Havre, 2016. Français. NNT : 2016LEHA0018 . tel-01552177v1

HAL Id: tel-01552177

<https://theses.hal.science/tel-01552177v1>

Submitted on 1 Jul 2017 (v1), last revised 10 Jul 2017 (v2)

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Normandie Université

THESE

Pour obtenir le diplôme de doctorat de Sciences de l'Ingénieur

Spécialité : Acoustique

Préparée au sein de l'Université du Havre

Analyse acoustique et physico-chimique du couplage de solides élastiques : Etude de l'adhésion dans les collages structuraux

Présentée et soutenue par

Camille GAUTHIER

Thèse soutenue publiquement le 20 octobre 2016
devant le jury composé de

M. Eric PAPON	Professeur, LCPO, Bordeaux	Rapporteur
M. Nicolas WILKIE-CHANCELIER	Maître de conférences HDR, SATIE, Cergy-Pontoise	Rapporteur
M. Georges ZISSIS	Professeur, LAPLACE, Toulouse	Examineur
M. Mihai PREDOI	Professeur, UPB, Bucarest	Examineur
M. Joseph MOYSAN	Professeur, LMA, Marseille	Examineur
M. Jean-Louis IZBICKI	Professeur honoraire	Invité
M. André BAILLARD	Docteur Ingénieur, Aircelle, Gonfreville-l'Orcher	Invité
M. Damien LEDUC	Maître de conférences, LOMC, Le Havre	Encadrant
Mme. Jocelyne GALY	Directrice de recherches, CNRS, IMP, Lyon	Co directrice de thèse
M. Mounsiif ECH-CHERIF EL-KETTANI	Maître de conférences HDR, LOMC, Le Havre	Directeur de thèse

Thèse dirigée par Mounsiif ECH-CHERIF EL-KETTANI, laboratoire LOMC UMR CNRS 6294
et co-dirigée par Jocelyne GALY, laboratoire IMP UMR CNRS 5223



Remerciements

1 manuscrit, 2 villes, 3 ans, 4 bureaux visités, 5h de trains réguliers... une page se tourne qu'il m'est assez difficile de résumer en quelques mots sans citer de nombreuses personnes qui m'ont permis d'arriver au bout de cette thèse.

Je souhaite remercier Mr Éric Papon et Mr Nicolas Wilkie-Chancelier qui ont acceptés de rapporter sur ce manuscrit ainsi que Mr Georges Zissis et Mr Joseph Moysan et Mr Mihai Predoi pour avoir accepté de juger mon travail.

Merci à Damien Leduc pour l'aide pour les manips, merci à Mihai pour toute l'aide sur Comsol et son accueil à Bucarest.

Merci à Jean-Louis Izbicki pour les conversations aussi bien scientifiques que culinaires. Les conseils avisés et l'aide qu'il m'a apporté ont été précieux.

Merci à Jocelyne Galy pour m'avoir fait découvrir le vaste monde des polymères et plus précisément des époxy, et pour m'avoir fait confiance pendant ces trois années.

Merci à Mounsif Ech-Cherif El-Kettani pour sa disponibilité, sa confiance, son enthousiasme, son optimisme aussi bien sur le plan professionnel que personnel. Ses qualités humaines font de lui le meilleur directeur de thèse qu'il m'était possible d'avoir.

Merci à mes nombreux collègues dispersés : Amélie, Ly, Nico, Ben, Heloise, Matthieu, Ruonan, Thomas, Thibaut, JC, Raounak, JB, Nezha, Tim-Tim, Arnaud et tous les autres lyonnais ou havrais pour m'avoir supporter en train de criser, raler, manger, rigoler et pour les apéros et soirées partagés.

Merci à ma famille et belle famille pour leur soutien pendant ses dernières années, pour leur présence et leur aide le jour de la soutenance.

Mon arrivée au havre a été relativement difficile mais l'intégration s'est bien passée grâce à mes trois compères que je ne nommerai pas pour éviter d'entacher leurs réputations (si il leur

en reste une...) : la raviole, la licorne et le chaton.

Merci à Coline, pour le soutien, la présence, les apéros en terrasses, l'Argentine et tout ce que je peux oublier ou ne peux pas écrire...

Enfin, merci à Quentin pour hier, aujourd'hui et à venir...

Table des matières

INTRODUCTION GÉNÉRALE	19
I ÉTUDE DE LA CONVERSION DE RÉSEAUX D'ÉPOXY	25
Introduction	27
1 Ondes de Lamb : Généralités	29
1.1 Théorie des ondes élastiques	29
1.2 Ondes de Lamb : Plaque plane dans le vide	31
1.2.1 Équations de dispersion	31
1.2.2 Solutions des équations de dispersion	33
2 Caractérisation physico-chimique et ultrasonore de l'adhésif époxy	37
2.1 Réseaux thermodurcissables	37
2.2 Matériaux et méthodes d'analyses physico-chimiques	39
2.2.1 Matériaux	39
2.2.2 Mise en oeuvre	41
2.3 Suivi de l'avancement de la réaction à température ambiante	41
2.3.1 Méthode de caractérisation	41
2.3.2 Résultats	42
2.4 Caractérisation ultrasonore de réseaux époxy	46
2.4.1 Réalisation des réseaux époxy massifs	46
2.4.2 Caractérisation ultrasonore par ondes de volume	48
2.4.3 Étude théorique de la sensibilité des modes de Lamb à la conversion	50
2.4.4 Étude expérimentale par ondes de Lamb	53

2.4.5	Résultats	56
Conclusion		61
II	ÉTUDE DU NIVEAU D'ADHÉSION D'UNE STRUCTURE BICOUCHE ALUMINIUM/ÉPOXY	63
Introduction		65
3	Ondes de Lamb dans une structure bicouche	67
3.1	Position du problème	67
3.2	Courbes de dispersion théoriques	68
3.2.1	Apport d'un revêtement d'époxy sur les fréquences de coupure d'une structure bicouche	71
3.2.2	Résolution par éléments finis (FEM)	72
3.3	Modèle adhésif de Jones	73
3.4	Étude de sensibilité du modèle de Jones	74
3.4.1	Étude des fréquences de coupure en fonction des constantes de raideur	75
3.4.2	Étude des ondes guidées en fonction des constantes de raideur	77
3.5	Synthèse	78
4	Caractérisation expérimentale de différents niveaux d'adhésion d'une structure bicouche	81
4.1	Rappels bibliographiques	81
4.1.1	Théories de l'adhésion	81
4.1.2	Traitements de surface	83
4.1.3	Définition des paramètres de rugosité	84
4.1.4	Énergie superficielle de surface	84
4.2	Caractérisation physico-chimique des traitements de surface	85
4.2.1	Substrat d'aluminium	86
4.2.2	Préparation de surfaces	86
4.3	Réalisation des échantillons	91

4.3.1	Étude de la viscosité	91
4.3.2	Réalisation du revêtement	92
4.4	Caractérisation mécanique de la force d'adhésion	94
4.4.1	Mode opératoire	94
4.4.2	Résultats	95
4.5	Caractérisation ultrasonore par ondes de Lamb	97
4.5.1	Mode opératoire	97
4.5.2	Résultats	97
4.6	Étude des atténuations	100
4.6.1	Mode opératoire	101
4.6.2	Traitement du signal	101
4.6.3	Résultats	103
	Conclusion	105

III ÉTUDE DU NIVEAU D'ADHÉSION DANS UN ASSEMBLAGE TRICOUCHE ALUMINIUM/ ÉPOXY/ALUMINIUM **107**

Introduction **109**

5 Ondes de Lamb dans une structure tricouche **111**

5.1	Position du problème	111
5.2	Rappel des équations caractéristiques	112
5.3	Courbes de dispersion	113
5.4	Modèle de Jones	114
5.4.1	Étude de sensibilité des fréquences de coupure aux constantes de raideur .	115
5.4.2	Étude de sensibilité des modes aux constantes de raideur	116
5.5	Aspects énergétiques	118
5.5.1	Théorie	118
5.5.2	Composante P_x du vecteur de Poynting en tout point de la section	119
5.5.3	Composante P_x du vecteur de Poynting à l'interface	121
5.5.4	Moyenne de la composante P_x du vecteur de Poynting à l'interface	130

5.6 Synthèse	131
6 Caractérisation expérimentale d'un assemblage	133
6.1 Réalisation des échantillons	133
6.2 Caractérisation par ondes de Lamb	136
6.2.1 Validation du modèle	136
6.2.2 Mesures expérimentales de la fréquence de coupure du mode V_L	138
Conclusion	143
CONCLUSION GÉNÉRALE	147

Table des figures

1	Principe des essais destructifs de cisaillement pur, de pelage et de flexion 3 points	20
2	Types de défauts selon Adams [1]	20
1.1	Configuration géométrique de l'étude	31
1.2	Déformée de la plaque pour un mode symétrique à un instant t	32
1.3	Déformée de la plaque pour un mode antisymétrique à un instant t	33
1.4	Courbes de dispersion adimensionnées d'une plaque d'aluminium placée dans le vide	35
2.1	Exemple d'un diagramme TTT [2]	38
2.2	Thermogrammes de la réaction époxy + amine obtenus à $t = 0$ (début de réaction chimique) et à $t = \infty$ (fin de la réaction chimique)	42
2.3	Thermogramme de la réaction époxyde à $t = 0$ (●) et à $t = 8h$ (●)	43
2.4	Evolution de la température de transition vitreuse T_g en fonction du temps pour une réticulation à l'ambiante du système époxy	44
2.5	Courbe de conversion en fonction du temps pour une réticulation à l'ambiante du système époxy	44
2.6	Courbe de la température de transition vitreuse en fonction de la conversion : Modèle théorique de DiBenedetto et résultats expérimentaux	45
2.7	Photo du moule utilisé pour la réalisation des réseaux massifs époxy	47
2.8	a) Dispositif expérimental pour la mesure de vitesse b) Exemple de signal temporel obtenu sur DJ-2-80	48
2.9	Spectre obtenu après la transformée de Fourier pour la détermination fréquentielle des vitesses par ondes de volume sur l'échantillon DJ-2-80	49

2.10	Courbes de dispersion théoriques adimensionnées du système époxy pour les trois conversions étudiées : 80% (●), 93% (●) et 100% (●)	51
2.11	Courbes de dispersion adimensionnées théoriques des modes dits "bas" pour les différentes conversions	52
2.12	Courbes de dispersion théoriques adimensionnées du mode S_2 pour les différentes conversions	52
2.13	Montage expérimental pour la génération d'ondes de Lamb	54
2.14	Dispositif expérimental	54
2.15	a) Représentation spatio-temporelle des amplitudes des signaux mesurés par le vibromètre dans le cas de l'échantillon DJ-2-80 b) Amplitude du signal en fonction du temps pour $x=5$ mm	55
2.16	Traitement du signal par la double transformée de Fourier	56
2.17	Courbes de dispersion théoriques d'une plaque d'époxy de 2 mm d'épaisseur superposées aux courbes de dispersion expérimentales pour une conversion de 80% (fig. a) et de 93% (fig. b)	57
2.18	Courbes de dispersion théoriques (traits pleins) du mode S_2 d'une plaque de 2 mm d'épaisseur, superposées aux courbes de dispersion expérimentales (points) pour une conversion de 80% (●) et de 93% (●)	58
2.19	Courbes de dispersion théorique d'une plaque d'époxy de 5 mm d'épaisseur superposées aux courbes de dispersion expérimentales pour une conversion de 80% (fig. a) et de 93% (fig. b) et de 100% (fig. c)	59
2.20	Courbes de dispersion théoriques (traits pleins) du mode S_2 d'une plaque de 5 mm d'épaisseur, superposées aux courbes de dispersion expérimentales (points) pour une conversion de 80% (●), 93% (●), et 100% (●)	60
2.21	Courbes de dispersion théoriques (traits pleins) du mode A_4 d'une plaque de 5 mm d'épaisseur, superposées aux courbes de dispersion expérimentales (points) pour une conversion de 80% (●), 93% (●), et 100% (●)	60
3.1	Configuration géométrique de l'étude	67

3.2	Courbes de dispersion de la structure bicouche aluminium (5 mm) /époxy (0.5 mm) (-) superposées aux courbes de dispersion d'une plaque d'aluminium de 5 mm d'épaisseur (-) et à ceux d'une plaque d'époxy de 0.5 mm d'épaisseur (-) . . .	69
3.3	Zoom sur la zone de rapprochement des modes M_5^0 et M_6^0 de la structure bicouche aluminium/époxy étudiée	70
3.4	Mode A_0 des trois structures : pour une plaque d'aluminium de 5 mm d'épaisseur (-), pour une plaque d'époxy de 0.5 mm d'épaisseur (-) et pour une structure bicouche composée d'une plaque d'aluminium de 5 mm d'épaisseur revêtue d'une couche d'époxy de 0.5 mm d'épaisseur (-)	71
3.5	Évolution des fréquences de coupure en fonction du rapport entre l'épaisseur de la plaque d'aluminium et l'épaisseur du revêtement d'époxy	72
3.6	Validation des paramètres du modèle de Jones : Courbes de dispersion de la structure bicouche étudiée obtenues analytiquement dans le cas d'une adhésion parfaite (-) et obtenues par FEM dans le cas d'une adhésion parfaite(●)	73
3.7	Présentation du modèle rhéologique de Jones	73
3.8	Validation des paramètres du modèle de Jones : Courbes de dispersion de la structure bicouche étudiée obtenues analytiquement dans le cas d'une adhésion parfaite (-), et obtenues par le modèle de Jones par FEM à $\log(R_{L,T}) = 16$ (□)	74
3.9	Évolution des fréquences de coupure en fonction de la valeur des paramètres de Jones données par les deux matrices dépendantes respectivement de a) R_L et de b) R_T	76
3.10	Courbes de dispersion de la structure bicouche étudiée obtenues pour $pR_{L,T} = 16$ (●) et pour $pR_{L,T} = 13$ (●)	78
4.1	Définition des valeurs statistiques de rugosité	84
4.2	Principe de mouillabilité des surfaces	85
4.3	Représentation de l'équation d'Young	85
4.4	Profilomètre VEECO Dektak 150	87
4.5	Profil des surfaces des échantillons après sablage par a) Corindon 40 à une pression de 6 bar : $Rq = 10\mu\text{m}$ b) Corindon 12 à une pression de 3 bar : $Rq = 30\mu\text{m}$	88

4.6	Photographie de l'aluminium après sablage	88
4.7	Formule chimique du γ -GPS	89
4.8	Schéma réactionnel de la silanisation	89
4.9	Appareil de mesure des angles de contact Dataphysics OCA 15EC	91
4.10	Variation de la viscosité en fonction du temps de réaction à 20°C	92
4.11	Barcoater	93
4.12	Schéma de l'éprouvette pour la réalisation d'essai de cisaillement selon la norme EN-2243-1	95
4.13	Résultats des mesures des forces d'adhésion pour chaque type d'échantillon . . .	96
4.14	Superposition des courbes de dispersion expérimentales obtenues avec l'échan- tillon D-100 avec les courbes de dispersion théoriques dans le cas d'une adhésion parfaite (●) et les courbes de dispersion théoriques dans le cadre du modèle de Jones pour des valeurs de $R_{L,T}=10^{14.5}\text{N/m}^3$ (●)	98
4.15	Superposition des courbes de dispersion expérimentales obtenues avec l'échan- tillon D-80 avec les courbes de dispersion théoriques dans le cas d'une adhésion parfaite (●) et les courbes de dispersion théoriques dans le cadre du modèle de Jones pour des valeurs de $R_{L,T}=10^{14.2}\text{N/m}^3$ (●)	98
4.16	Superposition des courbes de dispersion expérimentales obtenues avec l'échan- tillon DSi-100 avec les courbes de dispersion théoriques pour une adhésion par- faite (●)	99
4.17	Principe de la transformée de Fourier à fenêtre glissante	101
4.18	Représentation du résultat de la FFT spatiale à fenêtre glissante dans l'espace (x, k_x) du mode M_2 à 700 kHz pour l'échantillon D-100	102
4.19	Tracé de l'atténuation du mode M_2 à 700 kHz pour l'échantillon D-100	103
5.1	Configuration géométrique de la structure tricouche	111
5.2	Supersposition des courbes de dispersion d'une structure tricouche aluminium (5 mm)/ époxy (0.5 mm)/ aluminium (5 mm) (●) avec les courbes de dispersion d'une plaque d'aluminium d'épaisseur 5 mm (-)	114
5.3	Modélisation des interfaces d'un assemblage tricouche par le modèle de Jones . .	114

5.4	Évolution des fréquences de coupure d'un assemblage tricouche en fonction des paramètres de Jones	116
5.5	Courbes de dispersion théoriques pour des valeurs de raideurs de ressort égales à 10^{16} N/m ³ (●), 10^{15} N/m ³ (●), 10^{14} N/m ³ (●) et 10^{13} N/m ³ (●)	117
5.6	Zoom en basses fréquences des courbes de dispersion d'un tricouche en fonction de R_{LT} égales à 10^{16} N/m ³ (●), 10^{15} N/m ³ (●) ou 10^{14} N/m ³ (●)	118
5.7	Flux du vecteur de Poynting à travers une section droite d'une plaque	119
5.8	Valeur de P_x pour le mode A_0 à 150 kHz dans l'aluminium (—) et dans l'époxy (—) en tout point de la section	120
5.9	Valeur de P_x du mode S_0 à 150 kHz dans l'aluminium (—) et dans l'époxy (—) en tout point de la section	121
5.10	Valeur de P_x du mode V_T à 150 kHz dans l'aluminium (—) et dans l'époxy (—) en tout point de la section	122
5.11	P_x en fonction de la fréquence du mode A_0 au niveau de l'interface ($z = 5$ mm) pour des valeurs de raideur des ressorts de Jones égale à 10^{16} N/m ³ (—), 10^{15} N/m ³ (—) et 10^{14} N/m ³ (—)	124
5.12	P_x en fonction de la fréquence du mode S_0 au niveau de l'interface ($z = 5$ mm) pour des valeurs de raideur des ressorts de Jones égale à 10^{16} N/m ³ (—), 10^{15} N/m ³ (—) et 10^{14} N/m ³ (—)	125
5.13	P_x en fonction de la fréquence du mode V_T au niveau de l'interface ($z = 5$ mm) pour des valeurs de raideur des ressorts de Jones égale à 10^{16} N/m ³ (—), 10^{15} N/m ³ (—) et 10^{14} N/m ³ (—)	126
5.14	P_x en fonction de la fréquence du mode V_L au niveau de l'interface ($z = 5$ mm) pour des valeurs de raideur des ressorts de Jones égale à 10^{16} N/m ³ (—), 10^{15} N/m ³ (—) et 10^{14} N/m ³ (—)	127
5.15	P_x en fonction de la fréquence de la pente négative du mode V_L au niveau de l'interface ($z = 5$ mm) pour des valeurs de raideur des ressorts de Jones égale à 10^{16} N/m ³ (—), 10^{15} N/m ³ (—) et 10^{14} N/m ³ (—)	128
5.16	P_x de l'époxy en fonction de la fréquence au niveau de l'interface dans le cas d'une adhésion parfaite du mode A_0 (—), du mode S_0 (—), du mode V_T (—) et du mode V_L (— et (—) pour la pente négative)	129

5.17	Rapport des moyennes du vecteur de Poynting de la couche d'époxy et des couches d'aluminium en fonction de la fréquence	131
6.1	Réalisation des échantillons	134
6.2	Procédé d'infusion de la colle dans l'assemblage	135
6.3	Superposition des courbes de dispersion expérimentales de l'échantillon T-DSi-80 aux courbes de dispersion théoriques avec $R_{L,T}=10^{16}\text{N/m}^3$	137
6.4	Superposition des courbes de dispersion expérimentales de l'échantillon D-100 aux courbes de dispersion théoriques avec $R_{L,T}=10^{16}\text{N/m}^3$ (●) et avec $R_{L,T}=10^{14.5}\text{N/m}^3$ (●)	138
6.5	Superposition des courbes de dispersion expérimentales de l'échantillon DSiO aux courbes de dispersion théoriques avec $R_{L,T}=10^{13}\text{N/m}^3$ (●) et avec $R_{L,T}=10^{12}\text{N/m}^3$ (●)	138
6.6	Signal temporel enregistré en incidence normale pour l'échantillon T-DSi80	139
6.7	Spectres obtenus après FFT temporelle pour l'échantillon a) T-DSi80 et b) T-DSiO100 et c) T-D100	140

Liste des tableaux

1.1	Paramètres élastiques utilisés pour une plaque d'aluminium	34
2.1	Caractéristiques techniques des produits utilisés pour la formulation époxy	40
2.2	Données nécessaires au modèle de Di Benedetto	45
2.3	Résultats des mesures de vitesses dans les réseaux époxy pour les différentes conversions étudiées	49
2.4	Rapport des vitesses transversales et longitudinales dans l'époxy pour les différentes conversions	50
3.1	Propriétés des matériaux	69
4.1	Caractérisation de l'aluminium	86
4.2	Mode opératoire du sablage	87
4.3	Résultats des mesures des angles de contact et du calcul des énergies de surface dans le cas d'une surface lisse d'aluminium	91
4.4	Synthèse des échantillons bicouches réalisés et nomenclature associée	94
4.5	Paramètres élastiques des matériaux utilisés	97
4.6	Résultats des couples de valeurs de raideur des ressorts associés à chaque échantillon	99
4.7	Valeurs d'atténuation de chaque échantillon pour une fréquence de 0.7 MHz . . .	104
5.1	Définition des paramètres élastiques des matériaux	113
6.1	Échantillons tricouches réalisés	136
6.2	Fréquences de coupure expérimentales et théoriques du mode V_L pour les trois niveaux d'adhésion	141

INTRODUCTION GÉNÉRALE

Parmi le plus grand nombre de techniques permettant de réaliser des assemblages, le collage est désormais utilisé dans tous les moteurs de l'industrie, notamment en aéronautique et en automobile. Avec l'avènement du tout composite et le développement de matériaux sandwichs, le collage peut être utilisé pour la conception et la fabrication de pièces structurales. Il présente de nombreux avantages comme de garder l'intégrité des matériaux (la température de polymérisation relativement basse n'affecte pas les matériaux à assembler contrairement au soudage), une meilleure répartition des contraintes a contrario de l'assemblage par vissage ou rivetage, ou bien encore un gain de poids, et en conséquence, un gain d'énergie.

argés supportées par les structures collées, trois recommandations sont préconisées par la FAA :

- "Limit loads justification without taking into account bonded surfaces"
- "Limit load tests for each adhesive bonded structure"
- "NDT characterizing the level of adhesion"

La première recommandation est très pénalisante du point de vue de la conception puisqu'il est préconisé de supprimer les structures collées supportant les charges. La seconde implique des essais supplémentaires de certification pour les structures collées ce qui a un très fort impact sur la production. La troisième proposition est de développer la caractérisation non destructive de l'adhésion : c'est l'objectif de cette thèse.

En effet, il n'existe pas de méthode non destructive pour qualifier la qualité de l'adhésion, ce problème est contourné par la mise en place de procédure et de contrôle stricts lors de la fabrication [3]. Le contrôle de l'adhésion est réalisé en parallèle de la chaîne de production des éprouvettes suiveuses et par essais mécaniques destructifs dont les trois plus connus sont les essais de cisaillement (normalisés NF-EN 2243-1), les essais en flexion 3 points (ISO 14 619-1997) et les essais de pelage (NFEN 2243-2) (Fig. 1). De plus les faciès de rupture de ces essais sont également observés et permettent d'en apprendre sur la nature de la rupture.

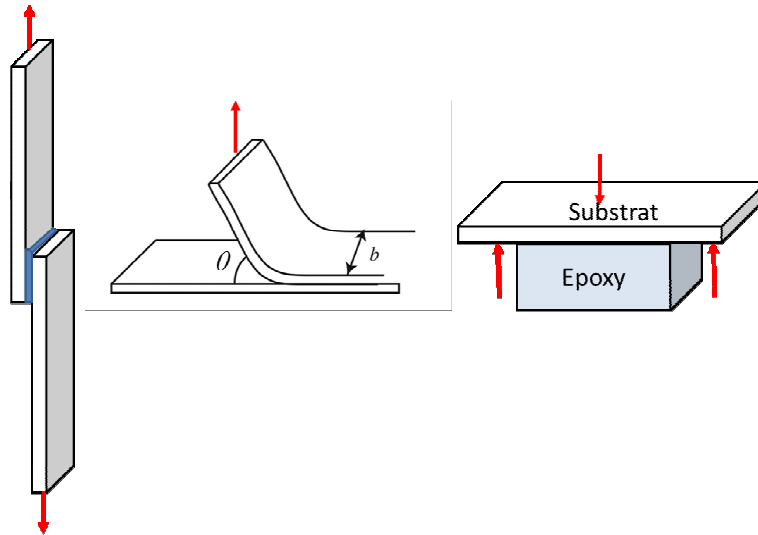


FIGURE 1 – Principe des essais destructifs de cisaillement pur, de pelage et de flexion 3 points

Il existe en effet plusieurs types de défauts qu'Adams [1] a classé en quatre catégories :

- les gros défauts (porosité, bulles, fissures, vide...)
- les défauts cohésifs, souvent liés à une mauvaise formulation ou polymérisation de l'adhésif
- les défauts adhésifs, conséquences d'un mauvais traitement de surface ou d'une pollution
- les kissing bonds

Plusieurs définitions sont données à ce dernier défaut : Adams et al. [4] le définit comme un contact sans adhésion, certains auteurs le classent parmi les défauts de faible adhésion [5,6], alors que d'autres [7] le considèrent comme un contact parfait entre deux surfaces sans transmission de contraintes de cisaillement.

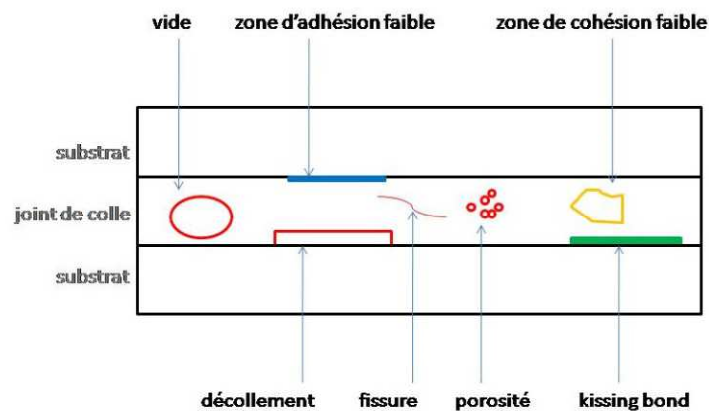


FIGURE 2 – Types de défauts selon Adams [1]

Afin de caractériser les structures collées et surtout observer les défauts, de nombreuses méthodes d'évaluation et de contrôle non destructifs ont été développées. Parmi celles-ci, on peut citer des méthodes thermiques par infrarouge [6,8,9], des méthodes optiques comme l'interférométrie [8,10] ou la shearographie [11,12], des méthodes énergétiques comme le choc laser [13,14] ou bien encore acoustiques avec l'émission acoustique (non destructives sous certaines conditions) et les ultrasons.

Les méthodes non destructives par ultrasons sont les techniques les plus utilisées pour le CND d'assemblages collés et ont donc donné lieu à de nombreux travaux théoriques, numériques ou bien expérimentaux, et particulièrement en utilisant les ondes guidées. [1,15–28].

Un grand nombre d'éléments utilisés dans l'industrie sont des structures minces de types plaques de grandes surfaces qu'il faut contrôler dans leur totalité. L'utilisation d'ondes naturellement guidées par la plaque permet de contrôler en un seul "tir" tout un volume de la structure. En cas de défaut, la propagation de l'onde dans la plaque sera modifiée, et un déplacement du capteur sur une seule ligne permet de contrôler l'intégralité de la plaque. Ceci présente l'avantage par rapport aux ondes de volume qui ne permettent qu'une prospection localisée de la structure [29].

L'utilisation des ondes guidées, dans le cas d'un assemblage collé, a fait l'objet de plusieurs études numériques afin de déterminer les courbes de dispersion et de trouver les modes les plus sensibles aux propriétés du joint de colle et/ou au substrat [30,31].

De Barros [16] modélise l'adhésion par un système de ressorts, appelé modèle rhéologique de Jones cohésif, dans le cas d'un assemblage de deux métaux identiques. Il décrit ainsi l'interaction des ondes de Lamb et ondes SH (shear transversal) en fonction des constantes de raideur (deux pour les ondes de Lamb et un pour les ondes SH) et montre que seuls les modes SH antisymétriques varient alors que tous les modes de Lamb sont systématiquement modifiés.

Dans le cas d'un problème inverse, Ismaili [32] utilise ce même modèle pour travailler avec les ondes de Lamb sur la qualité cohésive d'un assemblage composé de deux substrats d'aluminium. Elle montre ainsi que les valeurs de raideurs des deux ressorts décroissent à mesure que la qualité de l'adhésif est dégradée progressivement par ajout de graisse. De plus, les constantes de raideur des deux ressorts sont du même ordre de grandeur.

Marks et al. [28] ont étudié l'interaction des ondes de Lamb à l'aide de la vibrométrie 3D sur

un assemblage collé de référence et un autre avec un défaut créé par l'insertion d'un morceau de téflon. Ils ont notamment montré l'importance de la fréquence pour l'observation du défaut.

Ainsi les ondes de Lamb ont fait leurs preuves pour la détection de défauts macroscopiques. Ce sont donc des méthodes prometteuses pour évaluer un niveau d'adhésion, étant données leurs sensibilités aux propriétés de l'adhésif dans le cas d'un assemblage [33]. Cependant, la validation du contrôle non destructif a toujours été heurtée à la difficulté d'avoir des pièces dites étalons, de degrés d'adhésion variables et maîtrisées. Encore aujourd'hui, la littérature abonde pour la création de pièces avec des défauts d'adhésion mais ces derniers sont toujours réalisés avec l'ajout d'un corps étranger comme de la graisse [5,34] ou du téflon [34,35]. Or, pour étudier et valider des niveaux d'adhésion, la détermination expérimentale d'une grandeur caractérisant l'adhérence (tenue de l'assemblage) est nécessaire. Ces éprouvettes doivent avoir les caractéristiques mécaniques et physico-chimiques représentatives des assemblages industriels [36]. L'un des objectifs de cette thèse est donc la création d'éprouvettes étalons de niveaux d'adhésion variable en jouant uniquement sur les paramètres physico-chimiques.

Ce manuscrit est donc le résultat d'un travail pluridisciplinaire dans le cadre du projet ANR ISABEAU (Innovating for Structural Adhesive Bonding Evaluation and Analysis with Ultrasound), qui regroupe plusieurs partenaires académiques et industriels. D'un côté la physico-chimie a permis la caractérisation des paramètres pour la réalisation d'assemblages étalons à niveau d'adhésion variable. De l'autre côté, l'acoustique ultrasonore a permis de caractériser ces structures par des méthodes non destructives. Les assemblages étudiés sont réalisés à partir de substrat d'aluminium et d'un adhésif époxy. Les paramètres sélectionnés pour faire varier le niveau d'adhésion sont d'une part le traitement de surface, et d'autre part la conversion ou degré de réticulation de l'adhésif.

La démarche appliquée est une étude étape par étape que l'on retrouvera dans l'organisation de ce manuscrit. Chaque partie sera décomposée en deux chapitres : le premier portera sur une étude théorique des ondes de Lamb et le second sera une caractérisation expérimentale de chaque type d'échantillons.

La première partie étudiera l'influence de la conversion de l'adhésif sur la propagation des

ondes de Lamb dans le cas d'une simple plaque. Le premier chapitre permettra de rappeler les équations caractéristiques de propagation des ondes de Lamb dans une plaque. Le deuxième chapitre portera sur la caractérisation de l'adhésif époxy et sur l'influence de la conversion sur ses propriétés thermiques, mécaniques et acoustiques. Dès lors, l'étude proposée revient à résoudre un problème multi-échelles, puisque la conversion de l'adhésif peut être vue sur une échelle moléculaire et que les ondes de Lamb envisagées dans ce travail présentent des longueurs d'onde mésoscopiques.

La deuxième partie traitera de l'évaluation du niveau d'adhésion dans le cas d'une plaque d'aluminium revêtue d'une couche d'adhésif, structure appelée bicouche. L'intérêt de ce travail est de réaliser des conditions d'adhésion différentes afin de tester la possibilité de les discriminer par l'acoustique ultrasonore. Ces niveaux d'adhésion seront obtenus en jouant sur les paramètres physico-chimiques. Le premier chapitre traitera du couplage des ondes de Lamb dans la bicouche. L'interface de la structure sera modélisée par une distribution surfacique de ressorts travaillant en traction /compression et en cisaillement : c'est le modèle rhéologique adhésif de Jones. Ce modèle quantitatif permet d'étudier la sensibilité des modes à la qualité de l'adhésion. Afin de maîtriser les échantillons présentant différents niveaux d'adhésion, il est nécessaire de dégager les paramètres pertinents et de les mesurer. Ceci est l'objet du deuxième chapitre.

Enfin, la troisième partie traitera de l'assemblage tricouche métal/adhésif époxy/métal. Après avoir tracé les courbes de dispersion, appliqué le modèle de Jones et effectué une étude de sensibilité des modes aux paramètres de Jones, nous nous intéresserons particulièrement à l'aspect énergétique des modes de Lamb dans cette structure. La partie expérimentale du deuxième chapitre complètera cette étude.

La conclusion résumera les résultats obtenus au cours de ce travail et proposera des pistes de réflexion sur les suites de ce projet.

Première partie

**ÉTUDE DE LA CONVERSION DE
RÉSEAUX D'ÉPOXY**

Introduction

De tous les adhésifs structuraux, ceux réalisés à partir de la chimie des époxy sont les plus utilisés [37]. Ce projet voulant être représentatif des structures utilisées dans l'industrie, le choix de l'adhésif s'est porté sur une résine époxyde bi-composant dont la conversion est l'un des paramètres qui peut affecter l'adhésion d'un assemblage. Avant donc d'étudier son influence sur une structure sandwich, il est nécessaire de connaître l'influence de la conversion sur la propagation des ondes de Lamb. Cette première partie est donc consacrée à l'étude de réseaux époxy. Le premier chapitre porte sur les équations régissant les ondes de Lamb dans une plaque et le second traite de la caractérisation thermique, mécanique et acoustique ultrasonore par ondes de Lamb de réseaux époxy.

Chapitre 1

Ondes de Lamb : Généralités

Les ondes de Lamb ont été décrites en 1889 par le mathématicien Horace Lamb [38,39]. Elles ont pour principal intérêt de se propager sur des dizaines de longueurs d'onde, et donc d'accéder, dans certains cas, là où des instruments de mesure ne peuvent pas. Elles se propagent dans des structures de types plaques, tubes, coques sphériques... Il existe plusieurs modes de Lamb caractérisés par l'évolution de leur vitesse de phase en fonction de la fréquence. L'utilisation des ondes de Lamb dans les problèmes d'évaluation non destructive réside dans le fait que les longueurs d'onde et les vitesses de ces ondes de Lamb sont sensibles aux propriétés mécaniques du guide d'onde [33].

Les ondes de Lamb provoquent un déplacement des interfaces de la plaque par rapport au plan médian de celle-ci. L'écriture des conditions aux frontières conduit à la relation de Rayleigh-Lamb, à partir de laquelle on peut tracer les courbes de dispersion, qui nous donnent alors l'ensemble des couples nombre d'onde-fréquence pour lesquels une onde de Lamb peut se propager. Ce chapitre sera consacré à un rappel de la théorie des ondes élastiques, ainsi qu'à l'écriture des équations régissant les ondes de Lamb dans une structure dite monocouche.

1.1 Théorie des ondes élastiques

Nous allons nous intéresser dans cette partie à la propagation des ondes guidées dans des milieux homogènes, isotropes et élastiques. Nous nous intéresserons ensuite aux cas des ondes de Lamb dans une plaque.

Dans le cas d'un milieu homogène, isotrope et élastique, le champ de déplacement \mathbf{u} doit vérifier la loi de bilan de la quantité de mouvement :

$$\rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = \sum_{j=1}^3 \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} \quad (1.1)$$

où σ_{ij} sont les éléments du tenseur des contraintes $\bar{\sigma}$ et ρ est la masse volumique du matériau.

En utilisant la règle de sommation des indices d'Einstein, on peut écrire (1.1) de la façon suivante :

$$\rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} \quad (1.2)$$

La loi de comportement du solide est donnée par la loi de Hooke, soit, dans le cas d'un matériau isotrope :

$$\begin{cases} \sigma_{ii} = \lambda \operatorname{div} \mathbf{u} + 2\mu \frac{\partial u_i}{\partial x_i} \\ \sigma_{ij} = \mu \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right), \text{ pour } i \neq j \end{cases} \quad (1.3)$$

avec λ et μ , les coefficients de Lamé caractéristiques du matériau. Ainsi (1.2) et (1.3) nous donnent :

$$\rho \frac{\partial^2 \mathbf{u}}{\partial t^2} = (\lambda + 2\mu) \mathbf{grad} \operatorname{div} \mathbf{u} - \mu \operatorname{rot} \operatorname{rot} \mathbf{u} \quad (1.4)$$

Le théorème d'Helmholtz nous montre que le champ de déplacement \mathbf{u} dérive d'un potentiel scalaire ϕ et d'un potentiel vecteur $\boldsymbol{\psi}$:

$$\mathbf{u} = \mathbf{grad} \phi + \operatorname{rot} \boldsymbol{\psi} \quad (1.5)$$

avec la condition de jauge $\operatorname{div} \boldsymbol{\psi} = 0$. En reportant l'équation (1.5) dans (1.4), on obtient alors deux équations de propagation d'ondes découplées.

On a donc ϕ qui obéit à l'équation

$$\frac{\partial^2 \phi}{\partial t^2} - c_L^2 \Delta \phi = 0, \text{ avec } c_L = \sqrt{\frac{\lambda + 2\mu}{\rho}} \quad (1.6)$$

et ψ qui obéit à l'équation

$$\frac{\partial^2 \psi}{\partial t^2} - c_T^2 \Delta \psi = 0, \text{ avec } c_T = \sqrt{\frac{\mu}{\rho}} \quad (1.7)$$

1.2 Ondes de Lamb : Plaque plane dans le vide

1.2.1 Équations de dispersion

Dans le cas d'une plaque plane (Fig. 1.1), on travaille dans le plan (Oxz) , où l'axe Ox est la ligne médiane de la couche considérée et l'axe Oz est dirigé vers le haut. La plaque est caractérisée par sa masse volumique ρ , et par les vitesses de propagation de l'onde longitudinale c_L et de l'onde transversale c_T .

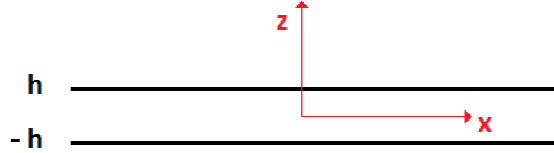


FIGURE 1.1 – Configuration géométrique de l'étude

Les solutions des équations des ondes longitudinale et transversale peuvent s'écrire sous la forme :

$$\begin{cases} \phi = [A_L \cos(k_{Lz} z) + B_L \cos(k_{Lz} z)] e^{i(k_x x - \omega t)} \\ \psi = [A_T \cos(k_{Tz} z) + B_T \cos(k_{Tz} z)] e^{i(k_x x - \omega t)} \end{cases} \quad (1.8)$$

où les couples (k_x, k_{Lz}) et (k_x, k_{Tz}) sont les composantes des vecteurs d'onde \mathbf{k}_L et \mathbf{k}_T dans le plan (Oxz) avec $k_L^2 = (\omega/c_L)^2 = k_{Lz}^2 + k_x^2$ et $k_T^2 = (\omega/c_T)^2 = k_{Tz}^2 + k_x^2$.

Il n'existe qu'une seule composante du potentiel vecteur à cause de l'invariance du système étudié (Fig. 1.1). De plus, au vu de la symétrie du système, on peut également écrire ϕ et ψ de la façon suivante :

$$\begin{cases} \phi = \phi_a + \phi_s \\ \psi = \psi_a + \psi_s \end{cases} \quad (1.9)$$

où ϕ_a, ψ_a représentent la partie antisymétrique des potentiels et ϕ_s, ψ_s la partie symétrique.

Les conditions aux frontières sont des surfaces libres, soit des contraintes nulles en $\pm h$, on peut donc écrire :

$$\begin{cases} \sigma_{xz}(z = \pm h) = 0 \\ \sigma_{zz}(z = \pm h) = 0 \end{cases}$$

On obtient ainsi quatre équations à quatre inconnues A_L, B_L, A_T et B_T , qui sont les amplitudes. En utilisant la décomposition symétrique et antisymétrique, on obtient deux sous-systèmes d'équations associés respectivement aux modes symétriques et aux modes antisymétriques.

Cas des modes symétriques

La relation entre le vecteur déplacement et les potentiels montre que la partie symétrique de ϕ et la partie antisymétrique de ψ contribuent à une déformée symétrique suivant l'axe x par rapport au plan médian $z = 0$, qui par conséquent est immobile (Fig. 1.2).

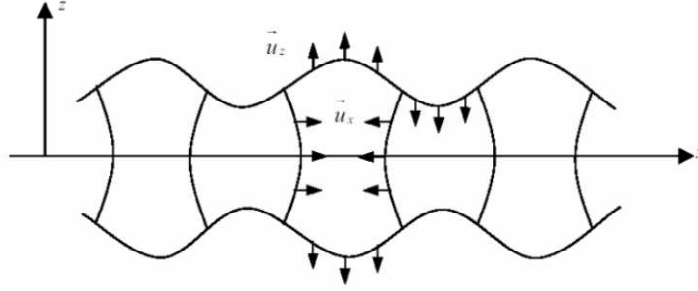


FIGURE 1.2 – Déformée de la plaque pour un mode symétrique à un instant t

Ainsi en considérant $\phi = \phi_s$ et $\psi = \psi_a$, on obtient d'après l'équation (1.8) la relation suivante :

$$\begin{pmatrix} -2ik_x k_{Lz} \sin k_{Lz} h & (k_T^2 - 2k_x^2) \sin k_{Tz} h \\ -(k_T^2 - 2k_x^2) \cos k_{Lz} h & 2ik_x k_{Tz} \cos k_{Tz} h \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A_L \\ B_T \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (1.10)$$

Ce système possède une solution non triviale si le déterminant de la matrice est nul. L'équation caractéristique de dispersion des modes symétriques s'écrit donc :

$$\frac{\tan k_{Lz} h}{\tan k_{Tz} h} = -\frac{(2k_x^2 - k_T^2)^2}{4k_x^2 k_{Lz} k_{Tz}} \quad (1.11)$$

Cas des modes antisymétriques

De même, la partie antisymétrique de ϕ et la partie symétrique de ψ nous donne une déformée antisymétrique par rapport au plan médian $z = 0$, qui par conséquent, est en mouvement antisymétrique (Fig. 1.3).

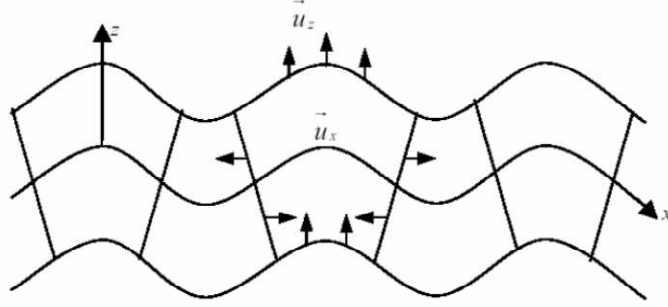


FIGURE 1.3 – Déformée de la plaque pour un mode antisymétrique à un instant t

En considérant cette fois $\phi = \phi_a$ et $\psi = \psi_s$, on obtient :

$$\begin{pmatrix} -2ik_x k_{Lz} \cos k_{Lz} h & (k_T^2 - 2k_x^2) \cos k_{Tz} h \\ (k_T^2 - 2k_x^2) \sin k_{Lz} h & -2ik_x k_{Tz} \sin k_{Tz} h \end{pmatrix} \begin{pmatrix} B_L \\ A_T \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (1.12)$$

De même que pour les modes symétriques, ce système possède une solution non triviale en annulant le déterminant de la matrice. L'équation caractéristique de dispersion des modes antisymétriques s'écrit donc :

$$\frac{\tan k_{Lz} h}{\tan k_{Tz} h} = -\frac{4k_x^2 k_{Lz} k_{Tz}}{(2k_x^2 - k_T^2)^2} \quad (1.13)$$

1.2.2 Solutions des équations de dispersion

La résolution des équations (1.11) et (1.13) est faite à l'aide de l'algorithme de Newton-Raphson avec un code de calcul développé sous Matlab, connaissant au préalable les constantes physiques de la couche : c_L, c_T et la masse volumique ρ . Il est d'usage de tracer ces courbes en fonction de deux paramètres adimensionnés, ici $k_x h$ représentant le produit du nombre d'onde et de l'épaisseur en fonction de $\omega h / c_T$ représentant le produit fréquence-épaisseur divisé par la vitesse de l'onde transversale.

Un exemple de courbes de dispersion obtenues suite à ce calcul est donné figure 1.4 pour le cas d'une plaque d'aluminium. Les paramètres élastiques des plaques sont donnés dans le tableau 1.1. Les courbes des modes symétriques sont notées "S" et antisymétriques "A".

Plaque	$\rho(kg/m^3)$	$c_L(m/s)$	$c_T(m/s)$
Aluminium	2800	6380	3100

TABLE 1.1 – Paramètres élastiques utilisés pour une plaque d'aluminium

Nous pouvons voir que les modes d'ordre zéro symétrique (S_0) et antisymétrique (A_0) sont les seuls modes propagatifs solutions des équations de dispersion (1.11) et (1.13) respectivement lorsque le produit fréquence-épaisseur tend vers 0. Ces modes n'ont pas de fréquence de coupure : ils existent quelle que soit la fréquence. Pour des valeurs définies du produit $\omega h/c_T$, des modes d'ordre supérieur apparaissent. Ces modes possèdent une fréquence de coupure. Ils correspondent aux modes symétriques supérieurs S solutions de l'équation (1.11) et aux modes antisymétriques supérieurs A solutions de l'équation (1.13), numérotés suivants leur ordre d'apparition.

À haute fréquence, on constate que les courbes de dispersion associées aux modes S_0 et A_0 tendent asymptotiquement vers une valeur $k_x = k_R$, où $k_R = \omega/c_R$ avec c_R la vitesse de l'onde de Rayleigh. De plus, pour tous les autres modes, la limite asymptotique est donnée par $k_x = k_T$.

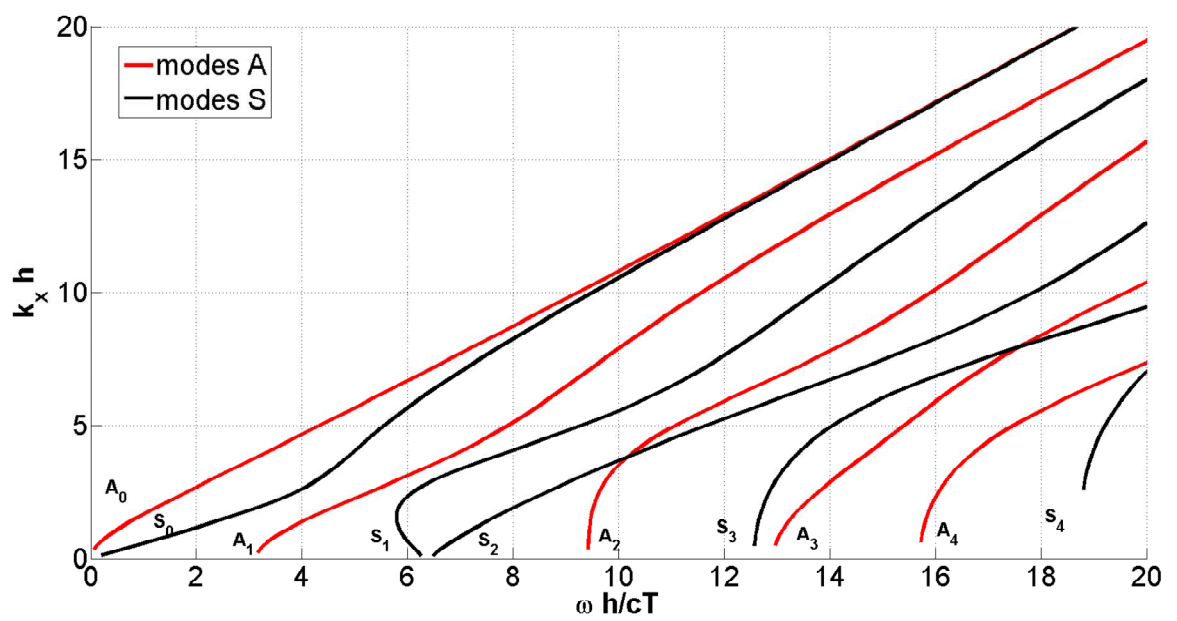


FIGURE 1.4 – Courbes de dispersion adimensionnées d’une plaque d’aluminium placée dans le vide

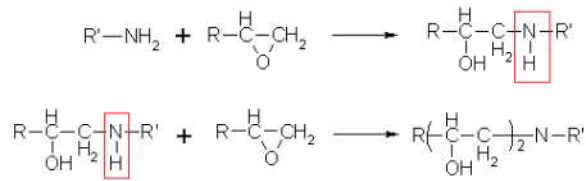
Chapitre 2

Caractérisation physico-chimique et ultrasonore de l'adhésif époxy

Comme annoncé en introduction, l'un des paramètres pouvant jouer sur le niveau d'adhésion est la réticulation de l'adhésif époxy. Le but de ce chapitre est donc de caractériser à la fois par des méthodes physico-chimiques et par des méthodes acoustiques les réseaux époxy pour plusieurs taux de réticulation. Après avoir rappelé des généralités sur les réseaux thermodurcissables, les méthodes de caractérisation physico-chimiques utilisées sont présentées suivies des résultats obtenus. Enfin les deux méthodes de caractérisation acoustiques ultrasonores et leurs résultats seront présentés.

2.1 Réseaux thermodurcissables

Les matériaux du type époxy sont utilisés dans un grand nombre d'applications dont les adhésifs [40]. La formulation d'un adhésif époxy de base est constituée d'un pré-polymère époxyde et d'un durcisseur qui est souvent une diamine. La réaction chimique entre le pré-polymère époxyde et le durcisseur est une réaction de polyaddition puisqu'il n'y a pas de tiers produits (comme l'eau). Le mécanisme réactionnel est schématisé ci-dessous. La réaction d'un groupe époxy avec une amine primaire forme une molécule comportant une amine secondaire qui réagira avec un deuxième groupe époxyde :



Dès lors que la fonctionnalité des réactifs et leurs proportions sont adéquates, la réaction va conduire à la formation d'un réseau tridimensionnel, dont les paramètres (taux de réticulation, température de transition vitreuse, module élastique...) sont directement liés aux caractéristiques de chacun des réactifs. Cette réaction est aussi appelée réticulation.

Les phénomènes de réticulation ont largement été étudiés : des diagrammes d'état Temps - Température - Transformation (TTT) ont été établis (Figure 2.1), qui permettent de suivre l'évolution du système en fonction du temps et de la température de réticulation [2].

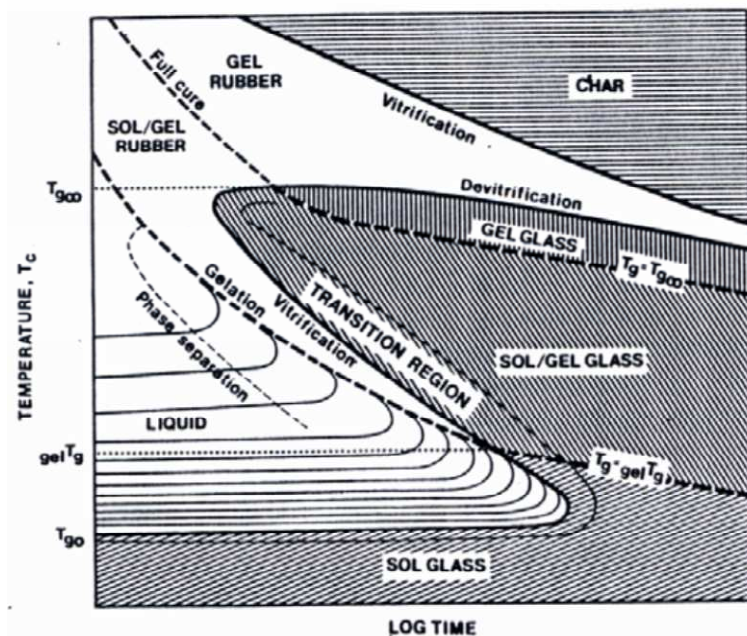


FIGURE 2.1 – Exemple d'un diagramme TTT [2]

Au cours de sa réticulation, le matériau est en constante évolution et va passer par des transitions caractéristiques qui sont la gélification et la vitrification :

- **La gélification** est une phase critique dans la polymérisation qui se traduit par la formation d'un réseau infini de molécules liées de façon covalente. Macroscopiquement, cette transition

se traduit par le changement d'un état liquide à caoutchoutique (la viscosité de l'échantillon tend vers l'infini). Pour un thermodurcissable, le gel chimique est donc irréversible. Pour un pré-polymère diépoxy ayant une fonctionnalité de 2 (deux sites réactifs) et un durcisseur di-amine ayant une fonctionnalité de 4 (quatre sites réactifs), la théorie [41] permet de calculer que la conversion des fonctions époxy au gel est située aux environs de 60%, ceci pour un nombre équivalent de fonction époxy et amine (soit un rapport stoechiométrique amine/époxy égal à 1).

- **La vitrification** est le passage d'un état liquide ou caoutchoutique à un état solide. La température de transition vitreuse, T_g , augmente au cours de la réaction avec l'accroissement de la masse molaire et du taux de réticulation. Quand la température de transition vitreuse atteint ou dépasse la température de réticulation, le système vitrifie (en référence à son aspect qui évoque un verre).

Plusieurs expressions reliant la température de transition vitreuse T_g à la conversion x sont proposées dans la littérature. La plus populaire est la relation de Di Benedetto modifiée par Pascault et Williams [40] :

$$\frac{T_g - T_{g0}}{T_{g\infty} - T_{g0}} = \frac{\lambda x}{1 - (1 - \lambda)x} \quad (2.1)$$

où T_{g0} est la température de transition vitreuse à $t = 0$, $T_{g\infty}$ est la température de transition vitreuse pour un polymère complètement réticulé, et $\lambda = \frac{\Delta C_{p\infty}}{\Delta C_{p0}}$ est le rapport des variations de capacité calorifique lors des transitions vitreuses du matériau complètement réticulé et de la formulation réactive à l'état initial.

2.2 Matériaux et méthodes d'analyses physico-chimiques

2.2.1 Matériaux

Les adhésifs commerciaux utilisés dans le collage industriel sont des formulations extrêmement complexes, réalisées à partir de plusieurs composants que ce soit dans la partie "résine" ou la partie "durcisseur". La plupart du temps, ces adhésifs sont disponibles sous forme de nappes ou de liquides de très haute viscosité.

Or, dans le cadre du projet ISABEAU, des réseaux massifs et des assemblages de formes et de

tailles variées doivent être réalisés afin d'être adapté aux types d'ondes et d'analyses envisagées. En conséquence, nous avons choisi de travailler avec une formulation époxy simple, modèle, bi-composant, mais néanmoins composée de monomères largement disponibles. Les avantages de ce système sont d'une part la connaissance de son mécanisme réactionnel permettant de faire varier le degré de réticulation, d'autre part son adéquation pour la mise en œuvre des échantillons souhaités.

Dans le cadre d'un projet précédent [42], une formulation adhésive à base de DGEBA et du durcisseur isophorone diamine (IPD) avait été utilisée. Ce système est très réactif et peut poser quelques problèmes de mise en œuvre lorsque l'on souhaite réaliser de grands échantillons sans aucune bulle. En effet, ces bulles peuvent perturber les mesures acoustiques et pour s'en affranchir, il est nécessaire de dégazer le système pendant suffisamment longtemps. Il a donc été décidé de changer de durcisseur : le choix s'est porté sur une diamine du type polyétheramine, la Jeffamine D230 (230 est la valeur de sa masse molaire). En raison de l'encombrement stérique du groupe $-CH_3$, les fonctions amines sont moins réactives. Néanmoins ce durcisseur réagit à la température ambiante mais beaucoup plus lentement que l'IPD.

La formulation adhésive époxy sélectionnée est une formulation modèle bi-composant : le pré polymère époxy est une DGEBA (Diglycidyl Ether du Bisphénol A) provenant de chez DOW Chemical sous la référence DER 331 (pour Dow Epoxy Resin) et le durcisseur est une diamine aliphatique, la Jeffamine D 230, provenant de chez Huntsman. Les formules chimiques de ces deux composants ainsi que leurs caractéristiques sont données dans le tableau ci-dessous :

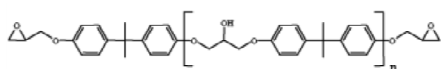
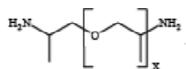
	DGEBA DER 331	Jeffamine D230
		
Etat à 25°C	Liquide visqueux	Liquide transparent
Fonctionnalité	2	4
Densité à 25°C (g/ml)	1.16	0.948
Viscosité à 25°C (Pa.s)	11 à 14	9.5
Equivalent (g/eq)	Epoxy : 185	Amino hydrogène : 60

TABLE 2.1 – Caractéristiques techniques des produits utilisés pour la formulation époxy

L'équivalent époxy est la masse de résine époxyde contenant une mole de fonction époxy.

La fonctionnalité représente le nombre de sites actifs dans une molécule.

2.2.2 Mise en oeuvre

Les formulations présentées dans ce rapport ont été réalisées avec un rapport stœchiométrique de 1 (même nombre de fonction époxy et d'amino hydrogène). Ce rapport est défini par :

$$r = \frac{a}{e} = \frac{f_{amine}n_{amine}}{f_{epoxyde}n_{epoxyde}} \quad (2.2)$$

avec a , le nombre de moles de fonctions amines NH ; e , le nombre de moles de fonctions époxydes ; f , la fonctionnalité et n , le nombre de moles de diamine ou de diépoxy.

Ainsi, dans le cas présent, le mélange doit se faire dans une proportion de 100g de DER 331 pour 32,4g de D 230. Afin de rendre la formulation homogène, le mélange se fait dans un réacteur en verre, sous agitation mécanique. Le dégazage du mélange se fera sous vide pour des grosses quantités (100g) ou à l'aide du bain à ultrasons pour des petites quantités (moins de 20g). Afin d'avoir un polymère complètement réticulé, la formulation subira un cycle de réticulation de 48h à température ambiante suivi de 1h à 80°C puis 3h à 160°C.

2.3 Suivi de l'avancement de la réaction à température ambiante

2.3.1 Méthode de caractérisation

La DSC (Differential Scanning Calorimetry) est une technique d'analyse thermique qui mesure les différences des échanges thermiques entre un échantillon à analyser et une référence. La DSC est ici utilisée pour déterminer deux grandeurs : la température de transition vitreuse T_g et l'enthalpie de la réaction, ΔH . Comme l'illustre la figure 2.2, ces deux grandeurs ont été suivies en fonction du temps de réaction de la formulation adhésive à la température ambiante. Il est également à noter que le calcul de la DSC est relatif à la masse de l'échantillon. L'appareil Q22 de chez TA Instruments a été utilisé, dans les conditions suivantes :

- Rampe de température de -120°C à 230°C à la vitesse de 10°C/min

- Refroidissement rapide
- Deuxième rampe de 0°C à 230°C, à la vitesse de 10°C/min

A partir du pic exothermique de réaction, il est possible de calculer le taux de conversion x , donné par :

$$x = 1 - \frac{\Delta H_t}{\Delta H_0} \quad (2.3)$$

avec ΔH_t : Enthalpie de réaction au temps t , et ΔH_0 : Enthalpie de réaction à $t = 0$. Ainsi, quand $\Delta H_t \rightarrow 0$, la réaction chimique est terminée.

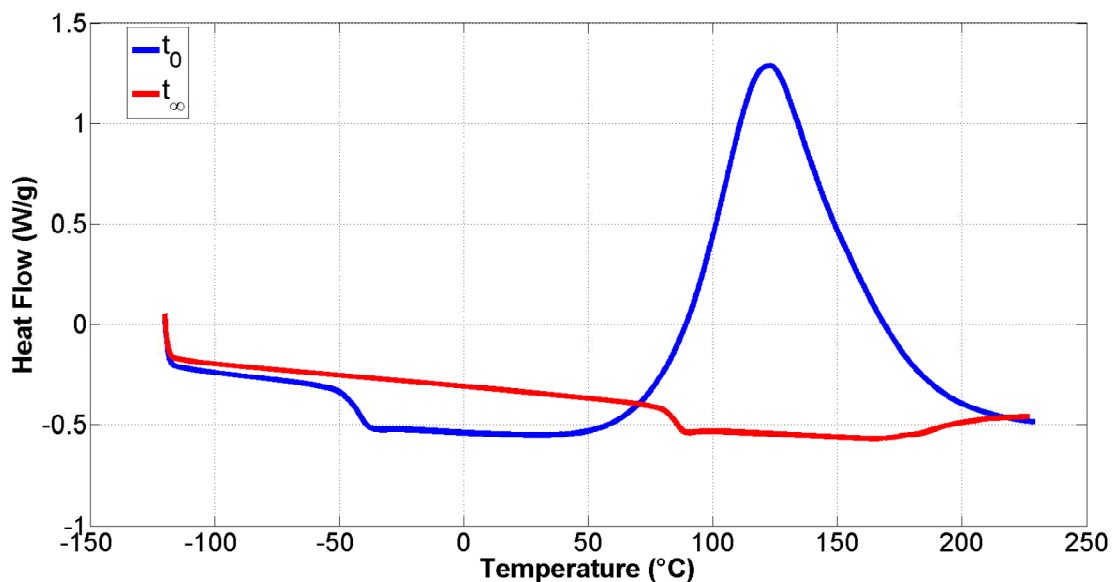


FIGURE 2.2 – Thermogrammes de la réaction époxy + amine obtenus à $t = 0$ (début de réaction chimique) et à $t = \infty$ (fin de la réaction chimique)

2.3.2 Résultats

Afin de connaître le taux de conversion dans le cas d'une réticulation à la température ambiante, un suivi de l'avancement de la réaction a été effectué. Après réalisation du mélange de la DGEBA DER 331 et de la Jeffamine D230, le mélange a été entreposé dans une salle à température contrôlée. Des essais de DSC ont été réalisés régulièrement afin de connaître l'avancement de la réaction (ou le taux de conversion), ainsi que l'évolution de la température de transition vitreuse.

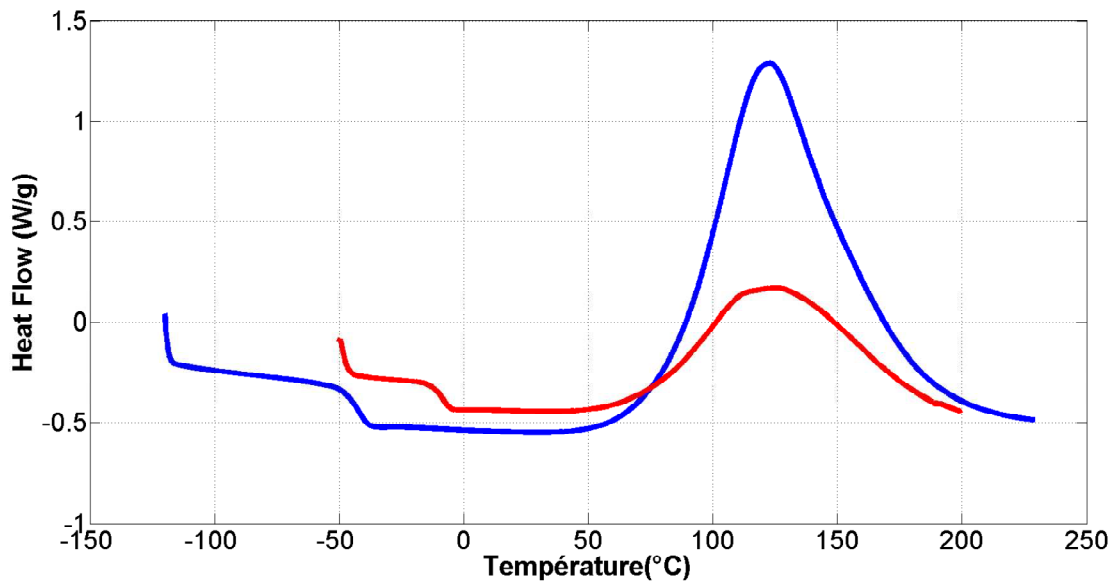


FIGURE 2.3 – Thermogramme de la réaction époxyde à $t = 0$ (●) et à $t = 8h$ (●)

La courbe obtenue à $t = 0$ (c'est-à-dire immédiatement après le mélange des deux composés) est reportée sur la figure 2.3 (courbe bleue). Entre -40°C et -50°C , la température de transition vitreuse de la formulation est observée. Les valeurs reportées sur les figures sont celles obtenues au « mid-point », dans le cas présenté, $T_g = -44^{\circ}\text{C}$. Ensuite entre 50°C et 225°C , le pic exothermique de réaction est observé avec un maximum à 120°C . L'intégration de l'aire sous la courbe donne l'enthalpie à l'instant $t = 0$, soit $\Delta H_0 = 432 \text{ J/g}$.

La courbe rouge sur la figure 2.3 montre le thermogramme obtenu après 8 heures de réaction à la température ambiante. On constate que la température de transition vitreuse augmente (elle passe d'environ -50°C à -10°C) alors que le pic de réaction voit son intensité diminuer (le pic passe de 1.3 W/g à 0.2 W/g) et donc son enthalpie aussi (265 J/g).

L'évolution de la température de transition vitreuse au cours de la réticulation à l'ambiante et celle du taux de conversion sont tracées sur la figure 2.4 et figure 2.5, respectivement. Dans les deux cas, un plateau est atteint après environ 6000 minutes pour la T_g soit un peu plus de 4 jours, et 4000 minutes pour la conversion (soit environ 3 jours), signe que la réaction est arrêtée. Il s'agit du phénomène de vitrification. La température de transition vitreuse est alors égale à environ 43°C et est supérieure d'environ 20°C à la température de réaction.

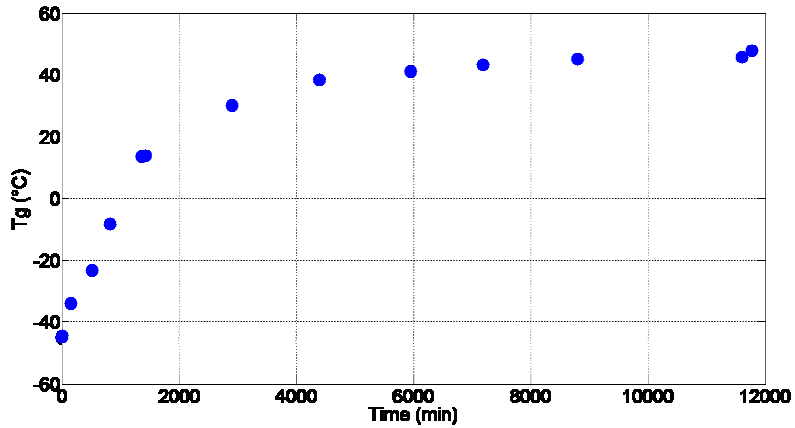


FIGURE 2.4 – Evolution de la température de transition vitreuse Tg en fonction du temps pour une réticulation à l’ambiante du système époxy

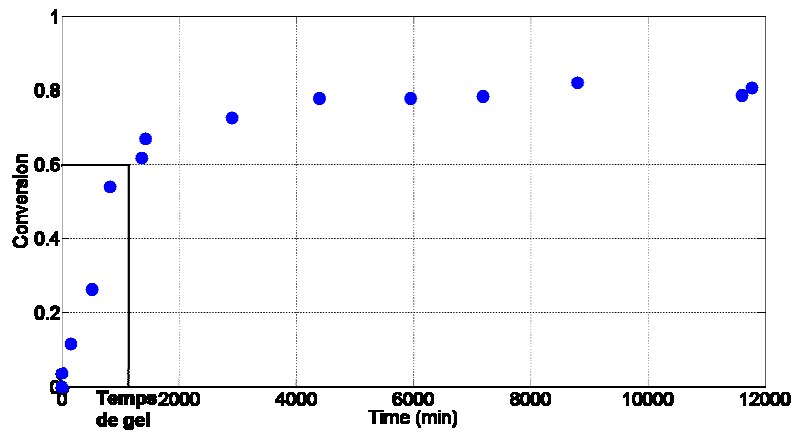


FIGURE 2.5 – Courbe de conversion en fonction du temps pour une réticulation à l’ambiante du système époxy

La conversion, quant à elle, atteint 80%. C’est la valeur maximale qui peut être obtenue pour une réticulation à température ambiante. On peut remarquer que le point de gel qui intervient pour une conversion proche de 60%, est dépassé après 22 heures. Les différences de temps notées pour atteindre le plateau sont dues au fait que la Tg est un paramètre plus sensible que le taux de conversion. La détermination de ce dernier peut être un peu faussée par des temps de réaction longs car le phénomène de transition vitreuse se superpose à l’exothermicité faible de la réaction. En effet, on a pu constater sur la figure 2.3 qu’au cours de la réaction chimique, la température de transition vitreuse augmentait, il y a donc interférence entre le saut lié à la Tg et le pic relié à l’exothermie.

Afin d'avoir une réticulation totale des matériaux, il suffira d'appliquer un cycle de post-cuisson à haute température. Ceci permettra de redonner de la mobilité aux fonctions chimiques qui pourront alors continuer à réagir.

A partir des valeurs expérimentales de T_g et de conversion, on trace la T_g en fonction de la conversion x (Fig. 2.6). Le point correspondant à une conversion de 1 a été déterminé sur un échantillon ayant subi un cycle de post-cuisson de 3h à 160°C.

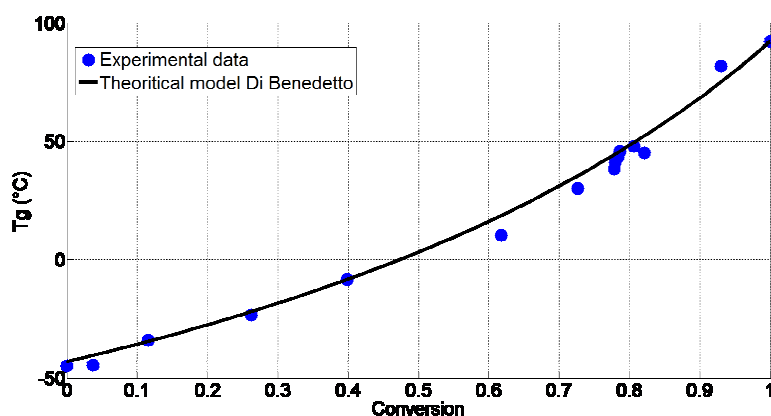


FIGURE 2.6 – Courbe de la température de transition vitreuse en fonction de la conversion : Modèle théorique de DiBenedetto et résultats expérimentaux

Le modèle de Di Benedetto permet également de tracer la variation de la conversion en fonction du temps, à partir des valeurs expérimentales de T_g et ΔC_p , pour une conversion nulle et de 1. Ces valeurs sont données dans le tableau suivant :

	$T_{g0}(\text{°C})$	$\Delta C_{p0}(J/(g \cdot \text{°C}))$	$T_{g\infty}(\text{°C})$	$\Delta C_{p\infty}(J/(g \cdot \text{°C}))$	$\lambda = \frac{\Delta C_{p\infty}}{\Delta C_{p0}}$
DGEBA-D230	-43	0.73	92	0.39	0.53

TABLE 2.2 – Données nécessaires au modèle de Di Benedetto

Ainsi, le suivi de réticulation à température ambiante a permis l'obtention de la courbe qui nous donne à partir d'une simple mesure de T_g , la conversion de l'époxy. Issus de ces mesures de T_g et de conversion en fonction du temps, trois niveaux de conversion de l'adhésif époxy ont été visés en appliquant trois cycles de réticulation différents :

- Cycle 1 : 7 jours à température ambiante, $T_g=48^\circ\text{C}$, $x=80\%$

- Cycle 2 : 24h à température ambiante + 2h à 80°C + 2h à 160°C, $T_g=83^\circ\text{C}$, $x=93\%$
- Cycle 3 : 24h à température ambiante + 1h à 80°C + 3h à 160°C, $T_g=92^\circ\text{C}$, $x=100\%$

Il est connu que la valeur de la conversion a de nombreuses influences sur les propriétés des réseaux époxy, en particulier sur le comportement mécanique. Dans notre cas, les trois réseaux synthétisés sont à l'état vitreux à température ambiante. Les modules d'Young sont donc supérieurs au GPa et il a été montré qu'ils diminuaient lorsque la conversion augmentait [43, 44] alors que le module à l'état caoutchoutique augmente avec la conversion. Les réseaux partiellement réticulés sont plus fragiles que les réseaux totalement réticulés comme l'ont montré les essais de résistance à l'impact [44]. Notre objectif est donc de savoir si ces différences peuvent être révélées via l'utilisation de méthodes ultrasonores.

2.4 Caractérisation ultrasonore de réseaux époxy

La différenciation de la réticulation de l'époxy par ultrasons est une étape essentielle dans le contrôle non destructif des assemblages réalisés par collage structural. En effet, un changement de réticulation entraîne des différences de propriétés thermiques et mécaniques, ce qui peut faire apparaître des défauts cohésifs ou adhésifs au sein de l'assemblage [3].

2.4.1 Réalisation des réseaux époxy massifs

Notre objectif est la réalisation de plaques massives de réseaux époxy, de dimension 150 mm x 200 mm, pour quatre épaisseurs différentes : 2, 3, 4 et 5 mm, ainsi que trois conversions différentes : la première partielle à 80%, la seconde partielle également mais à 93%, et la troisième totale avec $x = 1$. Ces plaques doivent être exemptes de bulles et d'épaisseur constante. Ainsi, la principale difficulté pour la réalisation de ces plaques était la mise en place d'un protocole et la fabrication d'un moule afin d'assurer ces conditions. Pour cela, un moule adéquat pour une coulée verticale a été réalisé (Figure 2.7). Ce moule est constitué de deux plaques d'aluminium de dimensions 200x300x4 mm³, assemblées par un système de serre-joints. Afin de pouvoir démouler les plaques, l'aluminium est préalablement revêtu d'un démoulant. Le démoulant utilisé ici est le Cirex Si 041 WB. La formulation époxy (DER 331 + D 230) est alors coulée entre ces plaques dont l'étanchéité est assurée par un joint en silicone en forme de U. Afin de pouvoir contrôler

l'épaisseur des plaques époxy, des cales sont insérées dans le moule. Pour chaque épaisseur de plaque souhaitée, on dispose donc de cales et de joint en silicone d'épaisseur équivalente.

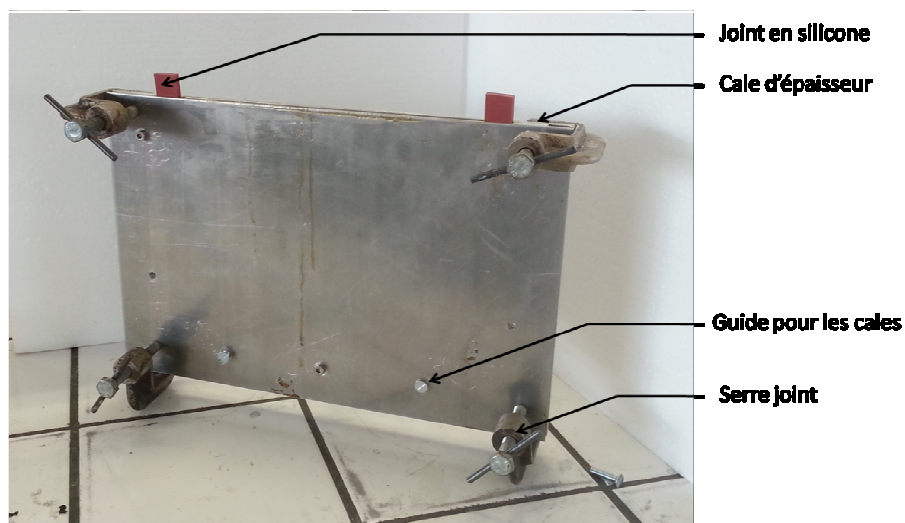


FIGURE 2.7 – Photo du moule utilisé pour la réalisation des réseaux massifs époxy

Le mode opératoire a également été conçu pour limiter la présence de bulles. Un premier dégazage dans un réacteur sous vide est réalisé sur la DER 331 à 45°C pendant 2h. Après retour à la température ambiante, la Jeffamine D 230 est ajoutée dans le réacteur et mélangée manuellement à a spatule avec la DER 331 pendant 10 min afin de rendre le mélange homogène. Puis le mélange est de nouveau dégazé sous vide pendant 2h. La formulation époxy peut alors être coulée dans le moule placé verticalement.

Celui-ci est alors entreposé dans une pièce à température contrôlée (23°C+/-2°C) pendant 3 jours. Une post cuisson (2 h 80°C + 2 h 160°C) est réalisée afin d'avoir une conversion de 93%. Seuls les échantillons de 5 mm d'épaisseur ont été préparés pour les trois conversions. Les plaques sont ensuite démoulées à l'aide du pistolet à air comprimé au vue de la fragilité des éprouvettes partiellement réticulées. Finalement, neuf réseaux ont été ainsi préparés.

Nomenclature : Afin de faciliter l'identification des échantillons, une nomenclature a été mise en place : DJ(pour DGEBA-Jeffamine)-épaisseur-conversion. Par exemple : DJ-5-80 représente la plaque d'époxy d'épaisseur 5 mm et de conversion 80%.

2.4.2 Caractérisation ultrasonore par ondes de volume

Dans un premier temps, nous avons mesuré la vitesse de l'onde longitudinale c_L et de l'onde transversale c_T , afin de dégager une éventuelle variation de ces vitesses en fonction de la réticulation de l'époxy. Cette mesure s'effectue par contact en incidence normale, en plaçant un transducteur ultrasonore à la surface de l'échantillon, après avoir déposé un film de gel couplant ultrasonore (Fig 2.8). Un transducteur à onde longitudinale de fréquence centrale de 5 MHz est utilisé pour la mesure de c_L , et un autre à onde transversale de fréquence centrale de 2.25 MHz pour la mesure de c_T . Le signal d'excitation est une sinusoïde d'une période afin d'élargir le domaine fréquentiel de l'étude. Sa fréquence est à la fréquence centrale du transducteur avec une amplitude de 10 V crête à crête. Le signal d'excitation est délivré par un générateur de fonction AGILENT 33500B. Les échos correspondant aux multi-réflexions dans l'épaisseur de chaque échantillon sont visualisés sur un oscilloscope LECROY HRO 66Zi, puis enregistrés sur micro-ordinateur pour traitement.

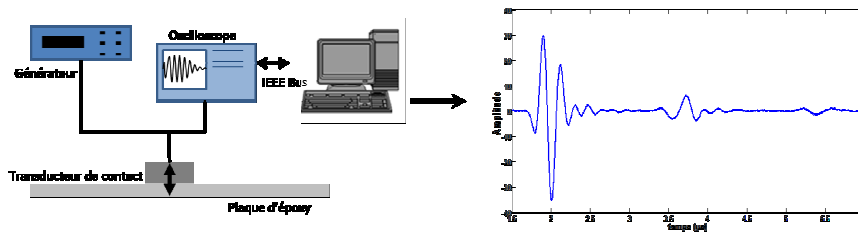


FIGURE 2.8 – a) Dispositif expérimental pour la mesure de vitesse b) Exemple de signal temporel obtenu sur DJ-2-80

La détermination des vitesses peut être obtenue par calcul de temps de vol dans l'échantillon, mais vue la visco-élasticité importante du matériau, seuls 2 ou 3 échos ont pu être obtenus (Fig. 2.8b). Une transformée de Fourier est alors appliquée afin d'obtenir le spectre des signaux reçus. Un exemple est donné Fig 2.9.

À partir de l'écart fréquentiel ΔF mesuré entre deux pics et connaissant l'épaisseur e de l'échantillon, on déduit c_L et c_T par la relation :

$$c_{L,T} = 2e\Delta F \quad (2.4)$$

À noter que, pour chaque échantillon, 5 mesures ont été effectuées puis, une moyenne des vitesses mesurées ainsi que l'écart type ont été calculés.

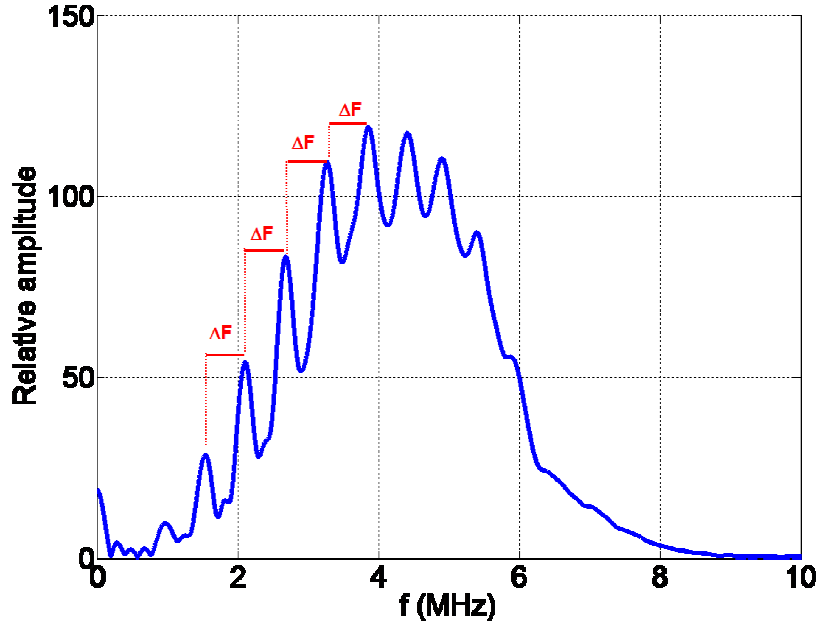


FIGURE 2.9 – Spectre obtenu après la transformée de Fourier pour la détermination fréquentielle des vitesses par ondes de volume sur l'échantillon DJ-2-80

Les résultats obtenus sont regroupés dans le tableau 2.3. Ils montrent que, même si les vitesses augmentent avec la conversion, leurs variations ne sont pas suffisamment prononcées pour distinguer clairement les échantillons. En effet, on peut voir que la vitesse de cisaillement est la moins sensible à la transformation car ses variations sont inférieures à l'écart type. Pour la vitesse longitudinale, les échantillons de conversion 80% sont légèrement différenciables des autres en tenant compte de l'écart type, mais les échantillons de 93% et de 100% de conversion ne peuvent pas être discriminés. Ceci peut être expliqué par le fait que pour ces derniers échantillons, les paramètres visco-élastiques sont trop proches. En conclusion, nous pouvons déduire que l'onde de volume de cisaillement n'est pas très sensible à la réticulation de l'époxy, tandis que la longitudinale pourrait être sensible à une variation relativement importante de la conversion.

Conversion	Longitudinales		Transversales	
	Vitesse (m/s)	Ecart type (m/s)	Vitesse (m/s)	Ecart type (m/s)
DJ-x-80	2441	26	1116	50
DJ-x-93	2506	38	1119	33
DJ-x-100	2512	30	1120	74

TABLE 2.3 – Résultats des mesures de vitesses dans les réseaux époxy pour les différentes conversions étudiées

De nombreuses études ont montré que la conversion jouait sur les paramètres acoustiques, principalement sur l'atténuation [45,46]. Certaines ont montré que la conversion influe également sur les paramètres de vitesse [47]. Cependant, à notre connaissance, aucun suivi à des conversions élevées n'avait été effectué après le point de gel, et à l'état vitreux. Ainsi les résultats obtenus restent en accord avec la littérature.

2.4.3 Étude théorique de la sensibilité des modes de Lamb à la conversion

Le but de cette étude est de tracer les courbes de dispersion des ondes de Lamb pour des réseaux d'époxy massifs ayant des taux de conversion différents, en mettant comme données d'entrée les vitesses longitudinale et transversale mesurées dans l'étude précédente pour chaque conversion. L'objectif est de dégager d'éventuels modes sensibles à ces conversions, malgré la faible variation constatée des vitesses longitudinale et transversale.

Comme annoncé au chapitre précédent, la recherche des courbes de dispersion théoriques se fait à l'aide de l'algorithme de Newton Raphson et sont tracées en fonction de deux paramètres adimensionnés : $\omega h/c_T$ et $k_x h$. Les courbes sont ainsi tracées pour n'importe quelle épaisseur. Le paramètre variant pour un échantillon est le rapport entre les vitesses transversales et longitudinales. En utilisant les valeurs trouvées dans la partie précédente, les rapports sont reportés dans le tableau 2.4 et les courbes obtenues sont tracées sur la figure 2.10.

Conversion	80%	93%	100%
c_T/c_L	0.457	0.446	0.449

TABLE 2.4 – Rapport des vitesses transversales et longitudinales dans l'époxy pour les différentes conversions

On remarque que les courbes de dispersion correspondant aux conversions de 93% et 100% sont quasi confondues. Ceci peut s'expliquer par le faible écart entre les vitesses longitudinales et transversales des deux échantillons, et donc de la faible variation du rapport c_T/c_L (Tab. 2.4).

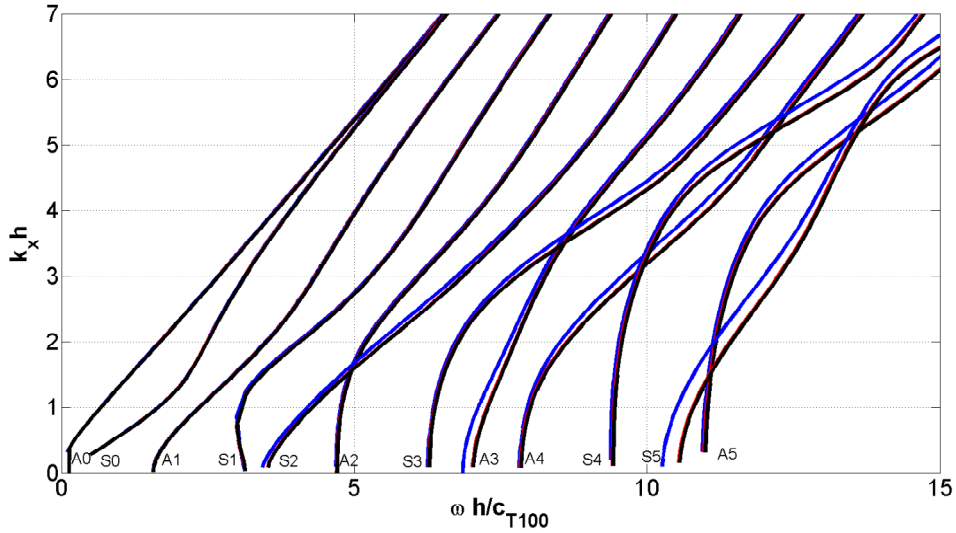


FIGURE 2.10 – Courbes de dispersion théoriques adimensionnées du système époxy pour les trois conversions étudiées : 80% (●), 93% (●) et 100% (●)

On peut par contre observer une différence suivant les taux de réticulation entre 80 et 93% et entre 80 et 100%. Cette différence s'accroît quand on s'intéresse à des modes de Lamb d'ordre plus élevé, et dépend de la fréquence. En effet, on peut remarquer que les bas modes (A_0 , S_0 , A_1 , S_1 et A_2) ne présentent aucune sensibilité à la conversion (Fig. 2.11). Ce sont donc de très mauvais candidats pour discriminer la réticulation. Les autres modes montrent une sensibilité qui dépend de la fréquence. On peut voir que certains modes sont sensibles en basses fréquences mais pas en hautes fréquences (modes S_2 , A_3 et S_5 par exemple) (Fig. 2.12), alors que ceci est inversé pour d'autres modes (par exemple : S_3 , A_4 , S_4 , A_5). Cependant, la sensibilité croît également avec la fréquence et l'ordre du mode. Ces résultats prédictifs montrent donc qu'une discrimination entre les conversions à 80% et celles à 93% ou 100% est possible, à condition de choisir le bon mode à la bonne fréquence.

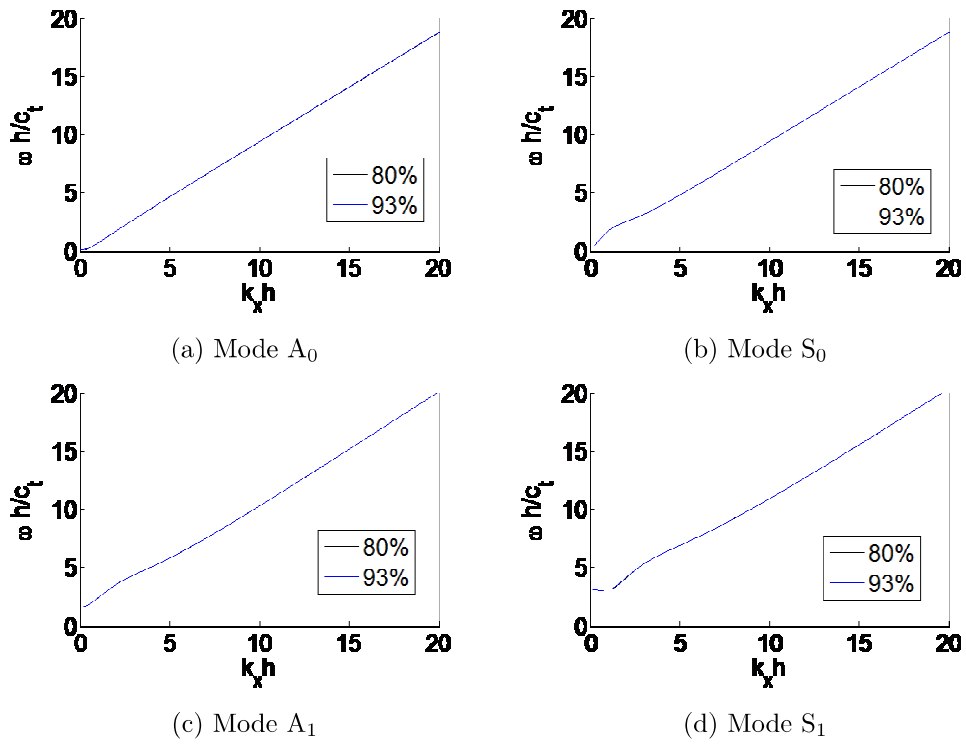


FIGURE 2.11 – Courbes de dispersion adimensionnées théoriques des modes dits "bas" pour les différentes conversions

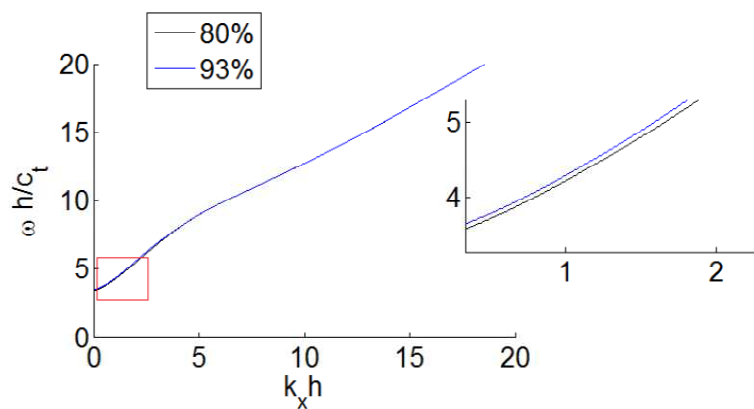


FIGURE 2.12 – Courbes de dispersion théoriques adimensionnées du mode S_2 pour les différentes conversions

Cependant, dans la mesure où on ne prend pas en compte l'atténuation et bien que plus on augmente la fréquence, plus les modes sont intéressants pour la discrimination des conversions, cette étude ne peut être réalisée pour des trop hautes fréquences. Ainsi, afin de négliger le phénomène d'absorption par le matériau, la longueur d'onde ne doit pas excéder environ 20% de l'épaisseur de la plaque.

Une discrimination théorique entre une conversion partielle et totale (ou quasi totale) est donc faite. La question de savoir si on retrouve cette discrimination expérimentalement est traitée dans le paragraphe suivant.

2.4.4 Étude expérimentale par ondes de Lamb

Montage expérimental

Le dispositif expérimental est présenté figure 2.13. Afin de générer des ondes de Lamb, on place un transducteur émetteur de contact sur un sabot incliné en PMMA. Ce sabot est ensuite posé sur la structure à étudier. Un gel couplant est appliqué sur les surfaces de contact entre le sabot et le transducteur, ainsi qu'entre le sabot et la plaque. Le transducteur est excité par une impulsion générée par un OLYMPUS 5058PR (Fig. 2.14). On utilise un vibromètre laser Polytec OFV-5000 comme récepteur. Les déplacements normaux de l'onde en fonction du temps sont ainsi recueillis à la surface de la plaque, dans la direction de propagation sur une distance de 10 cm avec un pas de 0.1 mm.

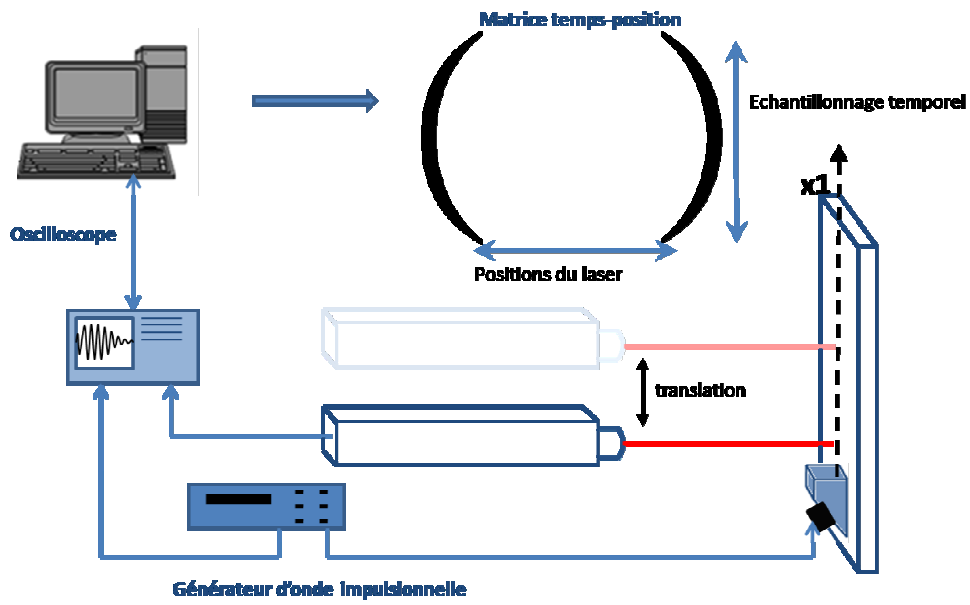


FIGURE 2.13 – Montage expérimental pour la génération d’ondes de Lamb

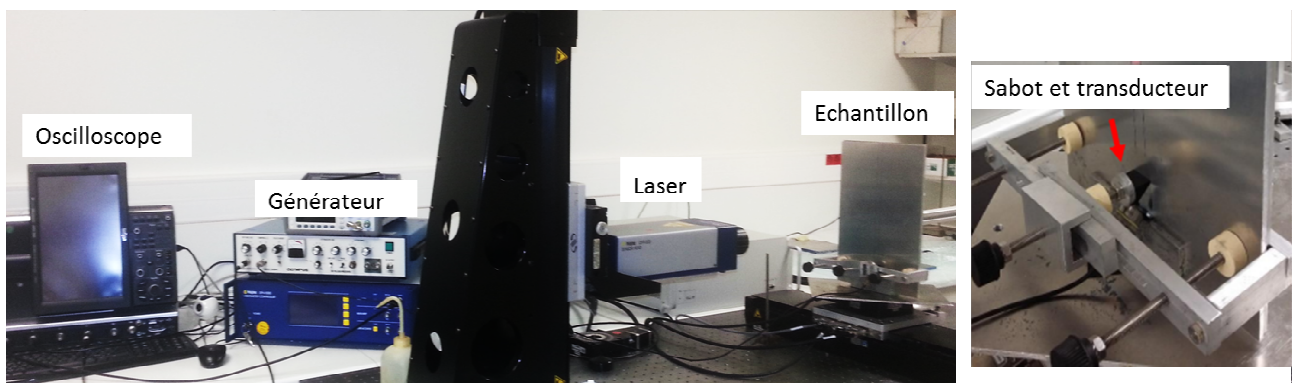


FIGURE 2.14 – Dispositif expérimental

Traitement du signal

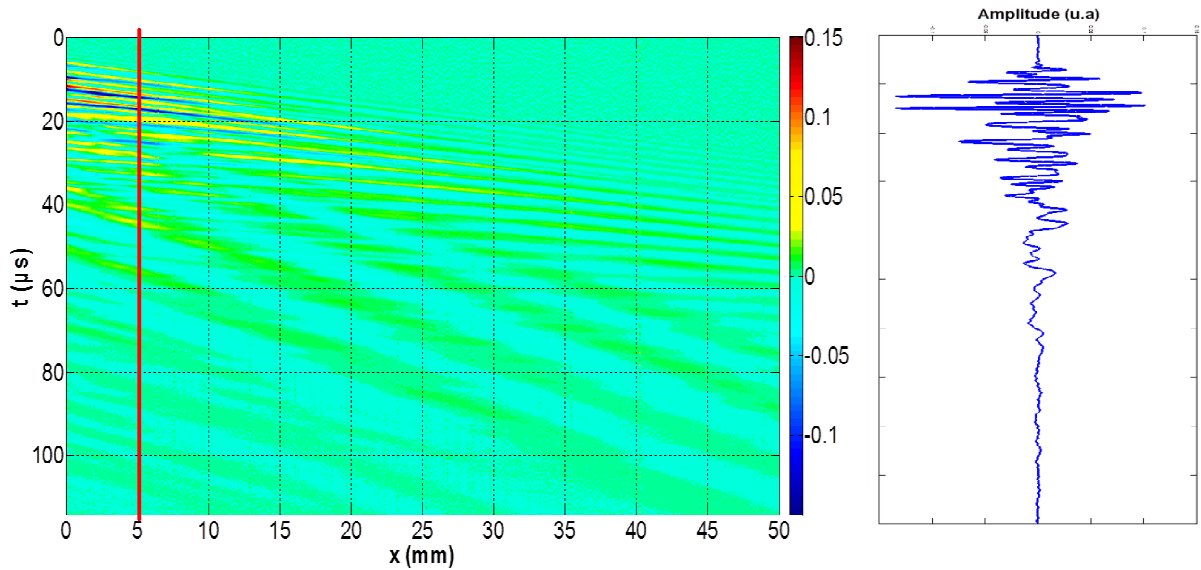


FIGURE 2.15 – a) Représentation spatio-temporelle des amplitudes des signaux mesurés par le vibromètre dans le cas de l'échantillon DJ-2-80 b) Amplitude du signal en fonction du temps pour $x=5$ mm

Une matrice de données est donc obtenue dans le domaine temps-position $s(x, t)$ (Fig. 2.15). Ainsi, pour travailler dans l'espace nombre d'onde-fréquence ou espace dual et isoler les différents modes étudiés, nous allons effectuer une double transformée de Fourier du signal expérimental $s(x, t)$, l'une temporelle et l'autre spatiale (FFT2D, représentée Fig. 2.16) [48]. Pour chaque position x , on calcule d'abord la transformée de Fourier temporelle du signal s . Le résultat obtenu est alors noté $\chi(x, f)$. Pour chaque fréquence f , une seconde transformée de Fourier, cette fois-ci spatiale, est alors appliquée. On obtient finalement une matrice $\Psi(f, k)$ dans l'espace nombre d'onde-fréquence, ou espace dual. Le module $|\Psi(f, k)|$ est alors représenté en niveau de couleur en fonction de f et k . Les ondes sont générées de manière impulsionnelle, c'est à dire sur une très courte durée (typiquement de l'ordre de $0.5 \mu s$), ce qui permet de générer plusieurs modes de Lamb. Les courbes de dispersion théoriques sont ensuite superposées aux courbes expérimentales afin d'identifier les différents modes excités.

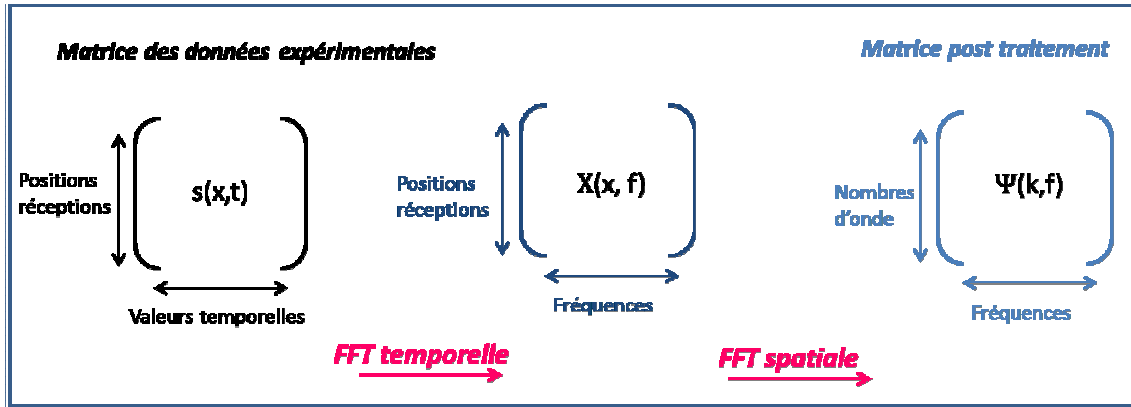


FIGURE 2.16 – Traitement du signal par la double transformée de Fourier

2.4.5 Résultats

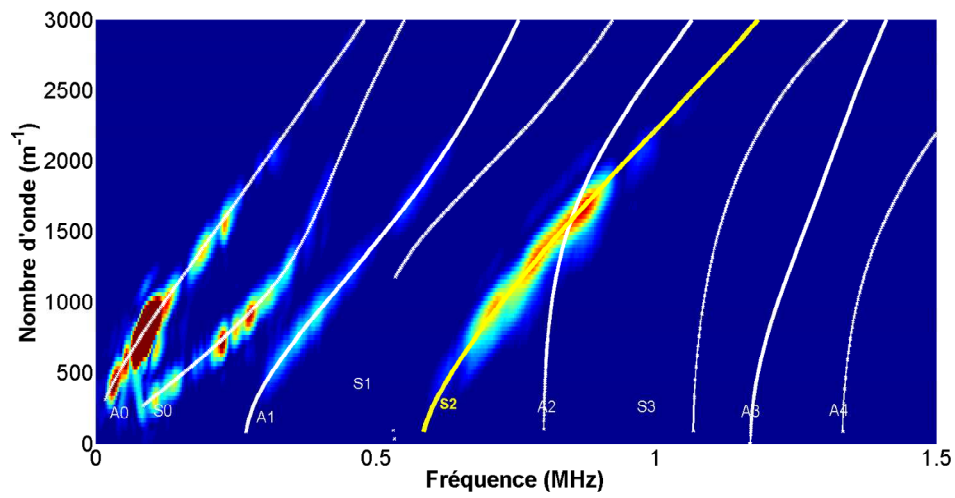
Les courbes présentées sur la figure 2.17a sont un exemple de celles obtenues expérimentalement pour des échantillons à des taux de réticulation de 80%, sur lesquelles les courbes de dispersion théoriques ont été superposées. On constate une très bonne concordance entre les résultats expérimentaux et théoriques, ce qui valide les paramètres d’entrées obtenus dans l’étude théorique (épaisseur et célérités longitudinale et transversale). Pour une meilleure comparaison, sur chaque courbe de dispersion expérimentale des modes excités, un relevé des couples (k, f) a été réalisé. Ces valeurs sont ensuite comparées pour chaque échantillon de même épaisseur, mais avec des conversions différentes.

Réseau époxy de 2 mm d’épaisseur

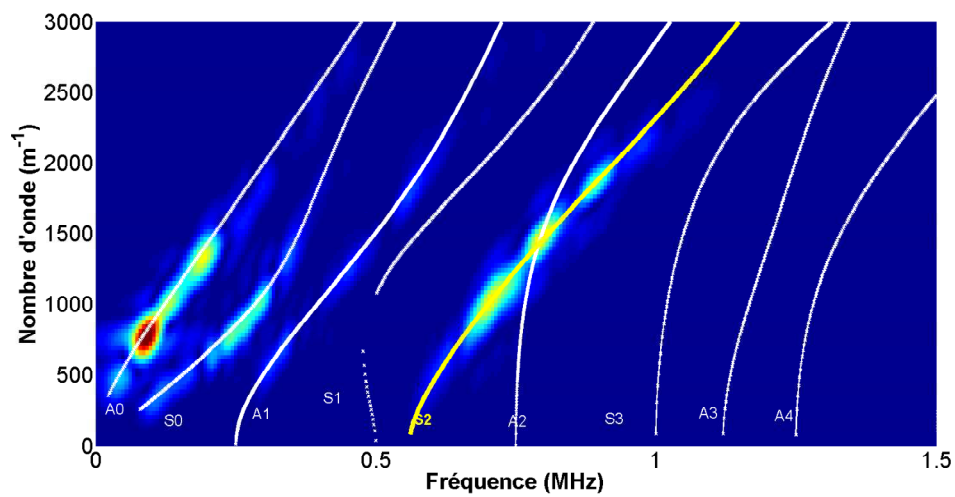
La figure 2.17 représente les FFT2D des réseaux de 2 mm d’épaisseur, à 80% et 93% de conversion. On remarque que les mêmes modes sont excités dans les deux échantillons, soit A_0 , S_0 et S_2 . Les modes d’ordre bas étant très peu sensibles, on relève les valeurs des couples (k, f) du mode S_2 pour les deux taux de réticulation que l’on trace sur la figure 2.18. On constate conformément aux prévisions théoriques sur l’étude de sensibilité, que le mode S_2 rend bien compte d’une discrimination nette entre les deux conversions, par un décalage des valeurs du nombre d’onde pour une fréquence donnée d’environ 110 m^{-1} , le pas δk_{exp} imposé par le traitement du signal étant égal à 30 m^{-1} .

Les résultats expérimentaux sont donc en accord parfait avec la théorie. Une discrimination

entre une réticulation de 80 et de 93% est donc observable pour des réseaux époxy massifs de 2 mm d'épaisseur.



(a) DJ-2-80



(b) DJ-2-93

FIGURE 2.17 – Courbes de dispersion théoriques d'une plaque d'époxy de 2 mm d'épaisseur superposées aux courbes de dispersion expérimentales pour une conversion de 80% (fig. a) et de 93% (fig. b)

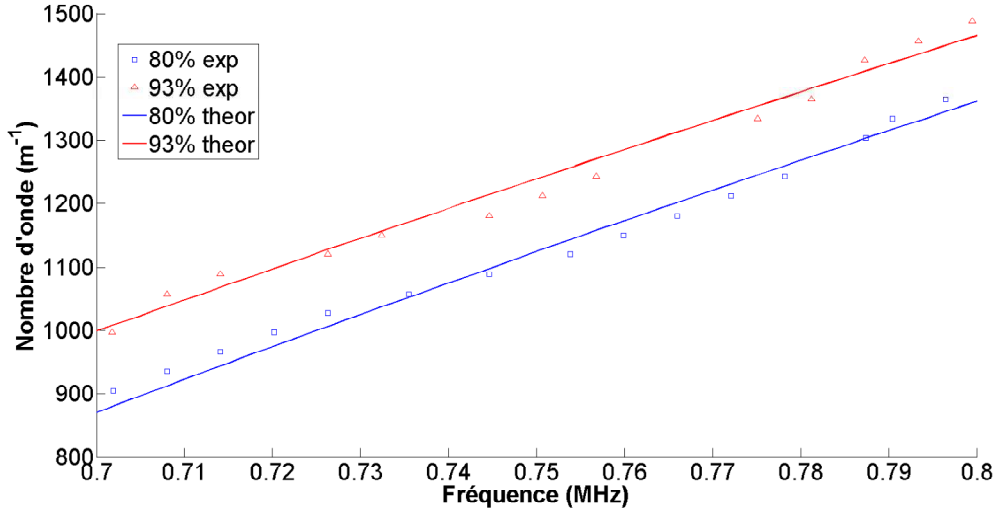


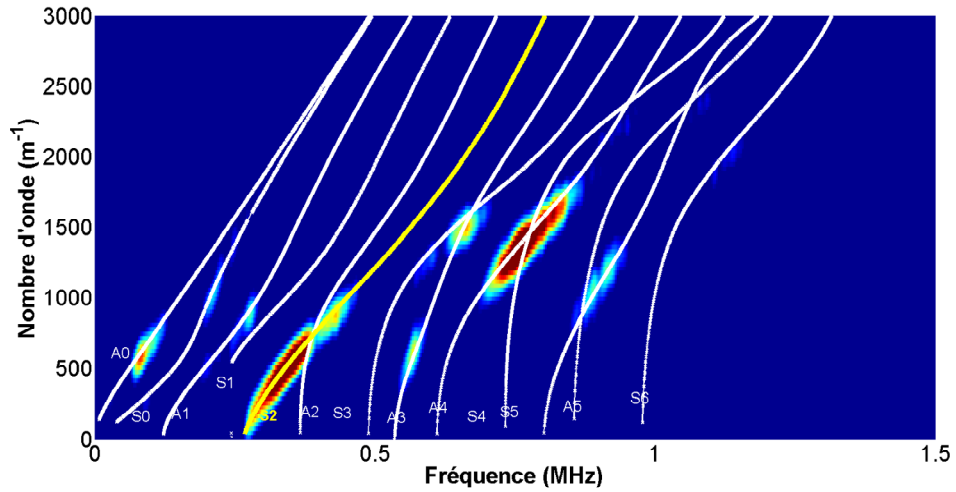
FIGURE 2.18 – Courbes de dispersion théoriques (traits pleins) du mode S_2 d’une plaque de 2 mm d’épaisseur, superposées aux courbes de dispersion expérimentales (points) pour une conversion de 80% (●) et de 93% (●)

Réseau époxy de 5 mm d’épaisseur

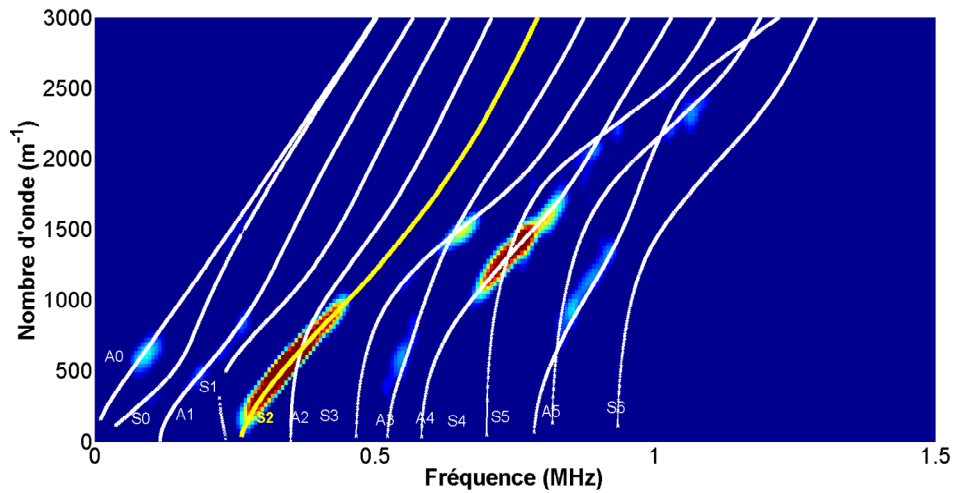
De même que dans le paragraphe précédent, on représente ici les FFT2D des réseaux de 5 mm d’épaisseur pour une conversion de 80, 93 et également de 100%. Encore une fois, les mêmes modes sont excités pour les trois taux de réticulation, soit S_0 , S_2 et le mode A_4 . Les couples (k, f) sont relevés pour le mode S_2 et tracés sur la figure 2.20.

À nouveau, les résultats théoriques et expérimentaux sont en excellent accord. Cependant, la discrimination entre les conversions est moins évidente, l’épaisseur des réseaux étant plus importante. En effet, le δk maximum à une fréquence donnée est de l’ordre de 50 m^{-1} entre DJ-5-80 et DJ-5-100 et de 10 m^{-1} entre DJ-5-93 et DJ-5-100. Les couples (k, f) du mode A_4 sont donc relevés et tracés sur la figure 2.21. Cette fois, une discrimination franche entre les réseaux convertis à 80 et à 93% existe, avec un écart d’environ 110 m^{-1} . De plus, une tendance de différenciation entre 93% et 100% peut être faite ($\delta k = 15 \text{ m}^{-1}$), même si celle-ci ne peut être validée du fait de la valeur de δk_{exp} donnée par le traitement du signal égale à 30 m^{-1} .

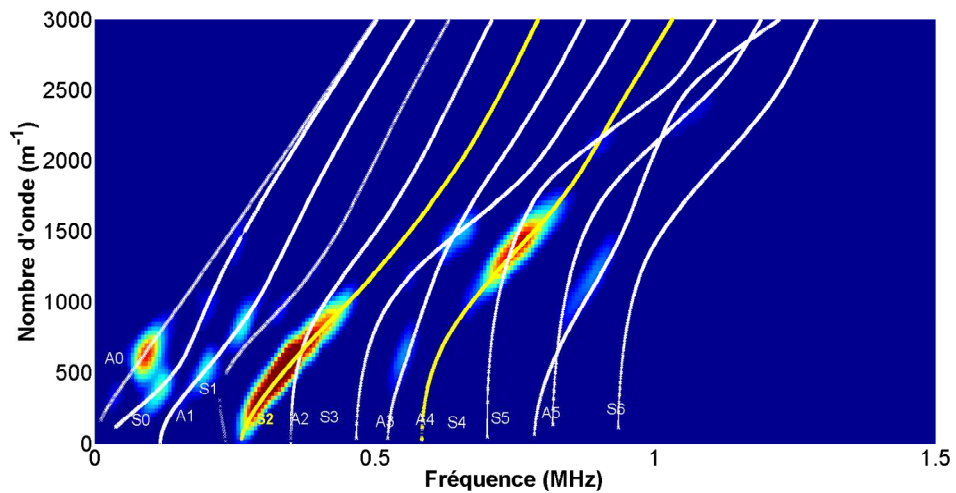
Ainsi, quelle que soit l’épaisseur de la plaque d’époxy, on constate une discrimination des deux conversions et que celle-ci se fait pour une bande ad hoc du produit fréquence-épaisseur.



(a) DJ-5-80



(b) DJ-5-93



(c) DJ-5-100

FIGURE 2.19 – Courbes de dispersion théorique d’une plaque d’époxy de 5 mm d’épaisseur superposées aux courbes de dispersion expérimentales pour une conversion de 80% (fig. a) et de 93% (fig. b) et de 100% (fig. c)

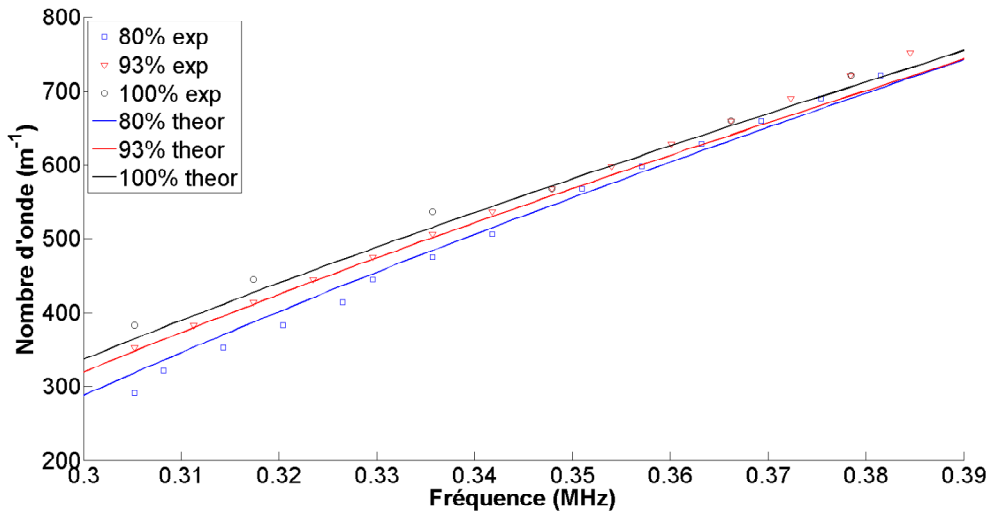


FIGURE 2.20 – Courbes de dispersion théoriques (traits pleins) du mode S_2 d'une plaque de 5 mm d'épaisseur, superposées aux courbes de dispersion expérimentales (points) pour une conversion de 80% (●), 93% (●), et 100% (●)

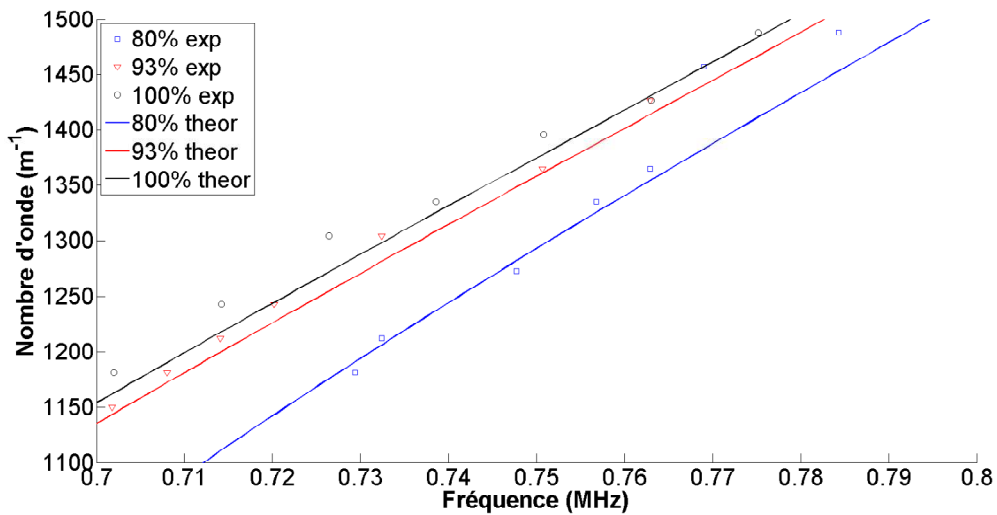


FIGURE 2.21 – Courbes de dispersion théoriques (traits pleins) du mode A_4 d'une plaque de 5 mm d'épaisseur, superposées aux courbes de dispersion expérimentales (points) pour une conversion de 80% (●), 93% (●), et 100% (●)

Conclusion

Cette partie a été consacrée à l'étude et la caractérisation physico-chimique et acoustique de réseaux époxy, réalisées à partir d'une formulation bi-composant modèle constituée du pré-polymère DGEBA DER 331 et du durcisseur Jeffamine D230. Tout d'abord, un rappel sur les ondes élastiques a été fait et les équations régissant les ondes de Lamb dans une plaque d'un milieu homogène, isotrope et élastique dite monocouche ont été écrites. La suite a été consacrée à la caractérisation physico-chimique et acoustique des réseaux époxy. Une étude de suivi de réticulation à température ambiante a été réalisée. Des réseaux époxy ont alors été synthétisés, et jouant sur le cycle de réticulation, trois conversions différentes ont été obtenues : 80, 93 et 100%. Ces réseaux ont des températures de transition vitreuse et donc des propriétés mécaniques largement différentes. Une caractérisation ultrasonore des réseaux a été faite dans le but d'observer cette différence de conversion. La nouveauté réside dans l'utilisation des modes de Lamb plus élevés. En effet, on ne trouve dans la littérature que des études réalisées avec les modes A_0 et S_0 (parfois A_1 et S_1), et aucune discrimination ne pouvait être faite (Fig. 2.11). En relevant les valeurs des couples nombre d'onde-fréquence sur les courbes de dispersion des modes excités expérimentalement, nous pouvons remarquer que bien que ces couples nombre d'onde-fréquence soient très proches pour des taux de réticulation de 80, 93 et 100%, il existe néanmoins une discrimination dans les hauts modes entre des réseaux de conversion 80% et ceux de conversions plus élevées. Cette discrimination est optimale pour une bande fréquence-épaisseur donnée. Ainsi, il est possible par ondes de Lamb de discriminer plusieurs conversions bien après que le point de gel, intervenant ici à 60% de conversion, soit passé.

La partie suivante sera consacrée à l'étude de substrats d'aluminium sur lesquels un revêtement époxy sera déposé, structure dite bicouche, avec un intérêt particulier porté sur l'interface substrat-adhésif.

Deuxième partie

**ÉTUDE DU NIVEAU
D'ADHÉSION D'UNE
STRUCTURE BICOUCHE
ALUMINIUM/ÉPOXY**

Introduction

La première partie de ce manuscrit traitait de la caractérisation physico-chimique et acoustique des réseaux époxy. Il en est ressorti qu'il était possible de différencier acoustiquement par les ondes de Lamb la conversion partielle due à une réticulation à température ambiante d'une conversion totale obtenue à l'aide d'une post cuisson à haute température. Afin de nous rapprocher de la problématique de l'adhésion lors de collages structuraux, nous allons maintenant étudier une structure bicouche composée d'un substrat d'aluminium revêtu d'une couche d'époxy, en nous intéressant particulièrement à l'interface entre les deux composants. Cette étude est une étape essentielle dans la caractérisation d'un assemblage (qui sera traité dans la dernière partie) car elle renvoie au principe même de l'adhésion. Le but de cette partie est donc de réaliser plusieurs échantillons possédant chacun un niveau d'adhésion différent et de chercher à les discriminer par ondes de Lamb. Afin d'obtenir plusieurs niveaux d'adhésion, nous allons jouer sur deux paramètres : la conversion de l'adhésif et les traitements de surface du substrat. Les traitements de surface retenus ici sont mécanique et/ou chimique et seront abordés plus en détails par la suite. Le premier chapitre se consacre à l'étude des ondes de Lamb dans une structure bicouche et plus particulièrement sur le couplage des modes et le second porte sur la caractérisation expérimentale (physico-chimique, mécanique et acoustique) de ces structures.

Chapitre 3

Ondes de Lamb dans une structure bicouche

Ce chapitre porte sur l'étude des ondes de Lamb dans une structure bicouche. Dans un premier temps, le cas d'une adhésion parfaite est étudié, puis un modèle rhéologique de Jones est présenté. Une étude de sensibilité est effectuée afin de déterminer les modes les plus adéquats à qualifier un niveau d'adhésion.

3.1 Position du problème

La géométrie du problème est représenté figure 3.1. On considère ici une structure composée d'une plaque d'aluminium (milieu noté (1)) et d'un revêtement époxy (milieu (2)). Les deux couches sont respectivement représentées par leur masse volumique (ρ_1 et ρ_2), leur épaisseur (h_1 et h_2) et par les vitesses des ondes longitudinales et transversales acoustiques (c_L et c_T) dans chaque milieu.



FIGURE 3.1 – Configuration géométrique de l'étude

On cherche ici des potentiels solutions définis par :

$$\begin{cases} \varphi_1 = \left[A_L^{(1)} \cos(k_{Lz1}(z + h_1)) + B_L^{(1)} \sin(k_{Lz1}(z + h_1)) \right] e^{i(k_x x - \omega t)} \\ \psi_1 = \left[A_T^{(1)} \cos(k_{Tz1}(z + h_1)) + B_T^{(1)} \sin(k_{Tz1}(z + h_1)) \right] e^{i(k_x x - \omega t)} \end{cases} \quad (3.1)$$

pour la couche (1) et par :

$$\begin{cases} \varphi_2 = \left[A_L^{(2)} \cos(k_{Lz2}(z - h_2)) + B_L^{(2)} \sin(k_{Lz2}(z - h_2)) \right] e^{i(k_x x - \omega t)} \\ \psi_2 = \left[A_T^{(2)} \cos(k_{Tz2}(z - h_2)) + B_T^{(2)} \sin(k_{Tz2}(z - h_2)) \right] e^{i(k_x x - \omega t)} \end{cases} \quad (3.2)$$

pour la couche (2). Les conditions aux limites sont des conditions de surface libre aux interfaces $z = -2h_1$ et $z = 2h_2$ soit :

$$\begin{cases} \sigma_{xz}^{(2)}(z = 2h_2) = 0 \\ \sigma_{zz}^{(2)}(z = 2h_2) = 0 \\ \sigma_{xz}^{(1)}(z = -2h_1) = 0 \\ \sigma_{xz}^{(1)}(z = -2h_1) = 0 \end{cases} \quad (3.3)$$

et dans le cas où on considère une adhésion parfaite, on a des conditions de contact parfait en $z = 0$, c'est-à-dire une continuité des contraintes et des déplacements, données par :

$$\begin{cases} u_z^{(1)}(z = 0) = u_z^{(2)}(z = 0) \\ u_x^{(1)}(z = 0) = u_x^{(2)}(z = 0) \\ \sigma_{zz}^{(1)}(z = 0) = \sigma_{zz}^{(2)}(z = 0) \\ \sigma_{xz}^{(1)}(z = 0) = \sigma_{xz}^{(2)}(z = 0) \end{cases} \quad (3.4)$$

Ces conditions conduisent à un système linéaire homogène de 8 équations à 8 inconnues, dont les zéros du déterminant correspondent aux modes guidés de la structure [49].

3.2 Courbes de dispersion théoriques

Les courbes de dispersion correspondant aux zéros du déterminant du système sont obtenues à l'aide de l'algorithme de Newton-Raphson, connaissant au préalable les constantes physiques caractéristiques des deux structures reportées dans le tableau suivant :

Matériaux	$\rho(kg/m^3)$	$c_L(m/s)$	$c_T(m/s)$
Aluminium	2800	6380	3100
Epoxy	1100	2512	1121

TABLE 3.1 – Propriétés des matériaux

Cette méthode permet de suivre les solutions correspondant à un mode donné en obtenant l'évolution du nombre d'onde en fonction de la fréquence. Les courbes de dispersion des ondes de Lamb obtenues dans le cas d'une plaque d'aluminium revêtue d'une couche d'époxy (conversion totale) sont ainsi tracées sur la figure 3.2. Dans la mesure où les modes sont ceux de la structure bicouche, on renomme les modes par leur ordre d'apparition. Puisque la structure en adhésion parfaite est considérée comme cas de référence, on attribue l'exposant 0 aux solutions correspondantes.

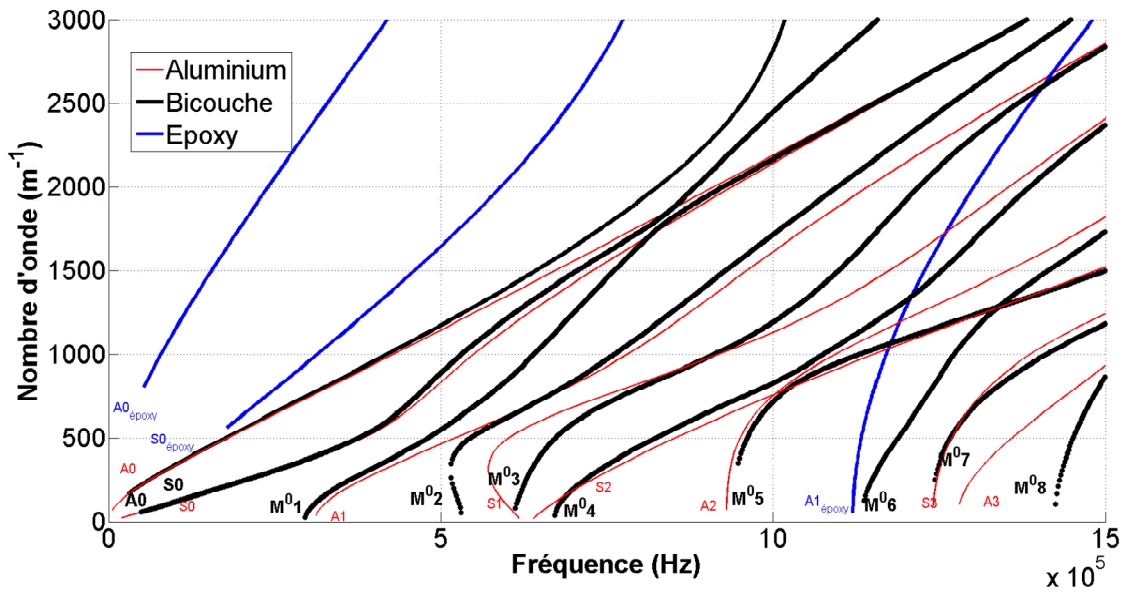


FIGURE 3.2 – Courbes de dispersion de la structure bicouche aluminium (5 mm) /époxy (0.5 mm) (—) superposées aux courbes de dispersion d'une plaque d'aluminium de 5 mm d'épaisseur (—) et à ceux d'une plaque d'époxy de 0.5 mm d'épaisseur (—)

Les courbes de dispersion d'une plaque d'aluminium de 5 mm d'épaisseur et d'une plaque d'époxy de 0.5 mm d'épaisseur ont également été tracées afin d'observer l'apport de la couche de colle. On peut ainsi observer que même si certains modes de la bicouche restent très proches de ceux d'une plaque d'aluminium, tous sont modifiés en hautes et/ou basses fréquences.

En effet, au niveau des fréquences de coupure, on retrouve des courbes semblables pour A_1

et M_1^0 , S_2 et M_4^0 , A_2 et M_5^0 ou bien encore S_3 et M_7^0 . Dans le cas du mode de la plaque d'époxy, on retrouve la fréquence de coupure de celui ci avec le mode M_6^0 . Mais même si ces modes sont proches en basses fréquences de ceux d'ordre n de l'aluminium, à plus haute fréquence, les courbes du bicouche évoluent pour atteindre les modes de propagation d'ordre $n - 1$ d'une plaque d'aluminium.

De plus, on peut remarquer qu'il existe deux modes voisins de S_1 : M_2^0 et M_3^0 ; l'un des deux est donc nouvellement apparu, conséquence du couplage des deux structures élastiques, aluminium et époxy.

On peut aussi remarquer que, dans le cas d'une structure bicouche, il n'y pas de croisement de modes : les courbes se rapprochent mais ne se coupent jamais, comme on peut le voir sur la figure 3.3. Ceci peut être expliqué par le fait que dans le cas d'une plaque, la résolution se fait à l'aide de deux matrices indépendantes donnant respectivement les modes symétriques et antisymétriques. Cependant, dans le cas d'une bicouche, excepté pour le cas où $k_x = 0$, il n'y a pas de factorisation possible des termes de la matrice qui traduit ainsi le couplage des matériaux.

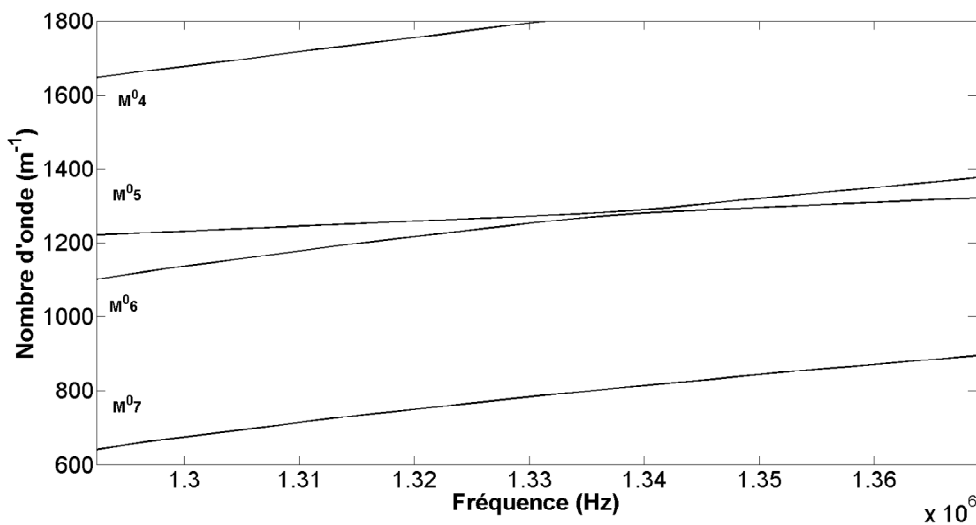


FIGURE 3.3 – Zoom sur la zone de rapprochement des modes M_5^0 et M_6^0 de la structure bicouche aluminium/époxy étudiée

Il est bien connu que dans le cas d'une plaque, les modes d'ordre zéro symétrique S_0 et antisymétrique A_0 sont les seuls modes propagatifs qui n'ont pas de fréquence de coupure : ils existent quelle que soit la fréquence. À haute fréquence, on constate que les courbes de

dispersion associées aux modes S_0 et A_0 tendent asymptotiquement vers une valeur $k_x = k_R$, où $k_R = \omega/c_R$, c_R étant la vitesse de l'onde de Rayleigh. De plus pour tous les autres modes, la limite asymptotique est donnée par $k_x = k_T$, avec $k_T = \omega/c_T$, c_T vitesse de l'onde acoustique se propageant dans l'aluminium. Dans le cas d'une structure bicouche, les modes A_0 et S_0 semblent tout d'abord tendre vers une valeur égale à la vitesse de Rayleigh de l'aluminium soit environ 2800 m/s. Cependant, en augmentant les plages de fréquences et du nombre d'onde, on peut remarquer que les modes d'ordre 0 bifurquent pour tendre vers une nouvelle valeur, représentant la vitesse de l'onde de Rayleigh dans l'époxy, $c_{R_{epoxy}} = 1000$ m/s.

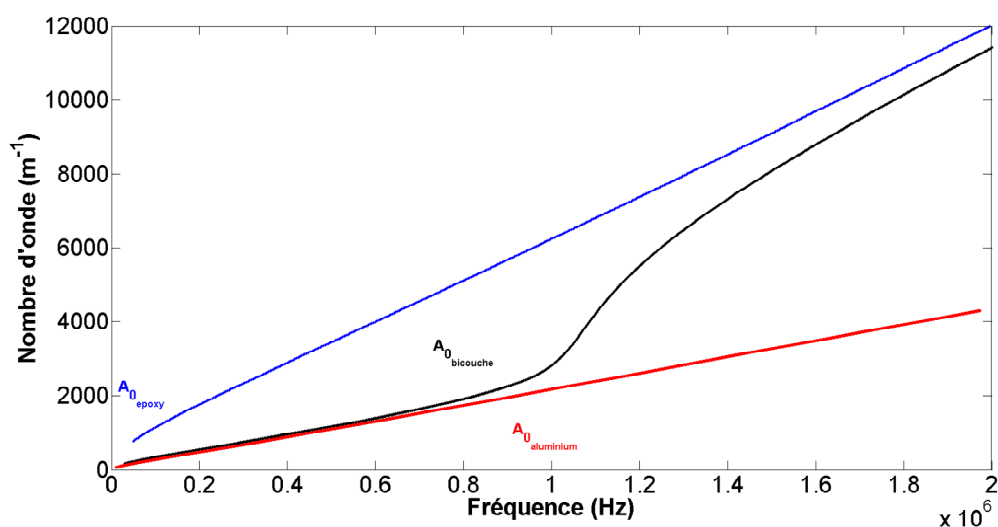


FIGURE 3.4 – Mode A_0 des trois structures : pour une plaque d'aluminium de 5 mm d'épaisseur (—), pour une plaque d'époxy de 0.5 mm d'épaisseur (—) et pour une structure bicouche composée d'une plaque d'aluminium de 5 mm d'épaisseur revêtue d'une couche d'époxy de 0.5 mm d'épaisseur (—)

3.2.1 Apport d'un revêtement d'époxy sur les fréquences de coupure d'une structure bicouche

Les courbes de dispersion de la plaque d'aluminium et de la bicouche étant relativement proches, on peut se demander quelle est l'influence de la mince couche de colle, dont l'impédance acoustique est faible devant celle de l'aluminium, sur les modes de propagation de la plaque d'aluminium. On trace sur la figure 3.5 l'évolution des fréquences de coupure en fonction de l'épaisseur du revêtement d'époxy, comprise entre 0.1 et 0.5 mm.

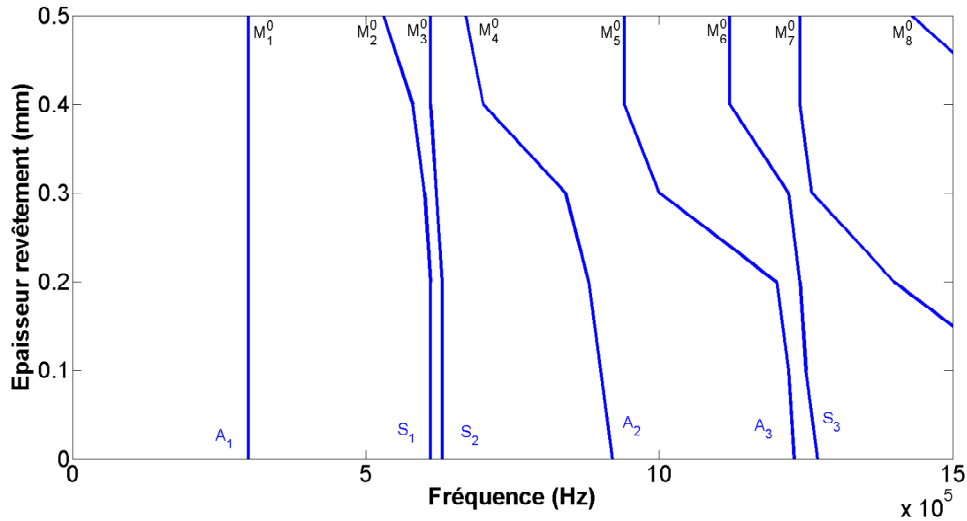


FIGURE 3.5 – Évolution des fréquences de coupure en fonction du rapport entre l'épaisseur de la plaque d'aluminium et l'épaisseur du revêtement d'époxy

Ainsi, dans le cas où l'épaisseur du revêtement est égale à 0.5 ou 0.4 mm, on n'observe que très peu de différence au niveau des fréquences de coupure si ce n'est la disparition du mode M_8^0 dans notre gamme de fréquence d'étude. Le véritable décalage a donc lieu pour une épaisseur d'époxy égale ou inférieure à 0.3 mm. Ce décalage affecte principalement les modes M_4^0 , M_5^0 et M_7^0 , avant sa disparition de la gamme de fréquence d'étude. À partir d'une épaisseur inférieure ou égale à 0.2 mm, les fréquences de coupure tendent fortement vers celles d'une simple plaque d'aluminium. Cependant, pour le mode M_1^0 , quelle que soit l'épaisseur du revêtement, on restera sur une valeur de fréquence de coupure très proche du mode A_1 de l'aluminium comme on a pu déjà le remarquer figure 3.2.

3.2.2 Résolution par éléments finis (FEM)

Le cas d'une adhésion parfaite peut également être résolu à l'aide d'un logiciel d'élément finis (Comsol). Il s'agit cette fois d'une résolution aux valeurs propres, par la méthode SAFE (Semi Analytical Finite Element) qui nous permet non pas de suivre un mode, mais d'obtenir un nuage de points décrivant l'ensemble des modes de vibration de cette structure. De plus, la recherche des racines réelles et positives par l'utilisation de l'algorithme de Newton-Raphson peut parfois se révéler fastidieuse du fait de travailler dans le plan complexe et l'utilisation d'un modèle par éléments finis présente l'avantage d'obtenir l'ensemble des solutions pour un temps de calcul relativement court. Afin de valider ce modèle, les courbes obtenues par résolution

analytique et par modélisation ont été tracées sur la figure 3.6. La superposition des courbes valide ainsi les paramètres du modèle.

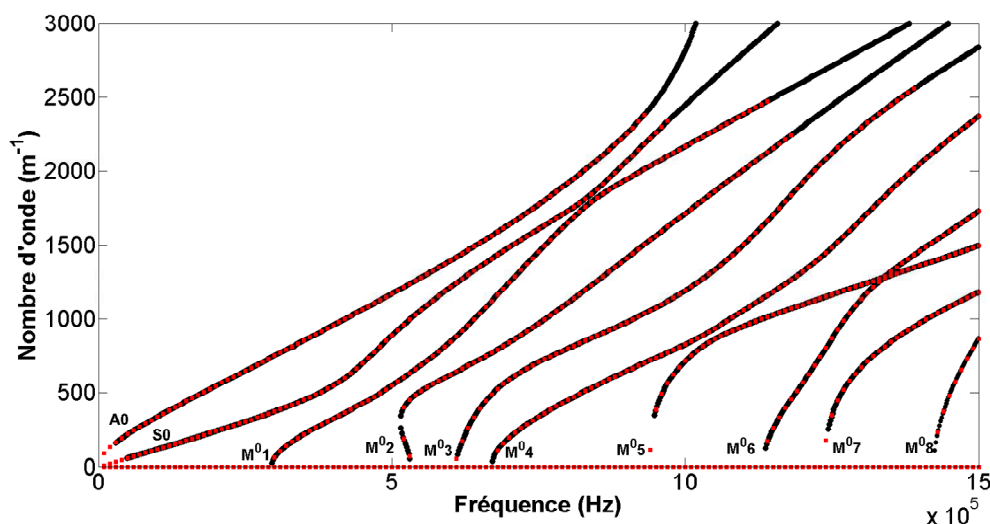


FIGURE 3.6 – Validation des paramètres du modèle de Jones : Courbes de dispersion de la structure bicouche étudiée obtenues analytiquement dans le cas d’une adhésion parfaite (-) et obtenues par FEM dans le cas d’une adhésion parfaite(●)

3.3 Modèle adhésif de Jones

Le changement de propriétés physico-chimiques des matériaux va influencer au niveau nanoscopique les interactions au voisinage de l’interface. D’un point de vue mésoscopique, qui est celui de l’acoustique ultrasonore, ceci doit se traduire par une ré-écriture des conditions d’interface. C’est le modèle adhésif de Jones [7, 50] qui va être utilisé. Il s’agit d’un modèle rhéologique utilisant deux constantes, appelées paramètres de Jones. Il permet de modéliser l’interface substrat/adhésif par une répartition surfacique de ressorts travaillant en traction/compression et en cisaillement, représentée sur la figure 3.7 [51, 52].

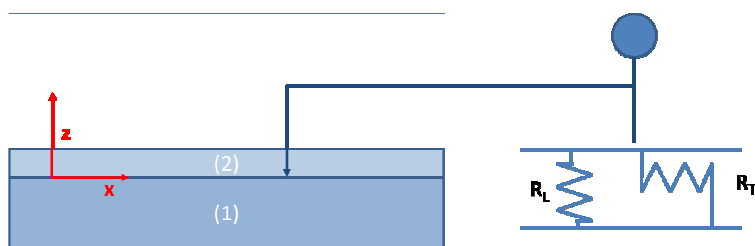


FIGURE 3.7 – Présentation du modèle rhéologique de Jones

Les conditions aux interfaces, correspondant à un saut de déplacement, sont celles données par Jones et Whittier [17] :

$$\begin{cases} \sigma_{xz1} = \sigma_{xz2} = R_T [u_x^{(2)} - u_x^{(1)}] \\ \sigma_{zz1} = \sigma_{zz2} = R_L [u_z^{(2)} - u_z^{(1)}] \end{cases} \quad (3.5)$$

Dans le cas d'un collage parfait, la valeur des raideurs des ressorts R_L et R_T est considérée infinie pour ces deux constantes et en cas de délaminage total à une valeur nulle. D'un point de vue numérique, une adhésion parfaite correspond à des valeurs supérieures ou égales à 10^{16} N/m³ [53] dans la mesure où les courbes de dispersion obtenues avec ces valeurs sont identiques à celles obtenues dans le cas d'une adhésion parfaite.

Une validation de la programmation sous Comsol a été réalisée en superposant les courbes obtenues par la recherche des zéros du déterminant obtenu (cf paragraphe 2.1) avec les résultats obtenus numériquement (Fig 3.8).

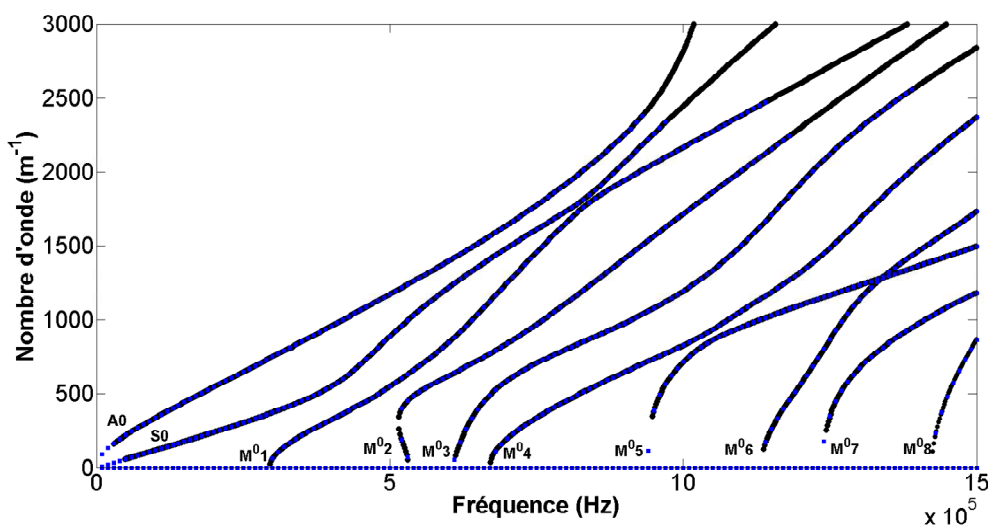


FIGURE 3.8 – Validation des paramètres du modèle de Jones : Courbes de dispersion de la structure bicouche étudiée obtenues analytiquement dans le cas d'une adhésion parfaite (-), et obtenues par le modèle de Jones par FEM à $\log(R_{L,T}) = 16$ (\square)

3.4 Étude de sensibilité du modèle de Jones

Le but de cette partie est de qualifier le niveau d'adhésion dans des structures bicouches substrat/adhésif, où l'interface a subi différents traitements mécaniques et/ou chimiques, en

associant à un échantillon donné un couple de valeurs R_L et R_T du modèle de Jones équivalent. On choisira dans notre étude de prendre $R_L=R_T$. En effet, il a été montré que les deux constantes de raideur sont de même ordre de grandeur pour qualifier l'adhésion entre deux substrats [32,54]. Par conséquent, la notation $R_{L,T} = R_L = R_T$ est introduite. Il est donc nécessaire, en prévision des études expérimentales, de faire une étude de sensibilité des modes de Lamb aux variations des constantes de raideur, afin de dégager les modes les plus sensibles. Ce sont ces modes qu'il faudra tenter d'exciter dans l'étude expérimentale. Ainsi, une étude paramétrique est effectuée portant sur la valeur des raideurs des ressorts. La première est réalisée sur les fréquences de coupure des modes en utilisant la méthode analytique et la seconde concerne les modes guidées en utilisant les solutions fournies par la modélisation FEM.

3.4.1 Étude des fréquences de coupure en fonction des constantes de raideur

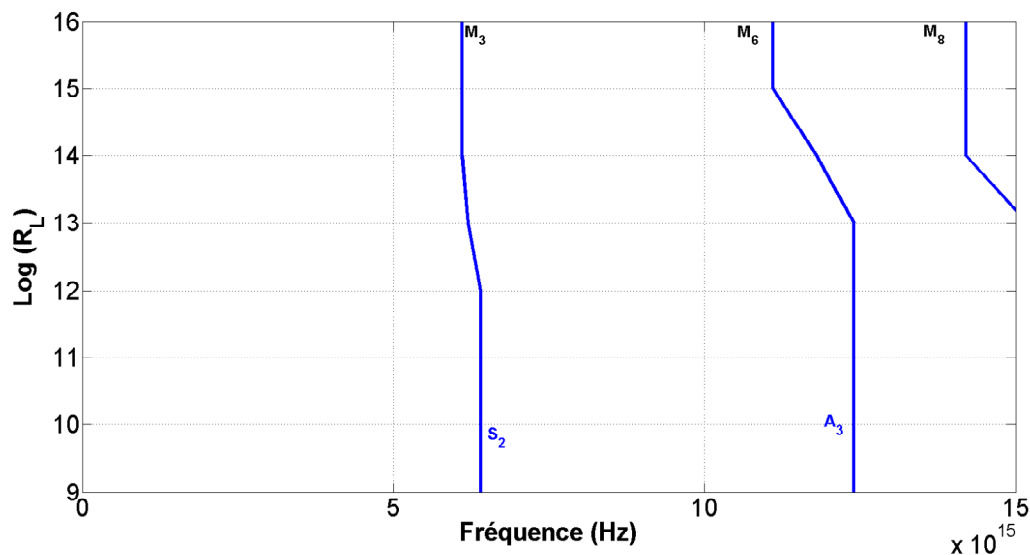
Dans le cas où k_x est nul, c'est-à-dire aux fréquences de coupure, la matrice (8x8), obtenue par les équations (3.3) et (3.5), peut se découpler en deux sous-matrices, M_L dépendant de R_L :

$$\left(\begin{array}{cccc} -k_{z_{l1}} \sin(k_{z_{l1}} h_1) & k_{z_{l1}} \cos(k_{z_{l1}} h_1) & -\frac{\rho_1}{R_L} \omega^2 \cos(k_{z_{l2}} h_2) - & \frac{\rho_2}{R_L} \omega^2 \sin(k_{z_{l2}} h_2) - \\ & & k_{z_{l2}} \sin(k_{z_{l2}} h_2) & k_{z_{l2}} \cos(k_{z_{l2}} h_2) \\ \cos(k_{z_{l1}} h_1) & -\sin(k_{z_{l1}} h_1) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \cos(k_{z_{l2}} h_2) & \sin(k_{z_{l2}} h_2) \\ -\frac{\rho_1}{R_L} \omega^2 \cos(k_{z_{l1}} h_1) - & -\frac{\rho_1}{R_L} \omega^2 \sin(k_{z_{l1}} h_1) + & -k_{z_{l2}} \sin(k_{z_{l2}} h_2) & -k_{z_{l2}} \cos(k_{z_{l2}} h_2) \\ k_{z_{l1}} \sin(k_{z_{l1}} h_1) & k_{z_{l1}} \cos(k_{z_{l1}} h_1) & & \end{array} \right) \quad (3.6)$$

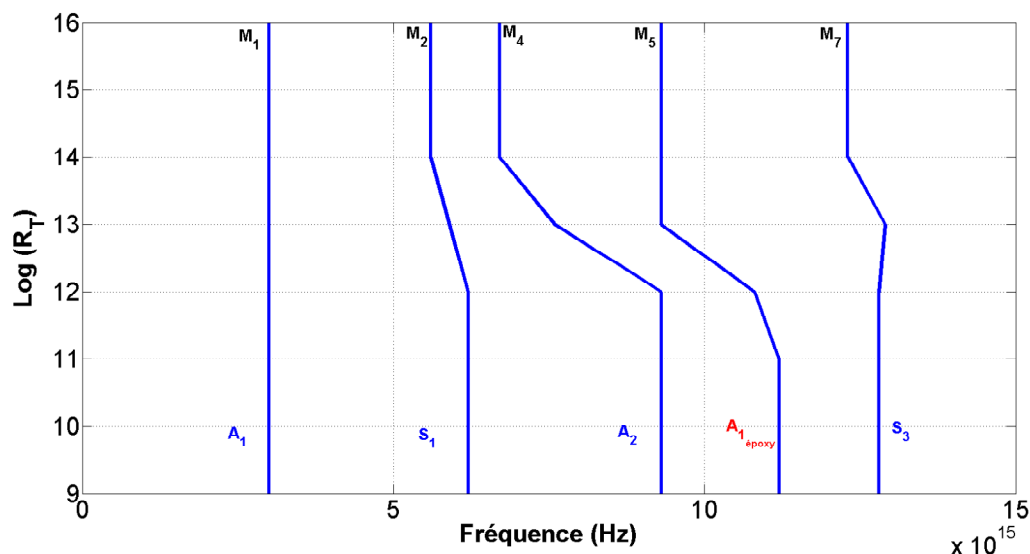
et M_T dépendant de R_T :

$$\left(\begin{array}{cccc} k_{z_{t1}} \sin(k_{z_{t1}} h_1) & -k_{z_{t1}} \cos(k_{z_{t1}} h_1) & \frac{\rho_1}{R_T} \omega^2 \cos(k_{z_{t2}} h_2) + & -\frac{\rho_2}{R_T} \omega^2 \sin(k_{z_{t2}} h_2) + \\ & & k_{z_{t2}} \sin(k_{z_{t2}} h_2) & k_{z_{t2}} \cos(k_{z_{t2}} h_2) \\ \cos(k_{z_{t1}} h_1) & -\sin(k_{z_{t1}} h_1) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \cos(k_{z_{t2}} h_2) & \sin(k_{z_{t2}} h_2) \\ \frac{\rho_1}{R_T} \omega^2 \cos(k_{z_{t1}} h_1) + & \frac{\rho_1}{R_T} \omega^2 \sin(k_{z_{t1}} h_1) - & k_{z_{t2}} \sin(k_{z_{t2}} h_2) & k_{z_{t2}} \cos(k_{z_{t2}} h_2) \\ k_{z_{t1}} \sin(k_{z_{t1}} h_1) & k_{z_{t1}} \cos(k_{z_{t1}} h_1) & & \end{array} \right) \quad (3.7)$$

Ainsi, la matrice (3.6) donne les fréquences de coupure dépendant de R_L (Figure 3.9, a) et la matrice (3.7) donne celles dépendant de R_T (Figure 3.9, b).



(a)



(b)

FIGURE 3.9 – Évolution des fréquences de coupure en fonction de la valeur des paramètres de Jones données par les deux matrices dépendantes respectivement de a) R_L et de b) R_T

Afin de caractériser une large gamme de niveau d'adhésion se situant entre un délaminage total et une adhésion parfaite, il est connu que les variations de $R_{L,T}$ sont logarithmiques [32,54] ; on introduit ainsi la notation $pR = \log R$.

La figure 3.9 montre que pour $pR_{L,T} = 16$, on retrouve les fréquences de coupure d'une structure bicouche en adhésion parfaite et ce jusqu'à une valeur de $pR_{L,T} = 14$. À partir de cette valeur, on observe un décalage des fréquences de coupure vers celles d'une seule couche (aluminium ou époxy). Pour $pR_{L,T} = 11$, les fréquences de coupure obtenues sont celles d'une simple plaque d'aluminium de 5 mm d'épaisseur et celle d'une plaque d'époxy de 0.5 mm d'épaisseur dans la gamme de fréquence considérée. On retrouve donc un phénomène de délaminage total à partir d'une valeur logarithmique de raideur des ressorts d'environ 11.

Ainsi dans le cas d'une évaluation de l'adhésion, les modes M_4 , M_5 et M_6 semblent de bons candidats à qualifier ce phénomène.

3.4.2 Étude des ondes guidées en fonction des constantes de raideur

Bien que les fréquences de coupure ne soient pas modifiées pour des valeurs de constantes de raideur de ressorts inférieures ou égales à 10^{14} N/m³, il est nécessaire d'étudier la sensibilité des ondes guidées à ces valeurs, car on peut supposer qu'une onde guidée n'interagit pas de la même manière avec l'interface substrat/adhésif, et donc, en fonction de la fréquence, pourrait montrer une sensibilité différente que des ondes stationnaires dans la section de la bicouche.

La figure 3.10 montre les courbes de dispersion dans le cas d'une adhésion parfaite superposées à celles obtenues dans le cas où les constantes de raideur des ressorts valent $R_{L,T} = 10^{13}$ N/m³. Ainsi, on peut observer l'évolution globale des courbes de dispersion. On peut donc noter que bien que les fréquences de coupure ne soient que peu ou pas décalées, les courbes de dispersion montre une sensibilité qui dépend de la fréquence, certains modes étant plus sensibles que d'autres.

Par exemple, les modes A_0 et S_0 seront modifiés en hautes fréquences et tendent que vers la vitesse de l'onde de Rayleigh de l'aluminium $c_{R_{Alu}} = 2800$ m/s dans la gamme de fréquence étudiée.

De plus, comme on a pu le voir lors de l'étude de sensibilité des fréquences de coupure, M_1 n'est pas influencé en basses fréquences quelle que soit le valeur des raideurs des ressorts. Cependant, dans le cas où $pR_{L,T} = 16$, le mode M_1 bifurque au voisinage de 500 kHz pour tendre vers les modes A_0 et S_0 de l'aluminium, alors que dans le cas de $pR_{L,T} = 13$, la bifurcation n'a

lieu qu'aux environs de 700 kHz.

Enfin, pour des fréquences d'environ 1 MHz, et des valeurs de nombres d'onde d'environ $k_x = 800 \text{ m}^{-1}$, il existe une zone de rapprochement entre les modes M_4 et M_5 , qui se trouve être la zone de croisement entre A_2 et S_2 d'une plaque d'aluminium. Quelle que soit la valeur de raideur des ressorts, cette zone de rapprochement est toujours présente et est donc peu sensible à la variation de raideur des ressorts. Cependant, à $f = 1.3 \text{ MHz}$ et aux environs de $k_x = 1000 \text{ m}^{-1}$, le mode M_4 est nettement plus sensible aux constantes de Jones.

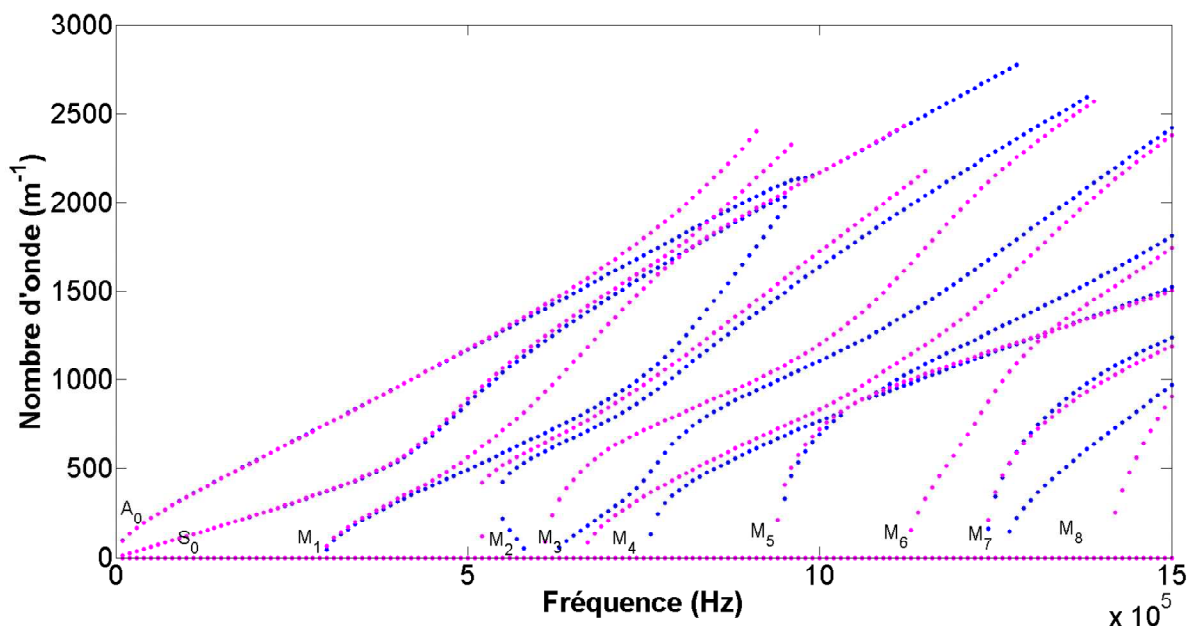


FIGURE 3.10 – Courbes de dispersion de la structure bicouche étudiée obtenues pour $pR_{L,T} = 16$ (●) et pour $pR_{L,T} = 13$ (●)

3.5 Synthèse

Ce chapitre a présenté les équations régissant les ondes de Lamb dans une structure bicouche. Nous avons pu ainsi voir l'apport de la couche de l'adhésif époxy sur les modes de propagation d'une plaque d'aluminium dans le cas d'une adhésion parfaite. Le modèle de Jones permettant d'évaluer la qualité d'une adhésion a été présenté et une étude de sensibilité des ondes de Lamb aux paramètres de Jones a été réalisée. Cette étude a été faite pour des valeurs de raideur des ressorts longitudinal et transversal égales. Il en est ressorti que les ondes guidées étaient

sensibles à la variation de $R_{L,T}$ quel que soit le mode. Cependant, cette sensibilité est plus ou moins marquée, et dépend du mode et de la fréquence.

Si de nombreux travaux [55–57] ont privilégié l'étude des deux premiers modes A_0 et S_0 , il semble préférable de caractériser l'adhésion par des modes d'ordre supérieur. Ceci est d'ailleurs en concordance avec ce qui a été vu dans la partie précédente concernant les réseaux époxy. Cependant, l'utilisation des modes d'ordre supérieur à des fréquences trop élevées, ce qui correspondrait à avoir un nombre élevé de longueurs d'onde dans l'épaisseur des couches (de l'ordre de 10), nécessiterait donc la prise en compte de l'absorption dans la couche de colle.

L'étude expérimentale se fera donc en excitation impulsionnelle afin d'exciter un maximum de modes dans une gamme de fréquence la plus large possible.

Chapitre 4

Caractérisation expérimentale de différents niveaux d'adhésion d'une structure bicouche

Ce chapitre a pour but la réalisation et la caractérisation expérimentale de différents échantillons bicouches ayant des niveaux d'adhésion différents. Les premiers paragraphes de ce chapitre sont consacrés à des rappels bibliographiques sur les théories de l'adhésion et sur les moyens physico-chimiques mis en œuvre pour l'étudier. Dans la suite, les matériaux, leurs mises en œuvre et les méthodes de caractérisation utilisées sont présentés. Enfin, les dernières parties sont consacrées à la caractérisation de l'adhésion par des méthodes mécanique destructive et ultrasonore.

4.1 Rappels bibliographiques

4.1.1 Théories de l'adhésion

L'adhésion représente l'ensemble des phénomènes physiques et/ou chimiques qui prennent naissance lorsque deux surfaces sont mises en contact. Les théories expliquant l'adhésion sont connues et explicitées dans de nombreux ouvrages [58–60] qui sont complémentaires mais parfois contradictoires. Nous n'allons en faire ici qu'une simple description.

La première et la plus ancienne est proposée par MacBain et Hopkins [61]. Il s'agit de la théorie mécanique qui est basée sur l'ancrage mécanique entre un adhésif et son substrat. Cela suppose un contact intime entre les deux surfaces. La théorie électrique proposée par Deryaguin et Toprov [62] repose quant à elle sur la séparation des charges à l'interface lors de la mise en contact de l'adhésif et du substrat qui serait due aux hétérogénéités chimiques et défauts de surface. Dans le cas d'une adhésion polymère/polymère, Voyutskii [63] développe la théorie de la diffusion. L'adhésion résulterait de l'interdiffusion des chaînes d'un des deux prépolymères dans l'autre. L'interface disparaît alors au profit d'une interphase où les propriétés physico-chimiques varient continûment depuis les propriétés du premier matériau jusqu'au second. La théorie proposée par Bikermann [64] repose sur l'existence d'une couche de transition plus ou moins épaisse présentant une structure et des propriétés différentes de celles des deux matériaux assemblés. L'assemblage est alors considéré comme un système multi-couche avec la couche de plus faible cohésion qui va déterminer l'adhérence de l'assemblage : c'est la théorie des couches de faible cohésion. La théorie thermodynamique, appelée également théorie du mouillage [65] attribue l'adhésion aux forces intermoléculaires (types liaisons de Van der Waals) existant à l'interface. Ce type de liaisons a un champ d'action limité, de l'ordre de la distance intermoléculaire. C'est pourquoi il est nécessaire d'avoir un bon contact entre les deux surfaces et donc une bonne mouillabilité du substrat par le polymère. Cette théorie a permis de mettre en évidence l'importance de la structure et la composition physico-chimique des surfaces des matériaux et est à l'origine de l'apparition des traitements de surface, des primaires d'adhésion. . . Enfin, la théorie chimique [66] repose sur le fait que l'adhésion est basée sur la formation de liaisons iono-covalentes (liaisons parmi les plus fortes). Elles assurent aux assemblages collés une résistance à la rupture importante et de meilleure durabilité, contrairement aux liaisons de type Van der Waals. Un bon mouillage est là encore requis. Une autre manière d'augmenter les forces interfaciales consiste à modifier les propriétés chimiques de la surface des substrats.

Ainsi, chacune de ces théories rappelle un phénomène particulier de l'adhésion mais ne saurait à elle seule expliquer les phénomènes d'adhésion régissant un assemblage collé. On peut tout de même considérer que le collage met en œuvre plusieurs de ces théories. Il est donc nécessaire de bien les comprendre afin de pouvoir appréhender les divers phénomènes qui entrent en jeu dans un assemblage collé métal/polymère.

4.1.2 Traitements de surface

La préparation des surfaces est une phase essentielle dans l'assemblage par collage. Elle a comme finalité d'éliminer les contaminants provenant de la fabrication et/ou du stockage tels que les poussières, les limailles, les traces grasses ou même les agents de démoulage. Les traitements permettent également d'éliminer les couches superficielles de faible cohésion comme les composés de faible masse moléculaire ayant migré à la surface dans le cas des polymères ou d'éliminer les oxydes fragiles ou résidus de corrosion pour les substrats métalliques. La finalité d'un traitement peut être également de modifier la morphologie de surface et d'augmenter ainsi la rugosité et de changer la composition chimique superficielle en créant des couches actives.

Il existe de nombreux traitements de surface, que l'on peut distinguer en quatre catégories [67] :

- **Traitements dits de lavage** qui permettent d'éliminer de nombreux contaminants provenant de l'élaboration, l'usinage, la manutention ou le stockage des substrats. Les principaux traitements sont le dégraissage aux solvants, le dégraissage alcalin ou bien le rinçage.
- **Traitements mécaniques** qui ont l'objectif de modifier la morphologie et qui sont réalisés manuellement à l'aide de ponceuse ou papiers abrasifs ou bien à l'aide d'une sableuse. Ce dernier procédé est principalement utilisé pour des surfaces métalliques.
- **Traitements chimiques** et/ou électrochimiques qui permettent la préparation de pièces de grandes dimensions et de formes variées. Dans le cas des métaux, le but est d'éliminer des oxydes présents ou reformés entre deux étapes de traitements puis de générer des espèces chimiques réactives par décapage, conversion chimique ou anodisation. Dans le cas des polymères, le traitement a pour but d'augmenter l'énergie de surface du substrat.
- **Les traitements énergétiques** comme les traitements électromagnétiques (UV, faisceau d'électrons, plasma), les traitements physico-chimique (flamage, courant d'air chaud, thermodiffusion) ou bien les traitements par rayonnements qui sont des traitements relativement lourds à mettre en place et principalement utilisés pour les substrats polymères.

A la suite de ces traitements, le substrat doit être manipulé avec précaution, éviter le stockage et l'adhésif doit être appliqué peu de temps après afin d'éviter la recontamination de la surface.

4.1.3 Définition des paramètres de rugosité

Dans le cas de traitement de surface mécanique, la morphologie de l'état de surface va changer et de la rugosité va apparaître. Celle ci peut être définie par des valeurs statistiques représentées figure 4.1 et qui donnent lieu aux unités de mesure :

- L'écart moyen de rugosité R_a est la moyenne arithmétique de toutes les ordonnées du profil dans une longueur de base :

$$R_a = \frac{1}{l} \int_0^l |Z(x)| dx \quad (4.1)$$

- L'écart quadratique de rugosité R_q est la moyenne quadratique de toutes les ordonnées du profil à l'intérieur de la longueur de base :

$$R_q = \sqrt{\frac{1}{l} \int_0^l Z^2(x) dx} \quad (4.2)$$

avec $Z(x)$ ordonnées du profil de la rugosité.

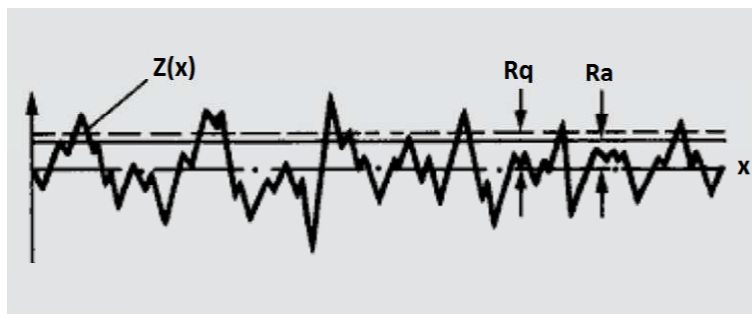


FIGURE 4.1 – Définition des valeurs statistiques de rugosité

4.1.4 Énergie superficielle de surface

L'énergie superficielle ou tension superficielle de surface est déterminante pour le choix de l'adhésif ou du traitement de surface du substrat. Toutes les surfaces ont leur propre polarité et tension superficielle liées à leur structure chimique. L'origine de la tension superficielle est la tendance du liquide à réduire le plus possible sa surface de contact avec le support, et donc à former des gouttes (Figure 4.2). Ainsi, sans mouillage, la goutte est sphérique avec un seul

point de contact : c'est le principe des surfaces hydrophobes.

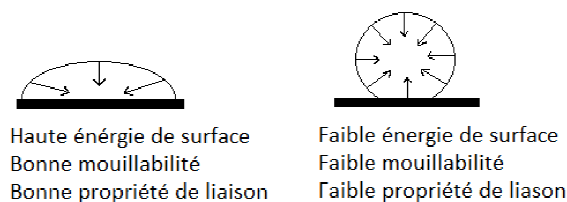


FIGURE 4.2 – Principe de mouillabilité des surfaces

Quand un adhésif est appliqué sur le substrat, la formulation de l'adhésif, la nature de la surface mais également l'énergie superficielle sont déterminantes pour obtenir une adhérence optimale de l'adhésif. On peut cependant s'en tenir à la règle suivante : l'énergie superficielle de l'adhésif doit être supérieure à celle du substrat. La colle doit entièrement recouvrir ("mouiller") le substrat et ne pas former de goutte.

En utilisant l'équation (4.3) d'Young [68], on peut mettre en relation l'angle de contact d'un point triple aux énergies de surface des trois interfaces : solide-gaz γ_S , solide-liquide γ_{SL} , liquide-gaz γ_L (Figure 4.3) :

$$\gamma_S = \gamma_{SL} + \gamma_L * \cos \theta \quad (4.3)$$

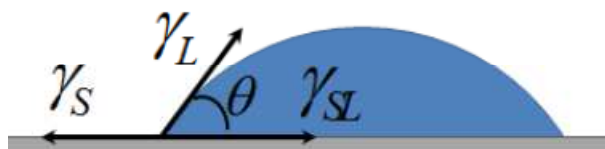


FIGURE 4.3 – Représentation de l'équation d'Young

Le calcul de γ_S^d et de γ_S^p s'effectue en résolvant un système de deux équations de Wu, une pour chacun des deux liquides et la tension de surface totale est la somme des deux composantes.

4.2 Caractérisation physico-chimique des traitements de surface

Afin de créer différents niveaux d'adhésion, nous avons joué sur les paramètres de conversion de l'adhésif (cf partie précédente) et sur les traitements de surface appliqués au substrat

d'aluminium. Ce paragraphe détaille la réalisation et la caractérisation de ces traitements de surface.

4.2.1 Substrat d'aluminium

Les substrats utilisés sont des plaques d'aluminium de qualité aéronautique de nuance 2024, qui est un alliage d'aluminium-cuivre durci par précipitation ou par durcissement structural. Sa composition chimique [69] est regroupée dans le tableau suivant :

Nomenclature	Autres métaux (% maximum)								% min d'Al
	Si	Fe	Cu	Mn	Mg	Cr	Zn	Ti	
2024	0.5	0.5	3.8-4.9	0.3-0.9	1.2-1.18	0.1	0.25	0.15	Reste

TABLE 4.1 – Caractérisation de l'aluminium

4.2.2 Préparation de surfaces

Dans le cadre de l'ANR ISABEAU, trois traitements de surface ont été sélectionnés qui seront combinés de plusieurs manières afin d'obtenir différents niveaux d'adhésion. Les substrats ont subi un premier nettoyage à l'acétone afin d'enlever toute trace de feutre, poussière en excès... avant d'être traités par l'une ou l'autre des préparations de surface suivantes :

Dégraissage

Le dégraissage est l'étape primordiale de tout traitement de surface. L'objectif est d'éliminer les matières grasses, les poussières ou tout autre composant pouvant former une couche superficielle à l'interface du substrat et de l'adhésif. Les plaques d'aluminium sont dégraissées avec un chiffon papier et du solvant isopropanol (propan-2-ol).

Sablage

L'objectif du sablage est de décaper, désoxyder et donc d'éliminer les composés indésirables intimement liés à la surface tels qu'oxydes, peintures, vernis, revêtements métalliques... puis de régénérer d'autres oxydes plus adhérents et donc plus résistants. Il permet également de créer des creux et des vallées afin d'augmenter la rugosité et donc l'accroche mécanique adhésif/substrat. Le mode opératoire consiste à projeter par air comprimé des particules abrasives sélectionnées en fonction de la rugosité finale souhaitée. Le traitement peut donc modifier considérablement

la morphologie du substrat selon les conditions de traitement : nature, forme et taille des particules, temps et pression de projection... Le sablage est réalisé à l'aide d'une sableuse Hogar 1000 avec un dépoussiérage à décolmatage automatique.

Dans le cadre de ce projet, deux valeurs de rugosité ont été sélectionnées : $R_q = 10\mu\text{m}$ considérée comme une valeur "standard" et une autre plus forte $R_q = 30\mu\text{m}$. Une étude sur le type de particules et sur la pression utilisée a été réalisée afin de pouvoir sélectionner les paramètres adaptés pour obtenir ces rugosités et sont résumés dans le tableau 4.2. Le corindon brun est un abrasif artificiel d'oxydes d'aluminium cristallisés obtenus par fusion au four électrique.

Rugosité (μm)	Particules	Taille (μm)	Pression (bar)
10	Corindon 40	354-500	6
30	Corindon 12	1410-2000	4

TABLE 4.2 – Mode opératoire du sablage

La mesure de la rugosité s'est faite avec un profilomètre de contact VEECO Dektak 150 (Fig. 4.4) à l'aide d'un stylet de $2.5\mu\text{m}$ de rayon de courbure, et sur une longueur de 2 cm. Les profils de surface obtenus pour les différentes rugosités sont donnés Fig. 4.5. Des photos du résultat du sablage sont données Fig.4.6.

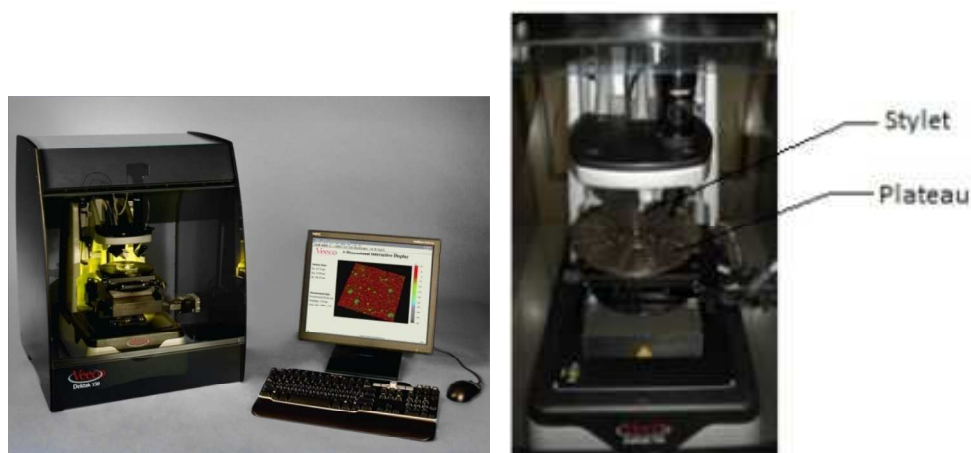


FIGURE 4.4 – Profilomètre VEECO Dektak 150

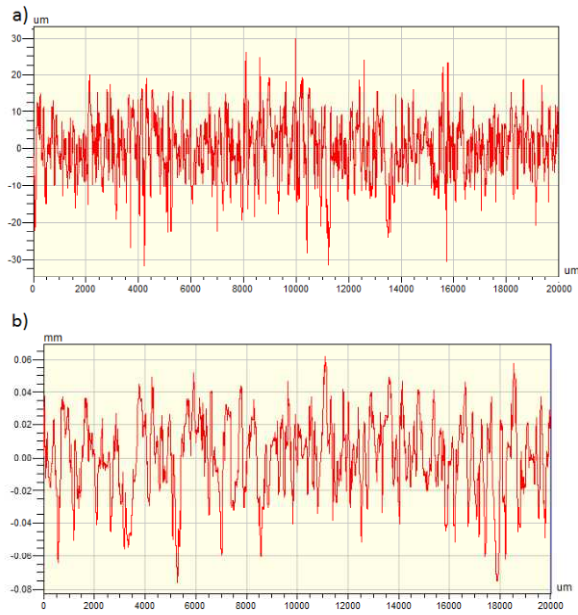


FIGURE 4.5 – Profil des surfaces des échantillons après sablage par a) Corindon 40 à une pression de 6 bar : $Rq = 10\mu\text{m}$ b) Corindon 12 à une pression de 3 bar : $Rq = 30\mu\text{m}$.

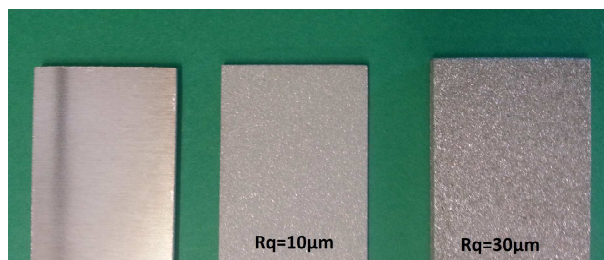


FIGURE 4.6 – Photographie de l'aluminium après sablage

Silanisation

Ce traitement chimique utilise une molécule appelée promoteur d'adhérence (ou agent de couplage) qui fera le lien entre le substrat et l'adhésif. Il est courant d'utiliser des organosilanes qui sont des composés bifonctionnels X-R-Y où la fonction X (silane) se lie au substrat et Y (organique) se lie à l'adhésif. On parle alors de traitement de silanisation. Sachant que l'adhésif est du type amine/époxy, la fonction organique Y doit être soit une fonction amine (pour réagir avec le prépolymère époxy de l'adhésif), soit une fonction époxy (pour réagir avec le durcisseur amine de l'adhésif). Le cas le plus courant est l'utilisation d'un alcoxysilane portant un groupe époxyde qui fait donc partie de la classe des glycidoxysilanes. Nous utiliserons ici le (3-Glycidoxypropyl)triméthoxysilane) ou γ -GPS dont la formule chimique est représentée ci-dessous :

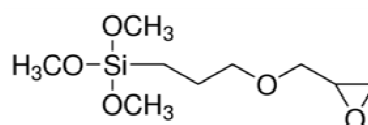


FIGURE 4.7 – Formule chimique du γ -GPS

Le groupe époxy va réagir avec la diamine de l'adhésif, alors que le silane, après réaction d'hydrolyse (qui forme des silanols Si-OH), va réagir avec le substrat métallique (Figure 4.8)

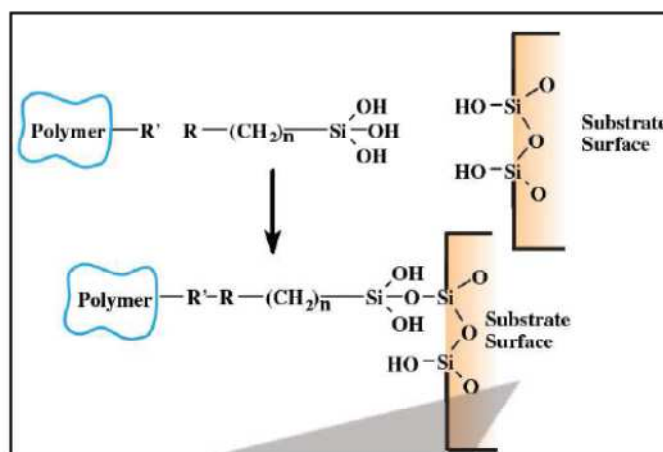


FIGURE 4.8 – Schéma réactionnel de la silanisation

Le protocole de silanisation est élaboré à partir des données de la littérature [69, 70] :

- Préparer la solution aqueuse de silane avec le γ -GPS à $C = 1\%$ et ajuster le $\text{pH} \simeq 5$ avec de l'acide chlorhydrique (pour la stabilité des silanols)

- Hydrolyser la solution sous agitation à température ambiante pendant 1h
- Immerger les substrats aluminium dans la solution pendant 10 min
- Enlever l'excès de la solution en tapotant les substrats verticalement sur un chiffon papier
- Sécher les substrats dans une étuve ventilée à $93^{\circ}C$ pendant 1h

Mesure des angles de contact

• Mode opératoire

La technique des angles de contact permet de déterminer l'énergie de surface du solide à partir de la mesure des angles de contact de différents liquides dont l'énergie de surface γ_L est bien connue. Cependant, γ_{SL} n'est généralement pas connue, c'est pourquoi des modèles d'interaction ont été développés afin de l'estimer. De nombreux modèles existent et font encore aujourd'hui l'objet d'études [71–73]. Le modèle de Wu [74], par exemple, permet de caractériser l'énergie de surface mais également sa polarité en prenant en compte une moyenne harmonique [74] :

$$\gamma_L * (1 + \cos \theta) = 4 \frac{\gamma_L^d * \gamma_S^d}{\gamma_L^d + \gamma_S^d} + 4 \frac{\gamma_L^p * \gamma_S^p}{\gamma_L^p + \gamma_S^p} \quad (4.4)$$

Les mesures se font avec deux liquides : l'eau et le diiodométhane ou iodure de méthylène. Le calcul de γ_S^d et de γ_S^p s'effectue donc en résolvant un système de deux équations, une pour chacun des deux liquides et la tension de surface totale est la somme des deux composantes. Nous utiliserons ici la méthode d'Owens-Wendt [75] pour la mesure de l'angle de contact qui a l'avantage d'être simple et permet d'avoir des résultats rapidement, le tout pour une application universelle. Les mesures sont réalisées sur un Dataphysics OCA 15EC (Fig. 4.9).

• Résultats

Le tableau 4.3 regroupe les résultats des angles de contact mesurés et des énergies de surface calculées dans le cas d'une surface d'aluminium lisse (sans sablage, $R_q = 0.6 \mu m$). On peut ainsi remarquer que même si les valeurs des angles de contact restent semblables pour le diiodométhane pour chaque traitement de surface, celles de l'eau diminuent avec le dégraissage à l'isopropanol (19%) et encore plus avec le traitement chimique silane (38%) par rapport à un simple nettoyage à l'acétone. Cela traduit la meilleur mouillabilité de la surface et qu'elle possède une plus grande énergie de surface confirmée par les valeurs calculées.



FIGURE 4.9 – Appareil de mesure des angles de contact Dataphysics OCA 15EC

Traitement de surface	D (acétone)	D (propan-2-ol)	Silanisation
Angle, eau ($^{\circ}$)	85.7	69.6	53.2
Angle, diiodométhane ($^{\circ}$)	53	52.8	51.7
Composante polaire (mJ/m^2)	3.1	9.8	19.2
Composante dispersive (mJ/m^2)	32.3	32.4	33.1
Energie de surface totale (mJ/m^2)	35.4	42.2	52.3

TABLE 4.3 – Résultats des mesures des angles de contact et du calcul des énergies de surface dans le cas d’une surface lisse d’aluminium

Ainsi, la mesure des angles de contact nous a permis d’observer indirectement la présence du silane sur le substrat et de remarquer son action sur la surface de l’aluminium en augmentant sa mouillabilité.

Après avoir caractérisé les traitements de surface pouvant être appliqués, nous allons maintenant nous intéresser à la réalisation des échantillons pour l’évaluation non destructive par ondes de Lamb.

4.3 Réalisation des échantillons

4.3.1 Étude de la viscosité

La réalisation de réseaux époxy nécessitait une très faible viscosité du système du fait de l’utilisation d’un moule et des épaisseurs des échantillons voulues (cf chapitre 2). Cependant, dans le cas d’un revêtement, la viscosité doit être plus élevée afin d’éviter toute forme de fuite de matière mais pas trop non plus afin de pouvoir réaliser un revêtement homogène sans apparition de bulles d’air ou de défauts de matière. Une étude de la viscosité doit donc être réalisée afin

de trouver le compromis idéal pour la réalisation des échantillons.

L'étude de la viscosité du mélange DER311+D230 a été réalisée à l'aide d'un rhéomètre Anton Paar MCR301. On place la formulation entre deux plateaux sur lesquels on impose une vitesse de rotation sur l'un alors que le second reste fixe. Le couple est mesuré et permet d'obtenir la viscosité du polymère. Les deux plateaux ont ici un diamètre de 50 mm, l'amplitude de déformation appliquée est de 5% et la fréquence de mesure de 1Hz.

Après 2h de réaction à température ambiante (20°C), le système époxy atteint une viscosité de 1.82 Pa.s (système utilisé alors pour la réalisation de réseaux époxydes). Pour la réalisation des revêtements, il est nécessaire d'atteindre une viscosité de 14.3 Pa.s, soit après 8h de réticulation à température ambiante.

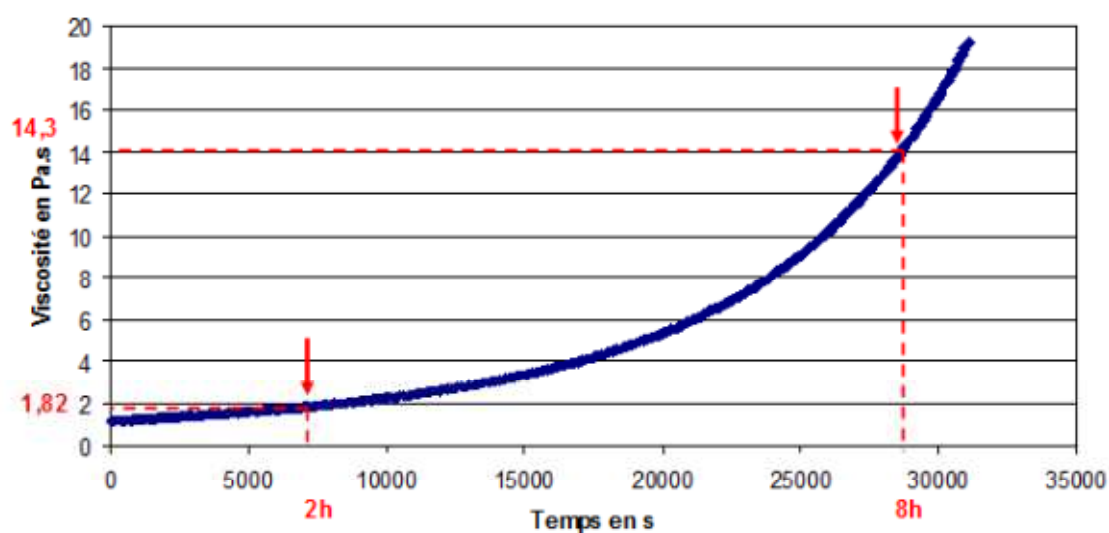


FIGURE 4.10 – Variation de la viscosité en fonction du temps de réaction à 20°C

4.3.2 Réalisation du revêtement

La résine époxy est préparée selon les mêmes proportions stœchiométriques que précédemment à savoir 3.24 g de Jeffamine D230 pour 10 g de pré-polymère époxyde DER 331. Le mélange est ensuite agité au réacteur pendant 2h afin qu'il soit bien homogène puis immergé dans un bain à ultrasons pendant 10 min ce qui permet le dégazage du mélange. La résine est

ensuite placée dans plusieurs seringues afin de faciliter le dépôt sur le substrat. Les seringues remplies de la formulation sont alors laissées à température ambiante pendant 8h afin d'obtenir une viscosité idéale pour la réalisation d'un revêtement (cf paragraphe ci-dessus). Avant d'être traités, les substrats sont tout d'abord dégraissés à l'acétone afin d'enlever une première couche de poussière, taches de feutre... Par la suite, les substrats d'aluminium, de dimension 200 mm x 200 mm x 5 mm, sont traités selon le traitement de surface désiré (dégraissage, sablage et/ou silanisation). Une fois le(s) traitement(s) de surface réalisé(s), on place le substrat sur la table du barcoater (Fig. 4.11), on choisit un filmographe à spirale suivant l'épaisseur du revêtement voulue, ici 0.5 mm. La résine est déposée en excès au bord de ce filmographe. Les commandes de contrôle vont ensuite faire avancer le chariot qui déposera ainsi une couche d'épaisseur constante.

Afin d'éviter toute fuite en attendant que la résine dépasse le point de gel, l'échantillon est laissé à température ambiante sur un plan type marbre parfaitement horizontal pendant 24h. Dans le cas d'une réticulation de la couche d'adhésif à 80%, l'échantillon est laissé à température ambiante pendant encore 4 jours, et dans le cas où la conversion est totale, l'échantillon est mis en étuve pendant 1h à 80°C suivi de 3h à 160°. Finalement 10 échantillons ont été réalisés dont les caractéristiques sont résumées dans le tableau 4.4.

Nomenclature : Traitement de surface-conversion. (Par exemple, DRq10-80 représente l'échantillon qui a été dégraissé, puis sablé de telle sorte que $R_q = 10 \mu m$, avec une conversion d'époxy de 80%)

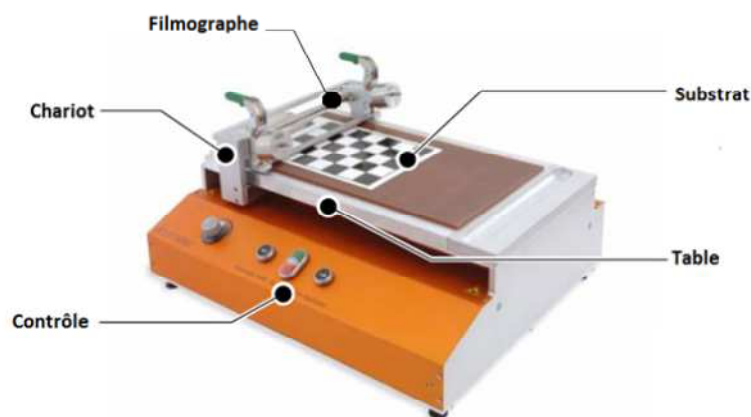


FIGURE 4.11 – Barcoater

Référence	Traitement aluminium	Conversion
D-80	Dégraissage	
DSi-80	Dégraissage + silanisation	80%
DRq10-80	Dégraissage + sablage	
DRq10Si-80	Dégraissage + sablage + silanisation	
D-100	Dégraissage	
DSi-100	Dégraissage + silanisation	
DRq10-100	Dégraissage + sablage	100%
DRq30-100	Dégraissage + sablage	
DRq10Si-100	Dégraissage + sablage + silanisation	
DRq30Si-100	Dégraissage + sablage + silanisation	

TABLE 4.4 – Synthèse des échantillons bicouches réalisés et nomenclature associée

4.4 Caractérisation mécanique de la force d'adhésion

4.4.1 Mode opératoire

Afin de valider les différents niveaux d'adhésion obtenus grâce aux traitements de surface ainsi qu'à la réticulation de l'époxy, des éprouvettes à simple recouvrement ont été réalisées et testées mécaniquement selon la norme EN-2243-1 (Figure 4.12). Ces essais ont été réalisés au LAUM (Laboratoire Acoustique de l'Université du Maine), partenaire de l'ANR ISABEAU. Celle-ci permet d'avoir une méthode standardisée de test pour mesurer la force d'adhésion en cas de contrôle qualité. Les dimensions (longueur, largeur, épaisseur) des zones de colle sont mesurées à différents points par un micromètre et sont moyennés.

Les essais mécaniques sont réalisés par une machine standard MTS de 100 kN. Les échantillons sont testés en statique, avec un taux de chargement de 0.1 mm/min. Un extensomètre est utilisé afin de mesurer la déformation réelle. La force d'adhésion est calculée en utilisant la formule suivante :

$$\tau = \frac{P_{max}}{A} \quad (4.5)$$

où τ est la force d'adhésion en MPa, P_{max} est le chargement maximal de rupture en N, et A est l'aire du joint de colle en mm². Chaque traitement de surface associé à une conversion d'époxy a été testé pour 5 échantillons afin d'assurer la répétabilité des mesures.

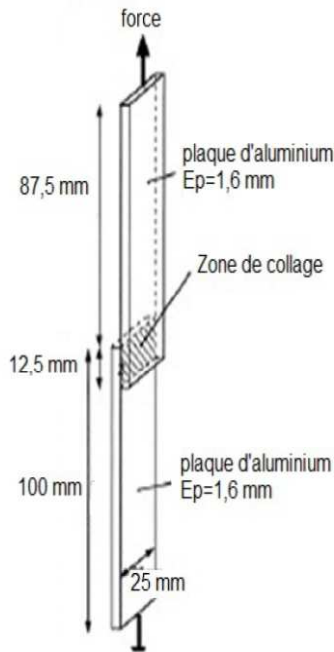


FIGURE 4.12 – Schéma de l'éprouvette pour la réalisation d'essai de cisaillement selon la norme EN-2243-1

Les échantillons réalisés dans le cadre de la caractérisation mécanique sont des éprouvettes dégraissées avec conversion totale (D-100), sablées avec une rugosité R_q égale à $15\mu\text{m}$ (DS-100), silanisées (DSi-100) et, sablées et silanisées (DSSi-100); et pour une conversion partielle, les traitements de surface sont le sablage (DS-80), et le sablage et la silanisation (DSSi-80).

4.4.2 Résultats

Les résultats des essais mécaniques sont donnés figure 4.13. Dans les trois cas où l'adhésif a complètement réticulé, on trouve, comme attendu, la résistance la plus faible pour l'échantillon D-100, soit environ 7.7 MPa. La rugosité de la surface a été mesurée et on trouve une valeur de $R_q = 0.6 \mu\text{m}$, ce qui est trop faible pour l'ancrage mécanique. Dans le cas où l'échantillon est sablé (DS-100), la résistance monte à 13.5 MPa. Le sablage a nettement augmenté la surface de contact et a également permis d'éliminer l'oxyde naturel de la surface. La force d'adhérence n'augmente que légèrement lorsqu'on ajoute le traitement chimique au sablage (DSSi-100) pour atteindre une valeur de 14.3 MPa. La rugosité n'ayant pas été modifiée par la couche de silane, cette augmentation est donc associée à la liaison covalente Al-O-Si solide créée entre le substrat d'aluminium et l'adhésif époxyde. L'existence des liaisons covalentes est également connue pour

améliorer la durabilité des joints collés [76, 77]. Ainsi, les organosilanes tels que le γ -GPS sont des promoteurs d'adhérence très performants et peuvent même être suffisants comme traitement de surface comme on peut le voir sur les échantillons DSi-100 où la force d'adhérence est de 14.7 MPa.

Dans le cas où la conversion est de 80%, une différence importante est observée dans les forces adhésives entre les échantillons DS-80 et DS-100. Le cycle de conversion partielle conduit à une valeur égale à 8.7 MPa, soit 50% de moins que dans le cas d'une conversion totale. Cela indique l'importance du niveau de la réticulation. Cependant cette influence est nettement réduite lorsque le traitement chimique est appliqué. Les valeurs obtenues pour l'échantillon DSSi-80 sont beaucoup plus proches de celles de l'échantillon DSSi-100. Le traitement silane permet de compenser les effets d'une réticulation partielle.

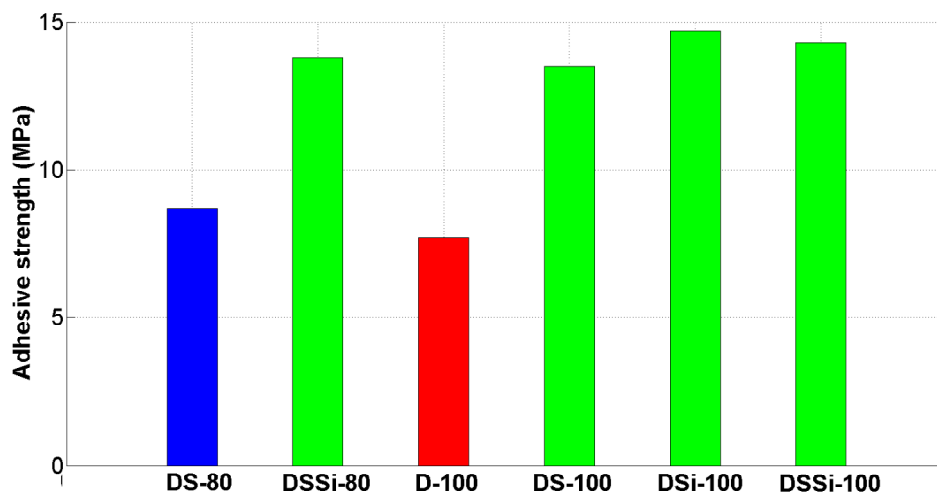


FIGURE 4.13 – Résultats des mesures des forces d'adhésion pour chaque type d'échantillon

Les résultats des tests mécaniques ont permis de confirmer la réalisation de différents niveaux d'adhésion en jouant sur les paramètres de traitements de surface et de conversion de l'adhésif [78]. La problématique de la caractérisation acoustique est donc la discrimination de ces niveaux d'adhésion.

4.5 Caractérisation ultrasonore par ondes de Lamb

Le but de cette étude est de pouvoir évaluer les différents niveaux d'adhésion créés par les traitements de surface et les deux taux de réticulation de l'époxy. On cherche ainsi à associer chaque échantillon à un couple de valeurs de raideur de ressort utilisé par l'application du modèle de Jones (cf chapitre précédent). On rappelle que l'on travaille avec $R_L = R_T$. Les courbes de dispersion paramétrées par les constantes de raideur des ressorts seront donc tracées pour les deux cas de réticulation dont les paramètres élastiques ainsi que ceux de l'aluminium sont rappelés dans le tableau suivant :

Matériaux	c_L (m/s)	c_T (m/s)	ρ (kg/m ³)
Époxy (100%)	2512	1121	1100
Époxy (80%)	2441	1116	1100
Aluminium	6380	3100	2800

TABLE 4.5 – Paramètres élastiques des matériaux utilisés

4.5.1 Mode opératoire

Comme on a pu le voir dans le chapitre précédent, tous les modes montrent une sensibilité plus ou moins marquée aux paramètres de Jones et une sensibilité aux différents niveaux d'adhésion. On cherche ainsi à exciter le plus de modes possibles, dans une large gamme de fréquence. Le mode opératoire acoustique sera donc le même que celui présenté dans le chapitre 1.2 en utilisant cette fois un transducteur de fréquence centrale de 2.25 MHz avec un sabot de 30°. Pour chaque échantillon, on récupère le signal sur une longueur de 10 cm avec un pas de 0.1 mm. Le but est de comparer les courbes de dispersion expérimentales avec celles obtenues par le modèle de Jones, afin d'associer à chaque échantillon un couple de valeur de raideur des ressorts.

4.5.2 Résultats

Afin de trouver le bon couple de raideur de ressorts $R_{L,T}$, correspondant à chaque échantillon, on superpose sur les courbes de dispersion expérimentales d'un échantillon donné, les courbes de dispersion obtenues à partir du modèle de Jones dans le cas d'une conversion de la couche d'adhésif à 100% ou 80%, afin de regarder quelle est la meilleure concordance. Les courbes pour l'échantillon D-100 (Fig 4.14), D-80 (Fig 4.15) et DSi-100 (Fig 4.16) sont données en exemples.

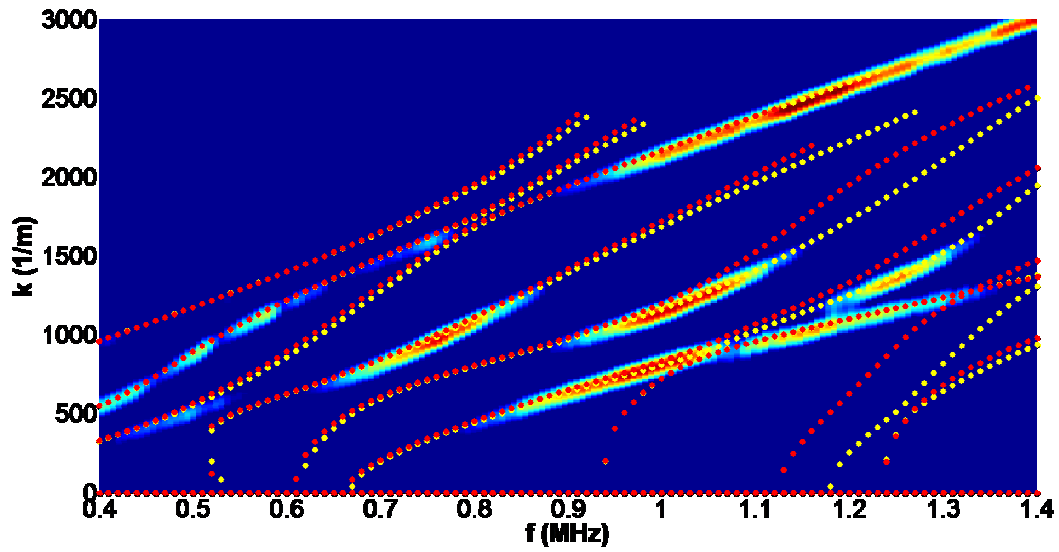


FIGURE 4.14 – Superposition des courbes de dispersion expérimentales obtenues avec l'échantillon D-100 avec les courbes de dispersion théoriques dans le cas d'une adhésion parfaite (●) et les courbes de dispersion théoriques dans le cadre du modèle de Jones pour des valeurs de $R_{L,T}=10^{14.5}\text{N/m}^3$ (●)

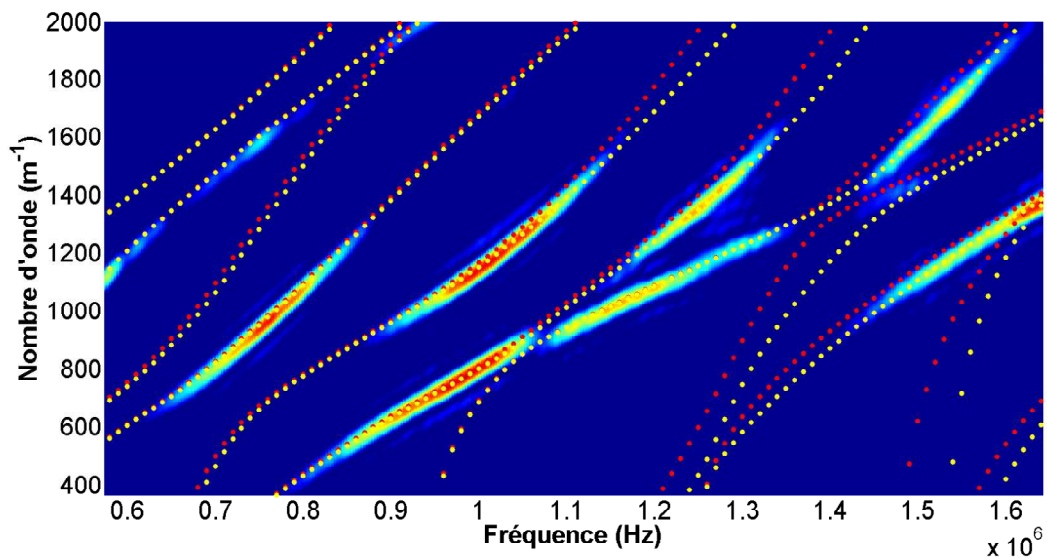


FIGURE 4.15 – Superposition des courbes de dispersion expérimentales obtenues avec l'échantillon D-80 avec les courbes de dispersion théoriques dans le cas d'une adhésion parfaite (●) et les courbes de dispersion théoriques dans le cadre du modèle de Jones pour des valeurs de $R_{L,T}=10^{14.2}\text{N/m}^3$ (●)

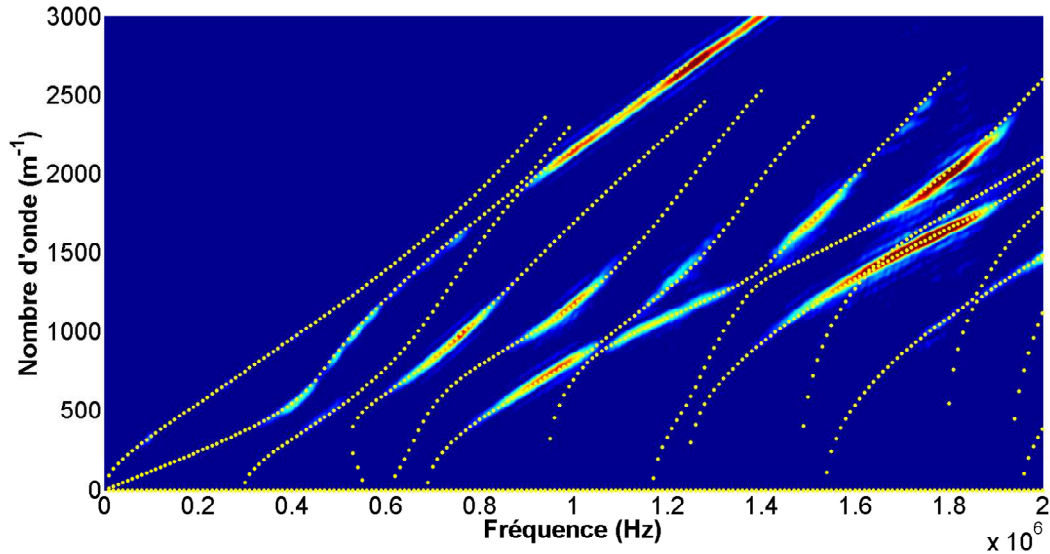


FIGURE 4.16 – Superposition des courbes de dispersion expérimentales obtenues avec l'échantillon DSi-100 avec les courbes de dispersion théoriques pour une adhésion parfaite (•)

Cette démarche, appliquée à l'ensemble des échantillons, nous permet d'obtenir les résultats suivants :

Échantillon (100%)	$pR_{L,T}$	Échantillon (80%)	$pR_{L,T}$
D-100	14.5	D-80	14.2
DRq ₁₀ -100	16	DRq ₁₀ -80	15
DRq ₃₀ -100	16		
DSi-100	16	DSi-80	16
DRq ₁₀ Si-100	16	DRq ₁₀ Si-80	16
DRq ₃₀ Si-100	16		

TABLE 4.6 – Résultats des couples de valeurs de raideur des ressorts associés à chaque échantillon

Dans le cas d'une conversion totale, le niveau d'adhésion le plus faible traduit par $pR_{L,T}=14.5$ est obtenu pour un échantillon simplement dégraissé. Dans le cas où l'on applique le sablage, pour une rugosité de 10 ou 30 μ m, l'adhésion augmente fortement pour obtenir des valeurs de $pR_{L,T}$ identiques à celles d'une adhésion parfaite. L'ancrage mécanique provoqué par le sablage a fortement augmenté le niveau d'adhésion dans un cas comme dans l'autre. Le traitement chimique confirme le pouvoir adhésif du silane sur la structure aluminium/époxy. En effet, dans le cas où le traitement mécanique est appliqué, les valeurs de $pR_{L,T}$, considérant déjà les structures comme parfaites d'un point de vue adhésif, ne sont pas affectées par l'ajout de silane et restent égales à 16. Mais dans le cas où l'application du traitement chimique se fait sur un échantillon simplement dégraissé, que la réticulation soit partielle ou totale, son niveau

d'adhésion est amélioré pour obtenir des valeurs d'adhésion parfaite.

Le niveau d'adhésion le plus faible, $pR_{L,T}=14.2$, est observé pour une conversion partielle associée au dégraissage. L'utilisation du sablage permet d'améliorer cette valeur ($pR_{L,T} = 15$) et donc le niveau d'adhésion mais contrairement au cas d'une conversion totale de l'époxy, ne permet pas d'obtenir une adhésion parfaite caractérisée par $pR_{L,T} = 16$. Encore une fois, l'ajout de silane permet d'obtenir, dans le cas d'un traitement chimique simple ou par ajout sur le traitement mécanique, un niveau d'adhésion parfait et compense l'effet de la conversion ; on obtient ainsi des valeurs $pR_{L,T} = 16$.

Finalement, comme dans le cas des essais de traction (Fig. 4.13), on retrouve 3 niveaux d'adhésion :

- Un bon, (en vert figure 4.13), représenté par tous les échantillons ayant subi un traitement chimique et les échantillons sablés avec une réticulation totale de l'adhésif et dont les paramètres de Jones valent 10^{16} N/m³
- Un moyen, (en bleu figure 4.13), représenté par l'échantillon sablé mais avec une conversion partielle de la couche d'adhésif, et dont les coefficients de Jones valent 10^{15} N/m³
- Un faible, (en rouge figure 4.13), représenté par les échantillons simplement dégraissés pour une réticulation de 100 ou de 80% où on obtient une valeur respective des raideurs des ressorts égales à $10^{14.5}$ N/m³ et $10^{14.2}$ N/m³

4.6 Étude des atténuations

La superposition des courbes de dispersion théoriques et expérimentales nous apporte des informations concernant le niveau d'adhésion des échantillons. Cependant, dans le cas où les traitements de surface permettent d'obtenir des valeurs logarithmiques de raideur des ressorts à $pR_{L,T} = 16$, il est impossible de différencier chaque échantillon et de discriminer chacun des traitements de surface. Ainsi, une étude d'atténuation des modes de Lamb est réalisée. L'idée est de voir les effets des interfaces différentes (dus aux différents traitements de surface) et de la réticulation de l'époxy sur l'atténuation des ondes de Lamb au cours de leur propagation. En effet, on peut émettre l'hypothèse qu'en présence de rugosité, l'atténuation devrait être plus forte que sans rugosité, mais également qu'un époxy partiellement réticulé devrait être plus

atténuateur que lorsqu'il est réticulé totalement [79].

4.6.1 Mode opératoire

Afin de mettre en avant l'influence du traitement de surface et de la conversion par l'étude de l'atténuation d'un mode, on se concentre cette fois-ci sur le mode M_2 de la structure. En effet, quel que soit l'échantillon, nous avons constaté que ce mode a été largement excité autour d'une fréquence de 700 kHz. On utilise un transducteur de 1 MHz de fréquence centrale et un sabot de 30° . Le signal d'excitation est une sinusoïde de 5 périodes, à une fréquence centrale de 700 kHz. L'acquisition est faite sur une distance de propagation de 8 cm avec un pas de 0.1 mm.

4.6.2 Traitement du signal

Le but du traitement du signal est de mesurer l'atténuation d'un mode donné, dans les différents échantillons et à la même fréquence. L'atténuation est déduite à partir de la décroissance de l'amplitude du mode en fonction de la position x . On applique ainsi une FFT à fenêtre glissante dont le principe est résumé figure 4.17.

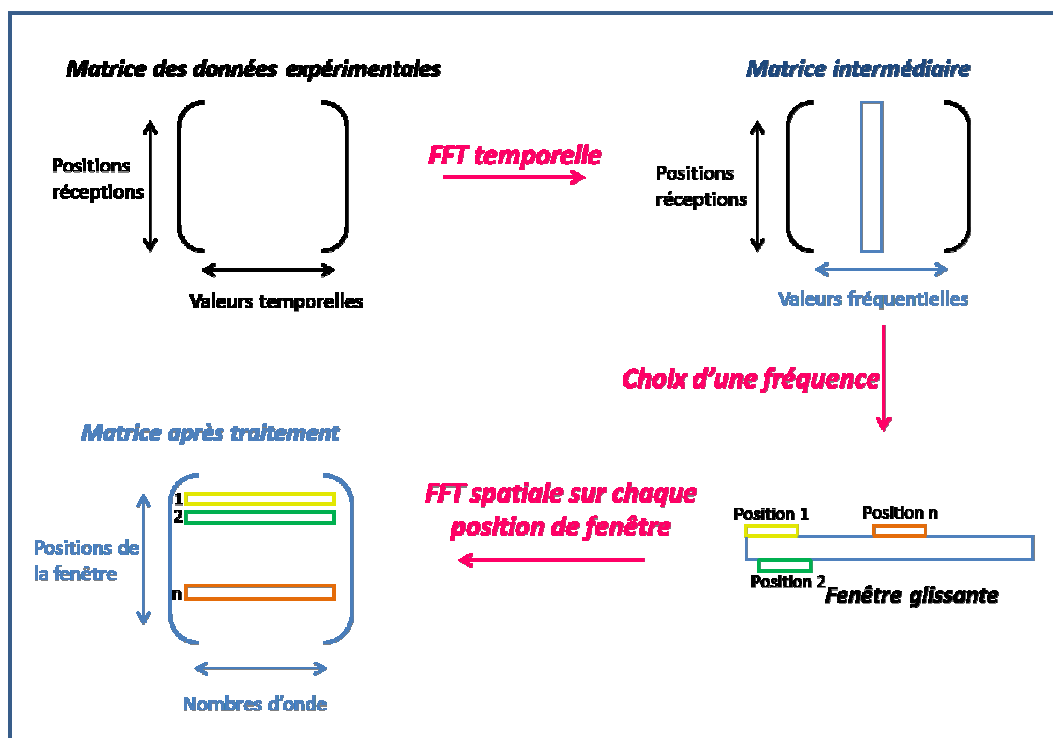


FIGURE 4.17 – Principe de la transformée de Fourier à fenêtre glissante

Après avoir appliqué la FFT temporelle sur la matrice "temps-position" obtenue expérimentalement, on fixe notre fréquence d'étude, soit une ligne de la matrice "position-fréquence". Chaque élément de ce vecteur ligne correspond à une position le long de la structure bicouche. On applique alors une fenêtre carrée glissante de taille 400 points, soit 40 mm. Le nombre de points de la fenêtre est un choix arbitraire correspondant à un compromis entre la précision en x (correspondant au milieu de la fenêtre) et celle de k_x qui est d'autant moins bonne que la fenêtre est de taille réduite. Ces 400 points de la fenêtre sont complétés par "zero-padding" jusqu'à obtenir 2^{16} points sur lesquels la FFT spatiale est appliquée. On obtient ainsi un pas en nombre d'onde $\delta k_x = 4.4 \text{ m}^{-1}$

Le module de la FFT spatiale est affecté au centre de la fenêtre glissante. On obtient ainsi une représentation dans l'espace (x, k_x) comme montré sur la figure 4.18. On trace le maximum d'amplitude de cette FFT en fonction de la position x . L'atténuation étant supposée exponentielle, on trace alors le logarithme du maximum d'amplitude en fonction de la position, qu'on fitte par une loi linéaire. Le coefficient d'atténuation correspond à la pente de ce fit linéaire. Un exemple est représenté sur la figure 4.19.

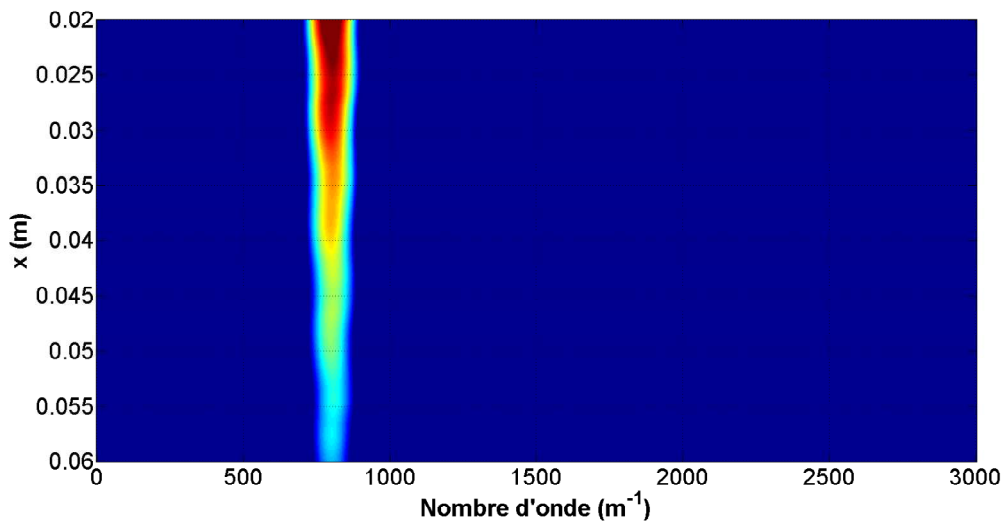


FIGURE 4.18 – Représentation du résultat de la FFT spatiale à fenêtre glissante dans l'espace (x, k_x) du mode M_2 à 700 kHz pour l'échantillon D-100

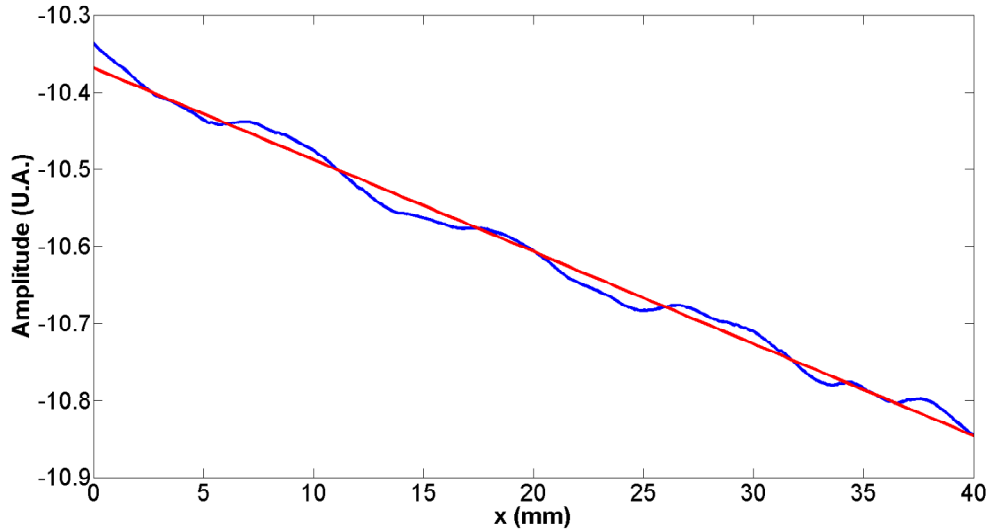


FIGURE 4.19 – Tracé de l’atténuation du mode M_2 à 700 kHz pour l’échantillon D-100

4.6.3 Résultats

Les résultats obtenus sur les différents échantillons sont regroupés dans le tableau 4.7. Une première remarque peut être faite sur l’influence de la conversion de l’époxy sur l’atténuation. En effet, quel que soit le traitement de surface, les valeurs d’atténuation sont plus fortes dans le cas d’une réticulation à 80% que dans le cas d’une réticulation totale.

De plus, en appliquant le traitement mécanique, on observe que plus la rugosité est importante, plus l’atténuation est forte. Ces résultats sont en accord avec ceux trouvés par Leduc et al. [80]. La silanisation, quant à elle, diminue les valeurs d’atténuation et comble même l’effet de la conversion partielle dans le cas de l’échantillon DSi-80. Ceci peut être expliqué par le fait que le silane améliore le couplage entre le substrat et l’adhésif. On note toutefois que lorsqu’on mélange les deux traitements de surface (chimique et mécanique), l’effet de la rugosité est tout de même plus fort. En effet, on reste sur un ordre de grandeur équivalent pour une rugosité à $R_q=10\mu\text{m}$ mais dans le cas de la rugosité forte ($R_q = 30\mu\text{m}$), il n’y a pas de différences entre les deux échantillons DR_{q30}-100 et DR_{q30}Si-100.

Échantillon (100%)	Atténuation (Np/m)	Échantillon (80%)	Atténuation (Np/m)
D-100	11	D-80	14
DR _{q10} -100	12	DR _{q10} -80	16
DR _{q30} -100	14		
DSi-100	9.5	DSi-80	10
DR _{q10} Si-100	11	DR _{q10} Si-80	15
DR _{q30} Si-100	14		

TABLE 4.7 – Valeurs d’atténuation de chaque échantillon pour une fréquence de 0.7 MHz

Conclusion

Cette partie a été consacrée à l'étude d'une structure bicouche composée d'une plaque d'aluminium revêtue d'une couche d'époxy. Dans un premier temps, les équations régissant les ondes de Lamb dans cette structure ont été données et les courbes de dispersion théoriques dans le cas d'une adhésion parfaite ont été tracées. Le modèle de Jones a été présenté. Ce modèle adhésif permet de qualifier un niveau d'adhésion suivant la valeur des constantes de raideur des ressorts appliquées. Une étude de sensibilité a ainsi été réalisée et a permis de mettre en évidence la sensibilité des modes aux niveaux d'adhésion. Dans un second, temps, une étude expérimentale a été réalisée. Des échantillons à niveaux d'adhésion variables ont été réalisés en jouant sur les paramètres de conversion et de traitements de surface. Ces derniers ont été caractérisés mécaniquement et trois niveaux d'adhésion, faible, moyen et fort ont été mis en évidence. Le γ -GPS (produit utilisé pour le traitement chimique de silanisation) s'est révélé être un excellent promoteur permettant d'assurer un bon niveau d'adhésion palliant tout défaut de conversion. Une caractérisation non destructive ultrasonore a été réalisée. Celle-ci a consisté à superposer les courbes de dispersion expérimentales aux courbes de dispersion obtenues dans le cadre du modèle de Jones et de trouver le meilleur couple $R_{L,T}$ correspondant. Il en est ressorti les mêmes conclusions que dans le cas de la caractérisation mécanique destructive. Afin de compléter la discrimination, une étude des atténuations d'un mode de Lamb donné au cours de sa propagation dans les différents échantillons a été réalisée. Celle-ci a permis de mettre en avant le caractère atténuant de la rugosité et d'une conversion partielle. Ainsi, les ondes de Lamb peuvent qualifier un niveau d'adhésion mais également discriminer le traitement de surface utilisé.

La prochaine partie sera consacrée à l'étude d'un assemblage aluminium/époxy/aluminium ou structure tricouche avec un intérêt particulier porté sur l'énergie véhiculée par les modes de Lamb et sa répartition dans la section du guide.

Troisième partie

**ÉTUDE DU NIVEAU
D'ADHÉSION DANS UN
ASSEMBLAGE TRICOUUCHE
ALUMINIUM/
ÉPOXY/ALUMINIUM**

Introduction

La propagation des ondes de Lamb dans une structure tricouche est une étude très classique lors d'un travail sur les assemblages collés [54, 81]. Ces travaux ont révélé l'existence de deux modes dits verticaux qui sont des caractéristiques du couplage entre les deux substrats collés. Ainsi, après avoir réussi à dégager 3 niveaux d'adhésion en jouant sur les traitements de surface et la conversion de l'adhésif sur un bicouche, on cherche cette fois-ci à réaliser cette analyse à l'aide des modes verticaux sur des assemblages tricouches. Cette dernière partie est divisée en deux chapitres : le premier porte sur l'étude théorique des ondes de Lamb dans une structure tricouche, avec un intérêt particulier sur l'aspect énergétique et le second sur la caractérisation expérimentale de ces structures.

Chapitre 5

Ondes de Lamb dans une structure tricouche

Dans ce chapitre, nous écrivons les équations régissant les ondes de Lamb dans un tricouche. Le modèle de Jones est également appliqué à cette structure et une étude de sensibilité des modes de Lamb aux constantes de raideur des ressorts est effectuée. Afin de comprendre les phénomènes observés lors de cette étude de sensibilité, nous nous intéressons particulièrement à l'énergie véhiculée par les ondes guidées. Une modélisation numérique par éléments finis est réalisée afin d'étudier la répartition de l'énergie en tout point dans la section du tricouche, ainsi que le flux d'énergie dans chacune des couches.

5.1 Position du problème

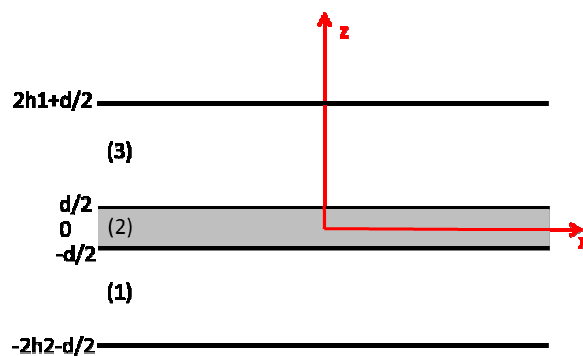


FIGURE 5.1 – Configuration géométrique de la structure tricouche

On s'intéresse cette fois à une structure tricouche aluminium/époxy/aluminium (Figure 5.1). Les deux substrats métalliques sont identiques et d'épaisseur $2h_i = 5$ mm, la couche d'adhésif est d'épaisseur $d = 0.5$ mm. Chaque couche est caractérisée par sa masse volumique ρ et par ses vitesses de propagation c_L et c_T .

5.2 Rappel des équations caractéristiques

On cherche des solutions aux potentiels de la forme :

$$\begin{cases} \varphi_1 = [A_L^{(1)} \cos(k_{Lz1}(z + d/2)) + B_L^{(1)} \sin(k_{Lz1}(z + d/2))]e^{i(k_x x - wt)} \\ \psi_1 = [A_T^{(1)} \cos(k_{Tz1}(z + d/2)) + B_T^{(1)} \sin(k_{Tz1}(z + d/2))]e^{i(k_x x - wt)} \end{cases} \quad (5.1)$$

pour la couche d'aluminium (1),

$$\begin{cases} \varphi_2 = [A_L^{(2)} e^{ik_{Lz2}z} + B_L^{(2)} e^{-ik_{Lz2}z}]e^{i(k_x x - wt)} \\ \psi_2 = [A_T^{(2)} e^{ik_{Lz2}z} + B_T^{(2)} e^{-ik_{Lz2}z}]e^{i(k_x x - wt)} \end{cases} \quad (5.2)$$

pour la couche d'adhésif (2) et

$$\begin{cases} \varphi_3 = [A_L^{(3)} \cos(k_{Lz3}(z - d/2)) + B_L^{(3)} \sin(k_{Lz3}(z - d/2))]e^{i(k_x x - wt)} \\ \psi_3 = [A_T^{(3)} \cos(k_{Tz3}(z - d/2)) + B_T^{(3)} \sin(k_{Tz3}(z - d/2))]e^{i(k_x x - wt)} \end{cases} \quad (5.3)$$

pour la couche d'aluminium (3).

De même que dans le cas d'une structure bicouche, on a des conditions aux limites de types surfaces libres aux interfaces aluminium/air en $z = 2h_1 + d$ et $z = -2h_2 - d$, soit :

$$\begin{cases} \sigma_{zz}^{(3)}(z = 2h_1 + d/2) = 0 \\ \sigma_{xz}^{(3)}(z = 2h_1 + d/2) = 0 \\ \sigma_{xz}^{(1)}(z = -2h_2 - d/2) = 0 \\ \sigma_{zz}^{(1)}(z = -2h_2 - d/2) = 0 \end{cases} \quad (5.4)$$

et dans le cas d'une adhésion parfaite, des conditions de continuité des contraintes et des dé-

placements aux interfaces aluminium/époxy soit :

$$\begin{cases} u_x^{(1)}(z = \pm d/2) = u_x^{(2)}(z = \pm d/2) \\ u_z^{(1)}(z = \pm d/2) = u_z^{(2)}(z = \pm d/2) \\ \sigma_{xz}^{(1)}(z = \pm d/2) = \sigma_{xz}^{(2)}(z = \pm d/2) \\ \sigma_{zz}^{(1)}(z = \pm d/2) = \sigma_{zz}^{(2)}(z = \pm d/2) \end{cases} \quad (5.5)$$

L'ensemble des conditions limites donne un système (12 x 12) dont l'annulation du déterminant conduit à l'ensemble des courbes de dispersion de l'assemblage tricouche aluminium/époxy/aluminium.

5.3 Courbes de dispersion

Comme dans le cas de la structure bicouche, cette résolution peut également se faire à l'aide d'un modèle éléments finis (FEM) sous Comsol, par la méthode SAFE. C'est donc une résolution aux valeurs propres qui permet d'obtenir les courbes de dispersion sous forme de nuage de points pour un temps de calcul relativement court. Les caractéristiques des matériaux utilisés sont regroupées dans le tableau suivant :

Matériaux	$c_L(m/s)$	$c_T(m/s)$	$\rho(kg/m^3)$	épaisseur
Aluminium	6380	3100	2800	$2h_i = 5mm$
Époxy	2512	1121	1100	$d = 0.5mm$

TABLE 5.1 – Définition des paramètres élastiques des matériaux

Les courbes de dispersion obtenues sont données figure 5.2. Le couplage des structures apparaît comme un dédoublement des modes autour des modes de Lamb d'une plaque d'épaisseur $2h$, c'est à dire que dans un même intervalle de fréquence, le nombre de mode est doublé par rapport à une plaque.

Il existe toujours les modes sans fréquence de coupure que l'on nomme A_0 et S_0 mais on voit également apparaître deux modes verticaux, appelés ainsi à cause de la relative verticalité des courbes au voisinage de leur fréquences de coupure. On les notera V_L et V_T [82, 83]. Ces modes étant spécifiques au couplage des deux plaques d'aluminium par les ondes longitudinales et transversales dans l'adhésif, on se concentrera donc principalement sur eux pour la suite de l'étude. On s'intéressera à leur comportement énergétique dans la section de l'assemblage,

en particulier au niveau de l'interface substrat/adhésif. Les autres modes sont notés suivant le mode de la plaque d'aluminium qu'ils dédoublent ajustés d'un indice + ou -.

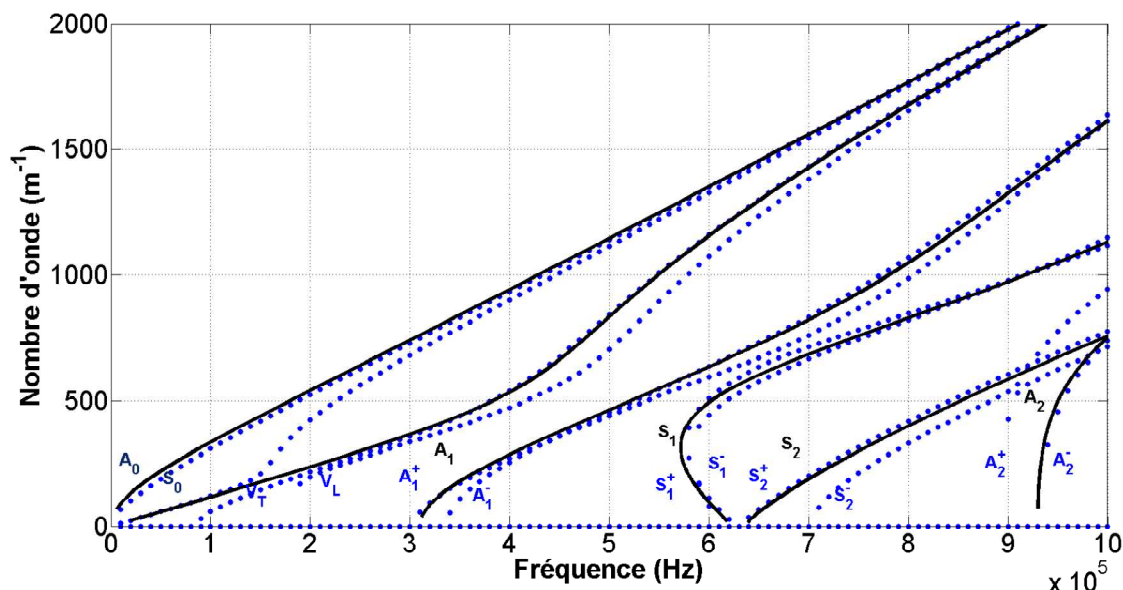


FIGURE 5.2 – Supersposition des courbes de dispersion d’une structure tricouche aluminium (5 mm)/ époxy (0.5 mm)/ aluminium (5 mm) (•) avec les courbes de dispersion d’une plaque d’aluminium d’épaisseur 5 mm (-)

5.4 Modèle de Jones

Tout comme le cas de la structure bicouche, on modélise les interfaces aluminium/époxy de l’assemblage avec le modèle de Jones adhésif (Fig. 5.3). Dans notre étude, nous nous concentre-

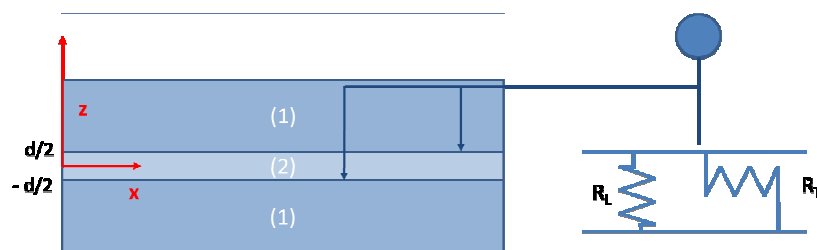


FIGURE 5.3 – Modélisation des interfaces d’un assemblage tricouche par le modèle de Jones

rons uniquement sur des assemblages à niveaux d’adhésion symétriques, c’est à dire que d’un point de vue de réalisation des échantillons, les mêmes traitements de surface sont appliqués aux deux interfaces et que d’un point de vue numérique, la même valeur de raideur est appliquée aux deux couples de ressorts. On a ainsi $R_L^{(1)} = R_T^{(1)} = R_L^{(2)} = R_T^{(2)} = R_{L,T}$. On peut ainsi ré-

écrire les conditions limites aux interfaces aluminium/époxy comme des sauts de déplacements dépendant de la valeur des raideurs des ressorts, soit :

$$\begin{aligned} \text{en } z = d/2, & \left\{ \begin{array}{l} \sigma_{xz1} = \sigma_{xz2} = R_T(u_x^{(1)} - u_x^{(2)}) \\ \sigma_{zz1} = \sigma_{zz2} = R_L(u_z^{(1)} - u_z^{(2)}) \end{array} \right. \\ \text{et en } z = -d/2, & \left\{ \begin{array}{l} \sigma_{xz2} = \sigma_{xz1} = R_T(u_x^{(2)} - u_x^{(1)}) \\ \sigma_{zz2} = \sigma_{zz1} = R_L(u_z^{(2)} - u_z^{(1)}) \end{array} \right. \end{aligned} \quad (5.6)$$

On peut ainsi effectuer une étude de sensibilité des fréquences de coupure et des ondes guidées aux paramètres de Jones, ce qui est l'objet des paragraphes suivants.

5.4.1 Étude de sensibilité des fréquences de coupure aux constantes de raideur

En appliquant les conditions limites données par (5.4) et (5.6) sur les solutions exprimées par (5.1), (5.2) et (5.3), on peut, dans le cas où $k_x=0$, déterminer les fréquences de coupure sous Matlab. Les solutions sont présentées figure 5.4. Tout comme la structure bicouche, l'évolution des fréquences de coupure se fait pour des valeurs de raideur des ressorts comprises entre 10^{16} , valeur pour laquelle on peut considérer l'adhésion comme parfaite [54] et 10^{11} N/m³, valeur pour laquelle le délaminage est total car on retrouve les fréquences de coupures d'une plaque d'aluminium. On retrouve le phénomène de dédoublement des modes liés au couplages des deux structures d'aluminium ainsi qu'une justification de la notation utilisée pour les modes. En effet, on peut noter que chaque fréquence de coupure de la plaque d'aluminium se trouve encadrée par deux fréquences de coupure de la structure tricouche. De plus, on peut remarquer que le mode V_T se décale vers A_0 et S_0 alors que le mode V_L tend vers le mode A_1 , et qu'à partir de 10^{13} N/m³, V_L et A_1^+ sont confondus.

Tout comme l'étude de sensibilité du bicouche aux paramètres de Jones, outre l'évolution des fréquences de coupure, on s'intéresse également à l'évolution des ondes guidées dans notre gamme de fréquence d'étude.

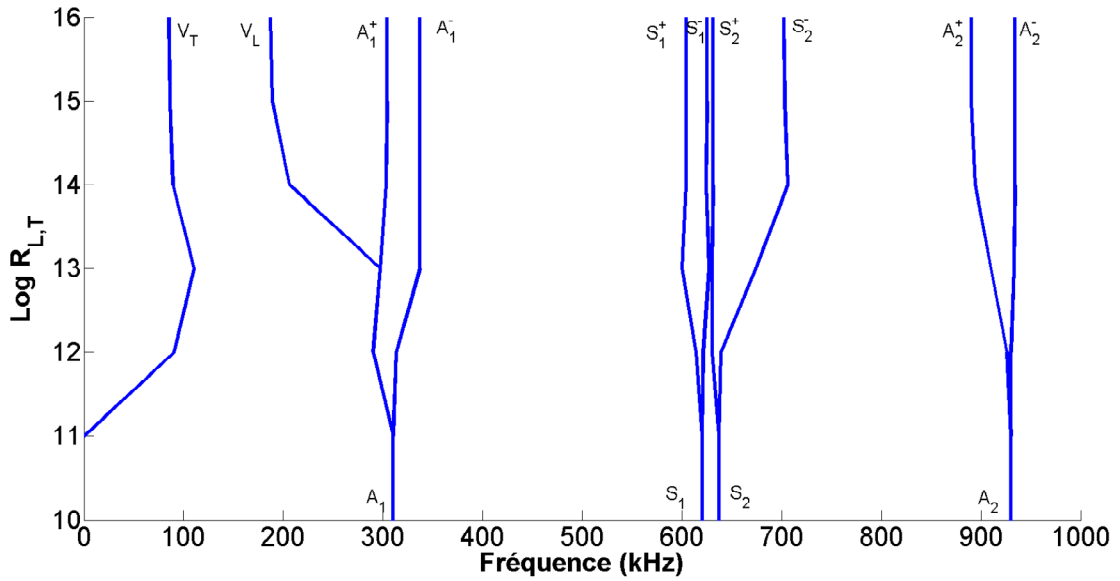


FIGURE 5.4 – Évolution des fréquences de coupure d’un assemblage tricouche en fonction des paramètres de Jones

5.4.2 Étude de sensibilité des modes aux constantes de raideur

Ce modèle est étudié par éléments finis sous Comsol, nous permettant d’obtenir les courbes de dispersion paramétrées par R_L et R_T . On peut ainsi réaliser une étude de sensibilité aux paramètres de Jones. La figure 5.5 montre les courbes de dispersion théoriques obtenues dans le cas où $pR_{L,T} = 16, 15, 14$ et 13 . Les courbes de référence sont celles obtenues pour $R_{L,T} = 10^{16} \text{ N/m}^3$ (courbes noires), c’est-à-dire dans le cas où on peut considérer une adhésion parfaite .

Pour $R_{L,T} = 10^{15} \text{ N/m}^3$ (●), un très léger décalage est observé pour l’ensemble des courbes de dispersion, notamment pour le mode S_0 , ainsi que pour V_L et de V_T au niveau de leur fréquence de coupure. Ce décalage est mieux mis en évidence sur la figure 5.6. Pour $R_{L,T} = 10^{14} \text{ N/m}^3$ (●), on observe également des décalages sur les mêmes modes mais cette fois beaucoup plus marqués (de l’ordre de 10%). Ces modes peuvent donc rendre compte de la baisse de qualité d’adhésion d’un assemblage tricouche si la fréquence est adéquatement choisie.

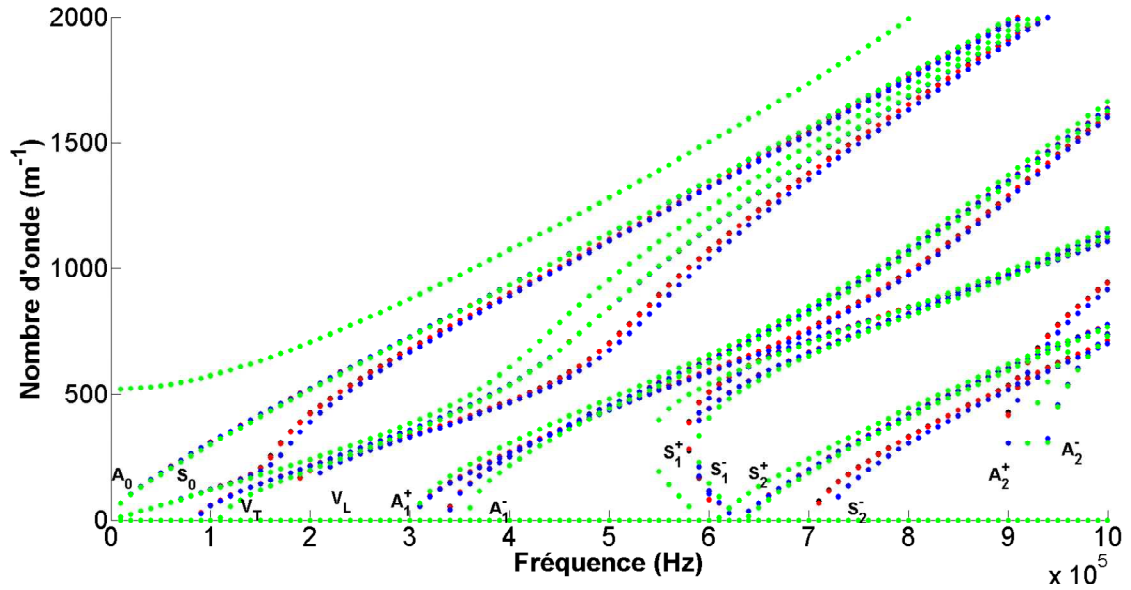


FIGURE 5.5 – Courbes de dispersion théoriques pour des valeurs de raideurs de ressort égales à 10^{16} N/m³ (●), 10^{15} N/m³ (●), 10^{14} N/m³ (●) et 10^{13} N/m³ (●)

A partir de $R_{L,T} = 10^{13}$ N/m³ (●), on voit apparaître un phénomène de découplage très prononcé, signe d'un début de délaminage. Le mode S_0 n'est plus celui de la tricouche mais celui d'une plaque simple d'aluminium. Le mode V_T est toujours présent bien que décalé et le mode V_L se confond avec A_1^+ (comme on avait pu le constater lors de l'étude des fréquences de coupure). Cependant, les modes A_1^+ et A_1^- , dédoublement du mode A_1 d'une plaque, sont toujours présents.

Ainsi, l'étude de sensibilité des ondes de Lamb en basses fréquences aux paramètres de Jones a permis de mettre en avant les modes qui étaient touchés par une baisse de la qualité de l'adhésion avant un découplage plus prononcé ($R_{L,T} = 10^{13}$ N/m³) mais qui n'est pas total, marquant ainsi le début du délaminage. Nous allons maintenant nous intéresser aux aspects énergétiques dans la plage de fréquence considérée, afin de mettre en avant les phénomènes physiques responsables de cette sensibilité.

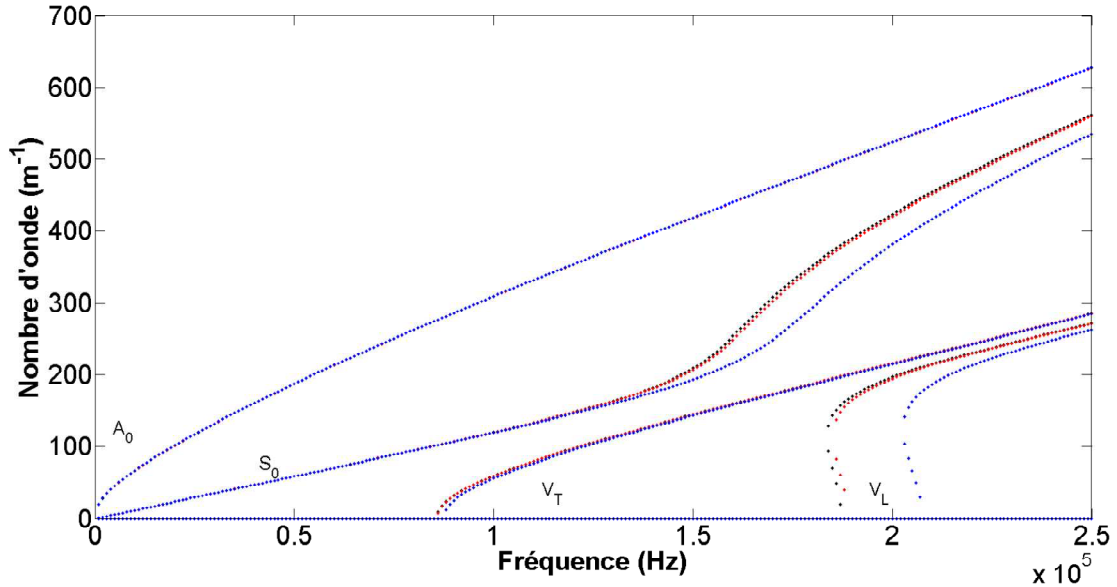


FIGURE 5.6 – Zoom en basses fréquences des courbes de dispersion d’un tricouche en fonction de R_{LT} égales à 10^{16} N/m³ (●), 10^{15} N/m³ (●) ou 10^{14} N/m³ (●)

5.5 Aspects énergétiques

L’étude de sensibilité des modes de Lamb aux paramètres de Jones a montré que les modes S_0 et V_L étaient de bons candidats à la qualification de niveaux d’adhésion, avant le début d’un délaminage dans la gamme de fréquence 0-300 kHz. Nous voulons voir si on retrouve ces résultats d’un point de vue énergétique et donc expliquer cette sensibilité. Ainsi, après avoir explicité la théorie, une étude sur les aspects énergétiques à l’aide de COMSOL est réalisée .

5.5.1 Théorie

L’énergie véhiculée par une onde de Lamb au cours de sa propagation est la somme des énergies dans chacune des couches constituant l’assemblage. Cette énergie est liée à la quantité Φ , définie comme le flux de la composante du vecteur de Poynting P_x dans la direction de propagation, ici l’axe (Ox), à travers la section du guide, et moyennée sur une période (figure 5.7) :

$$\Phi = \int \int P_x dz dy \quad (5.7)$$

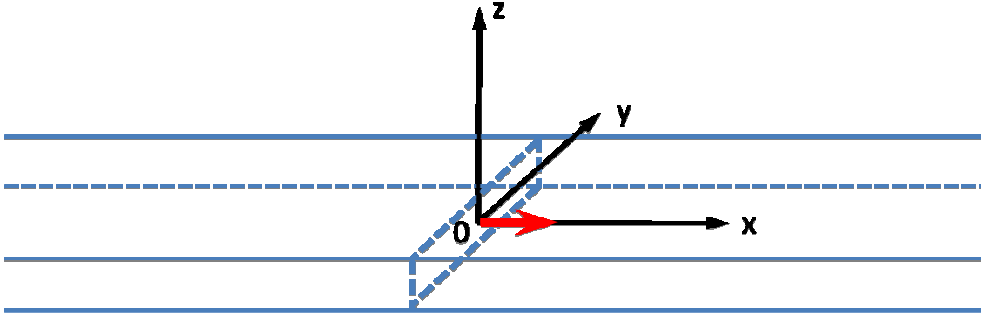


FIGURE 5.7 – Flux du vecteur de Poynting à travers une section droite d’une plaque

Dans la direction d’invariance (Oy), une longueur de 1 m est choisie arbitrairement. L’équation (5.7) devient donc :

$$\Phi = \int P_x dz \quad (5.8)$$

représentant la valeur moyenne de P_x dans la section avec :

$$P_x = -\frac{1}{2} \Re e(\sigma_{xx} \dot{u}_x^* + \sigma_{xz} \dot{u}_z^*) \quad (5.9)$$

où \dot{u}_x et \dot{u}_z sont les composantes de la vitesse des particules et l’opérateur $*$ désigne le complexe conjugué [84]. Les deux quantités Φ et P_x sont déterminées dans le post traitement de Comsol.

Notre objectif est de voir si on peut dégager la sollicitation de l’interface substrat/adhésif par les ondes guidées, notamment par les modes verticaux, par l’évaluation de ces grandeurs.

5.5.2 Composante P_x du vecteur de Poynting en tout point de la section

Le post traitement de Comsol nous permet donc d’obtenir la valeur de la composante P_x sur toute la section de l’assemblage. Des exemples sont donnés figure 5.8, figure 5.9 et figure 5.10. correspondant respectivement aux modes A_0 , S_0 et V_T à $f=150$ kHz (en bleu pour l’aluminium et en rouge pour l’époxy). L’ordre des déplacements modales fournis par Comsol sont implicitement de l’ordre du mètre, loin de la réalité physique. Par conséquent, les vitesses sont de l’ordre du m/s et les flux des modes de 10^{14} W/m², mais ces valeurs sont utilisées dans ce manuscrit seulement pour comparer des valeurs relatives.

À la fréquence de 150kHz, la valeur de P_x oscille entre 2.5×10^{13} et 12×10^{13} W/m² pour le mode A_0 . On peut ainsi observer que le maximum de P_x de l’assemblage se trouve à la surface

de l'aluminium, même si sa valeur augmente légèrement au niveau de l'interface avec l'adhésif. Ceci peut expliquer sa non sensibilité à la qualité de l'adhésion constatée précédemment (Fig. 5.6).

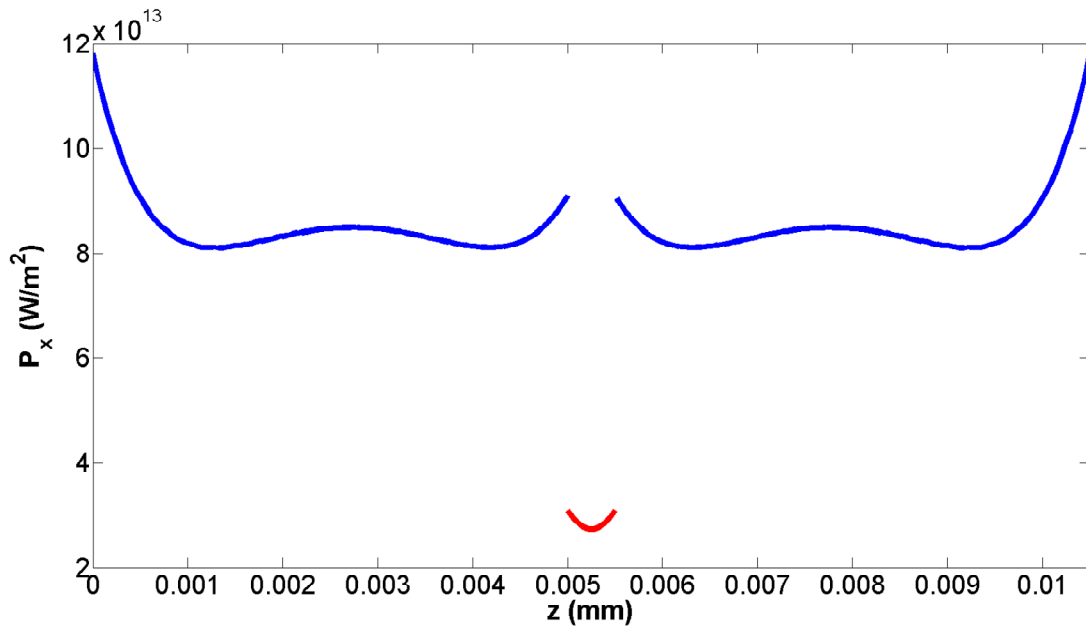


FIGURE 5.8 – Valeur de P_x pour le mode A_0 à 150 kHz dans l'aluminium (—) et dans l'époxy (—) en tout point de la section

Dans le cas du mode S_0 , la valeur de la composante P_x est comprise entre 0.3×10^{14} et 5×10^{14} W/m^2 . Mais pour ce mode à cette fréquence, le maximum de l'énergie est concentré à l'interface métal/adhésif côté aluminium. Celle-ci est donc fortement sollicitée ce qui explique la sensibilité du mode S_0 à la qualité de l'interface (comme constatée Fig. 5.6).

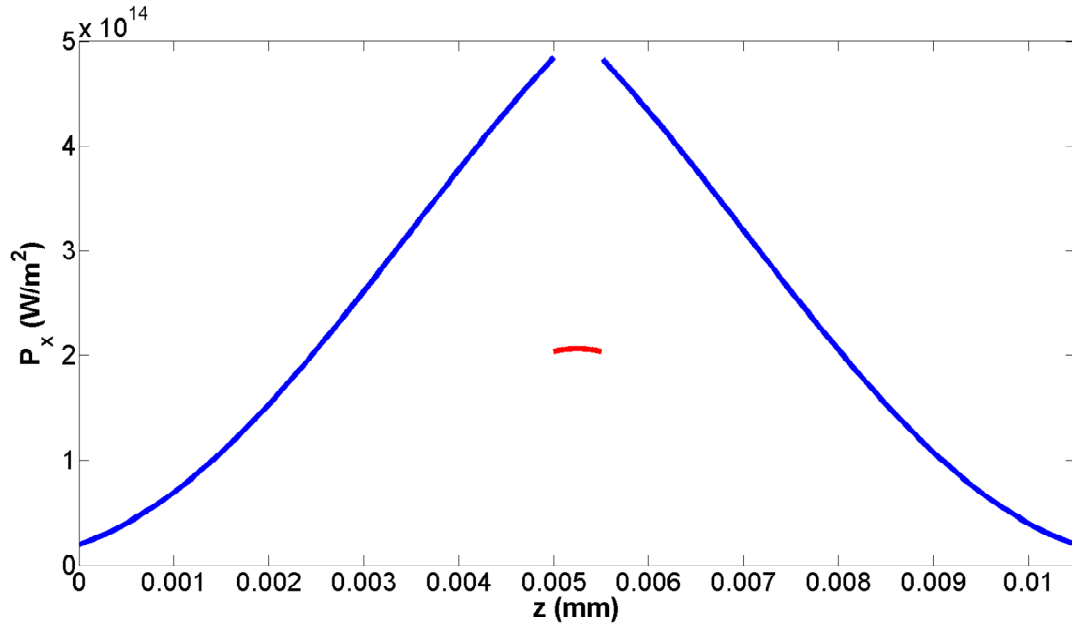


FIGURE 5.9 – Valeur de P_x du mode S_0 à 150 kHz dans l'aluminium (—) et dans l'époxy (—) en tout point de la section

Enfin, dans le cas du mode vertical transversal V_T , la valeur de P_x se situe entre 0.5×10^{14} et 15×10^{14} W/m². Cependant, on peut remarquer qu'au niveau de l'interface, sa valeur côté aluminium ou bien époxy est minimale. Tout comme le mode A_0 , le mode V_T n'est pas sensible à l'interface à cette fréquence.

Ainsi, après avoir tracé la composante P_x à une fréquence donnée en tout point de la section de l'assemblage pour observer sa répartition, nous allons maintenant nous intéresser à sa valeur au niveau de l'interface (coté aluminium et époxy) pour les différents modes se trouvant dans la plage de fréquence 0-300 kHz et pour différentes valeurs des paramètres de Jones l'objectif étant de déterminer l'évolution de P_x à l'interface.

5.5.3 Composante P_x du vecteur de Poynting à l'interface

L'étude des courbes de dispersion en fonction des paramètres de Jones dans le cas de l'assemblage a permis de mettre en évidence la sensibilité du mode vertical longitudinal V_L et du mode S_0 à la diminution de la qualité d'adhésion. Afin de comprendre ce phénomène, on s'intéresse à la répartition du flux d'énergie des ondes guidées étudiées. Notre plage de fréquence d'étude est donc de 0-300 kHz et les valeurs de constantes de Jones sont $pR_{L,T}=16, 15$ et 14 .

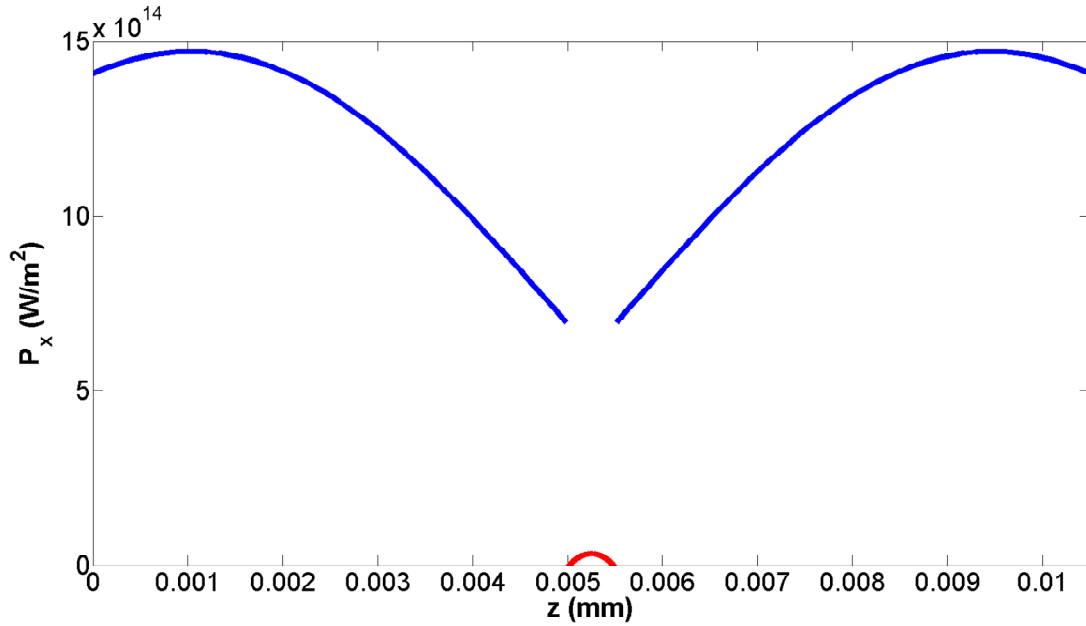


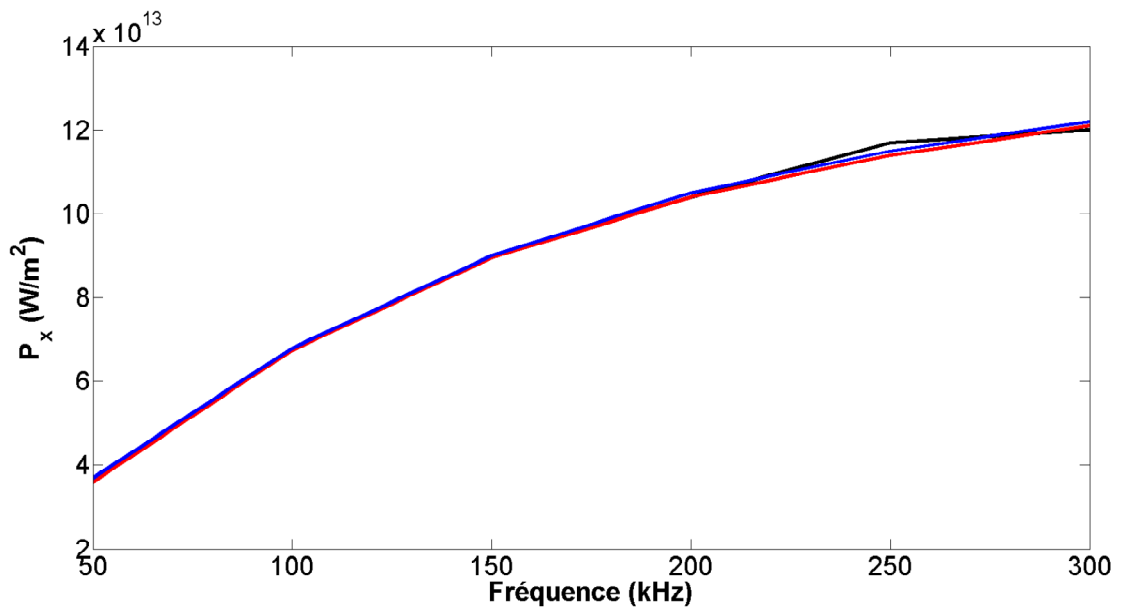
FIGURE 5.10 – Valeur de P_x du mode V_T à 150 kHz dans l'aluminium (—) et dans l'époxy (—) en tout point de la section

La figure 5.11 représente la composante P_x du vecteur de Poynting du mode A_0 à l'interface coté aluminium (5.11a) et coté époxy (5.11b) en fonction de la fréquence pour les trois valeurs de raideur des ressorts. Du coté aluminium, on a P_x qui varie entre 4 et $12 \times 10^{13} \text{ W.m}^{-2}$ et du coté époxy entre 2.5 et $3.2 \times 10^{13} \text{ W.m}^{-2}$, quelle que soit $pR_{L,T}$.

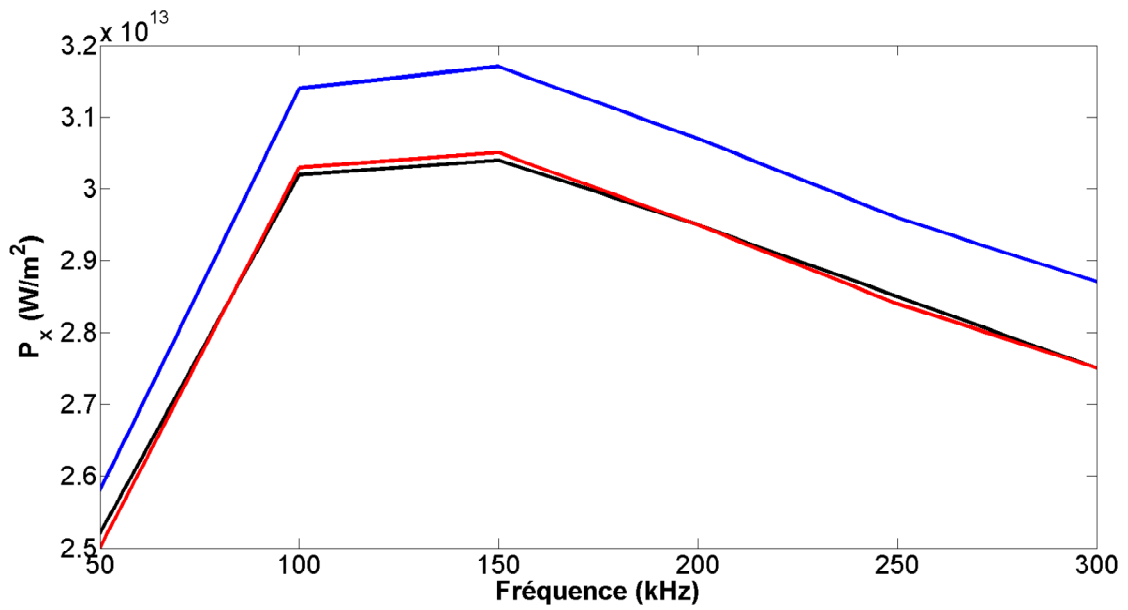
Pour le mode S_0 (figure 5.12), la valeur de P_x côté aluminium de l'interface ne fait que décroître en partant de $8.7 \times 10^{14} \text{ W.m}^{-2}$ pour atteindre 2×10^{14} , avec un décalage observé pour $pR_{L,T}=14$, dû au shift des courbes de dispersion. Cependant, à l'interface coté époxy, la valeur de P_x croît, atteint un pic à la fréquence $f=150 \text{ kHz}$ (ou $f=170 \text{ kHz}$ dans le cas où $pR_{L,T}=14$), puis décroît. En regardant la courbe de dispersion du mode S_0 (Fig. 5.6), on constate que la fréquence pour laquelle on obtient la valeur maximale coté époxy est la fréquence pour laquelle on observe l'inflexion du mode S_0 .

Dans le cas du mode V_T (Fig. 5.13), le maximum de P_x coté aluminium et/ou époxy se trouve au niveau de la fréquence de coupure. Dans le cas de l'aluminium, sa valeur est de $8 \times 10^{15} \text{ W/m}^2$ au niveau de la fréquence de coupure et décroît pour atteindre $3 \times 10^{14} \text{ W.m}^{-2}$ à la limite de notre intervalle d'étude. En ce qui concerne l'époxy, à la fréquence de coupure, P_x est égal à $12 \times 10^{14} \text{ W.m}^{-2}$ avant de diminuer et de tendre vers $4 \times 10^{13} \text{ W.m}^{-2}$. Tout comme le mode A_0 , les paramètres de Jones n'ont pas de conséquence sur le flux énergétique.

Pour le mode V_L , (Fig. 5.14), la composante P_x coté aluminium et époxy présente la même allure. De même que le mode S_0 , les décalages des courbes sont expliqués par les shifts des courbes de dispersion. L'énergie est d'environ 2×10^{14} W.m⁻² au niveau de la fréquence de coupure pour l'interface coté aluminium et époxy. Puis, celles-ci diminuent brusquement en basses fréquences avant de remonter aux alentours de 4×10^{14} pour l'interface coté aluminium, et 2×10^{14} coté époxy. Si on s'intéresse à la pente négative du mode V_L , on remarque que cette partie du mode (Fig. 5.15) possède la plus grande valeur de l'ordre de 10^{15} et ne fait que croître. La décroissance des courbes du mode V_L (pente positive) peut donc être expliquée par l'absorption de l'énergie par la partie du mode en pente négative.

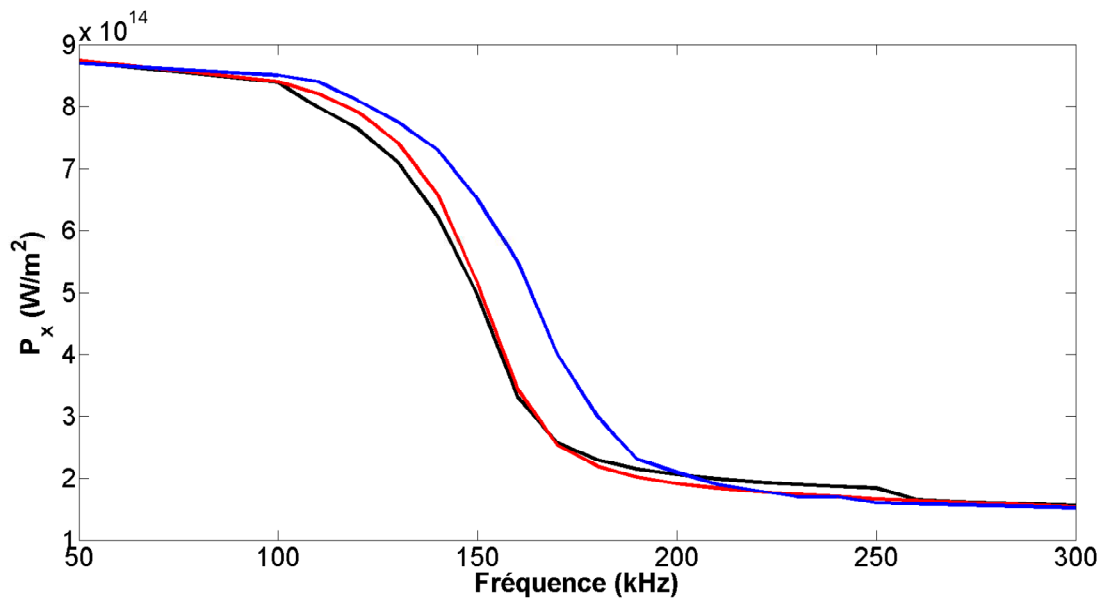


(a) A_0 , aluminium

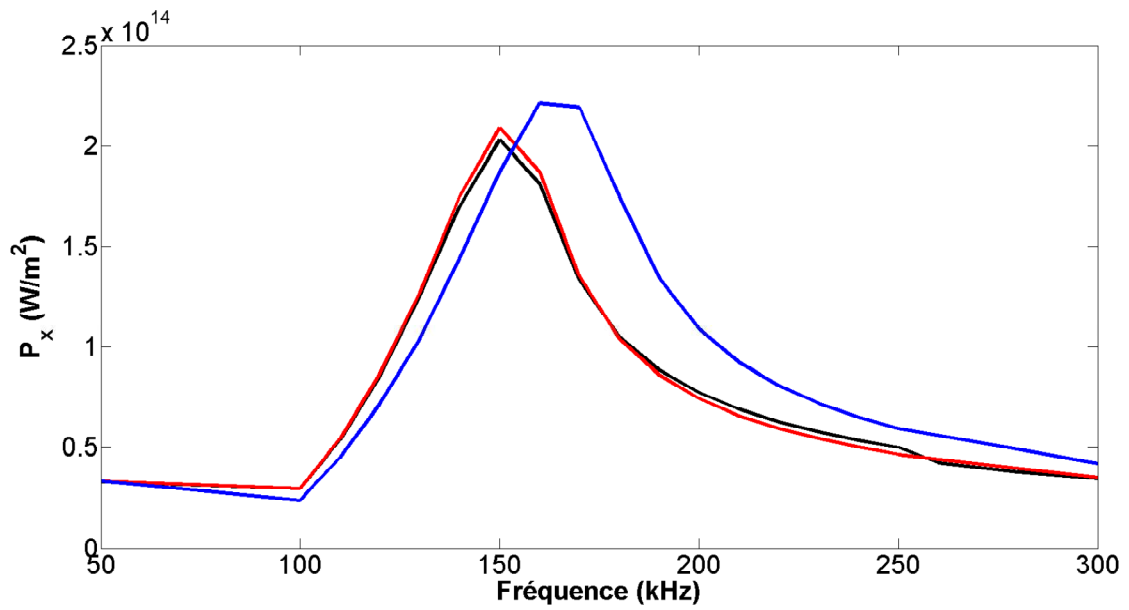


(b) A_0 , époxy

FIGURE 5.11 – P_x en fonction de la fréquence du mode A_0 au niveau de l'interface ($z = 5\text{mm}$) pour des valeurs de raideur des ressorts de Jones égale à 10^{16} N/m 3 (–), 10^{15} N/m 3 (–) et 10^{14} N/m 3 (–)

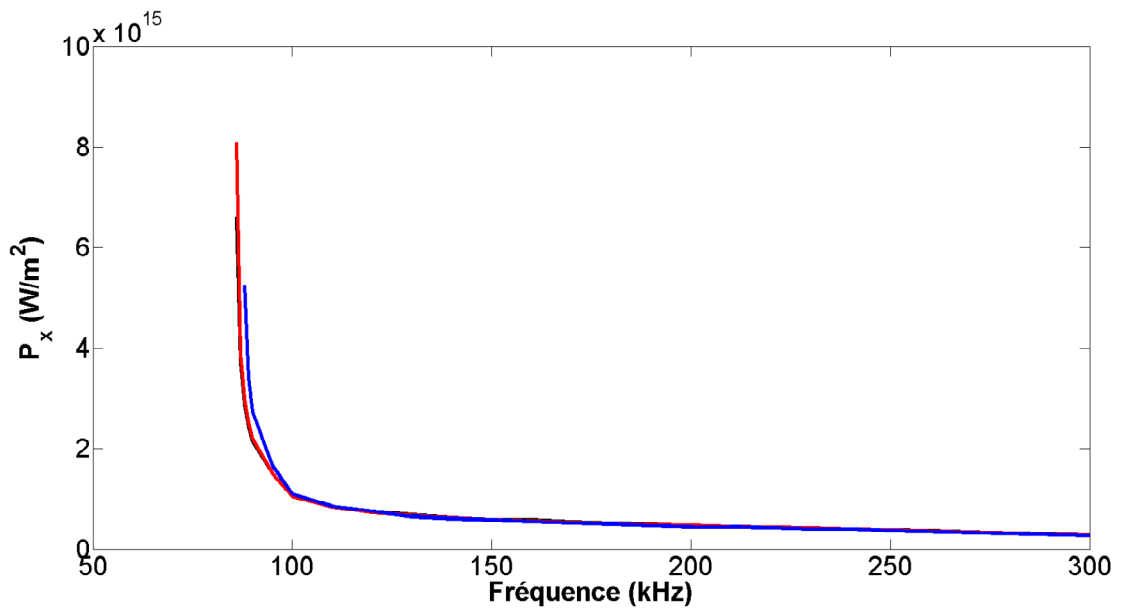


(a) S_0 , aluminium

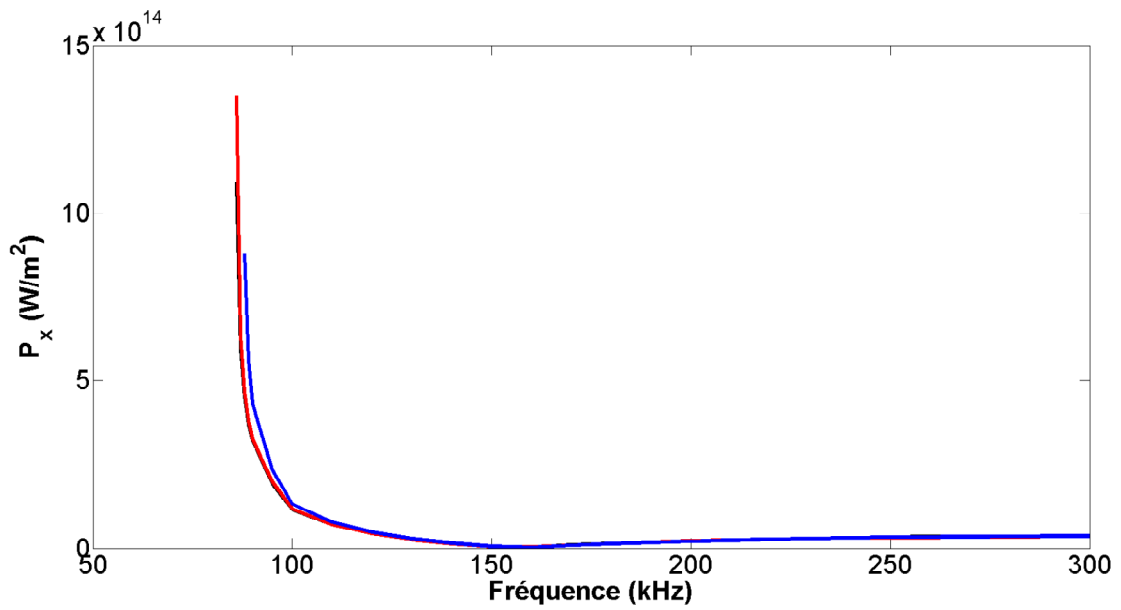


(b) S_0 , époxy

FIGURE 5.12 – P_x en fonction de la fréquence du mode S_0 au niveau de l'interface ($z = 5\text{mm}$) pour des valeurs de raideur des ressorts de Jones égale à 10^{16} N/m^3 (—), 10^{15} N/m^3 (—) et 10^{14} N/m^3 (—)

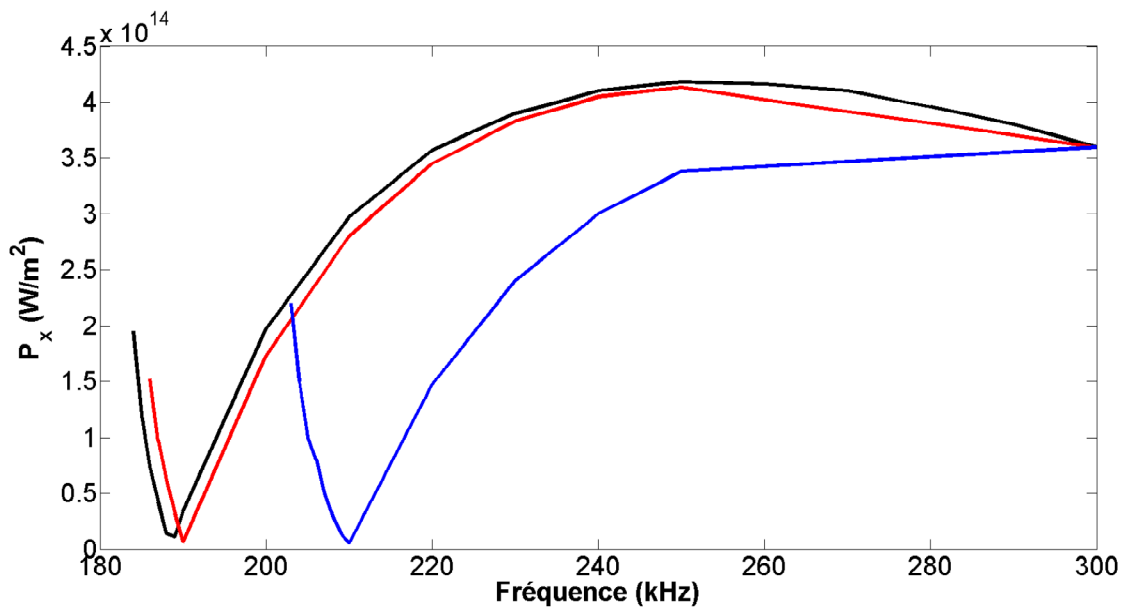


(a) V_T , aluminium

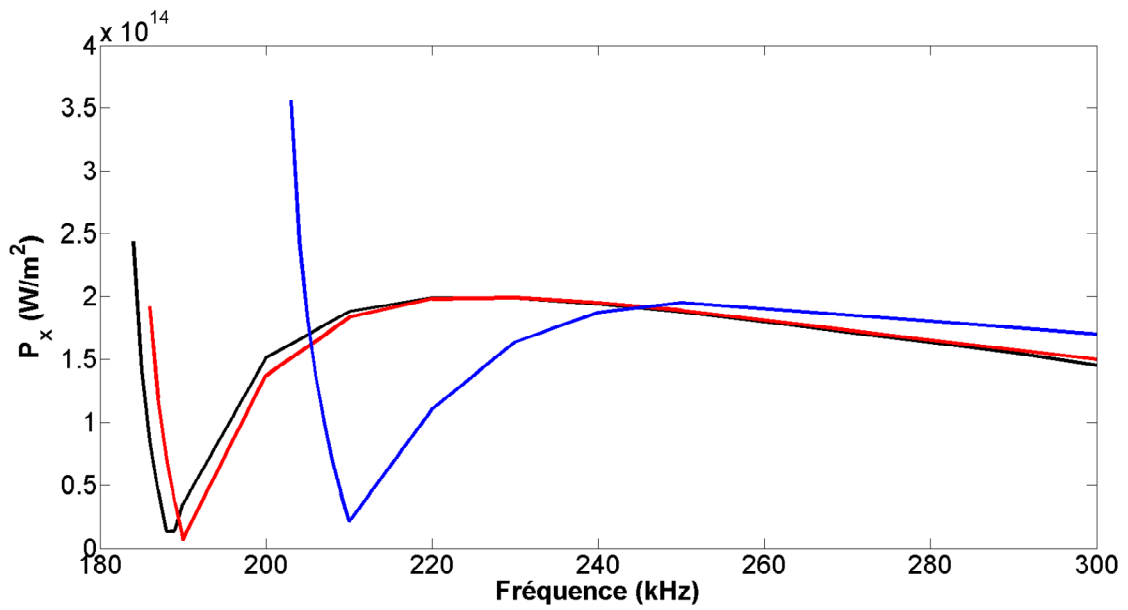


(b) V_T , époxy

FIGURE 5.13 – P_x en fonction de la fréquence du mode V_T au niveau de l'interface ($z = 5\text{mm}$) pour des valeurs de raideur des ressorts de Jones égale à 10^{16} N/m^3 (—), 10^{15} N/m^3 (—) et 10^{14} N/m^3 (—)

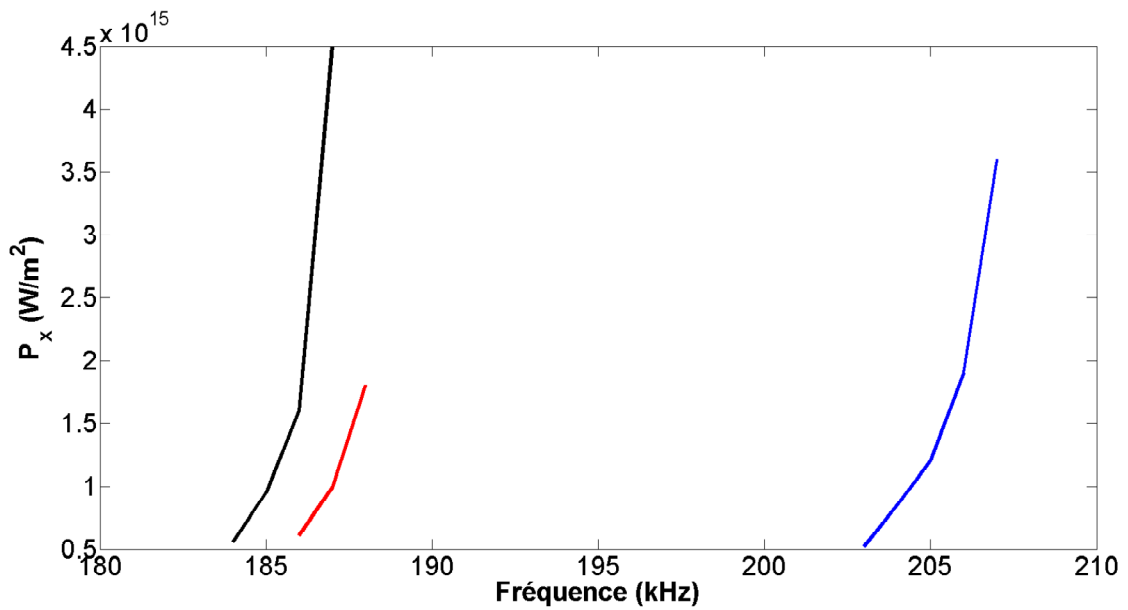


(a) V_L , aluminium

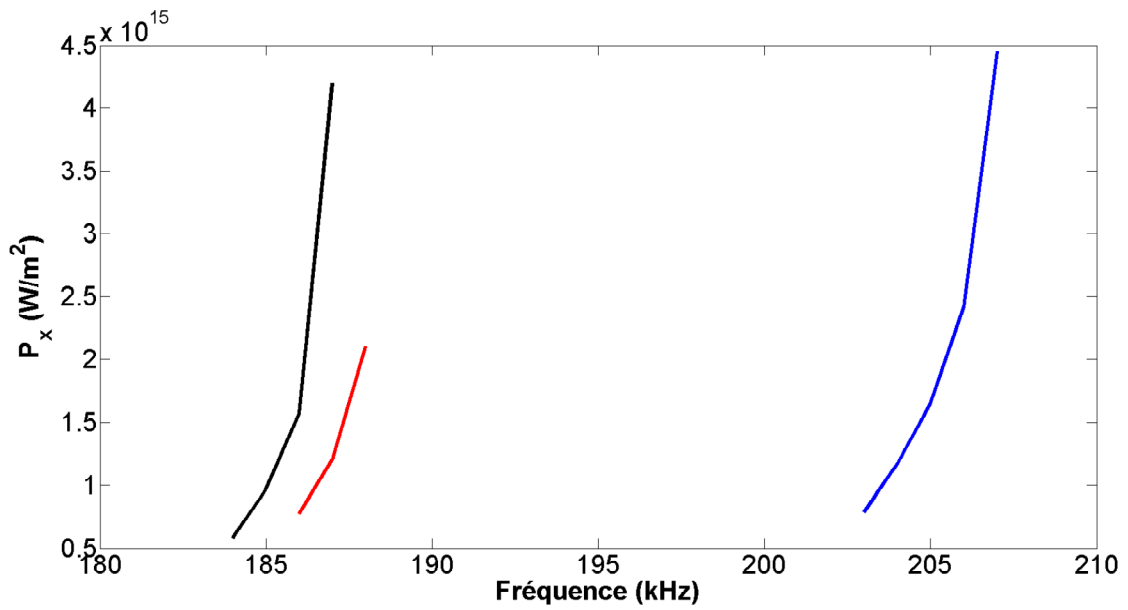


(b) V_L , époxy

FIGURE 5.14 – P_x en fonction de la fréquence du mode V_L au niveau de l'interface ($z = 5\text{mm}$) pour des valeurs de raideur des ressorts de Jones égale à 10^{16} N/m^3 (—), 10^{15} N/m^3 (—) et 10^{14} N/m^3 (—)



(a) V_{Lneg} , aluminium



(b) V_{Lneg} , époxy

FIGURE 5.15 – P_x en fonction de la fréquence de la pente négative du mode V_L au niveau de l'interface ($z = 5\text{mm}$) pour des valeurs de raideur des ressorts de Jones égale à 10^{16} N/m^3 (—), 10^{15} N/m^3 (—) et 10^{14} N/m^3 (—)

Ainsi, la composante P_x du vecteur de Poynting au niveau des interfaces de chaque mode dans la gamme de fréquence 0-300 kHz a été tracé pour les différentes valeurs de R_L et de R_T . Ces courbes ont permis de mettre en avant que, mis à part les décalages qui sont la conséquence des shifts des courbes de dispersion, les paramètres de Jones n'influaient pas P_x . Dans le but de comparer les modes entre eux, on trace figure 5.16 les valeurs de la composante P_x du vecteur de Poynting à l'interface coté époxy en fonction de la fréquence dans le cas où $pR_{L,T}=16$.

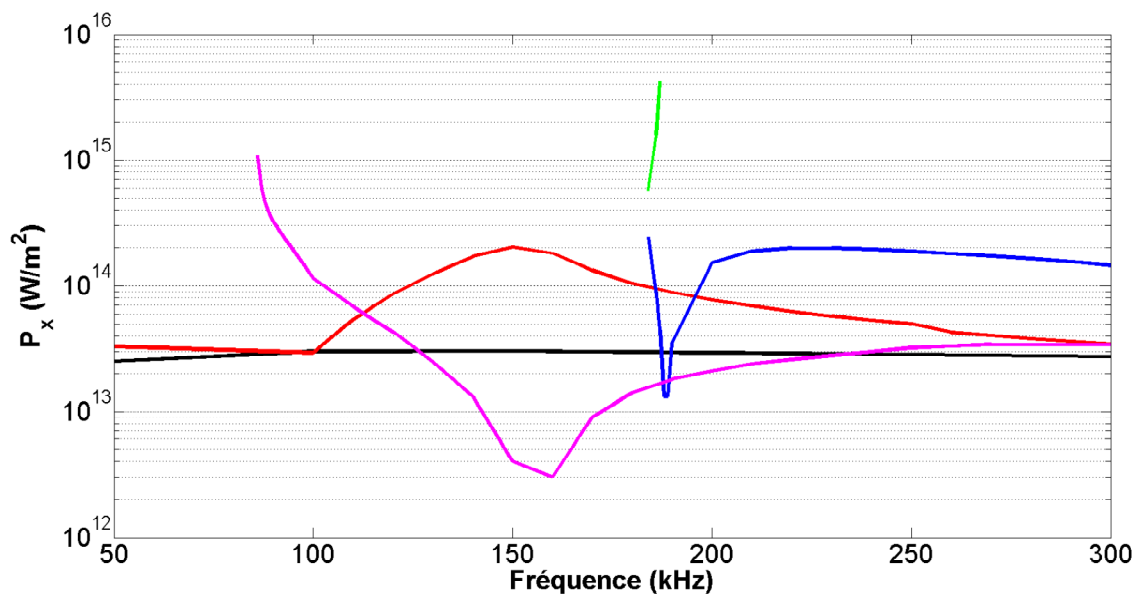


FIGURE 5.16 – P_x de l'époxy en fonction de la fréquence au niveau de l'interface dans le cas d'une adhésion parfaite du mode A_0 (—), du mode S_0 (—), du mode V_T (—) et du mode V_L (— et (—) pour la pente négative)

La comparaison des valeurs de P_x de chaque mode au niveau de l'interface du coté époxy permet d'observer une corrélation entre la valeur de P_x et la capacité d'un mode à "voir" la couche d'adhésif. En effet, on peut observer qu'au niveau des fréquences de coupure, le vecteur de Poynting des modes verticaux atteint les plus grandes valeurs, ainsi que le mode S_0 qui atteint un pic pour une fréquence de 150 kHz. Ces modes semblent donc les plus indiqués pour qualifier un niveau d'adhésion dans le cas d'une structure tricouche.

Finalement, une étude des valeurs de la composante P_x du vecteur de Poynting permet de mettre en avant les modes les plus adéquats pour qualifier un niveau d'adhésion. Cependant, dans le cas de l'étude de sensibilité des ondes guidées aux paramètres de Jones, nous avons pu voir que, malgré sa capacité énergétique à qualifier le niveau d'adhésion, le mode V_T ne

montrait aucune sensibilité aux valeurs de raideur des ressorts de Jones. Nous allons donc chercher à expliquer ce phénomène dans le paragraphe suivant en étudiant la moyenne de la composante P_x du vecteur de Poynting le long de la section de chaque couche, soit Φ .

5.5.4 Moyenne de la composante P_x du vecteur de Poynting à l'interface

À l'aide de Comsol, on peut calculer le flux de la composante du vecteur de Poynting dans chaque couche en appliquant la relation suivante :

$$\Phi = \frac{1}{ep} \int_{-ep/2}^{ep/2} P_x dz \quad (5.10)$$

Afin d'effectuer une comparaison entre les valeurs de flux de chaque couche de l'assemblage, on ajoute le facteur $1/epaisseur$ qui permet de combler ainsi les effets de l'épaisseur sur l'intégrale. Dans le cas d'une étude sur le niveau d'adhésion d'un assemblage, l'énergie véhiculée d'un mode sensible au niveau d'adhésion doit être importante dans l'aluminium mais surtout dans la couche d'époxy. On peut donc supposer que le rapport des flux dans l'époxy et dans l'aluminium, que l'on notera $R_\Phi = \Phi_{epoxy} / \Phi_{alu}$, permet de mettre en avant les modes sensibles à la qualité de l'adhésion.

Ce quotient est ainsi représenté figure 5.17. Le rapport R_Φ pour le mode A_0 est compris entre 0 et 1, tout comme le mode V_T , A_1^+ et A_1^- . Le flux moyen dans l'époxy étant toujours faible par rapport à celui de l'aluminium, ces modes ne sont pas sensibles à la qualité de l'adhésion. Cependant, dans le cas de S_0 , on obtient un rapport supérieur à 1 (en valeur absolue) pour une fréquence autour de 150 kHz. De même, pour le mode V_L , on obtient un rapport supérieur à 1 au niveau de sa fréquence de coupure. Le flux moyen dans l'époxy étant supérieur à celui dans l'aluminium, ceci explique la sensibilité de ces modes à l'adhésion. On retrouve ainsi les résultats obtenus lors de l'étude de sensibilité des modes aux paramètres de Jones (Fig. 5.6), à savoir que les modes S_0 et V_L sont les plus aptes à qualifier un niveau d'adhésion.

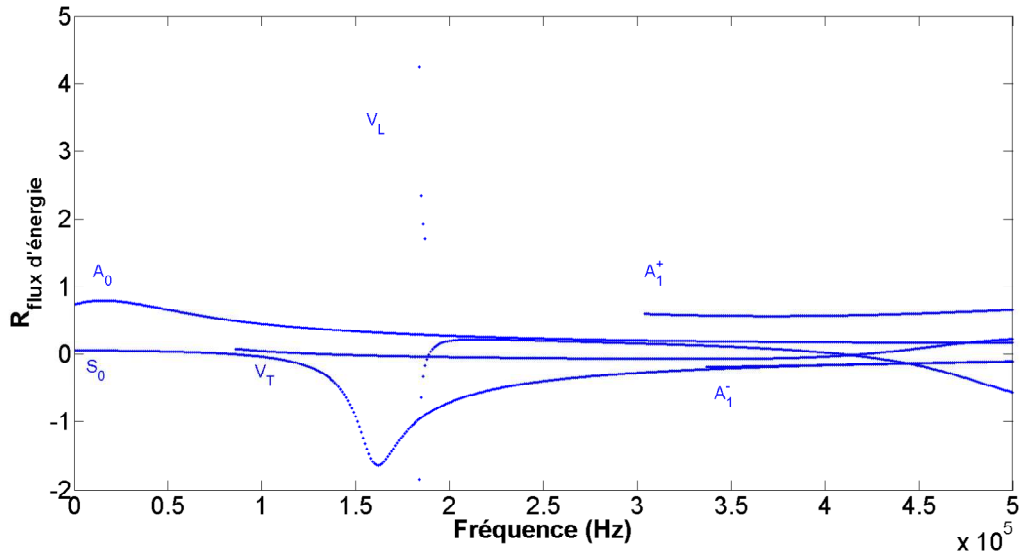


FIGURE 5.17 – Rapport des moyennes du vecteur de Poynting de la couche d'époxy et des couches d'aluminium en fonction de la fréquence

5.6 Synthèse

Ce chapitre était une étude théorique d'un assemblage tricouche. Après avoir défini les conditions limites de la structure, les équations caractéristiques ont été écrites. Celles ci ont permis d'obtenir les courbes de dispersion d'un assemblage tricouche composé de deux plaques d'aluminium et d'une couche d'époxy. Un dédoublement des modes par rapport à ceux présents dans le cas d'une simple plaque d'aluminium a été observé ainsi que l'apparition de deux modes dits verticaux propres au couplage des deux plaques d'aluminium. Le modèle de Jones a été appliqué sur l'assemblage et une étude de sensibilité aux paramètres de Jones a été réalisée. Celle ci a permis de mettre en avant la sensibilité du mode vertical longitudinal V_L au niveau de sa fréquence de coupure, ainsi que du mode S_0 dans la plage de fréquence d'étude. Afin de faire une corrélation entre sensibilité et énergie, une étude sur l'énergie véhiculée par les ondes guidées a été faite à l'aide du logiciel Comsol. Nous avons pu ainsi observer la distribution de l'énergie sur la section, calculer la valeur du vecteur de Poynting pour chacun des modes et comparer les valeurs de la moyenne du flux de P_x dans le substrat et l'adhésif pour chaque mode. Nous avons ainsi pu retrouver les modes les plus adaptés à qualifier un niveau d'adhésion à savoir S_0 et V_L dans la gamme de fréquence 0-500 kHz.

Le dernier chapitre de ce manuscrit sera donc consacré à la caractérisation expérimentale d'un assemblage tricouche à différents niveaux d'adhésion.

Chapitre 6

Caractérisation expérimentale d'un assemblage

Ce chapitre portera sur la caractérisation expérimentale de l'assemblage tricouche. Les caractérisations physico-chimiques ayant été explicitées dans les parties précédentes ne seront donc pas traitées ici. Seule la réalisation des échantillons sera développée.

6.1 Réalisation des échantillons

Les échantillons réalisés sont des assemblages aluminium/époxy/aluminium avec des niveaux d'adhésion symétriques c'est à dire que les traitements de surface des substrats sont identiques pour un assemblage donné. La réalisation de chaque tricouche est faite par infusion de l'adhésif avec assistance du vide et réticulation sous presse. La préparation des assemblages suit le protocole suivant :

On perce des trous sur l'un des substrats qui seront utilisés pour la l'infusion de l'adhésif. Puis les deux substrats sont traités par le(s) traitement(s) de surface désiré(s). Afin d'assurer l'épaisseur de la couche d'adhésif, on réalise une empreinte silicone de $500\mu\text{m}$ d'épaisseur. Celui-ci est déposé sur une des faces traitées d'un des deux substrats. L'étanchéité de l'assemblage lors du processus d'infusion est réalisée à l'aide d'un joint de mastic souple en silicone déposé sur l'un des deux substrats (Fig. 6.1). Enfin, l'assemblage est réalisé et est mis sous presse pendant quelque heures afin que le mastic soit complètement réticulé et l'étanchéité assurée.

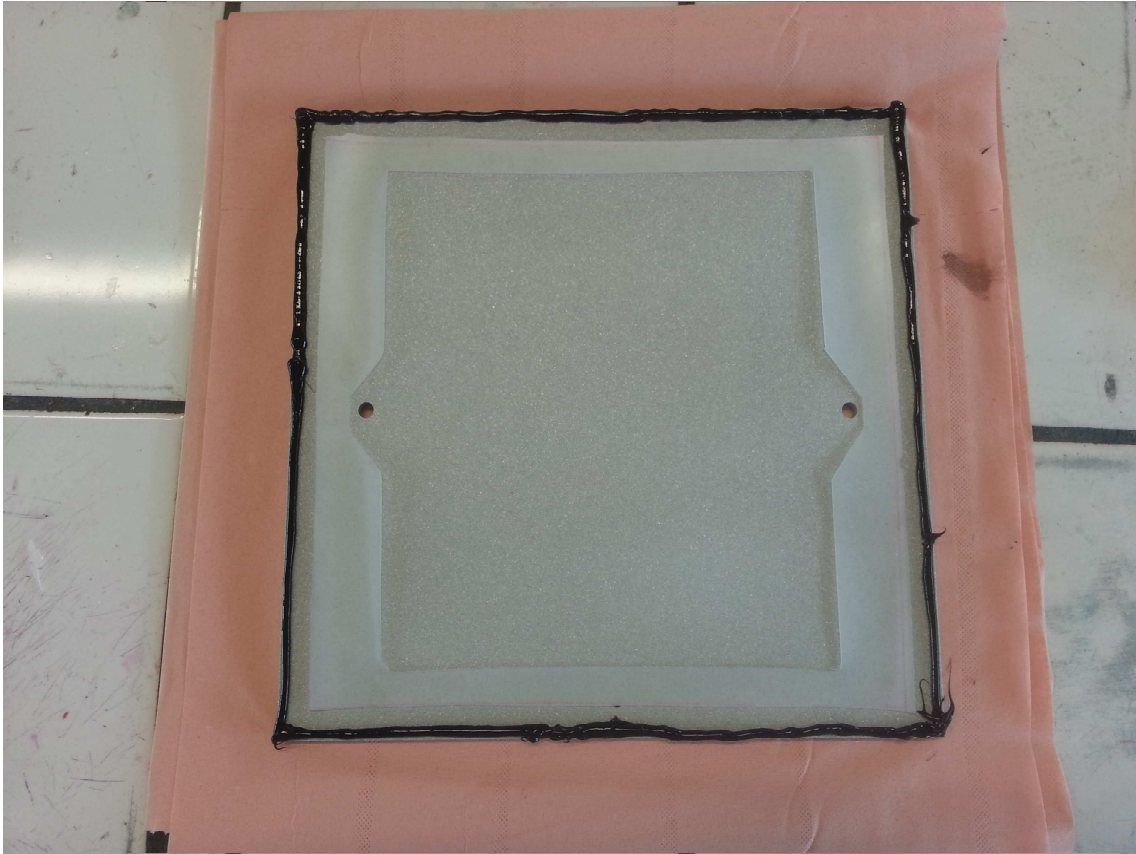


FIGURE 6.1 – Réalisation des échantillons

Puis on procède à l'infusion de l'adhésif. La préparation du mélange se fera toujours en proportion stœchiométrique, en mélangeant dans un réacteur. Après 2h de mélange, la résine est dégazée grâce au bain à ultrasons afin de la dégazer. Tout comme la préparation des réseaux massifs d'époxy, la viscosité de la préparation doit être faible. La procédure d'infusion se fait donc immédiatement après mélange et dégazage. On place deux tubes au dessus des trous préalablement percés (Fig. 6.2), on verse la résine dans l'un des deux tubes, et on laisse jouer la gravité. Afin d'accélérer le processus, on peut également s'assister du vide.

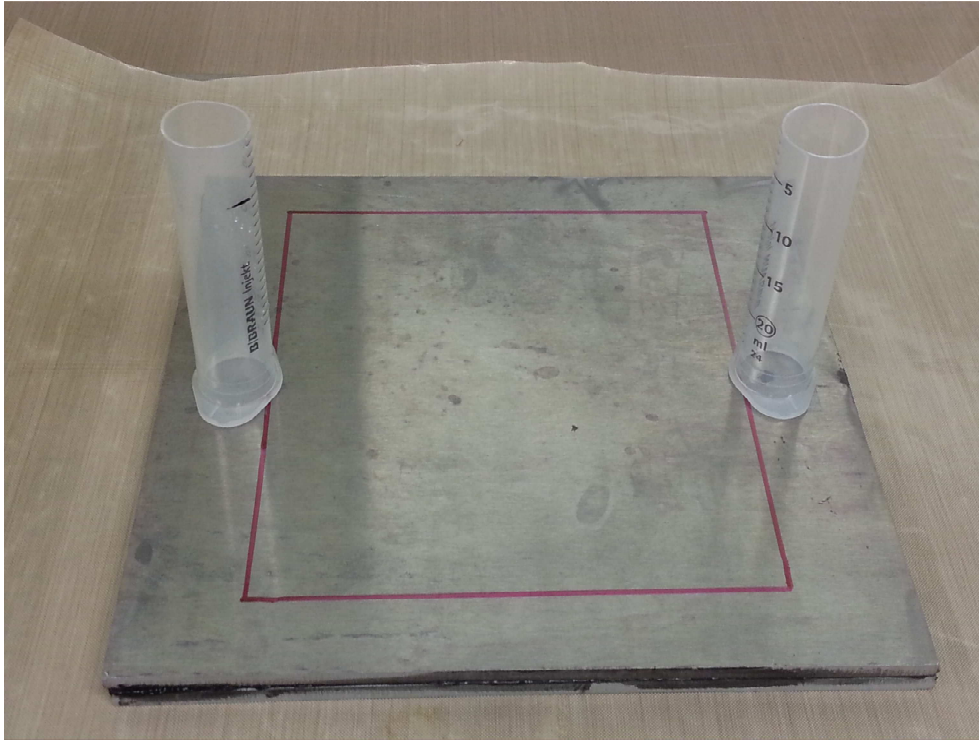


FIGURE 6.2 – Procédé d’infusion de la colle dans l’assemblage

Après infusion de la résine, on met l’assemblage sous presse pendant au moins 48h avec une pression de 1,5 bar à température ambiante afin de passer le point de gel. Dans le cas d’une conversion totale, on applique une post cuisson pendant 1h à 80°C suivi de 3h à 160°C à l’aide de la presse chauffante.

Finalement, quatre échantillons sont réalisés et sont résumés dans le tableau 6.1. L’idée est de confirmer les résultats obtenus pour la bicouche en étudiant des échantillons à haut niveau d’adhésion (T-DSi-80 et T-DSSi-100), à faible niveau d’adhésion (T-D-100). Cependant, ce dernier a été réalisé avec une épaisseur d’adhésif de 1 mm.

Lors de l’étude de la structure bicouche, nous avons pu constater que les valeurs de $pR_{L,T}$ correspondant à ces échantillons variaient de 14.5 à 16, avec un décalage des courbes de dispersion relativement faible même si mesurable. Or, l’étude de sensibilité des courbes de dispersion de la structure tricouche a montré un début de délaminage pour $pR_{L,T} = 13$. Ainsi, afin d’obtenir un assemblage tricouche qui se rapprocherait le plus de ces valeurs, un échantillon à très faible adhésion, voire nulle, a été réalisé (T-DSiO-100) en déposant une couche de démoulant sur chacune des interfaces d’aluminium avant la réalisation de l’assemblage et l’infusion de l’adhésif.

Échantillons	Traitements de surface	Conversion (%)
T-D-100	Dégraissage	100
T-DSi-80	Dégraissage et traitement chimique	80
T-DSSi-100	Dégraissage, sablage et traitement chimique	100
T-DSiO-100	Dégraissage et couche de démoulant	100

TABLE 6.1 – Échantillons tricouches réalisés

6.2 Caractérisation par ondes de Lamb

La caractérisation par ondes de Lamb portera sur deux aspects. Le premier est la validation du modèle de Jones adhésif sur un assemblage tricouche. Le but est de superposer les courbes de dispersion expérimentales et théoriques obtenues dans le cas du modèle de Jones en trouvant la meilleure valeur de $R_{L,T}$ qui qualifiera le niveau d'adhésion de chaque assemblage. Ces courbes ont été tracées en prenant bien en compte l'épaisseur de l'adhésif dans chaque échantillon (1 mm pour T-D100 et 0.5 mm pour tous les autres). Le deuxième aspect est la caractérisation à l'aide des fréquences de coupure. Comme on a pu le voir lors de l'étude théorique, le mode vertical longitudinal V_L est très sensible à la qualité de l'adhésion au niveau de sa fréquence de coupure. On cherche donc à obtenir le spectre des fréquences de coupure en se focalisant sur une bande de fréquence bien particulière.

6.2.1 Validation du modèle

Le protocole expérimental pour la génération des ondes de Lamb est le même que lors des précédentes parties. On utilise ici un transducteur de fréquence centrale 1 MHz placé sur un sabot de 30°. Plusieurs échantillons à adhésion « forte » ont été réalisés, avec l'application du traitement mécanique et/ou du γ -GPS, mais avec une conversion totale ou partielle de l'adhésif. La superposition des courbes de dispersion théoriques aux courbes expérimentales valide ce niveau d'adhésion pour les échantillons T-DSi-80 et T-DSSi-100. En effet, comme le montre la figure 6.3, les courbes de dispersion expérimentales de l'échantillon T-DSi-80 (et T-DSSi-100) sont superposées aux courbes de dispersion théoriques dans le cas où $R_{L,T}=10^{16}$ N/m³. On retrouve ainsi l'efficacité du silane comme promoteur d'adhésion qui, malgré une conversion partielle de l'adhésif, permet d'obtenir une adhésion qui peut être considérée comme parfaite.

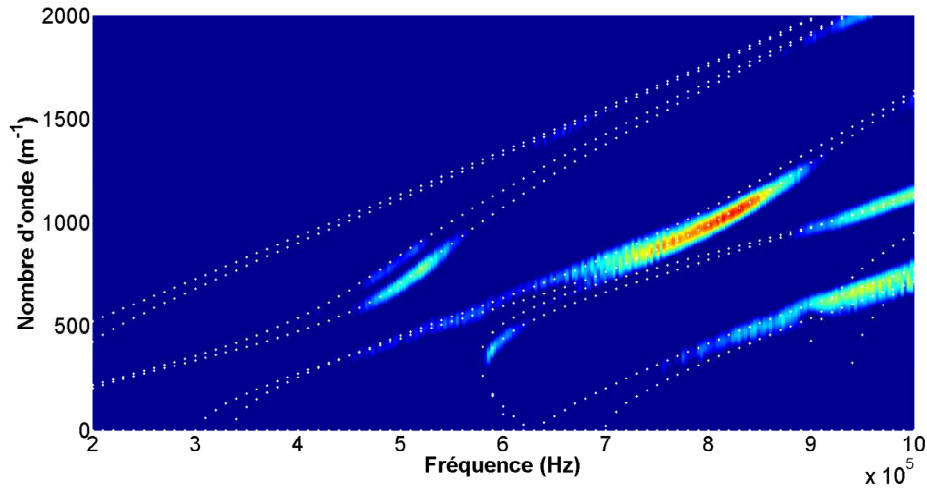


FIGURE 6.3 – Superposition des courbes de dispersion expérimentales de l'échantillon T-DSi-80 aux courbes de dispersion théoriques avec $R_{L,T}=10^{16}\text{N/m}^3$

La figure 6.4 représente les courbes de dispersion expérimentales de l'échantillon T-D-100. Le traitement de surface appliqué sur le substrat était un simple dégraissage afin d'obtenir une adhésion faible. Le résultat de la superposition des courbes de dispersion fournit $R_{L,T}=10^{14.5}\text{N/m}^3$, valeur conforme à un niveau d'adhésion faible.

Enfin, dans le cas de l'échantillon T-DSiO-100, considéré comme un assemblage à niveau d'adhésion très faible voir nul, les courbes de dispersion expérimentales sont tracées figure 6.5. Là encore, le résultat de la superposition des courbes de dispersion fournit $R_{L,T}=10^{12}\text{N/m}^3$. Ainsi, les ondes de Lamb permettent de retrouver un niveau d'adhésion très faible, proche d'un kissing bond.

En résumé, plusieurs échantillons avec différents niveaux d'adhésion ont été réalisés. Des ondes de Lamb ont été générées afin d'obtenir les courbes de dispersion expérimentales de chaque échantillon. Sur chaque résultat expérimental, des courbes de dispersion théoriques de Lamb dans le cadre du modèle adhésif de Jones ont été superposées, et la valeur la plus adaptée de $R_{L,T}$ a été sélectionnée. On a ainsi pu retrouver acoustiquement différents niveaux d'adhésion réalisés en jouant sur des paramètres physico-chimiques, y compris un échantillon se rapprochant d'un kissing bonds.

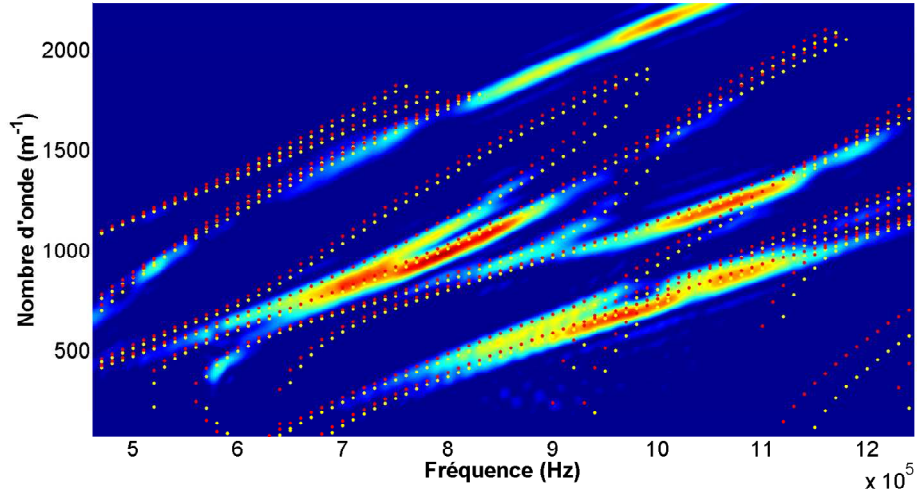


FIGURE 6.4 – Superposition des courbes de dispersion expérimentales de l'échantillon D-100 aux courbes de dispersion théoriques avec $R_{L,T}=10^{16}\text{N/m}^3$ (●) et avec $R_{L,T}=10^{14.5}\text{N/m}^3$ (●)

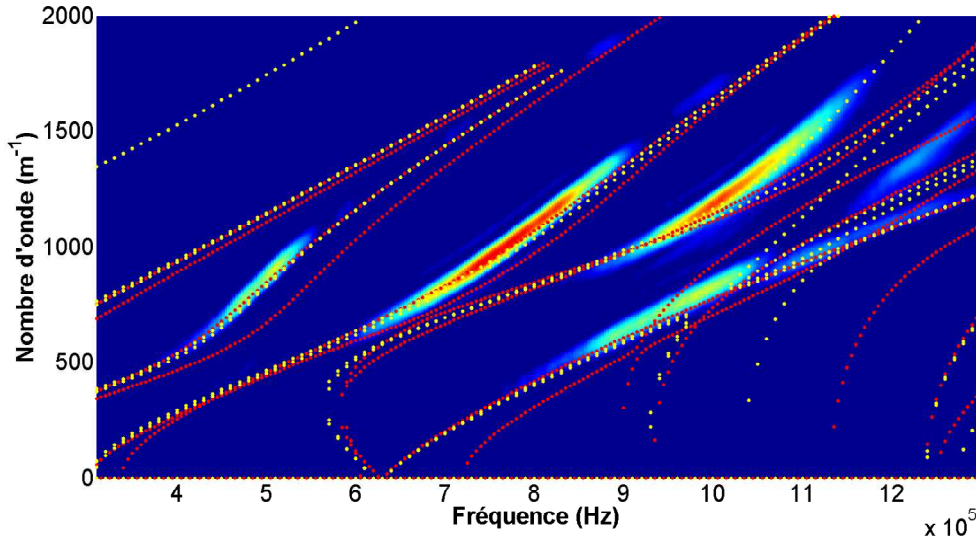


FIGURE 6.5 – Superposition des courbes de dispersion expérimentales de l'échantillon DSiO aux courbes de dispersion théoriques avec $R_{L,T}=10^{13}\text{N/m}^3$ (●) et avec $R_{L,T}=10^{12}\text{N/m}^3$ (●)

6.2.2 Mesures expérimentales de la fréquence de coupure du mode V_L

Suite à l'étude théorique des courbes de dispersion en fonction des constantes de Jones, nous avons pu voir que le mode V_L était très sensible au niveau de sa fréquence de coupure (Fig. 5.6). Après avoir qualifié le niveau d'adhésion des différents échantillons à l'aide du modèle de Jones, le but de cette étude est de retrouver ces niveaux d'adhésion par la mesure de la fréquence de coupure du mode V_L .

Cette étude est réalisée avec un transducteur de fréquence centrale de 200 kHz, placé en in-

cidence normale à la surface de l'échantillon. Le signal d'excitation est délivré par un générateur d'impulsion. Le signal temporel, dont un exemple est donné sur la figure 6.6 pour l'échantillon T-DSi80, est enregistré avant application d'une transformée de Fourier temporelle. Les spectres obtenus sont représentés dans une gamme de fréquence compris entre 100 et 300 kHz, et sont donnés figure 6.7.

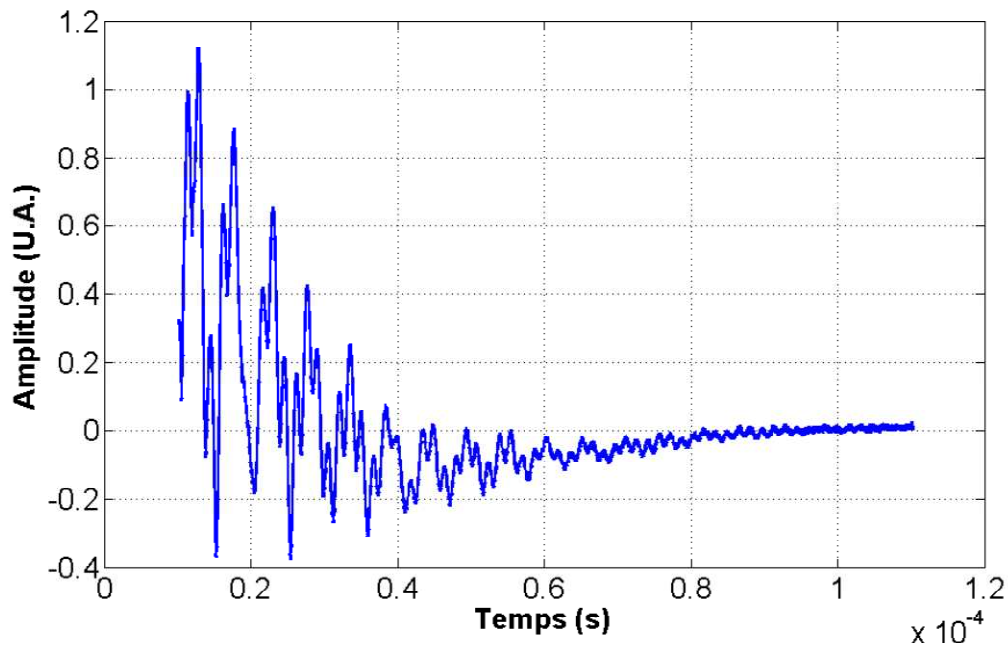
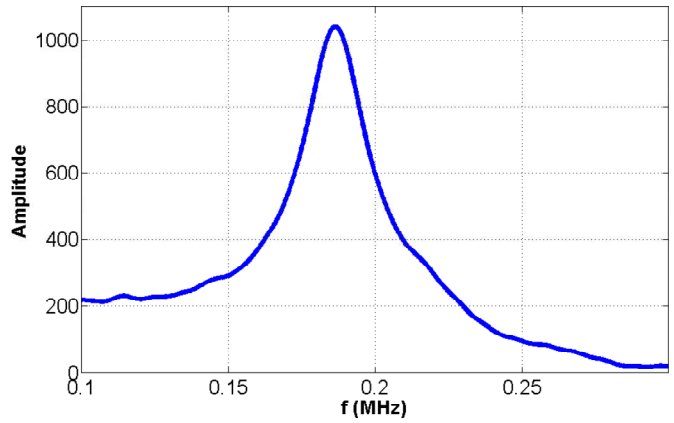
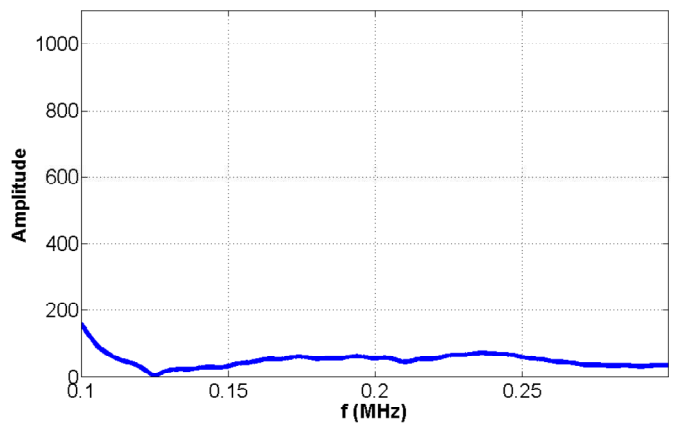


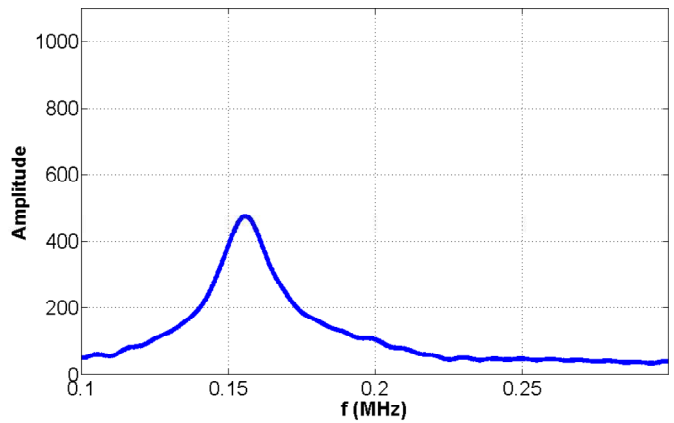
FIGURE 6.6 – Signal temporel enregistré en incidence normale pour l'échantillon T-DSi80



(a) T-DSi80



(b) T-DSiO100



(c) T-D100

FIGURE 6.7 – Spectres obtenus après FFT temporelle pour l'échantillon a) T-DSi80 et b) T-DSiO100 et c) T-D100

Les fréquences des pics relevés sur les spectres et leur comparaison aux valeurs théoriques sont regroupées dans le tableau 6.2. On constate ainsi une très bonne concordance entre les

valeurs théoriques des fréquences de coupure obtenues en fonction des constantes de Jones et les valeurs expérimentales, y compris dans le cas de l'échantillon T-DSiO100 à très faible niveau d'adhésion, où on constate l'absence de tout pic de fréquence, comme prévu (cf Fig. 5.4).

Échantillons	T-DSi80	T-D100	T-SiO100
Fréquence théorique (kHz)	187	147	/
Fréquence expérimentale (kHz)	187	153	/

TABLE 6.2 – Fréquences de coupure expérimentales et théoriques du mode V_L pour les trois niveaux d'adhésion

Il est donc possible de qualifier un niveau d'adhésion par la mesure des fréquences de coupure. Cependant, l'information déduite reste locale, alors que l'étude par ondes guidées fournit une information sur une zone plus large. Ces deux méthodes sont donc complémentaires.

Conclusion

Cette partie était consacrée à l'étude d'un assemblage aluminium/époxy/aluminium. Dans le premier chapitre, les équations des ondes de Lamb ont été écrites dans le cas d'une structure tricouche. Puis le modèle de Jones a été appliqué, et une étude de sensibilité des fréquences de coupure et des ondes de Lamb aux valeurs des raideurs des ressorts a été réalisée. Celle-ci a permis de mettre en avant la sensibilité du mode S_0 et de V_L en basses fréquences. Enfin, plusieurs aspects énergétiques des ondes de Lamb ont été introduits et ont permis de retrouver la même sensibilité à ces modes aux paramètres de Jones. Lors de la caractérisation expérimentale, plusieurs échantillons ont été réalisés, avec différents niveaux d'adhésion, deux considérés physico-chimiquement comme forts, un considéré comme une adhésion faible et enfin un dernier considéré comme une adhésion très faible. La superposition des courbes de dispersion théoriques à celles expérimentales a permis de confirmer ces niveaux d'adhésion par le modèle adhésif de Jones, de valider ce modèle et ainsi de confirmer les résultats trouvés lors de l'étude de la structure bicouche. De plus, une mesure de la fréquence de coupure du mode V_L a été réalisée pour ces mêmes échantillons et sont en accord avec les résultats trouvés précédemment.

Conclusion générale

Cette thèse est une contribution à l'étude de structures collées et a pour finalité la caractérisation de phénomènes sub-microscopiques à l'aide de moyens mésoscopiques. Elle est ainsi organisée en trois parties, représentant chacune une étape d'étude des structures. Chaque partie est elle-même divisée en deux chapitres, le premier portant sur les aspects théoriques des ondes de Lamb et le second sur la caractérisation physico-chimique et acoustique des structures.

La première partie porte sur l'influence du taux de réticulation d'un réseau époxy massif. Un rappel des équations régissant les ondes de Lamb et leurs courbes de dispersion est donné. D'un point de vue expérimental, la procédure mise au point permet de réaliser des échantillons du réseau époxy pour des conversions de 80, 93 et 100%. Si la mesure des vitesses acoustiques des matériaux correspondant à chaque taux de réticulation ne semble pas être une caractéristique suffisamment discriminante, l'analyse de la dispersion des ondes de Lamb d'ordre supérieur permet de différencier les conversions du polymère alors que le point de gel est passé.

Dans la deuxième partie le cas d'une structure bicouche, composée d'un substrat d'aluminium et d'un revêtement d'époxy, est examiné. L'objectif est de qualifier des niveaux d'adhésion différents en considérant aussi bien les aspects cohésifs à travers la réticulation de l'époxy, que les aspects adhésifs à travers les traitements de surface mécanique et/ou chimique du substrat. Un modèle de Jones adhésif est présenté qui met en jeu deux paramètres R_L et R_T . La sensibilité des modes de Lamb de la structure bicouche à ces paramètres est montrée. La caractérisation expérimentale ultrasonore a mis en évidence trois niveaux d'adhésion : faible, moyen et fort, en associant des valeurs de raideur allant de $10^{14.2}$ N/m³ à 10^{16} N/m³. Les résultats montrent particulièrement que la silanisation comme traitement de surface améliore grandement la qualité de l'adhésion, pouvant même palier à une conversion partielle de l'adhésif. Ces résultats sont conformes aux essais mécaniques destructifs réalisés sur des échantillons à simple recouvrement dont les traitements de surface et la conversion de l'adhésif sont similaires à ceux étudiés ici. Le modèle de Jones qualifie quantitativement ces niveaux d'adhésion et réalise ainsi une corrélation entre acoustique et essais mécaniques. De plus, une étude des atténuations des modes de Lamb permet de différencier les différents états de surface mais également la conversion, et ainsi la discrimination d'échantillons de même niveau d'adhésion.

La troisième partie montre l'étude d'un assemblage tricouche en prenant en compte les aspects énergétiques dans l'étude théorique. La particularité de l'utilisation des ondes de Lamb pour une structure tricouche est l'apparition de deux modes dits verticaux résultant du couplage des structures. Notre étude théorique s'est concentrée sur ces modes et donc dans une gamme de fréquence de 0-300kHz. Après modélisation de la structure par le modèle de Jones, une étude de sensibilité aux constantes de raideur est réalisée. Celle-ci est faite dans un cas symétrique, c'est-à-dire que les valeurs des paramètres de Jones sont égales pour les deux couples de ressort se trouvant de part et d'autre de la couche d'adhésif à l'interface. Cette étude permet de mettre en avant les modes sensibles ou non à la qualité de l'adhésion. Une étude numérique sur la distribution énergétique le long de la section est faite et permet de faire une corrélation entre la valeur de l'énergie à l'interface dans l'époxy et la sensibilité des modes à une qualité d'adhésion. On montre par ailleurs qu'un mode est d'autant plus sensible à l'interface que le flux énergétique dans l'adhésif est supérieur à celui dans le substrat. L'étude de la sensibilité des modes aux constantes de Jones montrent un début de délaminage pour une valeur de 10^{13} N/m³. Ainsi, lors de la caractérisation expérimentale des assemblages tricouches, trois niveaux d'adhésion ont été mis en avant : bon, faible et très faible par ajout d'une couche de démoulant sur les substrats, représentés respectivement par des raideurs de ressorts égales à 10^{16} N/m³, $10^{14.5}$ N/m³ et 10^{12} N/m³. L'utilisation du modèle adhésif de Jones dans le cas d'une tricouche permet de nouveau de qualifier les niveaux d'adhésion et retrouve les résultats quantitatifs de la structure bicouche. Cette étude a permis de montrer le potentiel du mode V_L à qualifier le niveau d'adhésion à travers les mesures de sa fréquence de coupure. Ceci peut être particulièrement adapté lors de tests in-situ.

Ainsi, cette thèse a permis de mettre en évidence la capacité de techniques ultrasonores utilisant les ondes de Lamb à qualifier des phénomènes sub-microscopiques. Le modèle de Jones est un bon outil quantitatif prenant en compte des problèmes aux interfaces en modifiant le plus simplement possible les conditions d'interface.

Ce projet a permis d'amener de nombreuses perspectives dans l'étude du collage structural :

Une première perspective est de réaliser ce travail dans le cadre du problème inverse. Nous avons considéré que, pour chaque échantillon, $R_L=R_T$. Or, bien que ces paramètres restent

dans le même ordre de grandeur, des études précédentes [85] sur le modèle cohésif de Jones (par problème inverse) ont montré que leurs valeurs pouvaient être légèrement différentes. Une étude par problème inverse permettrait d'obtenir des valeurs plus précises des coefficients de Jones et ainsi de mieux discriminer les niveaux d'adhésion. La résolution par problème inverse peut se faire par méthode simplexe [86] ou bien par méthode neuronale [81] (une prise de contact est d'ores et déjà faite afin de continuer sur cette problématique).

Une deuxième perspective serait l'étude d'échantillons dissymétriques en différenciant les traitements de surface au niveau des deux substrats métalliques. Le but serait de voir si la caractérisation acoustique développée dans ce travail permettrait de remonter au niveau d'adhésion de chacune des deux interfaces. Un intérêt particulier pourrait être porté sur la détection de kissing bonds, un des problèmes majeur de l'aéronautique. Une autre dyssymétrie pourrait être envisagée en différenciant la nature des substrats. On pourrait ainsi étendre ces travaux aux assemblages métal/composite, structures très présentes dans l'aéronautique, en raison de l'engouement du "tout composite" dans l'industrie. De plus, la question de l'utilisation de cette méthode pour contrôler la durabilité des assemblages ou la perte d'adhésion liées aux conditions de température et d'humidité peut être posée. Les ondes guidées, associée à la mesure des fréquences de coupure permettraient elles de voir la dégradation aux niveaux des interfaces ?

Enfin, l'ensemble de ces perspectives pourrait aussi être envisagé en mettant en concurrence les ondes de Lamb et les ondes transversales à polarisation horizontale (ondes SH), afin de déterminer le meilleur candidat pouvant renseigner un niveau d'adhésion donné. En effet, les nouvelles techniques d'excitation des ondes SH par des transducteurs de type EMAT permettent de s'affranchir des problèmes de contact, qui nuisaient à la répétitivité des mesures du point de vue expérimental.

L'avenir des problématiques du collage et de l'adhésion sont donc assurées pour la prochaine décennie...

Bibliographie

- [1] R.D. Adams and B.W. Drinkwater. Non-destructive testing of adhesively-bonded joints. *International Journal of Materials and Product Technology*, 14(5-6) :385–398, January 1999.
- [2] M. T. Aronhime and J. K. Gillham. *Epoxy Resins and Composites III*, volume 78 of *Advances in Polymer Science*. Springer-Verlag, Berlin/Heidelberg, 1986.
- [3] C. C. H. Guyott, P Cawley, and R.D. Adams. The non-destructive testing of adhesively bonded structure : a review. *The Journal of Adhesion*, 20(2) :129–159, 1986.
- [4] R. D. Adams, J. Comyn, and W.C. Wake. *Structural adhesive joints in engineering*. Springer Science & Business Media, 1997.
- [5] P.B. Nagy. Ultrasonic detection of kissing bonds at adhesive interfaces. *Journal of Adhesion Science and Technology*, 5(8) :619–630, January 1991.
- [6] C. Meola, G.M. Carlomagno, A. Squillace, and A. Vitiello. Non-destructive evaluation of aerospace materials with lock-in thermography. *Engineering Failure Analysis*, 13(3) :380–388, 2006.
- [7] D. Jiao and J.L. Rose. An ultrasonic interface layer model for bond evaluation. *Journal of Adhesion Science and Technology*, 5(8) :631–646, January 1991.
- [8] Patrice Couvrat. *Le collage structural moderne*. TEC et DOC, 1992.
- [9] C. Meola and G. M. Carlomagno. Impact damage in GFRP : new insights with infrared thermography. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 41(12) :1839–1847, 2010.
- [10] Thierry Lamarque. *Caractérisation de délaminages par interférométrie de speckle à cisaillement avec sollicitation thermique ou mécanique*. PhD thesis, Paris 6, 1998.

- [11] Y. Y. Hung. Applications of digital shearography for testing of composite structures. *Composites Part B : Engineering*, 30(7) :765–773, October 1999.
- [12] J.-C. Krapez, F. Taillade, T. Lamarque, and D. Balageas. Shearography : A Tool for Imaging Lamb Waves in Composites and their Interaction with Delaminations. In Donald O. Thompson and Dale E. Chimenti, editors, *Review of Progress in Quantitative Nondestructive Evaluation*, number 18 A, pages 905–912. Springer US, 1999. DOI : 10.1007/978-1-4615-4791-4_116.
- [13] R.M. White. Generation of elastic waves by transient surface heating. *Journal of Applied Physics*, 34(12) :3559–3567, 1963.
- [14] R. Ecault, M. Boustie, F. Touchard, F. Pons, L. Berthe, L. Chocinski-Arnault, B. Ehrhart, and C. Bockenheimer. A study of composite material damage induced by laser shock waves. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 53 :54–64, October 2013.
- [15] C.J. Brotherhood, B.W. Drinkwater, and S. Dixon. The detectability of kissing bonds in adhesive joints using ultrasonic techniques. *Ultrasonics*, 41(7) :521–529, September 2003.
- [16] S. De Barros, A. Gama, M. Rousseau, and B. Collet. Characterization of bonded plates with Lamb and SH waves using a quasi-static approximation. *Latin American Journal of Solids and Structures*, 1(4) :379–399, 2004.
- [17] J. P. Jones and J. S. Whittier. Waves at a Flexibly Bonded Interface. *Journal of Applied Mechanics*, 34(4) :905–909, December 1967.
- [18] Z. Fan, M. Castaings, M. J. S. Lowe, C. Biateau, and P. Fromme. Feature-guided waves for monitoring adhesive shear modulus in bonded stiffeners. *NDT & E International*, 54 :96–102, March 2013.
- [19] M. Schoenberg. Elastic wave behavior across linear slip interfaces. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 68(5) :1516–1521, November 1980.
- [20] C. H. Yew and X. W. Weng. Using ultrasonic SH waves to estimate the quality of adhesive bonds in plate structures. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 77(5) :1813–1823, May 1985.
- [21] M. J. Santos, J. Perdigao, and P. Faia. Ultrasonic Guided Waves Scattering Effects From Defects in Adhesively Bonded Lap Joints Using Pitch and Catch and Pulse-Echo Techniques. *Journal of Adhesion*, 84(5) :421–438, May 2008.

- [22] V. Pagneux and A. Maurel. Lamb wave propagation in elastic waveguides with variable thickness. In *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, volume 462, pages 1315–1339. The Royal Society, 2006.
- [23] J. Gao, J. Yang, L. J. Cui, J. C. Cheng, and M. L. Qian. Modeling laser-generated guided waves in bonded plates by the finite element method. *Ultrasonics*, 44, Supplement :e985–e989, December 2006.
- [24] K Vine, P Cawley, and A. J Kinloch. Comparison of normal and oblique incidence ultrasonic measurements for the detection of environmental degradation of adhesive joints. *NDT & E International*, 35(4) :241–253, June 2002.
- [25] K Heller, L.J Jacobs, and J Qu. Characterization of adhesive bond properties using Lamb waves. *NDT & E International*, 33(8) :555–563, December 2000.
- [26] S. I. Rokhlin and D. Marom. Study of adhesive bonds using low frequency obliquely incident ultrasonic waves. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 80(2) :585–590, August 1986.
- [27] Michel Castaings. *Contrôle et évaluation non destructifs de matériaux par ondes ultrasonores guidées*. PhD thesis, 2002.
- [28] R. Marks, A. Clarke, C. Featherston, C. Paget, and R. Pullin. Lamb wave interaction with adhesively bonded stiffeners and disbonds using 3d vibrometry. *Applied Sciences*, 6(1) :12, 2016.
- [29] B Hosten. Bulk heterogeneous plane waves propagation through viscoelastic plates and stratified media with large values of frequency domain. *Ultrasonics*, 29(6) :445–450, 1991.
- [30] M. J. S. Lowe, R. E. Challis, and C. W. Chan. The transmission of Lamb waves across adhesively bonded lap joints. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 107(3) :1333–1345, March 2000.
- [31] Hugues Lourme. *Etude des assemblages collés par ondes guidées ultrasonores : étude expérimentale et modélisation par éléments finis*. PhD thesis, Bordeaux 1, 2009.
- [32] Naima Alaoui Ismaili. *Méthode numérique de résolution d'un problème inverse : Application à l'estimation des paramètres caractéristiques d'un adhésif dans une structure tricouche*. PhD thesis, 2009.

- [33] Y. Bar-cohen, A. K. Mal, and C. C. Yin. Ultrasonic Evaluation of Adhesive Bonding. *The Journal of Adhesion*, 29(1-4) :257–274, October 1989.
- [34] TT Wang, FW Ryan, and H Schonhorn. Effect of bonding defects on shear strength in tension of lap joints having brittle adhesives. *Journal of Applied Polymer Science*, 16(8) :1901–1909, 1972.
- [35] M Michaloudaki, E Lehmann, and D Kosteas. Neutron imaging as a tool for the non-destructive evaluation of adhesive joints in aluminium. *International journal of adhesion and adhesives*, 25(3) :257–267, 2005.
- [36] Alice Baudot. *Etude et mise au point de méthodes de mesures non destructives permettant de caractériser les paramètres critiques de l'adhésion sur structures collées*. PhD thesis, 2015.
- [37] C D Wright and J M Muggee. Epoxy Structural Adhesives. In *Structural Adhesives*, pages 113–179. Springer, 1986.
- [38] Horace Lamb. On the flexure of an elastic plate. *Proceedings of the London Mathematical Society*, 1(1) :70–91, 1889.
- [39] Horace Lamb. On waves in an elastic plate. *Proceedings of the Royal Society of London*, 93(648) :114–128, 1917.
- [40] J-P Pascault, H Sautereau, J Verdu, and RJJ Williams. *Thermosetting polymers*, volume 64. CRC Press, 2002.
- [41] P.J. Flory. *Principles of Polymer Chemistry*. The George Fisher Baker Non-Resident Lectureship in Chemistry at Cornell University. Cornell University Press, Ithaca, NY, December 1953.
- [42] A Baudot, J Moysan, C Payan, N Ylla, J Galy, B Verneret, and A Baillard. Improving Adhesion Strength Analysis by the Combination of Ultrasonic and Mechanical Tests on Single-Lap Joints. *The Journal of Adhesion*, 90(5-6) :555–568, June 2014.
- [43] C. Jordan, J. Galy, J.-P. Pascault, C. Moré, M. Delmotte, and H. Jullien. Comparison of microwave and thermal cure of an epoxy/amine matrix. *Polymer Engineering & Science*, 35(3) :233–239, 1995.
- [44] B. Burton, D. Alexander, H. Klein, A. Garibay-Vasquez, A. Pekarik, and C. Henkee. Epoxy formulations using jeffamine® polyetheramines. *The Woodlands, TX : Huntsman*, 2005.

- [45] G A Sofer and E A Hauser. A new tool for determination of the stage of polymerization of thermosetting polymers. *Journal of Polymer Science*, MII(6) :611–620, 1952.
- [46] Thomas Karl Vogt. *Determination of material properties using guided waves*. PhD thesis, 2002.
- [47] A. M. Lindrose. Ultrasonic wave and moduli changes in a curing epoxy resin. *Experimental Mechanics*, 18(6) :227–232, 1978.
- [48] D N Alleyne. *The non-destructive testing of plates using ultrasound Lamb waves*. PhD thesis, Imperial College London (University of London), 1991.
- [49] J Laperre and W Thys. Experimental and theoretical study of elastic wave dispersion in a liquid bilayer. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 2, 1992.
- [50] A. Baltazar, L. Wang, B. Xie, and S. I. Rokhlin. Inverse ultrasonic determination of imperfect interfaces and bulk properties of a layer between two solids. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 114(3) :1424–1434, September 2003.
- [51] Silvio De Barros. *Modèle d'interface pour la simulation du comportement des assemblages collés*. PhD thesis, 2005.
- [52] N.A. Ismaili, D. Chenouni, Z. Lakhliai, M.E.-C. El-Kettani, B. Morvan, and J.-l. Izbicki. Determination of epoxy film parameters in a three-layer metal/adhesive/metal structure. *IEEE Transactions on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control*, 56(9) :1955–1959, September 2009.
- [53] V Vlasie and M Rousseau. Acoustical validation of the rheological models for a structural bond. *Wave motion*, 2003.
- [54] Valentina Vlasie-Belloncle. *Modélisation mécanique et caractérisation ultrasonore de structures collées*. PhD thesis, Paris 6, 2003.
- [55] M. Lemistre and D. Balageas. Structural health monitoring system based on diffracted lamb wave analysis by multiresolution processing. *Smart materials and structures*, 10(3) :504, 2001.
- [56] S. S. Kessler, S. M. Spearing, and C. Soutis. Damage detection in composite materials using Lamb wave methods. *Smart Materials and Structures*, 11(2) :269, 2002.

- [57] FL Degertakin and BT Khuri-Yakub. Lamb wave excitation by hertzian contacts with applications in nde. *ieee transactions on ultrasonics, ferroelectrics, and frequency control*, 44(4) :769–779, 1997.
- [58] A Roche. Les théories de l’adhésion et mesure de l’adhérence. *Le vide, les couches minces*, 47(257) :197–230, 1991.
- [59] AJ Kinloch. The science of adhesion. *Journal of materials science*, 15(9) :2141–2166, 1980.
- [60] SR Hartshorn. *Structured Adhesives : Chemistry and Technology*. Plenum Press, 1986.
- [61] J. W. McBain and D. G. Hopkins. On Adhesives and Adhesive Action. *The Journal of Physical Chemistry*, 29(2) :188–204, January 1924.
- [62] B. V. Deryagin and Y. P. Toprov. *Role of the molecular and electrostatic forces in the adhesion of polymers*. Physico-chemical aspects of polymer surface, KL Mittal, Editor, 1983.
- [63] S. S. Voyutskii. The Diffusion Theory of Adhesion. *Rubber Chemistry and Technology*, 33(3) :748–756, July 1960.
- [64] J. J. Bikerman. *The Science of Adhesive Joints*. Elsevier, October 2013.
- [65] L. H. Sharpe and H. Schonhorn. Theory gives direction to adhesion work. *Chemical and Engineering News*, 41(15) :67–68, 1963.
- [66] S. Buchan. Bonding of Rubber to Metals. *Rubber Chemistry and Technology*, 17(1) :200–212, March 1944.
- [67] Jacques Cognard. *Science et technologie du collage*. PPUR presses polytechniques, 2000.
- [68] RE Johnson and RH Dettre. Contact angle, wettability, and adhesion. *Advances in \ldots*, 1964.
- [69] R Develay. Propriétés de l’aluminium et des alliages d’aluminium corroyés. *Techniques de l’ingénieur*, 1992.
- [70] B B Johnsen, K Olafsen, and A Stori. Reflection-absorption FT-IR studies of the specific interaction of amines and an epoxy adhesive with GPS treated aluminium surfaces. *International Journal of Adhesion and Adhesives*, 23(2) :155–163, January 2003.
- [71] Patrick Egli. Littérature technique : Angles de raccordement et énergie de surface : introduction. 41(0) :1–6, 2008.

- [72] Finn Knut Hansen. The Measurement of Surface Energy of Polymers by Means of Contact Angles of Liquids on Solid Surfaces. pages 1–12, 2004.
- [73] M Żenkiewicz. Methods for the calculation of surface free energy of solids. 24(1) :137–145, 2007.
- [74] Souheng Wu. Calculation of interfacial tension in polymer systems. *Journal of Polymer Science Part C : Polymer Symposia*, 30(34) :19–30, 1971.
- [75] D. K. Owens and R. C. Wendt. Estimation of the surface free energy of polymers. *Journal of Applied Polymer Science*, 13(8) :1741–1747, August 1969.
- [76] B. B. Johnsen, K. Olafsen, A. Stori, and K. Vinje. Silanization of adhesively bonded aluminum alloy AA6060 with γ -glycidoxypropyltrimethoxysilane. II. Stability in degrading environments. *Journal of Adhesion Science and Technology*, 17(9) :1283–1298, January 2003.
- [77] M. R. Tchoquessi Diodjo, L. Belec, E. Aragon, Y. Joliff, L. Lanarde, and F.-X. Perrin. Silane coupling agent for attaching fusion-bonded epoxy to steel. *ACS applied materials & interfaces*, 5(14) :6751–6761, July 2013.
- [78] J Galy, N Ylla, J Moysan, and A. El Mahi. Evaluation of the level of adhesion in epoxy-aluminum joints combining mechanical and NDT measurements. In *Thermosets 2015*, Berlin, Germany, 2015.
- [79] F Lionetto and A Maffezzoli. Monitoring the cure state of thermosetting resins by ultrasound. *Materials*, 6(9) :3783–3804, 2013.
- [80] Damien Leduc, Bruno Morvan, Pascal Pareige, and Jean-Louis Izbicki. Measurement of the effects of rough surfaces on Lamb waves propagation. *NDT & E International*, 37(3) :207–211, April 2004.
- [81] N. Alaoui Ismaili, D. Chenouni, Z. Lakhliai, M. Ech-Cherif El-Kettani, B. Morvan, and J.-L. Izbicki. Determination of epoxy film parameters in a three-layer metal/adhesive/metal structure. *IEEE transactions on ultrasonics, ferroelectrics, and frequency control*, 56(9) :1955–1959, 2009.
- [82] O. Lenoir, J.-L. Izbicki, M. Rousseau, and F. Coulouvrat. Subwavelength ultrasonic measurement of a very thin fluid layer thickness in a trilayer. *Ultrasonics*, 35(7) :509–515, November 1997.

- [83] W. Hassan and P. B. Nagy. On the low-frequency oscillation of a fluid layer between two elastic plates. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 102(6) :3343–3348, December 1997.
- [84] Robert C Weast. *CRC handbook of chemistry and physics*. SI, 1987.
- [85] N. Alaoui-Ismaili, C. De Mello-da Silva, M. Ech-Cherif El-Kettani, G. Despaux, M. Rousseau, and J.-L. Izbicki. Lamb modes and acoustic microscopy for the characterization of bonded structures. *Proceedings of Meetings on Acoustics*, 19(1) :045045, June 2013.
- [86] VK Kinra, PT Jaminet, C Zhu, and VR Iyer. Simultaneous measurement of the acoustical properties of a thin-layered medium : The inverse problem. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 95(6) :3059–3074, 1994.