

## Contribution à l'étude de l'influence des interphases sur les propriétés mécaniques à l'échelle macroscopique d'un composite unidirectionnel: approche numérique

Lina Marcela Riaño Vélez

#### ▶ To cite this version:

Lina Marcela Riaño Vélez. Contribution à l'étude de l'influence des interphases sur les propriétés mécaniques à l'échelle macroscopique d'un composite unidirectionnel : approche numérique. Mécanique des matériaux [physics.class-ph]. Université de Toulon, 2018. Français. NNT : 2018TOUL0015 . tel-03039648

## HAL Id: tel-03039648 https://theses.hal.science/tel-03039648

Submitted on 4 Dec 2020  $\,$ 

**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.



École doctorale nº 548 : Mer et Sciences

# **Laboratoire MAPIEM** THÈSE

pour obtenir le grade de docteur délivré par

# l'Université de Toulon

En "Mécanique des solides, génie mécanique, productique, transport et génie civil"

Spécialité doctorale "Modélisation et simulation numérique"

présentée et soutenue publiquement par

### Lina RIAÑO VÉLEZ

le 3 décembre 2018

## Contribution à l'étude de l'influence des interphases sur les propriétés mécaniques à l'échelle macroscopique d'un composite unidirectionnel : approche numérique

Directeur de thèse : M. Yoann JOLIFF, MAITRE DE CONFÉRENCES HDR, UNIVERSITÉ DE TOULON

Professeur Université de Nantes	Rapporteur
Professeur École des mines d'Alès	Rapporteur
Professeur Université Aix Marseille	Examinateur
Professeur Université d'Orléans	Examinateur
Professeur Université de Toulon	Examinateur
	Professeur Université de Nantes Professeur École des mines d'Alès Professeur Université Aix Marseille Professeur Université d'Orléans Professeur Université de Toulon

« À ma famille, à Jaime, à notre avenir... »



Image non reproduite

# Table des matières

Та	ble d	es matières	v
Li	Liste des figures vii		
Li	Liste des tableaux xi		
Li	ste de	es acronymes	xiii
No	otatio	)n	XV
In	trod	uction	1
1	Mat	ériaux composites et approche multi-échelle	3
	1.1	Matériaux composites	5
	1.2	Approche multi-échelle	12
	1.3	Conclusion	19
2	Cara	actérisation expérimentale du comportement des composites fibres de verre/	époxy
	et d	e ses constituants	21
	2.1	Techniques expérimentales	23
	2.2	Caractérisations et propriétés des matériaux	26
	2.3	Bilan : propriétés des constituants du composite	34
	2.4	Conclusion	35
3	Cho	ix du VER	37
	3.1	Hypothèses retenues	39
	3.2	Génération de la géométrie	40
	3.3	Analyse de l'influence des caractéristiques du VER sur le comportement en	
		traction transverse	44
	3.4	Bilan : caractéristiques adéquates pour le VER	54
	3.5	Validation du modèle numérique : confrontation expérimentale	55
	3.6	Conclusion	56
4	Мос	lélisation du comportement du composite avec prise en compte des inter-	
	pha	ses	57
	$\bar{4.1}$	Hypothèses et prémisses	59
	4.2	Prise en compte de l'interphase dans le modèle numérique	59
	4.3	Génération de la géométrie	60
	4.4	Balayage paramétrique	61
	4.5	Analyse de l'influence des caractéristiques de l'interphase sur le comporte-	
		ment en traction transverse	62
	4.6	Bilan : réponse en considérant la région interphase	65

	4.7	Validation du modèle numérique avec interphase : confrontation expéri-	
		mentale	66
	4.8	Contribution des éléments cohésifs	69
	4.9	Conclusion	79
5	Sim	ulation des phénomènes de durabilité des composites à partir d'une approcl	ne
	VEF	ł	81
	5.1	Étude de cas : vieillissement naturel d'un composite UD 20% vol	83
	5.2	Étude de cas : cinétique de diffusion d'un composite UD 50% vol	91
	5.3	Conclusion	96
Co	onclu	isions et perspectives	99
Bi	bliog	graphie	101
A	Inst	ructions pour les utilisateurs du plug-in	Ι
B	Mic	roanalyse thermique (μ-TA)	III
	B.1	Mesures topographiques	IV
	B.2	Mesures locales	IV

# Liste des figures

1.1	Propriétés des matériaux en fonction de leur module de Young et leur den-	
	sité [1]	5
1.2	Illustration schématique d'un composite UD et ses constituants	6
1.3	Demi-produits, fibres de verre [2]	7
1.4	Procédé d'étirage mécanique des fibres avec ensimage [3]	8
1.5	Distribution générale des constituants d'un ensimage	9
1.6	Moulage par enroulement filamentaire (source photo : Strongwell Corpora-	
	tion)	10
1.7	Principaux procédés de fabrication de composites thermodurcissables ren-	
	forcés par des fibres longues.	10
1.8	Ensimage [4]	11
1.9	Approche multi-échelle	13
1.10	Composites UD avec une distribution périodique des fibres	14
1.11	Schéma général de l'homogénéisation numérique.	15
1.12	Exemples de fonctions pour une loi traction/séparation : (a) polynomiale	
	cubique, (b) trapézoïdale, (c) trapézoïdale adoucie, (d) exponentielle, (e) adou-	
	cissement linéaire et (f) adoucissement bilinéaire [5].	16
1.13	Initiation et évolution de l'endommagement sous traction transverse [6]	18
21	Schéma du montage simple poutre encastrée pour le DMA 0800 [7]	25
2.1	Schéma de principe de fonctionnement d'un AFM	26
2.3	Exemple de pointe d'AFM utilisée pour caractériser un composite époxy/fibre	20
	de verre.	26
2.4	Distribution des constituants de l'ensimage [4].	27
2.5	Illustration des défauts de surface de la résine époxy-amine observés au mi-	
	croscope optique (x50).	28
2.6	Résultats expérimentaux et movenne des essais de traction pour la résine.	29
2.7	Composite UD avec un taux volumique de fibres de 54% vol. observé au	
	microscope optique.	30
2.8	Résultats expérimentaux et movenne des essais de traction pour le composite.	31
2.9	Résultats des essais de traction pour la résine et le composite.	32
2.10	Grossissement des mesures locales AFM du module d'élasticité.	33
2.11	Module d'élasticité au voisinage de la fibre d'après les mesures AFM.	33
2.12	Mesures locales AFM du module d'élasticité de la matrice confinée entre	
	deux fibres	34
21	Menu et GUI du plug-in "RVE for composites"	<u>/</u> 1
3.1	Informations concernant " <b>RVE for composites</b> "	тт //1
 २ २	Description de l'algorithme	41 //2
J.J 2 1	Zono do mossago après l'ovécution du plug in	42
5.4	Lone de message après i execution du plug-in	43

3.5	Maillage global choisi, composite 3D V <sub>f</sub> = 53%. $\dots$	44
3.6	Étude de la convergence du maillage.	45
3.7	Temps de calcul pour les différents types d'éléments	46
3.8	Maillage global choisi, composite 2D V <sub>f</sub> = 53%	46
3.9	Convergence du maillage pour différentes fractions volumiques.	47
3.10	Temps de calcul pour différentes fractions volumiques.	47
3.11	Contraintes d'interaction du modèle 3D V <sub>f</sub> = 53%. $\dots \dots \dots \dots \dots$	49
3.12	CL pour différentes fractions volumiques.	49
3.13	Influence du ratio taille VER/diamètre des fibres sur la réponse du composite.	50
3.14	Modèles 2D V <sub>f</sub> = 20% avec deux distributions aléatoires différentes à dia-	
	mètre des fibres constant.	51
3.15	Influence de la distribution aléatoire des fibres à diamètre constant sur la	
	réponse du composite.	51
3.16	Modèles 2D V <sub>f</sub> = 40% avec deux distributions aléatoires différentes à dia-	
	mètre des fibres aléatoire.	52
3.17	Influence de la distribution aléatoire des fibres à diamètre aléatoire sur la	
	réponse du composite.	52
3.18	Écarts-types de la réponse du composite par rapport à la distribution aléa-	
	toire des fibres.	53
3.19	CV de la réponse du composite par rapport à la distribution aléatoire des	
	fibres.	54
3.20	Comparaison movenne expérimentale/simulation numérique	55
4.1	Considération de l'interphase dans le modèle numérique	59
12	The start is a delta success a sitism de description has a la media la mérica de	
4.2	illustration de la superposition de deux interphases lors de la generation de	
4.2	la géométrie	60
4.3	Indistration de la superposition de deux interphases lors de la géneration de la géométrie.         la géométrie.         Algorithme du balayage paramétrique.	60 61
4.3 4.4	Indistration de la superposition de deux interphases lors de la génération de	60 61 62
4.2 4.3 4.4 4.5	Indistration de la superposition de deux interphases fors de la géneration de la génération de	60 61 62
4.2 4.3 4.4 4.5	Indistration de la superposition de deux interphases fors de la génération de	60 61 62 63
4.2 4.3 4.4 4.5 4.6	Indistration de la superposition de deux interphases fors de la génération de la générati de la génération de la génération de la génération de l	60 61 62 63
4.2 4.3 4.4 4.5 4.6	Indistration de la superposition de deux interphases fors de la generation de la géométrie.         Algorithme du balayage paramétrique.         Étude du maillage avec la prise en compte de l'interphase.         Influence du coefficient de Poisson de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence de l'épaisseur de l'interphase sur le comportement global du composite.	60 61 62 63 64
<ul> <li>4.2</li> <li>4.3</li> <li>4.4</li> <li>4.5</li> <li>4.6</li> <li>4.7</li> </ul>	Indistration de la superposition de deux interphases fors de la génération de la génératin de la génération de la génération de la génération de	60 61 62 63 64
<ul> <li>4.2</li> <li>4.3</li> <li>4.4</li> <li>4.5</li> <li>4.6</li> <li>4.7</li> </ul>	Indistration de la superposition de deux interphases fors de la generation de la géométrie.         Algorithme du balayage paramétrique.         Álgorithme du balayage paramétrique.         Étude du maillage avec la prise en compte de l'interphase.         Influence du coefficient de Poisson de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence de l'épaisseur de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.	60 61 62 63 64 65
<ul> <li>4.2</li> <li>4.3</li> <li>4.4</li> <li>4.5</li> <li>4.6</li> <li>4.7</li> <li>4.8</li> </ul>	Indistration de la superposition de deux interphases fors de la generation de la géométrie.         Algorithme du balayage paramétrique.         Álgorithme du balayage paramétrique.         Étude du maillage avec la prise en compte de l'interphase.         Influence du coefficient de Poisson de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence de l'épaisseur de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.         Amélioration de la prédiction en incluant l'interphase.	<ul> <li>60</li> <li>61</li> <li>62</li> <li>63</li> <li>64</li> <li>65</li> <li>66</li> </ul>
<ul> <li>4.2</li> <li>4.3</li> <li>4.4</li> <li>4.5</li> <li>4.6</li> <li>4.7</li> <li>4.8</li> <li>4.9</li> </ul>	Indistration de la superposition de deux interphases fors de la generation de la géométrie.         Algorithme du balayage paramétrique.         Álgorithme du balayage paramétrique.         Étude du maillage avec la prise en compte de l'interphase.         Influence du coefficient de Poisson de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence de l'épaisseur de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.         Amélioration de la prédiction en incluant l'interphase.         Comparaison des valeurs moyennes expérimentales/simulations numériques.	<ul> <li>60</li> <li>61</li> <li>62</li> <li>63</li> <li>64</li> <li>65</li> <li>66</li> <li>67</li> </ul>
<ul> <li>4.2</li> <li>4.3</li> <li>4.4</li> <li>4.5</li> <li>4.6</li> <li>4.7</li> <li>4.8</li> <li>4.9</li> <li>4.10</li> </ul>	Indistration de la superposition de deux interphases fors de la generation de la géométrie.         Algorithme du balayage paramétrique.         Algorithme du balayage paramétrique.         Étude du maillage avec la prise en compte de l'interphase.         Influence du coefficient de Poisson de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence de l'épaisseur de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.         Amélioration de la prédiction en incluant l'interphase.         Comparaison des valeurs moyennes expérimentales/simulations numériques.         Champ de contraintes globales et locales (critère de Von Mises).	<ul> <li>60</li> <li>61</li> <li>62</li> <li>63</li> <li>64</li> <li>65</li> <li>66</li> <li>67</li> <li>68</li> </ul>
<ul> <li>4.2</li> <li>4.3</li> <li>4.4</li> <li>4.5</li> <li>4.6</li> <li>4.7</li> <li>4.8</li> <li>4.9</li> <li>4.10</li> <li>4.11</li> </ul>	Industration de la superposition de deux interphases fors de la generation de la géométrie.         Algorithme du balayage paramétrique.         Álgorithme du balayage paramétrique.         Étude du maillage avec la prise en compte de l'interphase.         Influence du coefficient de Poisson de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence de l'épaisseur de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.         Amélioration de la prédiction en incluant l'interphase.         Comparaison des valeurs moyennes expérimentales/simulations numériques.         Champ de contraintes globales et locales (critère de Von Mises).         Exemple de maillage du composite avec une interphase discrétisée par des	<ul> <li>60</li> <li>61</li> <li>62</li> <li>63</li> <li>64</li> <li>65</li> <li>66</li> <li>67</li> <li>68</li> </ul>
<ul> <li>4.2</li> <li>4.3</li> <li>4.4</li> <li>4.5</li> <li>4.6</li> <li>4.7</li> <li>4.8</li> <li>4.9</li> <li>4.10</li> <li>4.11</li> </ul>	Influstration de la superposition de deux interphases fors de la generation de la géométrie.         Algorithme du balayage paramétrique.         Álgorithme du balayage paramétrique.         Étude du maillage avec la prise en compte de l'interphase.         Influence du coefficient de Poisson de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence de l'épaisseur de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.         Amélioration de la prédiction en incluant l'interphase.         Comparaison des valeurs moyennes expérimentales/simulations numériques.         Champ de contraintes globales et locales (critère de Von Mises).         Exemple de maillage du composite avec une interphase discrétisée par des éléments COH2D4.	<ul> <li>60</li> <li>61</li> <li>62</li> <li>63</li> <li>64</li> <li>65</li> <li>66</li> <li>67</li> <li>68</li> <li>69</li> </ul>
<ul> <li>4.2</li> <li>4.3</li> <li>4.4</li> <li>4.5</li> <li>4.6</li> <li>4.7</li> <li>4.8</li> <li>4.9</li> <li>4.10</li> <li>4.11</li> <li>4.12</li> </ul>	Influstration de la superposition de deux interphases fors de la génération de la prise en compte de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du coefficient de Poisson de l'interphase sur le comportement global du composite.       Influence de l'épaisseur de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.       Amélioration de la prédiction en incluant l'interphase.         Comparaison des valeurs moyennes expérimentales/simulations numériques.       Champ de contraintes globales et locales (critère de Von Mises).         Exemple de maillage du composite avec une interphase discrétisée par des éléments COH2D4.       Effet du paramètre de stabilité viscosity sur la réponse macroscopique nu-	<ul> <li>60</li> <li>61</li> <li>62</li> <li>63</li> <li>64</li> <li>65</li> <li>66</li> <li>67</li> <li>68</li> <li>69</li> </ul>
<ul> <li>4.2</li> <li>4.3</li> <li>4.4</li> <li>4.5</li> <li>4.6</li> <li>4.7</li> <li>4.8</li> <li>4.9</li> <li>4.10</li> <li>4.11</li> <li>4.12</li> </ul>	Influstration de la superposition de deux interphases fors de la generation de la géométrie.         Algorithme du balayage paramétrique.         Álgorithme du balayage paramétrique.         Étude du maillage avec la prise en compte de l'interphase.         Influence du coefficient de Poisson de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence de l'épaisseur de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.         Amélioration de la prédiction en incluant l'interphase.         Comparaison des valeurs moyennes expérimentales/simulations numériques.         Champ de contraintes globales et locales (critère de Von Mises).         Exemple de maillage du composite avec une interphase discrétisée par des éléments COH2D4.         Effet du paramètre de stabilité <i>viscosity</i> sur la réponse macroscopique numérique du composite.	<ul> <li>60</li> <li>61</li> <li>62</li> <li>63</li> <li>64</li> <li>65</li> <li>66</li> <li>67</li> <li>68</li> <li>69</li> <li>70</li> </ul>
<ul> <li>4.2</li> <li>4.3</li> <li>4.4</li> <li>4.5</li> <li>4.6</li> <li>4.7</li> <li>4.8</li> <li>4.9</li> <li>4.10</li> <li>4.11</li> <li>4.12</li> <li>4.13</li> </ul>	Infustration de la superposition de deux interphases fors de la generation de la géométrie.         Algorithme du balayage paramétrique.         Étude du maillage avec la prise en compte de l'interphase.         Influence du coefficient de Poisson de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence de l'épaisseur de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.         Amélioration de la prédiction en incluant l'interphase.         Comparaison des valeurs moyennes expérimentales/simulations numériques.         Champ de contraintes globales et locales (critère de Von Mises).         Exemple de maillage du composite avec une interphase discrétisée par des éléments COH2D4.         Effet du paramètre de stabilité <i>viscosity</i> sur la réponse macroscopique numérique du composite.         Chemin illustrant l'élément cohésif sous ABAQUS <sup>TM</sup> [8].	<ul> <li>60</li> <li>61</li> <li>62</li> <li>63</li> <li>64</li> <li>65</li> <li>66</li> <li>67</li> <li>68</li> <li>69</li> <li>70</li> <li>71</li> </ul>
<ul> <li>4.2</li> <li>4.3</li> <li>4.4</li> <li>4.5</li> <li>4.6</li> <li>4.7</li> <li>4.8</li> <li>4.9</li> <li>4.10</li> <li>4.11</li> <li>4.12</li> <li>4.13</li> <li>4.14</li> </ul>	Influstration de la superposition de deux interphases fors de la génération de la prise en compte de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence de l'épaisseur de l'interphase sur le comportement global du composite.       Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.       Amélioration de la prédiction en incluant l'interphase.         Amélioration de la prédiction en incluant l'interphase.       Améliorations numériques.         Champ de contraintes globales et locales (critère de Von Mises).       Exemple de maillage du composite avec une interphase discrétisée par des éléments COH2D4.         Effet du paramètre de stabilité viscosity sur la réponse macroscopique numérique du composite.       Effet du paramètre de stabilité viscosity sur la réponse macroscopique numérique du composite.         Réponse traction/séparation avec perte de rigidité linéaire d'un élément co-	<ul> <li>60</li> <li>61</li> <li>62</li> <li>63</li> <li>64</li> <li>65</li> <li>66</li> <li>67</li> <li>68</li> <li>69</li> <li>70</li> <li>71</li> </ul>
<ul> <li>4.2</li> <li>4.3</li> <li>4.4</li> <li>4.5</li> <li>4.6</li> <li>4.7</li> <li>4.8</li> <li>4.9</li> <li>4.10</li> <li>4.11</li> <li>4.12</li> <li>4.13</li> <li>4.14</li> </ul>	Illustration de la superposition de deux interphases fors de la génération de la géométrie.         Algorithme du balayage paramétrique.         Étude du maillage avec la prise en compte de l'interphase.         Influence du coefficient de Poisson de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence de l'épaisseur de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.         Amélioration de la prédiction en incluant l'interphase.         Comparaison des valeurs moyennes expérimentales/simulations numériques.         Champ de contraintes globales et locales (critère de Von Mises).         Exemple de maillage du composite avec une interphase discrétisée par des éléments COH2D4.         Effet du paramètre de stabilité viscosity sur la réponse macroscopique numérique du composite.         Chemin illustrant l'élément cohésif sous ABAQUS <sup>TM</sup> [8].         Réponse traction/séparation avec perte de rigidité linéaire d'un élément cohésif [8].	<ul> <li>60</li> <li>61</li> <li>62</li> <li>63</li> <li>64</li> <li>65</li> <li>66</li> <li>67</li> <li>68</li> <li>69</li> <li>70</li> <li>71</li> <li>72</li> </ul>
<ul> <li>4.2</li> <li>4.3</li> <li>4.4</li> <li>4.5</li> <li>4.6</li> <li>4.7</li> <li>4.8</li> <li>4.9</li> <li>4.10</li> <li>4.11</li> <li>4.12</li> <li>4.13</li> <li>4.14</li> <li>4.15</li> </ul>	Illustration de la superposition de deux interphases lors de la generation de la géométrie.         Algorithme du balayage paramétrique.         Étude du maillage avec la prise en compte de l'interphase.         Influence du coefficient de Poisson de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence de l'épaisseur de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.         Amélioration de la prédiction en incluant l'interphase.         Comparaison des valeurs moyennes expérimentales/simulations numériques.         Champ de contraintes globales et locales (critère de Von Mises).         Exemple de maillage du composite avec une interphase discrétisée par des éléments COH2D4.         Effet du paramètre de stabilité viscosity sur la réponse macroscopique numérique du composite.         Chemin illustrant l'élément cohésif sous ABAQUS <sup>TM</sup> [8].         Réponse traction/séparation avec perte de rigidité linéaire d'un élément cohésif [8].         Comparaison du comportement macroscopique du composite avec inter-	<ul> <li>60</li> <li>61</li> <li>62</li> <li>63</li> <li>64</li> <li>65</li> <li>66</li> <li>67</li> <li>68</li> <li>69</li> <li>70</li> <li>71</li> <li>72</li> </ul>
<ul> <li>4.2</li> <li>4.3</li> <li>4.4</li> <li>4.5</li> <li>4.6</li> <li>4.7</li> <li>4.8</li> <li>4.9</li> <li>4.10</li> <li>4.11</li> <li>4.12</li> <li>4.13</li> <li>4.14</li> <li>4.15</li> </ul>	Influstration de la superposition de deux interphases fors de la generation de la géométrie.         Algorithme du balayage paramétrique.         Étude du maillage avec la prise en compte de l'interphase.         Influence du coefficient de Poisson de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence de l'épaisseur de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.         Amélioration de la prédiction en incluant l'interphase.         Comparaison des valeurs moyennes expérimentales/simulations numériques.         Champ de contraintes globales et locales (critère de Von Mises).         Exemple de maillage du composite avec une interphase discrétisée par des éléments COH2D4.         Effet du paramètre de stabilité viscosity sur la réponse macroscopique numérique du composite.         Chemin illustrant l'élément cohésif sous ABAQUS <sup>TM</sup> [8].         Réponse traction/séparation avec perte de rigidité linéaire d'un élément cohésif [8].         Comparaison du comportement macroscopique du composite avec interphase COH2D4, paramètres expérimentaux proposés par Zhou [9] et Mantic	<ul> <li>60</li> <li>61</li> <li>62</li> <li>63</li> <li>64</li> <li>65</li> <li>66</li> <li>67</li> <li>68</li> <li>69</li> <li>70</li> <li>71</li> <li>72</li> </ul>
<ul> <li>4.2</li> <li>4.3</li> <li>4.4</li> <li>4.5</li> <li>4.6</li> <li>4.7</li> <li>4.8</li> <li>4.9</li> <li>4.10</li> <li>4.11</li> <li>4.12</li> <li>4.13</li> <li>4.14</li> <li>4.15</li> </ul>	Influstration de la superposition de deux interphases fors de la generation de la géométrie.         Algorithme du balayage paramétrique.         Étude du maillage avec la prise en compte de l'interphase.         Influence du coefficient de Poisson de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence de l'épaisseur de l'interphase sur le comportement global du composite.         Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.         Amélioration de la prédiction en incluant l'interphase.         Comparaison des valeurs moyennes expérimentales/simulations numériques.         Champ de contraintes globales et locales (critère de Von Mises).         Exemple de maillage du composite avec une interphase discrétisée par des éléments COH2D4.         Effet du paramètre de stabilité <i>viscosity</i> sur la réponse macroscopique numérique du composite.         Chemin illustrant l'élément cohésif sous ABAQUS <sup>TM</sup> [8].         Réponse traction/séparation avec perte de rigidité linéaire d'un élément cohésif [8].         Comparaison du comportement macroscopique du composite avec interphase COH2D4, paramètres expérimentaux proposés par Zhou [9] et Mantic [10].	<ul> <li>60</li> <li>61</li> <li>62</li> <li>63</li> <li>64</li> <li>65</li> <li>66</li> <li>67</li> <li>68</li> <li>69</li> <li>70</li> <li>71</li> <li>72</li> <li>73</li> </ul>

4.17	Comparaison du comportement macroscopique du composite avec inter- phase COH2D4, paramètres expérimentaux proposés par Zhou [9]	74
4.18	Comparaison du comportement macroscopique du composite avec inter- phase COH2D4, paramètres analytiques proposés par Mantic [10]	75
4.19	Influence du paramètre de rigidité de l'interphase sur le comportement ma- croscopique du composite	76
4.20	Influence de la résistance élastique à la traction de l'interphase $t^o$ sur le	70
4.21	comportement macroscopique du composite	77
4.22	macroscopique du composite	77 78
<b>F</b> 1	I O I I	
5.1	sissement [11]	84
5.2	Évolution du module d'élasticité mesuré par AFM à différentes distances à	Q /
5.3	Évolution du module d'élasticité mesuré par AFM à différentes distances à	04
5.4	partir de la fibre -avant et après vieillissement	85
	après un vieillissement naturel de 76 semaines.	86
5.5	la valeur du module de la valeur du module de Young (prise en compte de la valeur du module de la matrice par microscope à force atomique ( <i>AFM</i> )	
5.6	dans les modèles analytiques)	87
	valeur du module de la matrice par essai de flexion 3 points dans les mo-	0.0
5.7	Bornes de validité de la valeur du module de Young (prise en compte de la	88
	valeur du module de la matrice vieillie par AFM dans les modèles analytiques).	88
5.8	Champ de contraintes locales (critère Mises) dans le composite à l'état ini- tial (a) et (b) et à l'état vieilli (c).	89
5.9	Champ de contraintes locales (critère Mises) dans le composite à l'état ini-	00
	tial (a) et (b) et à l'état vieilli (c) - échelle normalisée	90
5.10	Clichés MEB en contraste chimique du composite époxy-aliphatique [7].	92
5.11	Evolution de la temperature de ramollissement $T_s$ de la matrice en fonction de la distance à partir de l'interface de la fibre [12]	92
5.12	Cinétique de prise en eau dans les échantillons de résines et de composites	93
5.13	Maillage global choisi, composite 2D V $_{f}$ = 50%,,,,	94
5.14	Conditions aux limites de la simulation de la diffusion de l'eau dans le VER.	95
5.15	Comparaison des résultats expérimentaux et numériques de cinétique de la	
	prise en eau dans la résine.	95
5.16	Comparaison des résultats expérimentaux et numériques de cinétique de la prise en eau dans le composite.	96
5.17	Schéma de principe de l'homogénéisation pour modéliser la cinétique de	
	diffusion.	96
B.1	Pointe thermo-résistive et zone affectée.	III
B.2	Schéma de principe de fonctionnement de la $\mu$ -TA [12]	IV
B.3	Cartographie des conductivités thermiques apparentes mesurées par $\mu$ -TA	IT 7
	sur un composite UD charge à 50% [13].	1V

B.4	Exemple des évolutions de la température de ramollissement pour les me-		
	sures locales (1 à 6) réalisées sur un composite UD [14]	V	
B.5	Exemple de mesures locales dans la matrice du composite à différentes dis-		
	tances de l'interface de la fibre [13]	V	

# Liste des tableaux

2.1	Principales propriétés physiques des fibres de verre E [15]	27
2.2	Propriétés mécaniques des fibres de verre E ensimées	27
2.3	Principales propriétés physiques de la résine époxy thermodurcissable [2, 16].	28
2.4	valeurs moyennes calculees a partir des données experimentales traction	20
0.5		29
2.5 2.6	Valeurs moyennes calculées à partir des données expérimentales en sens	30
	transverse du composite UD, traction monotone.	32
2.7	Propriétés des constituants du composite utilisées dans les modèles numé-	
	riques.	35
3.1	Paramètres optimums pour le VER.	54
4.1	Paramètres fixes pour l'analyse de sensibilité de la taille de maille globale.	62
4.2	Paramètres de la loi de comportement traction/séparation	72
4.3	Paramètres de la loi de comportement traction/séparation.	75
5.1	Propriétés mécaniques à l'état initial de la résine et du composite [11]	83
5.2	Propriétés des constituants du composite utilisées dans les modèles numé-	
	riques	85
5.3	Propriétés des constituants du composite à l'état vieilli utilisées dans les	
	modèles numériques.	86
5.4	Module d'élasticité du composite à l'état initial et vieilli, obtenu expérimen- talement et numériquement (prise en compte de la valeur du module de la	
	matrice par AFM dans le modèle numérique).	87
5.5	Module d'élasticité du composite à l'état initial, obtenu expérimentalement	
	et numériquement (prise en compte de la valeur du module de la matrice	
	par essai de flexion 3 points dans le modèle numérique).	87
5.6	Propriétés des matériaux pour modéliser la cinétique de diffusion	94
5.7	Propriétés de l'interphase pour modéliser la cinétique de diffusion.	94
A.1	Temps de génération de la géométrie pour les différentes configurations de	
	VER	Π

## Liste des acronymes

- AES Spectroscopie des Électrons d'Auger ou -Auger Electron Spectroscopy-.
- AFM Microscope à force atomique ou -Atomic Force Microscopy-.
- ATG Analyse Thermo-Gravimétrique.
- BEM Méthode des éléments de frontière ou -Boundary Elements Method-.
- CL Conditions aux limites.
- CMO Composites à matrice organique.
- CV Coefficients de variation.

DDL Degrés de liberté.

DGEBA Bisphénol A diglycidyl éther.

- DMA Analyse Mécanique Dynamique ou -Dynamic Mechanical Analysis-.
- DMT Derjaguin Muller Toporov.
- DSC Analyse Calorimétrique Différentielle ou -Differential Scanning Calorimetry-.
- **EF** Éléments Finis.
- GUI Interface Graphique pour l'utilisateur ou -Graphical User Interface-.
- IRTF Infrarouge à Transformée de Fourier.
- **KUBC** Condition de déformation homogène au contour ou *–Kinematic Uniform Boundary Conditions–*.
- MEB Microscope Électronique à Balayage.
- MET Microscope Électronique à Transmission.
- NNA Algorithme des Plus Proches Voisins ou -Nearest Neighbor Algorithm-.
- RSA Adsorption Séquentielle Aléatoire ou -Random Sequential Adsorption-.
- **SIMS** Spectrométrie de Masse à Ionisation Secondaire ou –*Time-of-Flight Secondary Ion Mass Spectrometry*–.
- **SUBC** Condition de contrainte homogène au contour ou –*Static Uniform Boundary Conditions*–.
- **UD** Unidirectionnel.
- VER Volume Élémentaire Représentatif.
- XPS Spectroscopie Photo-électronique X ou -X-ray Photoelectron Spectroscopy-.

## Notation

- $e_i$  Épaisseur de l'interphase.
- $\epsilon\,$  Tenseur des déformations du VER.
- $\bar{\epsilon}$  Tenseur des déformations macroscopique.
- $\epsilon_R\,$  Déformation à rupture du composite.
- *j* Tenseur des flux du VER.
- $\overline{j}$  Tenseur des flux macroscopique.
- $\nabla_c$  Tenseur des gradients de concentrations du VER.
- $\bar{\nabla}_c$  Tenseur des gradients de concentrations macroscopique.
- $v_f$  Coefficient de Poisson des fibres.
- $v_i$  Coefficient de Poisson de l'interphase.
- $v_m$  Coefficient de Poisson des fibres.
- $\sigma$  Tenseur des contraintes du VER.
- $\bar{\sigma}$  Tenseur des contraintes macroscopique.
- $\sigma_R~$  Contrainte à rupture du composite.
- V Volume du VER.
- $V_f$  Taux volumique de fibres.
- E<sub>c</sub> Module d'élasticité du composite.
- E<sub>0</sub> Module d'élasticité convergeant.
- $E_f$  Module d'élasticité des fibres.
- E<sub>*i*</sub> Module d'élasticité de l'interphase.
- $E_m$  Module d'élasticité de la matrice.

## Introduction

« La solitude de l'écrivain, les mots qui vous échappent, le trac avant de commencer, le trou blanc, le trou noir... »

Les yeux jaunes des crocodiles, Katherine Pancol

De par leurs nombreuses qualités (excellent rapport poids/performance, absence de corrosion, bonne tenue mécanique en fatigue, par exemple), les matériaux composites occupent aujourd'hui une place de premier ordre dans l'industrie et la vie de tous les jours. Ils sont présents dans de nombreux secteurs d'activité comme l'aéronautique, l'automobile, l'architecture, l'industrie des loisirs et des sports, pour ne citer que quelques exemples. Les maîtrises acquises au fil des années permettent actuellement de réaliser des matériaux composites à hautes performances mécaniques qui les placent comme des alternatives face aux matériaux plus conventionnels comme les alliages par exemple. Toutefois, si les performances à l'état initial sont élevées, ces dernières peuvent chuter plus ou moins rapidement en fonction de l'environnement en service des pièces composites réalisées. La communauté scientifique et industrielle a largement étudié les phénomènes de durabilité, d'une part en fatigue et d'autre part en présence de milieux humides. Pour augmenter les domaines d'application avec des durées de vie importantes (par exemple dans les énergies marines ou éoliennes), il faut garantir un maintien des propriétés mécaniques sur ces échelles de temps (plusieurs dizaines d'années).

Pour améliorer les propriétés initiales et leur évolution au cours du temps, l'utilisation des simulations numériques est l'un des outils fréquemment employé. Cet outil permet de calculer rapidement les propriétés effectives du composite qui pourraient être attendues pour un assemblage considéré (matrice/renfort). La performance sur la valeur calculée est directement liée à la justesse des propriétés introduites dans les modèles. Par ailleurs, il convient de prendre en compte, pour le modèle, une description de la géométrie la plus représentative possible du composite réel (distribution des fibres, dimensions des renforts, défauts). De nombreux travaux décrivent le composite comme étant un simple matériau bi-constituant avec une interface entre la matrice et les renforts. Les physico-chimistes ont largement démontré l'existence d'une zone matricielle au voisinage des fibres ayant des propriétés différentes de celles de la matrice loin des fibres. Cette zone spécifique, dénommée interphase, doit être prise en compte dans les modèles numériques au risque de surestimer ou sous-estimer les propriétés effectives du composite réel.

L'objectif du travail de recherche initié dans le cadre de cette thèse est de proposer des modèles numériques capables de simuler et de prédire le comportement macroscopique d'un composite unidirectionnel (*UD*) à base d'une matrice époxy renforcée par des fibres de verre. Des travaux précédents réalisés au laboratoire ont montré que pour répondre à

cet objectif, une approche multi-échelle est indispensable afin de limiter les coûts de calculs associés aux simulations macroscopiques. L'approche mise en place dans cette thèse sera basée sur la définition d'un micro-modèle. Ce dernier devra prendre en compte les zones d'interphase propres aux composites modélisés. Le succès de ce travail repose sur la qualité et la disponibilité de données expérimentales pour décrire les comportements des constituants et du composite, mais également, les caractéristiques des interphases.

Ce manuscrit est structuré en cinq chapitres. Le chapitre 1 est dédié dans un premier temps, à l'état de l'art sur la définition des matériaux composites, de leurs constituants, de leur mise en œuvre et des notions d'interface et d'interphase. Dans un second temps, l'approche multi-échelle introduit les notions fondamentales du volume élémentaire représentatif (*VER*) et d'homogénéisation numérique.

Le chapitre 2, basé sur des travaux réalisés précédemment au laboratoire, présente l'approche expérimentale permettant d'obtenir les valeurs indispensables à la mise en place par la suite des modèles numériques. Les matériaux étudiés sont présentés dans ce chapitre ainsi que les techniques de caractérisation (à différentes échelles) employées sur ces matériaux.

Le chapitre 3 est consacré à la définition du VER capable de décrire le comportement macroscopique du composite. Dans cette partie, un outil de génération automatique des micro-structures de composites UD est développé. A partir de cet outil, une étude paramétrique exhaustive est réalisée sur le VER. Les propriétés de chaque constituant du composite, obtenues expérimentalement, seront directement introduites dans les modèles numériques afin de s'approcher du comportement réel du matériau. Une synthèse des caractéristiques optimales du VER est mentionnée en fin de chapitre.

Le chapitre 4 introduit les interphases dans les micro-modèles numériques pour améliorer la prédiction des résultats numériques par rapport aux résultats expérimentaux. Une étude paramétrique dédiée aux propriétés de l'interphase est menée. Dans une première étape, l'interphase est considérée, dans les micro-modèles, par des éléments de type solide. Dans une seconde étape, la présence de cette interphase est réalisée à partir d'éléments cohésifs avec une loi de type traction/séparation.

Le chapitre 5 propose deux études de cas pour évaluer l'approche VER précédemment mise en place. Dans le premier cas, l'objectif est de prédire le comportement des composites soumis à un vieillissement naturel ou accéléré. Dans un second cas, la cinétique de diffusion de l'eau dans le composite est simulée avec le micro-modèle. Pour chaque cas, les propriétés des matériaux et les résultats expérimentaux sont présentés. Ces informations seront prises en compte dans les modèles numériques dans le but de s'approcher du comportement réel du composite.

# **Chapitre 1**

# Matériaux composites et approche multi-échelle

« Savoir écouter, c'est posséder, outre le sien, le cerveau des autres »

Léonard De Vinci

#### Sommaire

1.1	Matéi	riaux composites	5
	1.1.1	Définition et classement	5
	1.1.2	Les résines époxy	7
	1.1.3	Les fibres de verre	7
	1.1.4	Mise en œuvre du composite	9
	1.1.5	Notion d'interface et d'interphase	11
1.2	Appro	oche multi-échelle	12
	1.2.1	Volume élémentaire représentatif ( <i>VER</i> )	13
	1.2.2	Homogénéisation numérique	14
	1.2.3	Prise en compte de l'interface dans les micro-modèles numériques	15
1.3	Conc	lusion	19

Ce premier chapitre décrit, après avoir présenté le contexte de ce travail, quelques généralités nécessaires pour la bonne compréhension des chapitres suivants. Dans un premier temps, la définition d'un matériau composite est énoncée. Ensuite, les constituants et la mise en œuvre du composite sont détaillés. Une attention particulière est donnée aux notions d'interface et d'interphase. Dans un second temps, l'approche multi-échelle introduit les notions fondamentales du VER et des méthodes classiques d'homogénéisation numérique. Les approches de modélisation rencontrées dans la littérature prenant en compte l'interface serviront de base à la construction des interphases dans les VER développés dans ce travail de recherche. L'utilisation d'éléments de type cohésif gouvernés par une loi traction/séparation semble cohérente pour décrire le comportement mécanique des zones d'interphase. Sur ces dernières décennies, les applications industrielles reposant sur des matériaux composites ont connu une grande expansion dans divers domaines comme l'aéronautique, l'automobile, l'architecture, l'industrie des loisirs et des sports, le secteur de l'énergie renouvelable [2]. Ce plébiscite s'explique par leur ratio poids/performance (figure 1.1) qui les place souvent sans concurrence directe avec les autres classes de matériaux [17]. Un autre atout, principalement face aux matériaux métalliques, est l'absence de corrosion [18]. De plus, il faut souligner généralement une bonne tenue mécanique en fatigue [19].



FIGURE 1.1 – Propriétés des matériaux en fonction de leur module de Young et leur densité [1].

Le choix d'un matériau pour un système donné repose bien évidemment sur les performances initiales, en accord avec les attentes fonctionnelles de la pièce ou de la structure, mais également sur le maintien de ces performances tout au long de sa vie en service. Dans le cas des composites, il est bien connu que les propriétés initiales sont généralement élevées mais également qu'elles vont chuter plus ou moins rapidement en fonction de l'environnement de service [20, 21]. Cette perte de propriétés est bien souvent la conséquence directe d'une dégradation de l'interface fibre/matrice au cours du vieillissement physique et/ou chimique [19]. Afin d'améliorer cette durabilité, il est essentiel de bien comprendre les phénomènes physicochimiques associés bien souvent complexes à appréhender.

#### 1.1 Matériaux composites

#### 1.1.1 Définition et classement

Les composites sont des matériaux hétérogènes composés à minima de deux composants non miscibles de natures différentes : une matrice continue et une phase discontinue (charge ou renfort). Ces deux constituants sont séparés par une interface qui est un site pouvant être critique vis à vis de la performance du composite et de sa tenue mécanique.

Un des avantages des composites par rapport aux autres matériaux est la possibilité de concevoir et réaliser un matériau avec des propriétés spécifiques à un cahier des charges. Étant donné que divers facteurs interviennent dans leur définition mécanique comme la distribution des fibres, le taux volumique, l'interaction entre ses composants, par exemple, un matériau composite peut rapidement apparaitre comme un matériau sur mesure. Face à ce grand nombre de matériaux différents, la classification des composites se fait soit par la forme de ses renforts, soit par la nature de ses constituants. En fonction de la forme de leurs composants, il existe deux grandes familles de composites : ceux renforcés par des particules et ceux à fibres longues (utilisées en état ou tissées) ou courtes (pour fabriquer des mats ou injectées directement dans la matrice). L'autre classification, suivant la nature des constituants, va dépendre dans un premier temps de la matrice et ensuite des renforts. Seules certaines associations ont un usage industriel, d'autres font encore l'objet de développements. A titre d'exemple, il est possible de citer [16] :

- (a) Les composites à matrice organique (CMO) renforcés par des fibres d'origines :
  - minérales comme le verre ou le carbone;
  - organiques comme le kevlar ou les polyamides;
  - métalliques comme le bore ou l'aluminium.
- (b) Les composites à matrice métallique (alliages légers et ultra-légers d'aluminium, de magnésium ou de titane) avec des fibres d'origines :
  - minérales comme le carbone ou le carbure de silicium;
  - métalliques comme le bore;
  - métallo-minérales comme les fibres de bore revêtues de carbure de silicium.
- (c) Les composites à matrice minérale ou céramique, avec des :
  - fibres métalliques comme le bore;
  - des particules d'origines métalliques comme les cermets;
  - des particules d'origines minérales comme les carbures ou les nitrures.

Une attention particulière sera donnée aux CMO, renforcés par des fibres longues orientées dans la même direction (figure 1.2), une famille largement utilisée dans le secteur industriel des matériaux à haute performance mécanique. Dans ce cadre, les fibres de verre servent bien souvent de renfort dans la fabrication de composites. Pour la partie matrice, parmi les polymères thermodurcissables, les résines époxy sont généralement les plus utilisées.



FIGURE 1.2 – Illustration schématique d'un composite UD et ses constituants.

#### 1.1.2 Les résines époxy

Les matrices résineuses peuvent se classer en deux familles :

- Résines thermoplastiques comme les polyoléfines ou les polyamides.
- Résines thermodurcissables comme les polyesters, les phénoliques, les mélamines, les silicones, les polyuréthannes ou les époxydes.

Du fait de leurs bonnes caractéristiques mécaniques, les résines époxy sont en majorité les matrices des composites à hautes performances utilisées pour les constructions aéronautiques, les missiles, les sports et loisirs. Leurs propriétés mécaniques en traction, flexion, compression, choc et fluage sont supérieures à celles des polyesters. Toutefois, pour assurer ces performances, elles doivent suivre un cycle de polymérisation très long [16].

Les résines doivent être assez déformables et présenter une bonne compatibilité avec les fibres. Il s'agit de polymères modifiés par l'ajout de différents adjuvants et additifs tels que des agents de démoulage, des stabilisants, des pigments [16].

#### 1.1.3 Les fibres de verre

Une fibre est une forme de matière possédant une résistance à la rupture et souvent un module d'élasticité beaucoup plus élevés que ceux du même matériau sous sa forme massive [22], cela s'explique par la faible probabilité de défauts de surfaces lors de l'étirement du matériau. Pour le cas des fibres de verre (produit de grande diffusion grâce à son rapport performance/prix), il existe les **demi-produits** illustrés sur la figure 1.3.



FIGURE 1.3 – Demi-produits, fibres de verre [2].

Les fibres de verre ont une importance industrielle remarquable et leur commercialisation est essentiellement sous forme de :

- Fibres courtes : quelques centimètres ou fractions de millimètres comme dans les feutres, les mats et les fibres courtes injectées utilisées en moulage.
- Fibres longues : coupées au moment de la fabrication du matériau composite, utilisées en l'état, ou bien tissées.

Lors du processus de fabrication, le verre fondu est versé dans une filière avec des diamètres d'environ 1 mm à 2 mm. Les fibres sont étirées jusqu'à ce qu'elles aient un

diamètre de l'ordre de 5  $\mu$ m à 15  $\mu$ m [23]. Ces fibres inorganiques ont un comportement fragile et sont sensibles à l'abrasion. Cette contrainte est solutionnée par l'ajout d'un revêtement de protection à la surface de la fibre (figure 1.4). Ce revêtement dénommé *ensimage* est une résine de composition optimisée qui assure un double rôle : protéger la fibre en amont de la mise en service et garantir une bonne compatibilité (chimique) entre la fibre et la matrice.



FIGURE 1.4 – Procédé d'étirage mécanique des fibres avec ensimage [3].

#### L'ensimage

Cette solution typiquement aqueuse permet d'augmenter la mouillabilité de la surface des fibres de verre dans le but d'améliorer l'adhésion avec la future résine [24, 25]. L'ensimage le plus simple est constitué d'eau et d'un agent de couplage. Les organosilanes sont les agents de couplages préférentiellement utilisés dans l'industrie, ces structures moléculaires sont de faibles tailles et très efficaces [26]. L'utilisation d'un ensimage qui contient des composés silanes (ou titanates ou zirconates) est une solution pertinente pour les systèmes à fibres de verre afin d'assurer une protection de la surface de la fibre face à des attaques corrosives. Néanmoins, si seulement des organosilanes sont utilisés, l'ensimage fragilisera les fibres et elles casseront lors du processus de formulation [25]. C'est pourquoi l'ensimage est un mélange de principalement trois composants choisis pour leurs fonctions spécifiques dont la proportion est de l'ordre de [27] :

- 80%-90% d'agent filmogène qui a pour but de protéger les fibres des contacts interfibres, d'assurer la cohésion des mono-filaments et de favoriser l'imprégnation de la matrice. Il déterminera aussi l'amélioration de l'adhésion, les propriétés mécaniques du composite, la résistance à l'eau et/ou aux attaques chimiques et la stabilité thermique.
- 5%-10% d'agent couplant qui favorise la création de liaisons fortes entre la fibre et la matrice. Ceux-ci sont des organosilanes de formule  $R Si(X)_3$  qui augmentent l'in-

teraction chimique entre la surface des fibres et la résine par la création de liaisons covalentes.

— 5%-10% d'agents auxiliaires comme des surfactants, des lubrifiants, des antistatiques et des antioxydants, qui favorisent la mise en œuvre de l'ensimage (i.e. répartition plus uniforme et homogène de l'ensimage).



FIGURE 1.5 – Distribution générale des constituants d'un ensimage.

La stabilité de l'ensimage est un des paramètres clés pour les fabricants de fibres de verre. Un ensimage est considéré comme stable quand il reste dans un état homogène après sa formulation jusqu'au moment de son application sur la fibre. Les fabricants doivent donc impérativement accorder une importance majeure à ce paramètre afin de choisir correctement les matières premières des formulations d'ensimage. Il n'existe pas de procédure normalisée pour tester la stabilité de l'ensimage. Dans l'industrie, chaque producteur maîtrise son propre *savoir-faire* et personnalise ses tests pour démontrer cette stabilité ainsi que la formulation de son ensimage pour l'adapter à ses besoins selon l'application concernée. Ce paramètre reste donc très critique dans le processus de fabrication des fibres de verre [25].

#### 1.1.4 Mise en œuvre du composite

Les techniques de mise en œuvre de composites sont multiples. Il est possible de les classer en deux catégories : les procédés manuels et les procédés automatiques. La première famille requiert des investissements moins coûteux (comme le moulage au contact par exemple) et bien adaptés à la réalisation de pièces en petites séries. L'inconvénient majeur de ces technologies manuelles est la qualité finale de la pièce qui est directement liée à la performance de l'opérateur. Des solutions de mise en œuvre sous vide permettent de réduire cet inconvénient.

D'autre procédés, plus mécanisés, reposant sur des investissements plus lourds vont permettre d'améliorer la qualité finale des pièces avec par exemple un meilleur contrôle de l'épaisseur de ces dernières, comme dans le cas du procédé RTM (Resin Transfer Molding).

Une autre technique fréquemment utilisée pour la fabrication des composites hautes performances et grande série, est l'enroulement filamentaire. Des procédés dérivés de cette technique sont fréquemment employés en industrie pour la mise en œuvre de composites UD. Le renfort (fil continu, ruban, etc.) imprégné de résine catalysée est enroulé avec une légère tension, sur un mandrin cylindrique ou de révolution en rotation. Suivant les mouvements relatifs du mandrin et du système d'approvisionnement en renfort, divers types d'enroulements (et par conséquent de stratifications) sont obtenus (e.g. figure 1.6). On distingue : l'enroulement circonférentiel, l'enroulement hélicoïdal, l'enroulement polaire [16]. Ce procédé permet l'obtention de pièces de très bonne qualité, leur principale limite portant sur les directions des renforts ainsi mis en place. Ce choix de procédé est directement lié à l'application finale de la pièce mise en œuvre.





La figure 1.7 regroupe les principaux procédés de mise en œuvre des composites à fibres longues à matrice durcissable en fonction de la qualité finale des pièces réalisées et de la vitesse de production propre à chaque technique.



Vitesse de production

FIGURE 1.7 – Principaux procédés de fabrication de composites thermodurcissables renforcés par des fibres longues.

Quand les fibres ensimées imprègnent la matrice, une réaction chimique se produit, modifiant le réseau de la matrice au voisinage des renforts. Une nouvelle région de dimensions finies, connue comme *interphase*, est créée entre la matrice et les fibres ensimées. Elle a des propriétés mécaniques non uniformes qui sont différentes de celles des composants bruts [28, 29, 30]. L'ensimage favorise donc le couplage chimique entre fibres et matrice, mais entraîne une modification des propriétés de la matrice au voisinage de l'interface fibre/matrice. En effet, une modification plus ou moins importante du comportement et des propriétés mécaniques et physico-chimiques de cette zone matricielle est mise en évidence [23]. La réactivité des agents de couplage avec les agents filmogènes doit être maximale pour assurer un bon ensimage des renforts, c'est-à-dire, des bonnes propriétés interfaciales (adhésion, force, dissipation d'énergie). De plus, la réactivité chimique et la nature des agents filmogènes peuvent influencer significativement l'interphase ainsi que son mode de défaillance [24].

#### 1.1.5 Notion d'interface et d'interphase

L'interface est considérée comme la limite 2D, c'est-à-dire, la surface de contact entre les fibres et la matrice [27]. Une interface optimisée est nécessaire pour que le composite puisse atteindre des propriétés mécaniques maximales en statique et en dynamique. Les composites pour des applications structurales requièrent une interface fibre/matrice très solide mais fragile tandis que ceux utilisés pour leur performance sous l'impact ou pour leur tolérance à l'endommagement, nécessitent une interphase ayant une capacité d'absorption d'énergie élevée [31, 24].

L'interphase est une zone tridimensionnelle de transition entre les fibres et la matrice qui possède ses propres caractéristiques mécano-chimiques, différentes de celles de la matrice [26]. Elle se forme par inter-diffusion des composants de l'ensimage avec la matrice [24], comme illustré à la figure 1.8. C'est pourquoi, ses propriétés sont fortement influencées par la nature du traitement des fibres. La compatibilité des constituants de l'ensimage doit être optimale avec la matrice polymère pour éviter que certains composants non réactifs de l'ensimage restent à l'interphase [32]. Si cela arrive, une réduction de la densité de réticulation du réseau et de la durabilité de l'interphase seront identifiées [33].



FIGURE 1.8 – Ensimage [4].

La connaissance de l'influence de l'ensimage sur le développement de l'interphase, représente un enjeu précieux pour les industriels même si l'amélioration des interphases n'est pas suffisante pour optimiser le transfert de contraintes des composites [34]. La qualité de l'adhésion est directement liée d'une part aux propriétés intrinsèques de la matrice et d'autre part aux propriétés de l'ensimage. Si les matériaux composites doivent être préalablement bien choisis, tout particulièrement dans le cas des renforts ensimés afin d'optimiser la qualité de l'adhésion matrice/renfort.

L'épaisseur de l'interphase dépend du type d'ensimage utilisé pour le traitement de surface des fibres et de la concentration de l'agent de couplage silane utilisé [4, 32, 35]. Elle dépend aussi de la capacité de l'agent de couplage à réagir (chimiquement) et à favoriser l'inter-diffusion avec la matrice. Malgré sa faible taille (de l'ordre de quelques nanomètres), ses propriétés mécaniques peuvent significativement affecter le comportement macroscopique global du composite [36].

La qualité d'un matériau composite et spécialement sa performance mécanique sont donc directement liées à la qualité de son interphase [37, 38, 39]. Le rôle principal de cette dernière est d'assurer le transfert des contraintes jusqu'aux renforts [40, 31]. La formation d'une interphase soit souple soit rigide est possible, cela va dépendre de la combinaison entre le renfort, la matrice et l'agent de couplage appliqué. Le développement d'une interphase fibre/matrice solide, ou l'absence de celle-ci, a un effet significatif sur le mode de rupture et la fracture des surfaces des composites [41]. De même, la rupture d'un composite (couramment de type décohésion [42]) sous chargements dans sa section transverse, commence à l'interface fibre/interphase et donc ses propriétés affectent énormément la résistance transversale du matériau [43, 44].

Lors de l'endommagement du composite, la formulation de l'ensimage peut influencer l'absorption d'énergie dans cette zone matricielle. Le silane et les agents filmogènes influencent les propriétés interfaciales par la modification du réseau. Le choix de ces agents est d'une grande importance pour l'adhérence de l'interface et l'absorption d'énergie de l'interphase [24]. Une texturisation de l'interphase peut aussi contrôler son absorption d'énergie. A titre d'exemple, l'utilisation de nano-particules préformées de silice suspendues dans la formulation des ensimages permet de piloter la rugosité de la surface des fibres [31].

Pour améliorer la performance des matériaux composites, l'adhésion entre la matrice et les renforts doit être prioritaire et par conséquent, il est crucial de comprendre l'effet des paramètres de l'interphase sur le comportement global du composite. Toutefois, tout changement de ces paramètres ou des paramètres des autres constituants du composite, impose la mise en place de campagnes expérimentales permettant de caractériser le nouveau comportement macroscopique du matériau. Dès lors, des coûts significatifs en temps, en matière et financiers sont rapidement atteints [45]. Pour réduire ces coûts, le recours à des techniques de modélisations numériques devient pertinent. Par exemple, les modèles basés sur une description micro-mécanique sont plébiscités sur ces dernières années pour leur efficience (précision/temps) [46].

#### 1.2 Approche multi-échelle

Plusieurs auteurs analysent les composites à l'échelle macroscopique en considérant des propriétés homogénéisées, mais cette approche ne permet pas de visualiser les interactions entre les constituants du composite [47]. Pour comprendre l'endommagement et la ruine des matériaux composites, il faut se rapprocher de l'échelle des constituants, c'est-à-dire, les fibres, la matrice, l'interface et l'interphase. La modélisation multi-échelle est une technique couramment utilisée pour étudier le comportement des structures hétérogènes. Elle permet de faire intervenir plusieurs échelles dans la description ou la prédiction du comportement mécanique du matériau. Les phénomènes associés à différentes échelles peuvent donc être pris en compte pour la compréhension et la description du comportement du matériau composite à l'échelle macroscopique. Cette méthode facilite la résolution des problèmes complexes en ne considérant qu'un sous-volume de l'ensemble appelé VER [48, 49] (figure 1.9) qui traduit fidèlement le comportement du modèle macroscopique [50, 51, 52, 53]. Dans une approche numérique, cette méthode réduit le temps de calcul d'une manière significative ce qui explique l'émergence de la micro-mécanique.



FIGURE 1.9 – Approche multi-échelle.

La résolution des problèmes de mécanique des milieux continus implique l'utilisation d'une stratégie : analyse par éléments finis (*EF*), méthode des éléments de frontière (*BEM*), méthode des éléments discrets [54], méthode de volumes finis, méthode des différences finies et toute la gamme de méthodes de Galerkin applicables pour des problèmes spécifiques [55]. Même si la base est la discrétisation, chaque méthode a ses avantages et ses inconvénients selon le problème à résoudre. La méthode des différences finies par exemple, n'est pas très efficiente dans le cas de structures géométriquement complexes. La BEM qui est très efficiente au niveau du temps de calcul, se concentre seulement sur les bords du modèle. Enfin, l'analyse par EF considère tous les détails géométriques de la pièce à modéliser, dans la mesure d'une représentation discrétisée de manière adéquate. En effet, un découpage par éléments inter-connectés d'une certaine taille va définir la fidélité de la structure à modéliser. L'analyse par EF est la méthode la plus utilisée et par conséquent celle prise en compte dans cette étude.

#### 1.2.1 Volume élémentaire représentatif (VER)

Un VER est la représentation géométrique de la micro-structure du composite, la plus petite requise pour obtenir par calcul statistique les mêmes propriétés mécaniques qu'à l'échelle macroscopique [56]. La définition de la taille du VER est extrêmement importante. Si les dimensions du volume sont trop petites, le micro-modèle perd sa représentativité vis à vis du matériau macroscopique. Au contraire, si le VER a des dimensions trop grandes, les calculs seront coûteux et la stratégie de la mise en place d'un VER devient contestable. Plusieurs auteurs proposent un ratio minimal entre la taille du VER et le diamètres des fibres [57, 58].

Les VER sont couramment utilisés pour décrire d'autres composites que les composites UD. Toulemonde [59] et Huang [60] ont étudié des composites renforcés par des perles de verre en considérant des modèles 2D et 3D respectivement. De même, Catapano [61] modélise des composites renforcés par des particules en ajoutant une dispersion aléatoire de bulles d'air. El Moumen [62] a généré des modèles 3D avec des particules sphériques et ellipsoïdales en utilisant une distribution de Poisson. La distribution réelle des fibres dans la section transverse d'un composite UD est aléatoire, mais par simplification, la majorité des micro-modèles considèrent des distributions carrées ou hexagonales [63] comme le montre la figure 1.10. Ces types de distributions permettent d'analyser globalement les composites, mais s'agissant des phénomènes plus complexes comme la rupture, l'arrangement locale de la micro-structure a une influence directe sur la réponse macroscopique [47]. Dès lors, ces simplifications vont altérer la précision des résultats. En effet, l'arrangement des fibres va déterminer l'état et la distributions des contraintes locales.

De manière générale, pour des analyses statistiques et quantitatives, seules des distributions aléatoires devraient être employées. L'utilisation de micro-structures périodiques peut amener à des sous-estimations de la fissuration de la matrice et de l'initiation de l'endommagement [64]. C'est pourquoi les modélisations pour simuler ou prédire la rupture et même l'endommagement doivent considérer des micro-structures à distribution de fibres aléatoire.





(a) Arrangement carré.

(b) Arrangement hexagonal.

FIGURE 1.10 - Composites UD avec une distribution périodique des fibres.

Pour la génération d'arrangements aléatoires des fibres, deux techniques sont possibles : l'acquisition par traitement d'images ou la génération numérique. La première méthode demande une étape de post-traitement d'images qui peut être coûteuse au niveau numérique. Et la deuxième, qui est la méthode retenue pour cette étude, doit assurer que l'algorithme représente fidèlement (i.e. au sens statistique), la micro-structure réelle. Dans les techniques les plus utilisées, l'algorithme des plus proches voisins ou (*NNA*), les approches de Monte Carlo [65] et l'adsorption séquentielle aléatoire (*RSA*) [66] sont bien connues.

La méthode RSA est certainement la plus utilisée pour la génération aléatoire des cercles, des particules ou même des ellipsoïdes dans un volume fini [67, 68, 69, 70]. Le principe consiste à placer une première coordonnée qui représente le centre de la particule ou du cercle. Puis, une deuxième coordonnée est générée et la superposition entre ces deux particules est vérifiée. Si une superposition est identifiée, la position de la deuxième particule est régénérée jusqu'à ce que cette condition de non superposition soit respectée. Ce processus se répète jusqu'à ce que le taux volumique des fibres soit atteint.

#### 1.2.2 Homogénéisation numérique

Un paramètre clé dans l'homogénéisation numérique est le choix approprié des conditions aux limites (*CL*) appliquées au micro-modèle. Ces conditions seront appliquées aux bords du VER et la réponse moyenne du volume sera utilisée pour déterminer les propriétés effectives macroscopiques du composite. Cette analyse part généralement de la déformation macroscopique. Après la résolution du problème aux limites, la contrainte macroscopique peut être calculée en divisant la moyenne du champ de contraintes locales par le volume du VER. La figure 1.11 montre le schéma général du processus.



FIGURE 1.11 – Schéma général de l'homogénéisation numérique.

#### Méthodes classiques pour la définition des conditions aux limites

Les CL classiques utilisées en micro-mécanique sont celles qui supposent un comportement uniforme aux bords du VER, soit par la définition d'une condition de déformation homogène au contour (*KUBC*) soit par une condition de contrainte homogène au contour (*SUBC*) [71]. Ces deux CL conduisent à l'obtention de deux bornes, une borne supérieure (KUBC) et une borne inférieure (SUBC) des propriétés effectives macroscopiques du composite. Les conditions de périodicité sont également très employées, mais quand la distribution des fibres est aléatoire, cela implique une difficulté supplémentaire. En effet, la géométrie et le maillage aux bords doivent être symétriques. Les prédictions utilisant KUBC ou SUBC convergent vers les résultats obtenus avec des conditions de périodicité juste en incrémentant la taille du VER [72].

Lors de cette étude et pour faciliter la génération de la géométrie ainsi que du maillage, les méthodes KUBC et SUBC seront considérées. Pour déterminer la taille qui converge à un résultat pertinent, une étude paramétrique sera mis en place.

#### 1.2.3 Prise en compte de l'interface dans les micro-modèles numériques

Pour introduire l'interaction entre les fibres et la matrice dans les modèles numériques, un comportement cohésif est souvent utilisé à la frontière fibre/matrice du micromodèle. Les lois de comportement cohésif peuvent être obtenues en employant des techniques analytiques, expérimentales ou numériques [5]. Plusieurs fonctions mathématiques permettent de relier le déplacement de la zone cohésive avec la valeur de la traction effective, par exemple, une fonction polynomiale cubique, trapézoïdale, exponentielle, adoucissement linéaire, etc. Quelques exemples de ces fonctions sont illustrés à la figure 1.12. Des comportements très différents peuvent alors être mis en place dans les modèles. Pour ce travail, une loi de traction/séparation avec un adoucissement linéaire est utilisée. Ce choix est motivé par le fait qu'elle est directement présente dans ABAQUS<sup>™</sup> avec des éléments cohésifs. Il est important de souligner que la fonction d'adoucissement linéaire est une des lois de traction/séparation les plus utilisées dans la littérature. Une description plus précise de son fonctionnement sera présentée à la section 4.8.2 où cette loi est mise en place dans le VER.



FIGURE 1.12 – Exemples de fonctions pour une loi traction/séparation : (a) polynomiale cubique, (b) trapézoïdale, (c) trapézoïdale adoucie, (d) exponentielle, (e) adoucissement linéaire et (f) adoucissement bilinéaire [5].

Pour rendre les modèles plus proches de la réalité, plusieurs auteurs présentent des travaux qui considèrent les interfaces en abordant différents techniques et approches. González et al. [58], considèrent des VER 2D carrés avec une distribution aléatoire et homogène de 30 et 70 fibres circulaires. Toutes les fibres ont le même diamètre ( $10 \mu m$ ). Un algorithme RSA a été utilisé pour générer les géométries et des CL périodiques sont imposées aux modèles. Les VER sont soumis à une compression transverse et les contraintes thermiques résiduelles sont prises en compte. Les phénomènes de déformation plastique de la matrice et de décohésion sont également considérés, à partir du modèle de Morh-Coulomb et d'éléments cohésifs avec une loi de traction/séparation. Les résultats purement numériques montrent que les propriétés mécaniques du composite en compression, sont contrôlées par l'endommagement à l'interface et les bandes de cisaillement de la matrice.

Vaughan [43] a analysé les effets de la décohésion de l'interface fibre/matrice, des

contraintes thermiques résiduelles et du chargement cyclique. Pour mener ces études, un VER contenant 80 fibres de 6,6  $\mu$ m de diamètre, distribuées aléatoirement à l'aide de l'NNA, a été utilisé. L'algorithme qui génère la géométrie des modèles utilise des fonctions de distribution expérimentalement mesurées pour définir les distances inter-fibres ainsi que les diamètres des fibres. Pour décrire le comportement plastique de la matrice, le critère de Mohr-Coulomb est employé alors que pour décrire le comportement de l'interface, une loi de traction/séparation est utilisée. Des CL périodiques sont utilisées et un chargement en traction transverse est appliqué au VER. La présence de contraintes thermiques résiduelles au sein du VER affecte considérablement l'état de contraintes locales de la micro-structure et conduit à la décohésion à l'interface.

Yang [6] considère 5 différents VER avec 30 fibres de 10 µm de diamètre et une fraction volumique des fibres de 50%. Une distribution aléatoire des fibres est assurée par un algorithme d'expansion séquentielle et des CL de périodicité sont utilisées. La déformation plastique de la matrice est introduite par un modèle Drucker-Prager. La décohésion fibre/matrice au sein des interfaces est considérée en utilisant un modèle de zone cohésive avec une loi de comportement traction/séparation. Yang a étudié l'influence des trois paramètres qui gouvernent cette loi. Il conclut que la valeur de la rigidité de pénalité de l'interface est principalement numérique, que la résistance de l'interface à la traction est contrôlée par le comportement de la matrice et que l'effet de l'énergie de rupture n'est identifiable qu'à partir de la résistance à rupture du composite. La figure 1.13 montre l'initiation de l'endommagement et son évolution. Trois points de références sont considérés. Au stade (a) le mécanisme principal d'endommagement est la décohésion interfaciale, après ce point l'effet de la plasticité de la matrice commence à apparaître au voisinage des ces décohésions interfaciales (stade (b)) et enfin un endommagement de la matrice sert de lien entre les différentes décohésions interfaciales pour parcourir le VER et arriver à un état de rupture.

Plus récemment, Hérraez [57] a étudié différents VER pour analyser l'influence de la géométrie des inclusions sur le comportement macroscopique du composite. L'interface a été discrétisée par des éléments cohésifs qui suivent une loi de traction/séparation. La plasticité de la matrice est prise en compte en utilisant le modèle de Lubliner. Les 42 fibres incluses dans le micro-modèle sont distribuées périodiquement et aléatoirement avec un diamètre d'environ 7 µm.

D'autres auteurs comme Ismail [54] et Bouhala [73], présentent des études qui considèrent aussi des VER et des lois cohésives pour décrire les interfaces. Toutefois, ils utilisent des stratégies de résolution différentes de l'analyse par EF comme la méthode de discrétisation d'éléments et la méthode étendue des éléments finis. C'est pourquoi ces études ne seront pas détaillés dans ce travail.

A ce stade, il est important de souligner qu'aucun travail mentionné précédemment prend en compte l'interphase, la notion d'interface étant la seule considérée, même s'il a été montré que l'interphase influence de manière significative le comportement macroscopique des composites [35, 74].

Des études analytiques on été menées par plusieurs auteurs pour étudier le comportement élastique des composites UD en prenant en compte l'interphase [75, 76, 77]. Des techniques numériques ont également fait l'objet de recherches [36, 50, 78, 79], mais la restriction majeure pour mettre en œuvre ces modélisations numériques reste le manque d'informations fiables sur les propriétés mécaniques et géométriques de l'interphase.

Différentes techniques peuvent être utilisées pour mettre en évidence cette zone, comme le microscope électronique à balayage (*MEB*), le microscope électronique à transmission (*MET*), l'analyse calorimétrique différentielle (*DSC*) ou quelques analyses spectro-



FIGURE 1.13 – Initiation et évolution de l'endommagement sous traction transverse [6].

scopiques : infrarouge à transformée de Fourier (*IRTF*), spectrométrie de masse à ionisation secondaire (*SMIS*), spectroscopie des électrons d'Auger (*AES*) et spectroscopie photo-électronique X (*XPS*). L'ensemble de ces techniques ne permettent pas de quantifier les propriétés de l'interphase, elles mettent simplement en évidence une zone matricielle au voisinage de la fibre différente de la matrice initiale. Des analyses supplémentaires doivent être considérées pour quantifier cette interphase. Des techniques spécifiques comme l'analyse par AFM [80] ou l'analyse mécanique dynamique (*DMA*) par exemple, qui permettent d'intensifier les détails de la réponse locale [35, 34] en donnant des informations liées à la mobilité des segments de la chaîne du polymère pour améliorer la caractérisation des propriétés de l'interphase [81, 82].

La tendance à la hausse de l'évaluation et la caractérisation des matériaux à l'échelle micro, a conduit à une meilleure compréhension de l'impact de la région d'interphase sur la performance des matériaux composites [83], néanmoins la compréhension des phénomènes mis en jeu dans cette zone n'est pas encore pleinement maitrisée. Actuellement, la majorité des travaux cités dans la littérature permettent une bonne connaissance des propriétés à l'interface d'un point de vue expérimental délaissant l'étude de l'interphase. En règle générale, les approches numériques qui étudient la rupture des composites à l'interface, prennent en compte la déformation de la matrice et la décohésion interfaciale. Par contre, le peu de travaux qui incluent les interphases, restent sur des approches simples en considérant des éléments solides homogènes pour décrire cette zone.

#### 1.3 Conclusion

Le succès des matériaux composites dans le monde industriel se justifie principalement par son ratio performance/poids qui le place quasiment sans concurrence parmi les grandes classes de matériaux. Pour améliorer la qualité des composites il est essentiel d'avoir une excellente compatibilité entre le renfort et la matrice. L'ensimage est une solution fréquemment employée pour les thermodurcissables comme l'époxy renforcé par des fibres de verre. Une conséquence de cette ensimage est la présence au voisinage des fibres d'une zone matricielle, dénommée interphase, ayant des propriétés différentes de celles de la matrice.

La caractérisation de l'interphase reste un enjeu majeur pour permettre d'accroître la performance des composites. Une des principales difficultés rencontrées par les expérimentateurs réside dans l'échelle caractéristique de ces interphases. Les techniques pertinentes pour quantifier le comportement mécanique des ces zones sont peu nombreuses. L'AFM apparait comme une des techniques les plus performantes pour accéder aux dimensions mais également aux propriétés de rigidité au voisinage des fibres. A ces échelles (nanométriques), l'analyse des résultats reste complexe et demande une réelle expertise pour l'expérimentateur.

Dans le domaine des composites, le développement des modèles numériques est une pratique courante pour accéder aux propriétés effectives ou suivre les phénomènes d'endommagement. La difficulté de l'approche numérique repose sur le nombre de paramètres plus ou moins nombreux en fonction de la complexité des comportements pris en compte dans les modèles. Bien souvent, certaines lois reposent sur des modèles mathématiques purement empiriques. En règle générale, les bonnes pratiques consistent à utiliser les données expérimentales (quand ces dernières sont accessibles) comme données d'entrée dans les modèles.

Dans la littérature, la notion d'interface peut être considérée dans les modèles numériques par un simple contact (approche basique) entre la matrice et la fibre ou en introduisant des éléments cohésifs (approche plus complexe) à la frontière fibre/matrice. La définition des interfaces et interphases dans les modèles numériques peut sembler assez floue à première vue. En effet, la majorité des auteurs ne traitent que l'interface fibre/matrice en ignorant l'interphase présente dans la matrice dès lors que les fibres sont ensimées. Cette pratique se justifie souvent par l'absence de données permettant sa prise en compte. L'interface est fréquemment décrite numériquement par un comportement de type cohésif avec une dimension dans l'épaisseur qui laisse présager au final d'une interphase (volume de matière) en se référant à sa définition (zone tridimensionnelle).
## **Chapitre 2**

## Caractérisation expérimentale du comportement des composites fibres de verre/époxy et de ses constituants

« *Ce qui compte ne peut pas toujours être compté, et ce qui peut être compté ne compte pas forcément »* 

Albert Einstein

#### Sommaire

2.1	Techr	niques expérimentales	23
	2.1.1	Techniques expérimentales à l'échelle macroscopique	23
	2.1.2	Technique expérimentale à l'échelle nanoscopique	25
2.2	Carac	ctérisations et propriétés des matériaux	26
	2.2.1	Fibres de verre E	26
	2.2.2	Matrice polymère époxy	27
	2.2.3	Composite unidirectionnel fibre de verre matrice époxy	29
	2.2.4	Interphase	32
2.3	Bilan	: propriétés des constituants du composite	34
2.4	Concl	lusion	35

Ce chapitre présente les résultats relatifs aux essais expérimentaux indispensables pour mettre en place le modèle numérique. Dans une première partie, l'ensemble des matériaux constituant le composite étudié sont décrits. Ensuite, les différentes méthodes d'essais utilisées pour la caractérisation des constituants du composite sont exposées, chacune étant associée à une échelle de mesure spécifique. Les propriétés de la matrice sont issues des essais de traction monotone à l'échelle macroscopique, tandis que les propriétés des interphases sont caractérisées à l'échelle nanoscopique grâce, notamment, à des analyses de balayage topographiques et de module obtenues par AFM. Le rôle clé de l'AFM est mis en évidence quant à l'identification d'une épaisseur et d'un module d'élasticité pour définir la zone interphase. Par la suite les propriétés de chaque constituant du composite obtenues par ces campagnes de mesures expérimentales seront directement introduites dans les modèles numériques afin de s'approcher du comportement réel du matériau. La démarche engagée dans ce projet de recherche impose une bonne connaissance des propriétés physico-chimiques du composite ainsi que de chacun de ses constituants indépendamment (i.e. résine, renforts et interphase). L'approche souhaitée consiste à développer des modèles numériques dont les données d'entrée sont principalement issues des caractérisations expérimentales, le but étant de simuler le comportement réel du matériau considéré. Ce chapitre présente plusieurs caractérisations qui ont permis d'obtenir les propriétés des différents matériaux étudiés dans ce projet. Ces résultats, acquis dans le cadre du laboratoire, proviennent de travaux précédents sur un même composite réalisé dans le cadre d'un partenariat industriel [84].

## 2.1 Techniques expérimentales

Dans le domaine des matériaux, il est très important de connaître les propriétés des pièces fabriquées. Dans la branche des composites, la somme de plusieurs constituants engendre des variations de propriétés significatives sur la globalité de la structure. Cette section présente les différentes techniques permettant de solliciter préférentiellement l'interface fibre/matrice et de caractériser à différentes échelles un matériau composite. D'autres techniques ont permis d'améliorer la compréhension des phénomènes physicochimiques comme l'identification de la sous-réticulation de la résine par exemple. Ce projet de recherche se base sur une approche multi-échelle allant de l'échelle macroscopique jusqu'à l'échelle nanoscopique en passant par une échelle microscopique.

Préalablement à l'analyse du composite propre à ce projet, une pré-étude a été réalisée afin de mettre à point et d'optimiser les méthodes d'essais en minimisant la dispersion des mesures. Cette étape de calibration est réalisée à partir de deux échantillons dits "de référence". Ainsi, cela permet de régler correctement les équipement de caractérisation et donc de garantir la qualité de la mesure et des valeurs qui seront introduites dans les modèles numériques par la suite.

Les principes de fonctionnement des outils qui ont permis la caractérisation de la résine, du composite et plus particulièrement de son interphase, sont succinctement décrits dans ce chapitre. Les conditions de mesures retenues pour caractériser les matériaux considérés sont précisées pour chaque technique mise en jeu.

### 2.1.1 Techniques expérimentales à l'échelle macroscopique

#### Analyse thermo-gravimétrique (ATG)

La technique de thermo-gravimétrie est une méthode d'analyse thermique qui a pour objectif la caractérisation des matériaux par mesure directe de leur masse en fonction de la température. L'appareil utilisé est un ATG Q600 de TA Instruments sous une atmosphère contrôlée (balayage d'air ou d'azote). Une microbalance indique la variation de masse en fonction du temps avec une température constante ou bien par rapport au changement de la température. Une estimation précise du taux massique de fibres peut alors être identifiée grâce à cette méthode et un calcul du taux volumique peut ensuite être effectué. Les échantillons d'une dizaine de milligrammes de matériau sont introduits dans un creuset en alumine. Un creuset en alumine vide sert de creuset de référence. Ces creusets sont alors placés dans le four. Les échantillons sont soumis à une rampe en température de 20 °C à 700 °C. Une vitesse de 20 °C/min est imposée sous un débit constant d'air à 100 mL/min. La procédure comprend une isotherme de 90 min à la température de 110 °C pour permettre l'évaporation de l'eau.

#### Essais de traction en mode transversal

L'essai de traction est un essai statique permettant de caractériser les comportements mécaniques des matériaux et de déterminer leurs propriétés jusqu'à la rupture. Les échantillons de type barreau de  $250x25x2 \ mm^3$  (dimensions définies par la norme NF EN ISO 527-5 [85]) ont été découpés avec une scie diamantée de façon à solliciter les échantillons en sens transverse par rapport aux fibres. L'objectif est de renforcer la réponse des interfaces/interphases. Des échantillons de résine seule avec les mêmes dimensions sont également découpés.

Les essais ont été réalisés sur une machine de traction universelle MTS DY35 équipée d'un capteur de force de 20 kN. Des talons de  $50x25x2 mm^3$  ont été collés aux extrémités des éprouvettes pour limiter les concentrations de contraintes dues au serrage des mors. Une vitesse de déplacement de la traverse constante égale à 1 mm/min a été utilisée selon la norme NF EN ISO 527-5 [85] pour les échantillons de composites et NF EN ISO 527-2 [86] pour les échantillons de résine.

Les contraintes ont été mesurées par un extensomètre à contact avec une longueur initiale de 25 mm et 50% d'extension maximale. Pour chaque matériau cinq échantillons ont été testés afin de prendre en compte la dispersion des éprouvettes. Les courbes force en fonction du déplacement ont été analysées à l'aide du logiciel MTS TestWorks 4 afin d'obtenir les courbes contrainte/déformation caractéristiques des essais de traction après post-traitement. La partie linéaire de la courbe permet de calculer le module d'élasticité.

#### Analyse calorimétrique différentielle (DSC)

La calorimétrie différentielle à balayage est une technique d'analyse thermique qui permet d'identifier et de quantifier les phénomènes endothermiques et exothermiques caractéristiques des évolutions de la structure du matériau considéré. A partir de la différence du flux de chaleur entre le matériau à caractériser et la référence, cette technique permet d'obtenir la température de transition vitreuse ( $T_g$ ) et le différentiel de chaleur spécifique ( $DC_p$ ). Elle permet également de déterminer l'épaisseur de l'interphase en s'aidant des variations de chaleur spécifique du composite et de la résine comme démontré dans la littérature [87, 32].

#### Analyse mécanique dynamique (DMA)

Le DMA a pour objectif de caractériser le comportement viscoélastique et thermomécanique des matériaux. L'étude a été faite avec un DMA Q800 de TA Instruments. Les éprouvettes ont été sollicitées en mode simple poutre encastrée ("single cantilever"), en sens transverse pour les composites. Les essais ont été réalisés à 1 Hz avec une amplitude de déformation de 7  $\mu$ m définie préalablement dans le domaine viscoélastique linéaire. La vitesse de chauffage est fixée à 2 °C/min afin de limiter le gradient thermique dans les échantillons, sur une gamme de température allant de 20 °C à 160 °C. La déconvolution des courbes de relaxation est effectuée avec le logiciel ORIGIN 9.

Les efforts de serrage des mors sont mesurés par une clé dynamométrique. Il est important de souligner que la sollicitation en simple poutre encastrée n'est pas pure mécaniquement. Elle est en effet, une sollicitation mixte provenant des contraintes de traction, de compression et de cisaillement.



FIGURE 2.1 - Schéma du montage simple poutre encastrée pour le DMA Q800 [7].

#### 2.1.2 Technique expérimentale à l'échelle nanoscopique

#### Microscope à force atomique (AFM)

La technique AFM est utilisée pour caractériser des variations des propriétés mécaniques locales à la surface des échantillons et plus spécifiquement au voisinage des fibres dans la zone d'interphase (figure 2.10) pour cette étude. La technique consiste à mettre l'échantillon en contact avec la pointe d'AFM, provoquant le fléchissement du levier (figure 2.2). La pointe d'AFM (figure 2.3) est très rigide (silicium) et possède un rayon de courbure dans son extrémité de l'ordre de la dizaine de nanomètres avant la première utilisation [80].

Les leviers choisis pour caractériser les échantillons composites sont de type BRUKER RTESPA avec des leviers de raideur (rigidité) se situant autour de 40 N/m. Ils sont préalablement calibrés en raideur à l'aide d'un spécimen de référence en saphir sur la base d'une procédure intégrée (bruit thermique) dans le logiciel Nanoscope V 7.30. Le rayon de courbure des pointes est déterminé à partir des mesures de modules sur des échantillons de référence.

L'utilisation de cette technique implique, au préalable, une préparation de surface des échantillons à analyser de bonne qualité. Un état de surface moyen peut engendrer des artéfacts de mesure pouvant conduire à de mauvaises interprétations. Les propriétés de l'interphase dépendent donc de cette préparation de surface [35, 88]. C'est pour cette raison que les échantillons ont étés coupés perpendiculairement aux fibres et polis jusqu'à  $0,05 \mu m$  avec une suspension d'alumine pendant moins d'une minute afin d'éviter la dégradation de la matrice au voisinage des fibres. Les résidus issus du polissage sont enlevés de la surface par un rinçage à l'eau distillée suivi d'un dépoussiérage à l'air comprimé.

La taille de l'indenteur et la force appliquée sont des paramètres importants pour les tests de nanoindentation et nanoscratch car elles peuvent créer une plastification de la zone de contact et perturber les mesures locales [89]. Il est préférable d'utiliser une force d'indentation faible (inférieure à 100 nN) pour pouvoir obtenir des mesures plus fiables sur une région de diamètre inférieur à 100 nm et ainsi minimiser les effets de bords [35]. Pour cette étude, le mode nanomécanique PEAKFORCE QNM<sup>TM</sup> a été utilisé. Ce mode permet d'effectuer des courbes de force avec une fréquence de 2 kHz en balayant la surface des éprouvettes. Les forces soumises restent très faibles (de l'ordre de 25 nN), pour



FIGURE 2.2 – Schéma de principe de fonctionnement d'un AFM.



FIGURE 2.3 – Exemple de pointe d'AFM utilisée pour caractériser un composite époxy/fibre de verre.

minimiser l'impact de chaque mesure sur les propriétés de surface et pour améliorer la résolution latérale. Les profils de module sont obtenus sur des balayages entre 300 nm et 1  $\mu$ m de longueur.

Les courbes de force sont analysées en temps réel pour déterminer les modules d'élasticité locaux à l'échelle nanomètrique à partir du modèle Derjaguin Muller Toporov (*DMT*) [90]. Des balayages en hauteur, en module ou en adhésion peuvent ainsi être obtenus simultanément. Ces analyses sont réalisées sur le scanner BRUKER 8610 JVLR avec un mode V9 MULTIMODE2-U équipé d'un contrôleur NanoScope MM-PFQNM.

## 2.2 Caractérisations et propriétés des matériaux

#### 2.2.1 Fibres de verre E

Pour cette étude, toutes les fibres longues ont été fabriquées par un partenaire industriel en respectant le processus normalisé propre à l'échelle de la production. Ce processus d'élaboration est bien souvent réalisé par filage de verre (silice + carbonates de sodium et de calcium) en fusion à une température supérieure de 1000 °C, à travers des

filières en alliage de platine [91]. Un verre de type E (à usage général avec de bonnes propriétés électriques [16]) est utilisé pour leur fabrication. Ses propriétés sont reportées dans le tableau 2.1. Dans la pratique les fibres de verre ne sont pas utilisées à l'état brut et reçoivent un ensimage. Ce dernier joue un rôle important sur les propriétés de la fibre. Dans cette étude, l'ensimage est constitué à 79% d'agent filmogène, 10% d'agent de couplage et le reste regroupant les surfactants, les agents antistatiques et les lubrifiants (figure 2.4).

TABLEAU 2.1 – Principales propriétés physiques des fibres de verre E [15].

Renfort	Diamètre (µm)	Masse volumique (kg/m <sup>3</sup> )	$E_f(GPa)$	$\nu_{f}$
Verre E	$10 \pm 5$	2600	$72 \pm 1$	0,23 ± 2



FIGURE 2.4 – Distribution des constituants de l'ensimage [4].

Dans le cas de la fibre de verre E, aucune caractérisation expérimentale ne sera réalisée au laboratoire. Par conséquent, toutes les valeurs utilisées dans les modèles numériques seront directement prises soit de la fiche fournisseur soit de la littérature pour les données manquantes. Le module d'élasticité de 80 GPa sera utilisé pour la suite de ce travail pour décrire le comportement mécanique de la fibre (tableau 2.2). Cette donnée a été extraite de la notice commerciale du produit communiquée par le partenaire industriel. L'écart entre cette donnée et les modules d'élasticité classiquement décrits dans la littérature, est la conséquence du taux et de la nature de l'ensimage des fibres [16]. De la même manière, le coefficient de Poisson de 0,25 est considéré pour les simulations (donnée extraite de la littérature).

TABLEAU 2.2 – Propriétés mécaniques des fibres de verre E ensimées.

Renfort	Diamètre (µm)	E <sub>f</sub> (GPa)	$\nu_{f}$
Verre E ensimé	15	80	0,25

### 2.2.2 Matrice polymère époxy

Les résines thermodurcissables de type époxy sont fréquemment associées à des renforts de type fibre de verre pour la réalisation de composites. Les propriétés représentatives de ces résines sont regroupées dans le tableau 2.3.

Matrice	Masse volumique (kg/m <sup>3</sup> )	E <sub>m</sub> (GPa)	$\nu_{\mathbf{m}}$
Époxy	$1300 \pm 200$	$4 \pm 1$	0,4

La matrice polymère utilisée lors de cette étude est une résine de type époxy-amine thermodurcissable à base du composé organique bisphénol A diglycidyl éther (*DGEBA*) et de plusieurs durcisseurs. Avant toute caractérisation physico-chimique, la morphologie des matériaux a été observée par microscopie optique. La plaque de résine de dimensions 400x400x4  $mm^3$  présente d'importants défauts à la surface, tels que des rayures et des bulles d'air de différentes tailles comme le montre la figure 2.5. Ces observations mettent également en évidence des diamètres de porosité variant de la centaine de micromètres pour les plus grosses bulles jusqu'à la dizaine de micromètres pour les plus petites.





Le comportement mécanique de la résine (figure 2.6) est déterminé par des essais de traction. Cette résine époxy présente un comportement ductile en traction avec une déformation à la rupture de l'ordre de 7%  $\pm$  0,3. La partie linéaire des résultats permet de calculer le module d'élasticité en moyennant les cinq résultats exploitables (figure 2.6). Un module d'élasticité de la valeur de 2,7 GPa est calculé pour la résine seule. Il faut souligner qu'une déformation plastique est facilement identifiable pour la résine en accord avec le comportement ductile de cette dernière.

Le tableau 2.4 regroupe les valeurs expérimentales moyennes calculées à partir des essais en traction pour la résine. Ces propriétés mécaniques mesurées sont dans la limite basse, voir hors limite de celles données par le fournisseur : 2700 MPa <  $E_m$  < 3200 MPa, 60 MPa <  $\sigma_R$  < 75 MPa et 8% <  $\varepsilon_R$  < 16%. Une explication possible de cette différence serait, la présence de nombreuses bulles à la surface des échantillons ou une sous-réticulation du polymère préalablement identifiée par DSC [84]. Ces défauts ont pu faciliter l'amorçage et la propagation de fissures et le bas niveau de réticulation a pu affecter la rigidité du matériau.



FIGURE 2.6 – Résultats expérimentaux et moyenne des essais de traction pour la résine.

TABLEAU 2.4 – Valeurs moyennes calculées à partir des données expérimentales traction monotone.

	Épaisseur moyenne (mm)	E (GPa)	$\sigma_{\mathbf{R}}(\mathbf{MPa})$	$\epsilon_{\mathbf{R}}(\%)$
Résine	3,9	$2,7\pm0,5$	$64 \pm 1$	$7,1 \pm 0,3$

#### 2.2.3 Composite unidirectionnel fibre de verre matrice époxy

Le composite étudié a été fabriqué par un processus dérivé de l'enroulement filamentaire, technique habituellement bien adaptée aux corps cylindriques et sphériques. Le procédé spécifiquement développé par le partenaire industriel permet la mise en œuvre des composites UD sous la forme de plaques. Ce procédé ne sera pas plus détaillé ici pour des raisons de propriété intellectuelle. Un des atouts de cette technique est de permettre l'élaboration de matériaux pouvant comporter des proportions élevées de renforts (jusqu'à 80% masse), permettant donc d'obtenir de hautes performances mécaniques. Toutefois, l'investissement en matériel est très important [2, 16] d'où la difficulté de disposer d'un tel outil à l'échelle du laboratoire.

Une plaque composite constituée d'une matrice époxy renforcée par des fibres de verre E enduites par un ensimage industriel, a été élaborée par le processus précédemment mentionné. Il faut rappeler qu'une plaque de résine seule a été réalisée suivant les conditions de cuisson similaires à celles du composite. Cette dernière servira de référence pour quantifier les perturbations induites par l'introduction des fibres sur la réticulation de la matrice. La composition de l'ensimage ainsi que la nature de la résine ont été définies par le partenaire industriel. Le traitement de surface des fibres est confidentiel pour des raisons de propriété intellectuelle. Les paramètres de taux et de diamètre des fibres sont également fixés par ce partenaire industriel [84].

La plaque composite de taille 400x400x2  $mm^3$  (figure 2.7) présente quelques défauts d'aspect de surface. Une variation d'épaisseur de 8% est mesurée entre les bords extrêmes des plaques. Cette variation pourrait provenir d'un surplus de matrice, hypothèse qui devra être validée par analyse thermo-gravimétrique (*ATG*) postérieurement.

En regardant la figure 2.7 qui montre le composite après polissage, il est possible d'ob-



(a) x200

(b) x1000

FIGURE 2.7 – Composite UD avec un taux volumique de fibres de 54% vol. observé au microscope optique.

server la distribution des fibres. Tout d'abord, un fort taux de fibres est identifié et une vérification est faite pour s'assurer que le polissage n'a pas provoqué de déchaussement des fibres dans la matrice. L'absence de décohésion fibre/matrice, observée à la figure 2.7b, sera un paramètre important pour la suite de l'étude numérique. Ensuite, à faible grossissement (figure 2.7a), une distribution qui semble homogène est observée, peu de zones riches en matrice sont présentes. De plus, ces images permettent également de montrer qu'aucune macro-porosité n'est présente dans le composite.

Le taux massique des fibres et donc son taux volumique, sont déterminés par ATG. Par ailleurs, cette analyse permet de quantifier la porosité présente dans le matériau. Cette dernière est estimée inférieure à 1% en fraction volumique pour un taux de chargement volumique de fibres assez élevée de 54% vol., c'est pour cette raison que par la suite, la porosité ainsi que son effet seront négligés dans les modèles numériques.

Des images avec un grossissement plus important ont été prises et analysées pour vérifier les observations antérieures et pour bien valider la distribution spatiale des fibres dans les composites. Cet arrangement réel, comme illustré dans la figure 2.7b, peut être décrit comme une configuration aléatoire avec une dispersion assez homogène des fibres dans la matrice. Ces observations montrent une faible proportion des fibres avec des zones comportant très peu de matrice. Le traitement de surface des renforts aura d'autant plus d'influence dans ces zones confinées. De plus, avec ce type d'arrangement, la distance entre deux fibres est à priori différente à chaque fois. Il faut également préciser que le diamètre des fibres peut varier comme le montre la figure 2.7b. Le taux des fibres peut également être estimé à partir de ces observations par analyse d'images.

Avant de s'intéresser aux propriétés mécaniques globales du composite, il est nécessaire de caractériser les plaques élaborées par le partenaire industriel. Les valeurs de température de dégradation sont similaires pour les échantillons de résine seule [84]. Le tableau 2.5 regroupe les différents résultats calculés à partir des mesures par ATG des échantillons de composite UD.

TABLEAU 2.5 - Caractéristiques du composite UD (ATG, 20 °C/min, sous air).

	Taux de fibres massique	Taux de fibres volumique
Composite UD	$0,72 \pm 0,01$	$0,54 \pm 0,01$

Le taux de fibres volumique du composite est calculé avec une masse volumique égale à 1,20 g/ $cm^3$  pour la matrice et 2,63 g/ $cm^3$  pour les fibres. Le taux de fibres massique

moyen mesuré précédemment provient d'échantillons découpés au bord de la plaque composite (i.e. zone d'épaisseur plus faible), c'est-à-dire pour des épaisseurs équivalentes à 2 mm. Une ATG a été faite en considérant un échantillon de composite extrait du bord opposé de la plaque (i.e. zone d'épaisseur plus importante). Le taux de fibres massique résultant est égal à 0,60 soit un écart de 0,12 d'une extrémité à l'autre de la plaque. Ce résultat confirme la présence d'une hétérogénéité du pourcentage de renfort liée à un surplus de matrice, provoquant donc une variation d'épaisseur comme constaté à l'œil nu.



FIGURE 2.8 – Résultats expérimentaux et moyenne des essais de traction pour le composite.

Le comportement mécanique du composite (figure 2.8) est déterminé par des essais de traction en mode transversal pour solliciter l'interface fibre/matrice des échantillons [34]. Ces résultats montrent que le composite a un comportement plus fragile que la résine lors d'une sollicitation dans la direction transversale, ce phénomène est dû à la présence des fibres. En effet, la déformation à rupture du composite est 14 fois inférieure à celle de la matrice. Dans le cas du composite, une déformation maximale de 0,5% est atteinte (figure 2.8). La matrice en faible proportion (figure 2.7) transfère très rapidement les efforts en sens transverse vers les interfaces fibre/matrice qui ne tolèrent pas la déformation en traction. Ceci provoque rapidement un endommagement de type décohésion aux interfaces fibre/matrice et des fissures dans la matrice au voisinage des fibres. La partie linéaire des résultats permet de calculer le module d'élasticité en moyennant les cinq résultats exploitables. Une valeur de module de Young égale à 10 GPa est calculée pour le composite.

L'ajout des fibres dans la matrice époxy va augmenter la rigidité de la matrice d'un facteur 3 dans le cas d'une sollicitation en sens transverse (figure 2.9). Par ailleurs, il faut souligner le changement de comportement : ductile dans le cas de la matrice seule à quasifragile pour le composite.

Un écart type de 916 MPa ainsi qu'un coefficient de variation (*CV*) de 9,2% sont identifiés pour les modules d'élasticité des différents échantillons macroscopiques de composite. La différence entre ces modules peut s'expliquer par la distribution aléatoire des fibres, cette hypothèse sera discutée dans le chapitre 3 section 3.3.4 avec l'approche nu-



FIGURE 2.9 – Résultats des essais de traction pour la résine et le composite.

mérique.

Le tableau 2.6 regroupe les valeurs expérimentales moyennes calculées à partir des essais en traction en sens transverse pour les composites et la résine.

TABLEAU 2.6 – Valeurs moyennes calculées à partir des données expérimentales en sens transverse du composite UD, traction monotone.

	Épaisseur moyenne (mm)	E (GPa)	$\sigma_{\mathbf{R}}(\mathbf{MPa})$	$\epsilon_{\mathbf{R}}(\%)$
Résine	3,9	$2,7 \pm 0,5$	$64 \pm 1$	$7,1 \pm 0,3$
Composite UD	$2,2 \pm 0,2$	$10 \pm 1$	$40 \pm 4$	$0,4 \pm 0,1$

Le résultat expérimental du composite décrit dans cette section, sera confronté aux résultats obtenus à partir des simulations numériques développées dans ce travail. Il sera considéré comme référent pour valider la pertinence des modèles mis en œuvre sous ABAQUS<sup>TM</sup>.

#### 2.2.4 Interphase

L'assemblage de fibres ensimées et d'une résine polymère conduit à la présence d'une zone de résine matricielle où le réseau chimique est différent au voisinage de l'interface fibre/matrice (interphase). Les caractéristiques de cette interphase renseignent sur la diffusion des agents de l'ensimage vers la résine lors de l'élaboration des composites.

L'analyse par DMA du pic principal des échantillons composites montre une matrice moins réticulée que la résine et plus hétérogène [84]. Un épaulement associé à la présence d'un réseau plus souple, c'est-à-dire sous-réticulé (matrice et/ou interphase) et un second, à la présence d'un réseau plus rigide et mieux réticulé (matrice et/ou interphase) sont observés. La tangente  $\alpha$  est inférieure de 10% à celle de la résine seule. Tous ces analyses peuvent également être confirmées par la technique AFM à l'échelle submicronique.



FIGURE 2.10 - Grossissement des mesures locales AFM du module d'élasticité.

La résine a été analysée, par AFM, en premier lieu comme référence avec un balayage en module sur des scans de 1 µm de côté (figure 2.10). Le comportement résultant (figure 2.11b) révèle une distribution de module ayant un écart de plus de 2 GPa. Ce résultat confirme l'hétérogénéité de la structure également observée en DMA auparavant [84].



(b) Évolution du module de Young.

FIGURE 2.11 – Module d'élasticité au voisinage de la fibre d'après les mesures AFM.

Les échantillons de composite ont été analysés, dans un premier temps sur une surface de 1 µm de côté. La figure 2.11 montre l'évolution du module d'élasticité au voisinage de la fibre. La cartographie en module (figure 2.11a) et un profil de l'évolution du module (figure 2.11b) du composite sont représentés. Il faut souligner que le module de la fibre (environ 80 GPa) ne peut pas être mesuré avec le même levier de raideur 40 N/m (trop souple par rapport à la rigidité de la fibre) utilisé pour la caractérisation des interphases, c'est pourquoi les valeurs mesurées correspondant à la fibre sont extrêmement faibles (figure 2.11b) et ne doivent pas être prises en compte dans l'analyse. L'utilisation d'un levier de plus forte raideur 200 N/m permet de retrouver le module d'élasticité de la fibre (i.e. 80 GPa). La pointe AFM a un rayon d'environ 10 nm ce qui permet une quantification précise le long de la ligne pointillée blanche sur la figure 2.11a.

Le profil de la topographie du composite indique une diminution d'environ 35% du module de la matrice étendue sur 200 nm depuis l'interface fibre/matrice (figure 2.11b). Cette région correspond a une interphase *souple*, c'est-à-dire, une zone moins rigide que la matrice. Le module d'élasticité de l'interphase qui sera utilisé dans les modélisations numériques sera une valeur moyenne arithmétique à partir de la mesure décrite à la figure 2.11b, qui a été choisie parmi dix mesures répétables sur des zones spécifiques du même échantillon au voisinage de la fibre (i.e. les carrés en pointillés blancs dans la figure 2.11a).

Quand la matrice est confinée entre les fibres (surfaces roses sur la figure 2.12), une superposition des interphases propres à chaque fibre pourrait être attendue. Les mesures AFM n'ont cependant pas confirmé cette hypothèse comme le montre la figure 2.12. Cependant, l'évolution des modules d'élasticité est mesurée entre les interfaces des deux fibres proches et des valeurs similaires, au cas des fibres plus isolées, sont retrouvées. En effet, une zone avec un module d'élasticité relativement homogène est mesurée (i.e. section verte) comme le montre la figure 2.12.



FIGURE 2.12 – Mesures locales AFM du module d'élasticité de la matrice confinée entre deux fibres.

## 2.3 Bilan : propriétés des constituants du composite

Les propriétés des constituants du composite sont résumées dans le tableau 2.7. Les valeurs des modules d'élasticité obtenues par caractérisations expérimentales sont celles de la matrice et de l'interphase. Le module d'élasticité des fibres de verre a été directement pris de la fiche fournisseur. Les coefficients de Poisson de la matrice et des fibres, sont issus de la littérature [16] et celui de l'interphase est supposé égal au coefficient de Poisson de la matrice. Cette hypothèse est faite à cause de l'impossibilité de mesurer cette propriété avec les moyens à disposition au laboratoire. Toutefois, une analyse numérique de sensibilité de ce coefficient de Poisson pour l'interphase, sur la réponse globale du composite, est proposée dans la section 4.5.2, pour confirmer la faible influence de ce paramètre sur le comportement macroscopique du composite.

Constituant	Module d'élasticité (GPa)	Coefficient de Poisson	
Matrice	2,7 ± 0,3 *	0,4 **	
Fibres	80 **	0,25 **	
Interphase	$1,7 \pm 0,2 *$	0,4 **	

TABLEAU 2.7 – Propriétés des constituants du composite utilisées dans les modèles numériques.

\* Valeurs mesurées expérimentalement.

\*\* Valeurs issues de la littérature.

## 2.4 Conclusion

Ce chapitre avait pour objectif de mettre en évidence les caractérisations expérimentales utilisées pour obtenir des données d'entrée indispensables pour la construction des modèles numériques (propriétés de la résine par exemple). Il présente également plusieurs résultats expérimentaux qui sont utilisés pour valider les modèles numériques comme la courbe contrainte/déformation du composite, par exemple. Les autres techniques présentées lors de ce chapitre permettent d'appréhender les phénomènes mis en jeux dans le composite comme la sous-réticulation, par exemple au voisinage des fibres. Une attention particulière a été portée sur la caractérisation des interphases et la difficulté de mesurer ses propriétés à ces échelles nanométriques. Ainsi, ce chapitre passe en revue plusieurs méthodes à différents échelles de mesure comme :

- L'échelle macroscopique avec l'ATG qui a permis de quantifier le taux massique des fibres présentes dans le composite, pour ensuite calculer son équivalent volumique (54% vol.), valeur introduite dans les modèles numériques. De même, les modules d'élasticité ainsi que les propriétés à rupture du composite et de la matrice crue ont été identifiés à l'aide des essais de traction monotone.
- L'échelle microscopique par l'intermédiaire du microscope optique pour vérifier, d'abord les défauts surfaciques des éprouvettes (rayures, macro-porosités et décohésion des interfaces). Ensuite, le type de distribution des fibres dans le composite et enfin, la différence des diamètres des fibres dans un même échantillon. Ce point est d'ailleurs clé pour la suite de l'étude puisqu'il permettra de considérer les paramètres réels du composite sur le développement d'un outil informatique (plug-in, i.e. section 3.2) pour la génération de la géométrie du VER.
- L'échelle nanoscopique où les interphases ont étés caractérisées par AFM à partir d'essais de balayage en module. L'analyse des résultats et l'application du modèle DMT ont permis d'obtenir les courbes de force en temps réel pour déterminer la propriété d'élasticité locale, ce qui est un point capital quant à l'utilisation future des valeurs expérimentales comme données d'entrée pour la validation et prédiction numérique des résultats.

Les propriétés des constituants du composite sont désormais connues. Celles des fibres ont été extraites de la littérature et celles de la matrice ont été acquises grâce aux essais de traction qui ont dévoilé son comportement élasto-plastique. Ces résultats seront les données d'entrée pour le modèle numérique. Un comportement fragile avec une légère non-linéarité au sein du composite a aussi été identifié à l'aide des ces essais. La courbe qui décrit ce comportement servira de repère pour la validation des simulations.

Les observations au microscope optique indiquent que le composite a une porosité négligeable, une distribution des fibres homogène mais aléatoire avec des fibres qui ont de légers changements de diamètre et une interface initiale parfaitement liée.

L'AFM a confirmé la présence d'une interphase *souple* au voisinage des fibres étendue sur 200 nm depuis l'interface de chaque fibre. Le module d'élasticité de cette région interphase a pu être calculé. De plus, un chevauchement des interphases entre deux fibres proches (comme introduit sur la figure 2.12) est déduit. Ces régions inter-fibres peu déformables vont en effet, favoriser l'initiation de fissures en traction.

Or, la suite de cette partie expérimentale peut s'orienter vers la réalisation des mêmes tests mécaniques sur des composites à différents taux de fibres, pour bien illustrer l'influence de ce paramètre sur la réponse globale du composite.

La confrontation des résultats des mesures expérimentales effectuées à ceux provenant des simulations numériques est souhaitée pour la suite de ce travail. Les modèles numériques reposent sur l'utilisation des propriétés mécaniques locales associées aux constituants (résine, fibres et interphases) pour décrire le comportement d'un VER et grâce à une approche multi-échelle, reproduire les propriétés macroscopiques du composite réel à l'aide des simulations numériques.

# **Chapitre 3**

## **Choix du VER**

« Divide et impera»

Philippe II de Macédoine

### Sommaire

3.1	Нуро	thèses retenues	39
3.2	Géné	ration de la géométrie	40
	3.2.1	Modélisation 3D	43
	3.2.2	Modélisation 2D	43
3.3	Analy	se de l'influence des caractéristiques du VER sur le comportement	
	en tra	ction transverse	44
	3.3.1	Influence du maillage	44
	3.3.2	Influence des CL	47
	3.3.3	Influence du ratio taille du VER / diamètre des fibres	50
	3.3.4	Influence de la distribution aléatoire des fibres	50
3.4	Bilan	: caractéristiques adéquates pour le VER	54
3.5	Valida	ation du modèle numérique : confrontation expérimentale	55
3.6	Conc	lusion	56

Le chapitre 3 est dédié à la définition d'un VER capable de décrire le comportement macroscopique du composite. En premier lieu, les hypothèses émises pour cette étude sont énoncées. La seconde partie de ce chapitre se focalise sur la génération de la géométrie du VER à partir d'un plug-in spécialement développé pour ce projet de recherche et interfacé avec ABAQUS<sup>TM</sup>. Ensuite, une étude paramétrique des caractéristiques du VER est présentée en évaluant successivement le maillage, les CL, les dimensionnements de la micro-structure par rapport aux fibres et la distribution de ces dernières. Un bilan proposant les caractéristiques optimales est fourni et enfin, pour valider le modèle, la confrontation entre les résultats expérimentaux, issus des essais monotones en traction transverse et les résultats obtenus avec l'analyse par EF, va permettre d'évaluer la pertinence de la méthodologie et de mesurer la performance du VER mis en place. L'écart entre le résultat expérimental et celui numérique s'explique par l'absence d'interphase dans le modèle.

La définition d'un VER demande une attention particulière. Il doit permettre de décrire le comportement macroscopique du matériau composite, en étant à la fois suffisamment grand pour prendre en compte les hétérogénéités d'un matériau composite et suffisamment petit pour être considéré comme élémentaire par rapport à la taille de la structure homogène. L'objectif de cette partie est de présenter un VER capable de décrire le comportement mécanique en traction transverse d'un composite UD avec un taux de fibres élevé.

### 3.1 Hypothèses retenues

Les composites ont généralement un comportement anisotrope, c'est-à-dire que leurs propriétés sont différentes dans toutes les directions de l'espace. Les composites UD plus précisément, de part l'arrangement des fibres dans une direction exclusive, vont avoir des propriétés différentes dans le sens longitudinal des fibres et dans le sens transversal. Dans le cadre de ce projet, les simulations numériques se placent à l'échelle microscopique où le comportement mécanique des constituants est isotrope. En effet, la résine époxy seule a les mêmes propriétés dans toutes les directions ainsi que les fibres de verre qui ont des propriétés longitudinales et transverses suffisamment proches pour être considérées égales [92].

Par ailleurs, un composite est par nature hétérogène, bien que ses constituants puissent être homogènes. En effet, la matrice époxy et les fibres de verre seront considérées homogènes dans les simulations numériques.

Le comportement mécanique de la résine époxy est élasto-plastique comme décrit à la section 2.2.2. Dans une première approche ce comportement plastique ne sera pas pris en compte dans les modèles. Toutefois cette hypothèse sera validée à la fin de ce chapitre afin de confirmer la faible influence de la plasticité de la résine sur la réponse macroscopique du composite. En ce qui concerne les fibres de verre, un comportement fragile caractérise ce matériau. Dans les simulations, elles seront décrites par un comportement élastique linéaire.

Pour décrire l'arrangement des fibres des composites UD, des distributions carrées, hexagonales et périodiques sont couramment employées [36]. Cependant, comme observé préalablement dans la section 2.1, l'arrangement des fibres du composite étudié est aléatoire avec une distribution spatiale homogène due au fort taux de fibres. C'est pourquoi une fonction uniforme a été choisie pour décrire la dispersion aléatoire des fibres dans l'approche numérique. Ce type d'arrangement permet d'inclure des caractéristiques qui rapprochent le modèle de la réalité, comme les différentes distances entre les fibres.

De plus, aucune décohésion fibre/matrice n'a été observée au microscope optique. Partant de ce fait, les interfaces seront considérées comme étant parfaitement liées. Aussi, la porosité est estimée grâce à l'ATG et trouvé inférieur à 1% en fraction volumique, c'est pour cette raison que par la suite, la porosité ainsi que son effet sont négligés dans les simulations.

L'état de déformations planes est considéré car notre modèle est une micro-structure épaisse. En effet, en considérant un VER qui appartient à l'un des échantillons macroscopiques dans la section transverse, une barre longue à section carrée est reconnue et certainement, la longueur des fibres est plus importante par rapport au reste de dimensions. Alors, en réalité, les déformations hors plan sont négligeables.

Pour la définition des conditions aux limites, l'hypothèse de petits perturbations est retenue. En outre, le pilotage se fait à déformation moyenne. Le pilotage à contrainte moyenne imposée est plus délicat et demanderait surement un post-traitement supplémentaire [93] sans gain avéré sur la solution finale.

### 3.2 Génération de la géométrie

ABAQUS<sup>™</sup> est l'un des logiciels d'analyse par EF fréquemment utilisé en industrie et en académie. Il inclut les outils nécessaires pour effectuer des analyses sur des VER. Néanmoins, la mise en place de ce type d'études devient difficile et longue en utilisant exclusivement les capacités présentes dans ces outils généralistes. Pour améliorer la performance du logiciel, différents plug-ins ont été développés et publiés dans la littérature, pour élargir ou automatiser la génération de géométries [94, 95], l'assignation des conditions aux limites [96], l'affichage de données de sortie précises [97, 98], l'application de chargements complexes [99], pour ne citer que quelques exemples.

Malgré l'existence de ce genre d'outils, les chercheurs sont bien souvent obligés de développer leurs propres algorithmes spécifiques pour générer un VER pour des raisons économiques ou d'accessibilité opérationnelle. En effet, de nombreux auteurs se servent de techniques probabilistes, notamment de l'algorithme de RSA ou de la méthode Monte Carlo, pour créer les géométries des micro-structures composites à distribution aléatoire des fibres [69, 68, 100, 70, 47, 101].

Pour commencer ce projet de recherche, l'objectif était de générer plusieurs cercles (représentant les fibres) aléatoirement distribués dans un carré qui délimite la matrice. Un algorithme RSA a été développé sous MATLAB® pour créer un fichier avec les coordonnées des centres des fibres ainsi que les dimensions du VER et le diamètre des fibres. Ensuite un script PYTHON<sup>TM</sup> venait lire ce fichier texte et se servait de certains fonctions prédéfinies par ABAQUS<sup>TM</sup> pour générer les géométries désirées au moment de l'exécution de ce script sous le logiciel EF [102]. Ce processus était long et complexe car il faisait intervenir deux logiciels différents. Pour anticiper cette contrainte et pour mettre en place une interface graphique pour l'utilisateur (*GUI*), un plug-in directement interfacé avec ABAQUS<sup>TM</sup> a été développé, en se basant sur la méthode probabiliste utilisée antérieurement. Le fait de n'avoir recours qu'à ABAQUS<sup>TM</sup> permet un transfert technologique plus adapté aux partenaires industriels.Le langage de programmation utilisé est le PYTHON<sup>TM</sup> qui permet de communiquer facilement avec ABAQUS<sup>TM</sup> [8].

Le plug-in dénommé **"RVE for composites"** a été construit et installé dans ABAQUS<sup>TM</sup>. Il se trouve dans le menu déroulant de l'onglet *Plug-ins* sur la barre de menu principale d'ABAQUS<sup>TM</sup> (figure 3.1). Il n'est accessible uniquement que depuis le module *Part*. Dans le même menu déroulant, les informations générales de l'outil (version, auteur...) peuvent être visualisées en cliquant sur *About Plug-ins* comme montré sur la figure 3.2.

Le principe de fonctionnement du plug-in est schématisé à la figure 3.3. Cet algorithme permet à l'utilisateur de créer la géométrie d'un VER UD à distribution aléatoire des fibres en 2D ou bien en 3D; de considérer un diamètre constant pour tous les renforts ou un diamètre variable défini par un intervalle spécifique et enfin d'ajouter ou pas une interphase. De plus, un nom de modèle est demandé et comme précédemment, la taille du VER ainsi que la fraction volumique des fibres sont renseignées par l'utilisateur.

Afin de simplifier au maximum l'approche, les bords du VER ne doivent intercepter aucun des cercles, cela veut dire que l'intervalle pour la génération aléatoire est réduit en considérant le rayon des fibres [102]. Bien que cette hypothèse s'éloigne de la réalité, la stratégie de distribution choisie est capable de générer la fraction volumique maximale requise pour la future validation du modèle numérique avec les résultats expérimentaux (54% vol.  $\pm$  1% vol.) sans la considération de fibres coupées par les bords. En effet, le

Abaqus/CAE 6.11-PR3 [Viewport: 1]	
Image: State Field Sta	Ip k? I I I I I I I I I I I I I I I I I I I
Se Model Database	r-ins
Name: RVE width (w):	W d d c cancel

FIGURE 3.1 - Menu et GUI du plug-in "RVE for composites".



FIGURE 3.2 – Informations concernant "RVE for composites".

taux limite de remplissage est respecté [65, 103]. Pour atteindre des fractions volumiques plus élevées, les fibres peuvent être coupées aux bords. Par ailleurs, d'un point de vue industriel, les fractions volumiques typiquement mises en jeu dans ces composites sont bien en-dessous de cette valeur seuil.

Une fois que l'utilisateur clique sur *OK*, le nombre des fibres *N* est calculé à partir des paramètres d'entrée et la première coordonnée qui représente le centre d'une fibre est générée. Comme mentionné auparavant, la distribution aléatoire de fibres est supposée



FIGURE 3.3 – Description de l'algorithme.

homogène, c'est pourquoi la fonction *random.uniform()* qui est basée sur une distribution uniforme est utilisée pour assurer que chaque valeur ait la même probabilité d'apparaître. Cette même fonction est utilisée pour créer un vecteur de longueur N avec les diamètres variables entre les deux limites fixées par l'utilisateur. Si le diamètre des fibres a été défini comme étant constant, cette étape est omise. Ensuite, deux vecteurs qui vont absorber de manière séquentielle les coordonnées des centres des cercles sont créés et la première coordonnée est allouée (x[1], y[1]). Les vecteurs vont être progressivement remplis dans la position i, seulement si la coordonnée proposée (x, y) respecte la condition de non superposition des fibres déjà placées (équation (3.1)), ce qui signifie que la distance entre les deux coordonnées est au moins égale au diamètre des fibres. Cette opération va se répéter jusqu'à-ce que le nombre désiré de fibres (défini par la fraction volumique) soit atteint, ce qui arrive quand i = N (figure 3.3). Les coordonnées (x, y) seront régénérées jusqu'à-ce que la condition soit respectée.

$$\sqrt{(x - x[i])^2 + (y - y[i])^2} \ge d \qquad 1 < i \le N$$
(3.1)

Quand la quantité de fibres nécessaires pour représenter la fraction volumique fixée par l'utilisateur est atteinte, la géométrie du VER se définit d'abord par ses bords qui sont tracés en utilisant la fonction existante *rectangle()* et puis par les cercles à partir de la fonction *CircleByCenterPerimeter()*. Enfin, avec l'esquisse des cercles qui représentent les fibres et des cercles concentriques autour d'eux dans le cas de la considération d'une région interphase, une fonction *PartitionFaceBySketch()* est appelée pour définir les renforts en tant que partitions dans le modèle numérique. L'intérêt d'obtenir un modèle sous forme de partitions de contact entre les différents constituants. Ce choix était motivé par le fait de faciliter et réduire le temps de mise en place du modèle pour l'utilisateur futur. Si le modèle est 3D, une épaisseur équivalente à la taille du VER est rajoutée à

l'esquisse du rectangle et une dernière fonction *PartitionCellByExtrudeEdge()* fait les partitions cylindriques pour les fibres ainsi que pour les interphases si elles ont été demandées. Finalement, un fichier texte appelé *myRVE* est crée dans le répertoire de travail afin de pouvoir récupérer les informations saisies pour la définition de la géométrie dont les coordonnées des centres des fibres. Par ailleurs, dans la zone de messages d'ABAQUS<sup>TM</sup>, ces paramètres d'entrée seront affichés, de même qu'un message correspondant à chaque superposition entre les fibres et un autre confirmant la création du fichier texte (e.g. figure 3.4). Sur l'arborescence d'ABAQUS<sup>TM</sup> les esquisses des fibres et de la matrice resteront disponibles pour d'éventuelles modifications en cliquant sur *Sketches*.

```
RVE width: 150
r
     Fibers volume fraction: 10
RVE surface: 22500
     Fibers surface: 2250.0
>>>
     Fibers diameter:
                           15
     Interphases thickness: 0.0
     Number of fibers: 12
     The condition is not respected, a new coordinate is
                                                                        been
                                                                              generated
     The condition is not respected, a new coordinate
The condition is not respected, a new coordinate
                                             a new coordinate is been generated
                                                                    is been
                                                                              generated
     The condition is not respected, a new
                                                     coordinate
                                                                    is
                                                                        been
                                                                              generated
     The condition is not respected, a new coordinate is been generated
     The condition is not respected, a new coordinate is been generated...
In your Work Directory you will find a text file named myRVE with the random coordinates.
```

FIGURE 3.4 – Zone de message après l'exécution du plug-in.

#### 3.2.1 Modélisation 3D

Afin d'estimer le coût de calcul d'une simulation tridimensionnelle qui va définir l'espace de modélisation par la suite, une première micro-structure a été testée. A partir du plug-in développé dans ce projet, un VER 3D sans interphases et avec un diamètre constant pour les fibres a été généré. La taille du VER est supposée dix fois plus grande que celle des fibres [58, 57], hypothèse qui sera vérifiée à la section 3.3.3. Une fraction volumique de fibres 53% vol. est considérée ainsi qu'un maillage avec une taille globale des éléments de 4  $\mu$ m (figure 3.5). 190350 éléments de type C3D20R et C3D15 sont utilisés. Les propriétés des constituants sont celles définies dans le tableau 2.7 et les CL sont définies par une KUBC. Cette simulation n'aboutit pas, ABAQUS<sup>TM</sup> se ferme subitement à cause d'un manque de ressources informatiques lié à la quantité d'éléments. C'est pourquoi un maillage plus grossier est considéré (taille globale des éléments 6  $\mu$ m). Le résultat est obtenu au bout d'une heure de calcul et le module d'élasticité calculé est de 10,4 GPa ce qui est proche du résultat expérimental. Cependant, la taille de maille utilisée ne peut pas être définie comme adéquate à cause de l'incapacité de simuler des modèles à maille plus raffinée. De plus, le temps de calcul est jugé excessif par rapport à nos attentes.

#### 3.2.2 Modélisation 2D

Un modèle 2D est adéquat car la géométrie, les CL et le chargement peuvent être considérés dans un même plan. Cette vérification permettra d'avoir une idée du ratio précision/temps de calcul par rapport à la modélisation 3D. L'état de déformations planes est considéré et toutes les caractéristiques de la micro-structure choisie sont identiques à celles utilisées pour le cas 3D. Un module d'élasticité de 11 GPa est calculé avec un temps de simulation de 33 secondes. Inévitablement le rapport precision/temps de calcul est bien plus optimal dans ce cas 2D que dans le cas 3D. Désormais, pour la suite du travail, uniquement des géométries en 2D seront utilisées pour modéliser le composite.





FIGURE 3.5 – Maillage global choisi, composite 3D V<sub>f</sub> = 53%.

## 3.3 Analyse de l'influence des caractéristiques du VER sur le comportement en traction transverse

Ayant défini l'espace de modélisation optimal, une étude paramétrique est proposée afin de confirmer les hypothèses émises pour les modèles numériques. Ceci va permettre de choisir les caractéristiques adéquates pour la définition du VER. Dans ce but et pour travailler avec une échelle normalisée, la convergence des propriétés macroscopiques est étudiée en divisant le module de Young calculé par un module de Young dit "de référence" et noté  $E_0$ . Il est important de souligner que cette propriété de référence est directement liée au taux volumique des fibres [60, 104]. Les propriétés des constituants sont celles définies précédemment et détaillées dans le tableau 2.7.

#### 3.3.1 Influence du maillage

Afin de quantifier l'influence du maillage, un VER 2D à section carrée de  $150 \,\mu m$  d'arête conservant la distribution aléatoire décrite précédemment à la figure 3.5 et avec une fraction volumique de fibres égale à 53% est utilisé. Quatre configurations ont été testées en utilisant des éléments de géométrie quadrangulaire ou triangulaire associés à une interpolation soit linéaire soit quadratique (CPE3, CPE6M, CPE4, CPE8). Pour déterminer le type d'éléments adéquat, la convergence du module d'élasticité macroscopique du composite ainsi que le temps de calcul sont analysés.

Le degré d'interpolation de l'élément définit le modèle mathématique utilisé pour lier deux nœuds voisins. La géométrie des éléments est décrite par un nœud à chaque sommet. Par conséquent, pour utiliser une fonction quadratique, un nœud additionnel entre une paire de nœuds est requis. Cela veut dire qu'un élément triangulaire avec une approximation linéaire par exemple, aura trois nœuds contrairement à un élément triangulaire à interpolation quadratique qui en aura six [8].

Il est bien connu que les éléments de type quadrangulaire sont plus rigides que les tri-



FIGURE 3.6 – Étude de la convergence du maillage.

angulaires [8] et que l'intégration quadratique donne plus de souplesse aux éléments, ce qui conduit bien souvent à une meilleure précision du résultat final. Par rapport à la forme des éléments dans un espace de modélisation en 2D, ABAQUS<sup>™</sup> propose les éléments suivants : *quad* (maillage exclusivement quadrangulaire), *quad-dominated* (maillage mixte quadrangulaire et triangulaire) et *tri* (maillage exclusivement triangulaire). Pour les deux configurations qui utilisent des éléments quadrangles, l'option par défaut proposée par le logiciel : *quad-dominated* est acceptée, ce qui signifie que les éléments seront principalement des quadrangles mais pour discrétiser d'une manière plus rapide et moins restreinte les zones de transition, ABAQUS<sup>™</sup> s'autorise à utiliser des éléments triangulaires pour finaliser le maillage de la géométrie.

Les modèles numériques mis en jeu dans ce travail, reposent sur une taille globale de maille variant de 0,5 µm à 6 µm. La valeur de référence du module de Young effectif du composite notée  $E_0$  (valeur de convergence) est définie pour normaliser l'étude paramétrique (i.e. figure 3.6). Ce module de référence est une moyenne arithmétique calculée à partir des valeurs des modules convergents des différents maillages (CPE3, CPE6M, CPE4, CPE8) et  $E_c$  est le module du Young du composite. La figure 3.6 montre que la taille globale du maillage a une influence plus importante sur les modèles numériques discrétisés à partir d'éléments triangulaires et notamment sur les éléments CPE3 qui n'atteignent pas la convergence. L'erreur maximale entre la valeur de convergence 1 et les valeurs obtenues pour chaque géométrie d'élément, est de 6, 7% pour les éléments triangulaires tandis qu'elle n'est que de 0, 45% pour les éléments quadrangles. Ainsi, pour la suite du travail les éléments quadrangulaires seront préférés pour garantir la convergence des résultats.

Pour choisir entre les configurations CPE4 et CPE8, le temps de calcul est analysé. La figure 3.7 montre pour les quatre configurations de maillage prises en compte précédemment, l'évolution de leur temps de calcul par rapport à la taille du maillage. L'ensemble des résultats évoluent d'une manière similaire, indépendamment de la configuration choisie. En ce qui concerne le temps de simulations, un coup plus important est logiquement observé pour les configurations d'ordre quadratique (CPE6M, CPE8). Par conséquent, les éléments les plus adaptés pour cette étude sont les quadrangles à 4 nœuds sous



FIGURE 3.7 – Temps de calcul pour les différents types d'éléments.

l'hypothèse de déformations planes -CPE4-.

Une fois le type d'éléments défini (géométrie et degré d'interpolation), il ne reste plus qu'à fixer la taille de la maille. Comme le montre la figure 3.6, la solution numérique converge relativement vite. En effet, en dessous d'une taille de maille égale à 2  $\mu$ m, la solution numérique converge vers un même résultat. Une taille globale de maille égale à 1,5  $\mu$ m est choisie. La simulation en utilisant ce type d'éléments a duré 130 s ce qui semble très favorable pour la suite de l'étude. La figure 3.8 présente le maillage ainsi obtenu.



#### , , ,

FIGURE 3.8 – Maillage global choisi, composite 2D V<sub>f</sub> = 53%.

Pour étudier l'influence du taux de fibres sur la convergence du maillage, trois différentes fractions volumiques de fibres 20%, 40% et 53% ont été considérées. En utilisant donc des éléments CPE4, ces simulations sont réalisées. La figure 3.9 montre que la fraction volumique du composite a une influence négligeable sur la convergence du maillage du VER, ainsi le maillage global choisi précédemment est conservé pour toutes les analyses indépendamment du taux de fibres des composites simulés.



FIGURE 3.9 – Convergence du maillage pour différentes fractions volumiques.

Pour compléter et conclure cette étude paramétrique de l'influence du maillage sur le résultat, le temps de simulation en fonction des trois teneurs de fibres considérées, est observé. La figure 3.10 confirme que l'évolution en temps de calcul pour ces trois configurations est très similaire. Le temps de calcul reste raisonnable, indépendamment de la configuration retenue.



FIGURE 3.10 – Temps de calcul pour différentes fractions volumiques.

#### 3.3.2 Influence des CL

De nombreux auteurs utilisent des conditions de périodicité [57, 36] pour piloter les bords du VER. Cette stratégie impose également la définition d'une géométrie périodique.

Cette méthode nécessite une géométrie qui doit être complémentaire aux bords et qui doit avoir un maillage symétrique. Ces deux facteurs contraignants pour l'utilisateur peuvent être discutés par rapport aux méthodes classiques qui offrent bien souvent autant de précision. Dans le cadre de ce projet de recherche, une comparaison entre deux méthodes classiques : KUBC et SUBC, est faite pour identifier la méthode la plus pertinente.

L'influence des CL peut être associée à la fraction volumique du renfort [105], c'est pourquoi trois fractions volumiques sont considérées 20%, 40% et 53% pour étudier la sensibilité de ces CL sur le résultat final. Pour assurer l'homogénéisation, l'utilisation d'un plug-in dénommé "Homtools" a été retenu. Cet outil numérique est un plug-in en libre accès et téléchargeable directement depuis le page web de l'outil [96]. "Homtools" est une *toolbox* développée pour ABAQUS<sup>™</sup> qui permet de faciliter la mise en place des conditions d'homogénéisation sur un modèle numérique donné.

De manière générale cette toolbox formule les problèmes de localisation associés aux différentes méthodes en introduisant des degrés de liberté (*DDL*) supplémentaires supportant les composantes des déformations macroscopiques. Les CL spécifiques aux différentes problèmes sont alors imposées via des relations linéaires entre les DDL des nœuds du contour et les DDL supplémentaires (générés automatiquement par Homtools). Les forces nodales associées aux DDL supportant les composantes des déformations moyennes sont égales aux composantes de la contrainte moyenne (au volume V du VER près). Avec cette formulation, le pilotage à déformation moyenne (méthode choisie pour cette étude) s'effectue en imposant simplement la charge comme une valeur des DDL supplémentaires [93]. Cette déformation est alors la moyenne des déformations maximales des résultats expérimentaux illustrés sur la figure 2.8, c'est-à-dire 0,40% ou 0,004 mm.

La méthode KUBC consiste à appliquer sur le contour du VER, le champ de déplacement qui se produirait si la déformation à l'intérieur du VER était uniforme. Contrairement à l'approche SUBC, qui considère un champ du tenseur des contraintes sur le contour qui se produirait si la contrainte à l'intérieur du VER était uniforme [96]. L'hypothèse de petits perturbations pour les deux cas (KUBC et SUBC) est retenue.

Le comportement macroscopique effectif est représenté par le tenseur des contraintes macroscopiques  $\bar{\sigma}$  et le tenseur des déformations macroscopiques  $\bar{\epsilon}$ . A partir d'un VER, ce comportement macroscopique peut être retrouvé par les relations entre les déformations  $\epsilon$  et les contraintes  $\sigma$  propres au VER et son volume V, comme détaillé à l'équation 3.2.

$$\bar{\sigma} = \frac{1}{V} \int_{V} \sigma dV \qquad \bar{\varepsilon} = \frac{1}{V} \int_{V} \varepsilon dV \qquad (3.2)$$

En effet, pour appliquer le chargement au modèle numérique dans ABAQUS<sup>™</sup> (dans notre cas un déplacement macroscopique), un point de référence est utilisé. Les équations sont automatiquement générées dans le module interaction d'ABAQUS<sup>™</sup> et grâce à la dualité des propriétés, la contrainte macroscopique peut être retrouvée en divisant la force de réaction à ce point de référence sur le volume V du VER. La figure 3.11 montre un exemple 3D où tous les points jaunes représentent les contraintes d'interaction entre les faces. La condition imposée est une déformation homogène au contour.

La figure 3.12 compare les résultats des modules d'élasticité effectifs des modèles à différents taux de fibres, en utilisant les deux méthodes d'homogénéisation préalablement expliquées : KUBC et SUBC. La dispersion (i.e. équation 3.3) entre les deux type de CL est de 5,21% pour les modèles à 20%, de 8% pour ceux à 40% et enfin, de 10,6% pour les composites à taux volumique de 53%.



FIGURE 3.11 – Contraintes d'interaction du modèle 3D V<sub>f</sub> = 53%.



FIGURE 3.12 – CL pour différentes fractions volumiques.

$$\% E cart = \frac{E_{modèle\_KUBC} - E_{modèle\_SUBC}}{E_{modèle\_KUBC}} \times 100$$
(3.3)

Pour la suite du projet, les conditions d'homogénéisation seront construites sur la méthodologie KUBC bien que cette dernière va surestimer légèrement la solution finale. Ce choix est motivé par le fait que pour utiliser les SUBC il est naturel de piloter à contrainte moyenne imposée et comme mentionné dans la section 3.1, ce pilotage est plus délicat et demande un post-traitement supplémentaire [93].

#### 3.3.3 Influence du ratio taille du VER / diamètre des fibres

En examinant l'influence de la taille du VER et du diamètre des fibres sur le module d'élasticité du composite seul, il a été mis en évidence que le paramètre important est le ratio entre ces deux aspects. Ce résultat en accord avec la littérature. Bien que classiquement un ratio de dix est retenu par les utilisateurs, la littérature confirme que le ratio optimal pour assurer des résultats cohérents doit être supérieur à huit [58, 57]. Les simulations qui ont été réalisées dans cette étude tendent vers la même conclusion.



FIGURE 3.13 – Influence du ratio taille VER/diamètre des fibres sur la réponse du composite.

La figure 3.13 montre l'évolution du ratio taille VER/diamètre des fibres en considérant trois modèles avec des fractions volumiques distinctes. La convergence est atteinte quand le ratio est égale à une valeur proche de huit. A partir de cette valeur et jusqu'à un ratio de 25, l'erreur maximale par rapport à la valeur de référence reste faible (inférieure à 4%). Quand le ratio est inférieur à huit, une surestimation de la propriété étudiée est mise en évidence. C'est pourquoi, pour la suite de l'étude et en accord avec l'usage scientifique, un ratio de 10 sera respecté pour tous les VER générés.

#### 3.3.4 Influence de la distribution aléatoire des fibres

Pour compléter cette étude paramétrique, dix modèles avec une distribution aléatoire des fibres sont générés pour les deux cas suivants : fibres à diamètre constant et fibres

à diamètre aléatoire dans un intervalle. Trois fractions volumiques de fibres sont prises en compte. Un exemple de deux distributions aléatoires différentes des fibres à diamètre constant est illustré par la figure 3.14.





\$\_\_\_×

FIGURE 3.14 – Modèles 2D V<sub>f</sub> = 20% avec deux distributions aléatoires différentes à diamètre des fibres constant.

La taille des fibres ainsi que la taille du VER restent inchangées avec un diamètre de 15  $\mu$ m pour les fibres et 150  $\mu$ m d'arête pour le VER. Les résultats de la figure 3.15 montrent que la distribution aléatoire a une influence très faible sur le module de Young du composite. L'écart associé aux valeurs obtenues et à la valeur de référence (1), est compris entre 0,09% et 3,4% pour les modèles renforcés à 20%, entre 0,01% et 4,6% pour ceux à 40%, enfin pour les simulations avec un taux de fibres de 53% l'erreur se situe entre 0,5% et 6,3%.



FIGURE 3.15 – Influence de la distribution aléatoire des fibres à diamètre constant sur la réponse du composite.

Ensuite, la même analyse est faite en considérant les fibres à diamètre aléatoire compris dans l'intervalle défini par l'utilisateur. Cette approche rend la simulation numérique plus proche de la réalité car dans le contexte industriel les fibres ne sont pas forcément uniformes, d'où l'intérêt de prendre en compte cette dispersion de diamètre. Pour définir la plage des valeurs du diamètre des fibres, une dispersion de  $\pm 2 \,\mu m$  a été considérée, cela veut dire que des diamètres aléatoires entre 13  $\mu m$  et 17  $\mu m$  ont été générés. Cette dispersion est cohérente d'un point de vue industriel. La figure 3.16 montre deux exemples de micro-structures considérées.





FIGURE 3.16 – Modèles 2D V<sub>f</sub> = 40% avec deux distributions aléatoires différentes à diamètre des fibres aléatoire.

A cause de la limite de remplissage de l'algorithme pour les fibres à diamètres aléatoires compris dans un intervalle donné, la fraction volumique de 53% n'a pas pu être atteinte. Les comparaisons sont faites à partir d'une fraction volumique de fibres de 50%. En effet, le plug-in utilise la limite supérieure de l'intervalle défini par l'utilisateur pour imposer la distance minimale entre les fibres, ce qui veut dire que l'utilisation de l'espace est moins efficient.



FIGURE 3.17 – Influence de la distribution aléatoire des fibres à diamètre aléatoire sur la réponse du composite.

L'influence de la distribution aléatoire des fibres à diamètre aléatoire sur le comportement global du composite est décrite sur la figure 3.17. L'écart est compris entre 0,2% et 2,7% pour les modèles renforcés à 20%, de 0,4% à 4,1% pour ceux à 40%, enfin pour les simulations avec un taux de fibres de 50% l'écart se situe entre 0,5% et 5%.

De plus, les écarts-types et les CV de la réponse du composite par rapport à la distribution aléatoire des fibres sont présentés. D'abord, les écarts-types sur la figure 3.18 montrent une évolution croissante au fur à mesure que le taux de fibres augmente. Cela implique une influence plus forte de la distribution aléatoire sur les composites les plus chargés. Pour les composites à diamètres constants, l'écart-type est de 65 MPa pour une teneur de 20%, de 180 MPa pour les micro-structures à 40% et de 351 MPa pour ceux à 53%. De plus, pour les VER à diamètres aléatoires, l'écart-type vaut 62 MPa pour les modèles à 20%, 223 MPa pour ceux à 40% et 314 MPa pour ceux chargés à 50%.



FIGURE 3.18 – Écarts-types de la réponse du composite par rapport à la distribution aléatoire des fibres.

Les CV sont indiqués sur la figure 3.19. Pour les composites à diamètres constants, 1,4%, 2,4% et 3,3% sont les CV pour les composites avec des taux de fibres de 20%, 40% et 53% respectivement. Tandis que pour ceux à diamètres aléatoires les valeurs trouvées sont 1,3%, 3% et 3,2% pour les composites chargés à 20%, 40% et 50% respectivement. Ces coefficients donnent un indice sur la variation de la réponse des composites obtenue par des modèles avec diverses distributions de fibres aléatoires à diamètres constants et à diamètres aléatoires par rapport à leur moyenne. En effet, ces coefficients sont le ratio de l'écart-type sur la moyenne.



FIGURE 3.19 - CV de la réponse du composite par rapport à la distribution aléatoire des fibres.

### 3.4 Bilan : caractéristiques adéquates pour le VER

A l'issue de ce chapitre, des paramètres optimums pour décrire notre VER ont été identifiés. D'abord, l'espace de modélisation est réduit d'une dimension car les formulations en 2D sont suffisantes pour bien reproduire et prédire le comportement du composite concerné. Ensuite, le diamètre des fibres a été sélectionné en accord avec les données expérimentales (15  $\mu$ m) alors que le ratio taille VER/diamètre des fibres a été surdimensionné à la valeur de dix ce qui mène à un modèle carré de 150  $\mu$ m en assurant un volume suffisamment grand pour être bien représentatif du composite [106].

La distribution aléatoire n'a qu'une influence modérée sur le comportement global du composite. Dans ces conditions, n'importe quelle dispersion pourrait être utilisée. Pour les distributions de fibres aléatoires à diamètres constants, un écart maximal de 6,3% est à prendre en compte sur les résultat obtenu. Pour celles à diamètres aléatoires, cet écart maximal se réduit à 5%.

Des éléments -CPE4- permettent de mailler les modèles tout en garantissant un temps de calcul très favorable. Une taille globale de 1,5  $\mu$ m sera employée. Enfin, des KUBC ont été retenues pour continuer l'analyse en sachant que ce dernier va surestimer légèrement la réponse numérique. Le tableau 3.1 résume les choix faits après l'étude paramétrique pour définir le VER qui représente correctement le comportement macroscopique du composite.

Espace de	Diamètre	VER			Maille
modélisation	fibres (µm)	<b>Dimension</b> (µm)	CL	Éléments	Taille globale (µm)
2D	15	150	KUBC	CPE4	1,5

TABLEAU 3.1 – Paramètres optimums pour le VER.

## 3.5 Validation du modèle numérique : confrontation expérimentale

Pour valider le modèle, une comparaison avec un résultat expérimental était souhaitée. Les caractéristiques de l'échantillon sont données dans la section 2.1. Par rapport au modèle VER, les paramètres décrits antérieurement comme optimums sont utilisés et une fraction volumique de 53% est considérée. L'écart de 1% entre la fraction volumique réelle et le modèle numérique est dû à la saturation de l'algorithme qui est limité par les conditions de non superposition de fibres et du fait que les fibres ne peuvent pas être coupés par les bords du VER. Par ailleurs, ce taux de 53% vol. peut se justifier puisque le taux de fibres déterminé expérimentalement a une tolérance de 1%. Dès lors cette différence apparait négligeable et la comparaison reste pertinente.

La figure 3.20 montre la courbe des deux modèles concernés. Comme l'approche numérique reste dans le cadre élastique, une réponse complètement linéaire est obtenue et un module d'élasticité de 10,8 GPa est calculé. La différence entre le module de Young calculé par simulation numérique et celui déterminé expérimentalement est de 0,8 GPa. La prédiction du comportement élastique du composite est donc en bon accord avec les résultats expérimentaux car l'erreur reste inférieure à 10%.



FIGURE 3.20 - Comparaison moyenne expérimentale/simulation numérique.

Pour améliorer la performance de ce modèle numérique, il a été décidé de prendre en compte le comportement élasto-plastique de la résine époxy. La plasticité de la matrice devrait permettre de rapprocher la solution numérique de la solution expérimentale. Le comportement plastique de la résine est directement extrait des données expérimentales détaillés à la section 2.1. Le résultat montre que le gain est faible (inférieur à 5%) et confirme que le comportement plastique de la matrice peut être négligé pour décrire le composite.

Une autre cause possible de cet écart pourrait provenir de la présence d'interphase dans le composite. En effet, il est bien connu que dans ce genre de composites, il existe une interphase formée à cause de l'ensimage des fibres et que cette zone va modifier le comportement global du composite [12]. En conséquence, cet écart peut s'expliquer par
l'absence d'interphase entre les fibres et la matrice dans le modèle numérique, ce qui a une influence directe sur la rigidité du composite et conduit à une surestimation de la réponse numérique. De plus, ni l'endommagement ni les phénomènes de rupture n'ont pas été considérés dans les modèles, ce qui éloigne la solution numérique du comportement réel du composite.

Étant donné que l'interphase se comporte comme une couche cohésive entre les deux matériaux, une décohésion progressive dans cette zone expliquerait l'écart entre la déformation obtenue avec le résultat numérique et celui expérimental. En effet, la résistance de l'interphase contrôle la tenue mécanique du composite [43] et sa décohésion a une influence significative sur le comportement mécanique à l'échelle macroscopique [57].

#### 3.6 Conclusion

Le comportement mécanique d'un composite UD à matrice polymère renforcée par des fibres de verre soumis à une traction monotone transverse a été simulé à l'aide d'un modèle VER et d'une méthode d'homogénéisation basée sur l'analyse par EF. Une géométrie réaliste a été attribuée aux modèles grâce à l'utilisation du plug-in **"RVE for composites"** développé en interne pour ce travail. Des micro-modèles 2D à distribution aléatoire de fibres ont été obtenus. Une approche avec des CL basées sur KUBC a été faite.

Le but de cette étude était de trouver les caractéristiques appropriées pour un VER afin qu'il puisse prédire correctement le comportement élastique de son équivalent macroscopique avec un temps de simulation raisonnable. En partant de ce fait, une étude paramétrique a été menée pour identifier l'espace de simulation, les caractéristiques de la maille, les CL et les dimensions du VER. La taille de la maille et le type d'éléments affectent le résultat de la simulation. Pour ce cas, les éléments les plus adéquats sont les quadrangles à 4 nœuds sous l'hypothèse de déformations planes -CPE4-. La simulation avec ce type d'éléments a duré 130s ce qui semble favorable. Par ailleurs, la distribution aléatoire des fibres et les CL ne présentent pas une influence critique sur le comportement mécanique, contrairement au ratio taille VER/diamètre des fibres qui a clairement un effet sur la réponse globale du composite. C'est pourquoi un ratio d'au moins huit doit être considéré.

La réponse numérique montre une erreur qui surestime le module d'élasticité de 8%. Malgré la simplicité du modèle et le fait que l'étude se développe dans un domaine élastique, la prédiction du comportement élastique est en bon accord avec les résultats expérimentaux. Néanmoins, pour améliorer ces résultats, la considération d'une zone *interphase* entre la matrice et les fibres est proposée, ainsi que l'intégration des phénomènes d'endommagement et éventuellement de rupture.

## **Chapitre 4**

## Modélisation du comportement du composite avec prise en compte des interphases

« The beauty and curse of composites is that they can be infinitely tailored to fit a specific application »

Andy MacKrell

#### Sommaire

4.1	Нуро	thèses et prémisses	59				
4.2	Prise	en compte de l'interphase dans le modèle numérique	59				
4.3	Géné	ration de la géométrie	60				
4.4	Balayage paramétrique 6						
4.5	Analy	se de l'influence des caractéristiques de l'interphase sur le com-					
	porte	ment en traction transverse	62				
	4.5.1	Étude de convergence du maillage	62				
	4.5.2	Coefficient de Poisson	63				
	4.5.3	Épaisseur	64				
	4.5.4	Module d'élasticité	64				
4.6	Bilan	: réponse en considérant la région interphase	65				
4.7	Valida	ation du modèle numérique avec interphase : confrontation expé-					
	rimer	ntale	66				
	4.7.1	Analyse numérique du champ de contraintes locales	67				
4.8	Contr	ribution des éléments cohésifs	69				
	4.8.1	Modification du maillage	69				
	4.8.2	Principe de la loi traction/séparation	70				
	4.8.3	Optimisation paramètrique	73				
	4.8.4	Étude paramétrique de l'interphase	75				
	4.8.5	Analyse numérique du champ de contraintes locales avec des élé-					
		ments COH2D4	78				
4.9	Concl	lusion	79				

Ce 4ème chapitre, met en évidence le rôle important de la région interphase dans la description et la prédiction du comportement du composite. Une première approche en considérant une interphase décrite à partir des éléments solides et homogènes est menée. Une étude paramétrique évalue l'influence de son coefficient de Poisson, de son épaisseur et finalement de son module d'élasticité sur la réponse élastique du composite. Une comparaison expérimentale/numérique est faite ainsi qu'une confrontation entre les modèles numériques **avec ou sans** interphase. Ces modèles numériques ont été alimentés par des données expérimentales obtenues par AFM (épaisseur et module d'élasticité des interphases). L'analyse des résultats numériques obtenus montre un bon accord avec les valeurs expérimentales. Le fait d'inclure les interphases dans la prédiction numérique du comportement mécanique élastique du composite, améliore la précision de la réponse numérique des modèles. Dans un deuxième temps, l'interphase est décrite à partir d'éléments cohésifs. Trois paramètres indépendants contrôlent son comportement non linéaire. Toutefois, l'absence d'un phénomène d'endommagement pour la matrice limite la vérification de l'influence de chaque paramètre.

L'interphase est une zone complexe entre les fibres et la matrice, avec des propriétés associées différentes de celles des constituants. Dans les modèles numériques, souvent des VER, cette zone est fréquemment négligée. L'objectif de cette partie est de prendre en compte l'interphase dans le VER défini précédemment, d'étudier l'influence de ses propriétés et d'évaluer son rôle dans la décription du comportement mécanique en traction transverse d'un composite UD avec un taux de fibres élevé.

#### 4.1 Hypothèses et prémisses

Les hypothèses émises lors de la définition du VER sont conservées : les constituants (fibres, matrice et interphases) sont considérés comme homogènes, élastiques linéaires et isotropes ; la distribution des fibres est décrite par une dispersion aléatoire à partir d'une fonction uniforme ; les interfaces sont parfaitement liées ; l'hypothèse de petits perturbations ainsi que l'état de déformations planes sont retenus et le pilotage se fait toujours à déformation moyenne. De plus, grâce aux vérifications du chapitre 3, un modèle 2D carré avec une dimension dix fois supérieure au diamètre des fibres est utilisé. Un seul type de distribution est considérée puisque l'influence de ce paramètre a été montrée comme non significative. Des fibres à diamètre constant seront utilisées pour atteindre la fraction volumique des fibres la plus proche de celle des échantillons expérimentaux. La méthode KUBC est retenue pour décrire les CL. Et enfin, des éléments de type -CPE4- mailleront la micro-structure.

Le modèle va subir une modification avec la prise en compte des interphases entre les fibres et la matrice. Dans une première approche, cette zone interphase sera aussi considérée comme ayant des propriétés élastiques linéaires, isotropes et homogènes. Pour ce faire, des éléments solides homogènes seront utilisés afin d'appréhender son influence sur le comportement macroscopique du composite. Dans un second temps, des éléments cohésifs seront considérés pour décrire cette interphase. Compte tenu des résultats expérimentaux du chapitre 2, la porosité ainsi que son effet sont négligés et les propriétés de l'interphase, son module d'élasticité et son épaisseur, ont été identifiés.

### 4.2 Prise en compte de l'interphase dans le modèle numérique



FIGURE 4.1 – Considération de l'interphase dans le modèle numérique.

L'interphase illustrée numériquement à la figure 4.1, joue plusieurs rôles essentiels pour le composite global : assurer la continuité physique en évitant par exemple la porosité, transmettre les contraintes de la matrice aux fibres et protéger les fibres en déviant les fissures ou en interrompant la propagation de l'humidité vers les renforts [23]. Cependant, l'interphase est également un paramètre limitant (souvent vue comme une zone faible). De lors, sa performance va contrôler la durabilité du matériau comme par exemple la propagation de fissures ainsi que le comportement à la rupture du composite [42]. En effet, la résistance à la rupture d'un matériau hétérogène dépend fortement de la nature de l'interphase et de l'interface. Ainsi, une rupture fragile qui serait catastrophique pour le matériau pourrait être évitée grâce à un effet retardateur joué par l'interphase sur la cinétique d'endommagement, venant dévier les fissures par exemple en dissipant l'énergie associée [107]. En prévoyant de futures études comme l'étude de la défaillance, de l'endommagement et de la rupture, l'introduction prématurée de l'interphase dans notre modèle est indispensable pour s'approcher des phénomènes réellement mis en jeu dans les composites.

#### 4.3 Génération de la géométrie

Il a été démontré dans le chapitre 2 que dans les cas des fibres proches, la matrice n'est plus qu'une interphase dont les propriétés peuvent être considérées identiques à celles présentes autour des fibres isolées. **RVE for composites** considère la condition de non superposition uniquement pour les fibres, cela veut dire que les interphases (définies comme des centres concentriques autour de chaque fibre) peuvent se chevaucher. Cette caractéristique enrichit la similitude du modèle numérique aux configurations réelles, ce qui implique des résultats plus précis comme constaté dans la littérature précédente [12].

Néanmoins, un inconvénient se présente lors de l'intégration de cette caractéristique dans le plug-in. La géométrie se génère en totalité, mais les intersections entre les interphases chevauchées ne sont pas omises ni effacées de manière automatique (figure 4.2). Une opération d'élimination manuelle doit être effectuée par l'utilisateur, la méthode *Remove redundant entities* de l'outil *Geometry edit* est donc employée, les intersections sont sélectionnées et la géométrie est mise à jour. L'annexe A donne plus de détails sur le coût en temps de cette opération.



FIGURE 4.2 – Illustration de la superposition de deux interphases lors de la génération de la géométrie.

#### 4.4 Balayage paramétrique

Un algorithme pour automatiser le lancement de calculs ABAQUS<sup>™</sup> a été développé pour cette étude. Celui-ci permet de faire varier les propriétés désirées dans un intervalle déterminé par l'utilisateur avec un pas d'avancement fixé. Cette méthodologie est implémentée sous MATLAB® et schématisée dans la figure 4.3. Les données d'entrée sont une limite inférieure, un pas d'incrémentation et une limite supérieure. Ce pas d'incrémentation va déterminer la quantité de simulations à réaliser. Un fichier "name.inp" sera créé avec les paramètres à saisir pour la simulation, ABAQUS<sup>™</sup> sera lancé directement par cet algorithme pour exécuter le calcul numérique sans l'affichage du GUI. Au final, le fichier de sortie "name.odb" sera créé. Ce dernier est ensuite lu par un script PYTHON<sup>™</sup> qui calculera les propriétés macroscopiques du composite (contrainte, déformation et module d'élasticité). Un fichier texte sera créé à partir de ces informations et puis une vérification sera faite afin d'identifier si la limite supérieure a été atteinte et dans le cas contraire, relancer la procédure pour l'itération suivante jusqu'à ce que le paramètre évalué soit égal à la limite supérieure.



FIGURE 4.3 – Algorithme du balayage paramétrique.

Cette procédure sera implémentée pour l'analyse de l'influence du coefficient de Poisson de l'interphase ainsi que pour l'étude paramétrique du module d'élasticité de l'interphase, et permettra de faire 30 et 23 simulations respectivement. Malheureusement, la géométrie du VER ne peut pas être changée depuis cet algorithme parce que cela impliquerait un changement de maillage et par conséquence l'assignation des nouvelles CL, actions beaucoup plus compliquées qui auraient besoin d'une programmation plus sophistiquée. C'est pourquoi, pour l'analyse de l'épaisseur de l'interphase, seulement 4 cas sont considérés et une courbe de tendance est tracée pour mieux suivre l'allure du comportement.

#### Analyse de l'influence des caractéristiques de l'interphase 4.5 sur le comportement en traction transverse

Pour améliorer la performance et la fiabilité des modèles, il est essentiel d'avoir une compréhension approfondie des effets de l'interphase sur la micro-structure des composites renforcés par des fibres continues et sollicités en traction transverse. Donc cette section est dédiée à l'étude de l'évolution du comportement mécanique du composite en variant les caractéristiques principales de l'interphase : son épaisseur, son module d'élasticité ainsi que son coefficient de Poisson. La même distribution des fibres employée lors de la validation du modèle est conservé (section 3.5).

#### Étude de convergence du maillage 4.5.1

Comme la géométrie de la micro-structure a été modifiée pour inclure les interphases, une étude de maillage est faite à nouveau pour vérifier la convergence des résultats. Cette analyse est basée sur la conclusion établie dans la section 3.3.1 concernant le type adéquat d'éléments, où deux types d'éléments (triangulaires et quadrangulaires) et deux ordres géométriques différents (linéaires et quadratiques) ont été testés. L'utilisation d'éléments quadrangulaires à intégration linéaire sous l'hypothèse de déformations planes -CPE4est maintenue grâce au faible coût de calcul révélé et à la convergence efficace montrée lors de l'étude de l'évolution du module d'élasticité du composite.

Dimensions du Fibres			Inter	phase
<b>VER (μm)</b>	Fraction	Diamàtre (um)	Éngisseur (nm)	Module
	volumique (%)	Diametre (µm)	Lpaisseur (IIII)	élastique (GPa)
150	53	15	200	1.7

1,7

TABLEAU 4.1 – Paramètres fixes pour l'analyse de sensibilité de la taille de maille globale.



FIGURE 4.4 – Étude du maillage avec la prise en compte de l'interphase.

Pour les différents VER étudiés dans cette section, les paramètres montrés dans le tableau 4.1 issus des résultats expérimentaux et de l'étude du ratio taille du VER/diamètre des fibres, restent inchangés. Des simulations avec une taille de maille globale qui varie entre 0,2  $\mu$ m et 6  $\mu$ m ont été exécutées et les résultats obtenus sont décrits à la figure 4.4, cette valeur globale représente une moyenne de la taille réelle de tous les éléments indiquant une interphase avec un seul élément dans son épaisseur (égal à 200 nm ou de 0 nm à 500 nm pour les simulations dans la section 4.5.3). Les éléments solides homogènes qui sont utilisés peuvent amener à des résultats erronés (e.g. champ de contraintes) au niveau des distributions de contraintes dans la couche interphase. Néanmoins, cette première approche donne les bases pour la compréhension d'un point de vue numérique de l'interphase avant la considération d'une couche à comportement cohésif. Une maille d'au moins 1,5  $\mu$ m doit être considérée pour obtenir des résultats précis comme identifié sur la figure 4.4. E<sub>0</sub> reste la valeur de convergence comme dans la section 3.3.1.

#### 4.5.2 Coefficient de Poisson

Une étude paramétrique sur l'influence du coefficient de Poisson de l'interphase a été réalisée, un intervalle allant de 0,2 à 0,49 est considéré [108, 109]. Le module d'élasticité effectif du composite est évalué en gardant toutes les valeurs des paramètres montrées sur le tableau 4.1. Trois fractions volumiques différentes sont considérées pour étudier également l'influence du coefficient de Poisson sur le taux de fibres.



FIGURE 4.5 – Influence du coefficient de Poisson de l'interphase sur le comportement global du composite.

Comme illustré sur la figure 4.5, le coefficient de Poisson de l'interphase n'a pas d'influence significative sur le module d'élasticité du composite. En effet, pour les fractions volumiques de 20% et 40%, cette propriété effective reste constante peu importe la valeur du coefficient de Poisson considérée dans l'intervalle. La légère augmentation du module d'élasticité du composite renforcé à 53% observable quand le coefficient est supérieur à 0,45 est négligeable car les résines époxy ou ses dérivés ne sont pas capables d'atteindre un tel coefficient de déformation.

#### 4.5.3 Épaisseur

L'effet de l'épaisseur de l'interphase sur le comportement global du matériau composite est également étudié. Trois épaisseurs différentes  $e_i = 200$  nm, 300 nm et 500 nm sont prises en compte dans cette section. Cet intervalle a été choisi en fonction des mesures expérimentales présentées auparavant (chapitre 2) où une interphase de 200 nm a été identifiée et d'un travail de recherche antérieur sur des composites similaires [34] qui ont un réseau modifié de 500 nm d'épaisseur autour de chaque fibre identifié grâce à des mesures de force par AFM.



FIGURE 4.6 – Influence de l'épaisseur de l'interphase sur le comportement global du composite.

Le module d'élasticité effectif du composite est évalué en conservant les paramètres suivant comme constants : dimensions du VER, taux des fibres, diamètre des fibres et module d'élasticité de l'interphase. Ces valeurs sont celles présentées dans le tableau 4.1. Comme observé à la figure 4.6 le module d'élasticité du composite est inversement proportionnel à l'épaisseur de l'interphase, ce qui implique que le composite a une comportement plus rigide quand l'interphase est moins épaisse. Ce comportement est certainement attendu dans le cas d'interphases souples. En effet, cette influence est le résultat du taux de substitution de la matrice par la fraction volumique de cette interphase souple. Par exemple, pour le cas du composite le plus chargé avec une interphase de 500 nm d'épaisseur, ce taux de substitution est de l'ordre de 7% c'est-à-dire que la matrice du VER sans interphase est passé d'une fraction volumique de 47% à 40% quand l'interphase est considérée. Il est ainsi observé que l'effet de l'épaisseur de l'interphase devient plus significatif en fonction de l'incrément du taux volumique des fibres.

#### 4.5.4 Module d'élasticité

Une étude paramétrique concernant le module d'élasticité de l'interphase est développée pour identifier son influence ou son impact sur le comportement du composite. Dans cette section, le module d'élasticité effectif du composite est évalué en conservant les valeurs des dimensions du VER, du diamètre des fibres et de l'épaisseur de l'interphase comme constantes et égales à celles présentées dans le tableau 4.1. En diminuant

#### CHAPITRE 4. MODÉLISATION DU COMPORTEMENT DU COMPOSITE AVEC PRISE EN COMPTE DES INTERPHASES

le module d'élasticité de l'interphase depuis 2,7 GPa (module de la résine) jusqu'à 0,5 GPa (valeur arbitraire) en intervalles de 0,1 GPa, la figure 4.7 montre l'évolution du module d'élasticité du composite pour différentes fractions volumiques de fibres et révèle que le module de Young effectif transverse augmente en fonction de la hausse du module d'élasticité de l'interphase. Un ratio proportionnel est donc identifié, c'est-à-dire que l'augmentation de la rigidité des interphases est automatiquement reflétée sur le comportement global du composite. Néanmoins, cette tendance est de plus en plus négligeable lorsque le taux volumique de fibres diminue.



FIGURE 4.7 – Influence du module d'élasticité de l'interphase sur le comportement global du composite.

#### 4.6 Bilan : réponse en considérant la région interphase

Avant la validation expérimental/numérique, une quantification de l'écart entre les réponses numériques obtenues auparavant sans la considération de l'interphase et actuellement avec la prise en compte de cette région est présentée pour les trois fractions volumiques différentes. Les caractéristiques choisies pour les interphases des VER sont celles du tableau 4.1 et les écarts sont calculés en pourcentages (équation 4.1).

$$\% E cart = \frac{E_{modèle\_sans\_interphase} - E_{modèle\_avec\_interphase}}{E_{modèle\_avec\_interphase}} \times 100$$
(4.1)

Sur la figure 4.8 il est observé que l'influence de l'interphase est plus importante au fur et à mesure que la fraction des fibres augmente. En effet, plus le taux volumique des fibres est élevé, plus la proportion de région interphase dans la matrice est importante et plus significative sera son influence sur le comportement global du composite.

#### CHAPITRE 4. MODÉLISATION DU COMPORTEMENT DU COMPOSITE AVEC PRISE EN COMPTE DES INTERPHASES



FIGURE 4.8 – Amélioration de la prédiction en incluant l'interphase.

### 4.7 Validation du modèle numérique avec interphase : confrontation expérimentale

Cette section est dédiée à la validation du modèle, un VER avec une taille de maille globale de 1,5  $\mu$ m est prise en compte pour obtenir des résultats précis comme identifié auparavant sur la figure 4.4. Tous les paramètres utilisés pour la définition du modèle sont décris dans le tableau 4.1. Un seul VER est utilisé car précédemment il a été démontré (section 3.3.4) que la distribution aléatoire des fibres n'a pas une influence significative sur le comportement du composite. Il faut rappeler qu'une brève étude statistique a été présentée dans ladite section et confirme que le choix d'utiliser un seul VER reste valide et correct.

Les courbes contrainte/déformation dans la figure 4.9 représentent le comportement mécanique du composite concernant deux modèles numériques (avec et sans interphase) et un résultat expérimental (i.e. courbe moyenne obtenue à partir de cinq essais répétables). Une amélioration de la réponse est remarquée et comme il était attendu, l'interphase a une influence positive sur la prédiction du comportement mécanique du composite en donnant une approche plus précise. Le résultat en considérant l'interphase a amélioré le comportement numérique prédictif en 6,8 % par rapport au résultat sans interphase, cette valeur représente la différence du module d'élasticité des deux modèles (voir formule 4.1). Comme l'approche numérique est dans le cadre d'un comportement élastique, la réponse obtenue est complètement linéaire. Un module d'élasticité de 10,2 GPa est obtenu. Malgré la surestimation récurrente, le résultat numérique est en bon accord avec la description expérimentale. La plasticité est considérée à nouveau pour les deux modèles, avec et sans interphase, mais aucun effet n'est remarqué.

L'absence de phénomènes d'endommagement ou de rupture pendant la simulation est la raison pour laquelle le résultat numérique avec interphase ne reproduit pas complètement la courbe expérimentale. Cette disparité est directement liée au type d'éléments utilisé pour les simulations : *solid homogeneous*.



FIGURE 4.9 - Comparaison des valeurs moyennes expérimentales/simulations numériques.

#### 4.7.1 Analyse numérique du champ de contraintes locales

De nombreuses études ont montré que les composites constitués de renforts rigides et d'une matrice souple sont des systèmes préférentiels pour la génération de contraintes internes. Par ailleurs, la ruine du composite résulte directement de la présence de concentrations de contraintes. La rupture des composites (fréquemment sous la forme de décohésion [42]) dans le cas de chargements transverses s'initie généralement depuis l'interface ou l'interphase et se propage dans la matrice. Les propriétés de l'interface/interphase jouent un rôle prépondérant sur la tenue mécanique du matériau [43, 44]. La figure 4.10 présente le champ de contraintes globales dans les micro-modèles en tenant compte de la présence ou pas de l'interphase.

En comparant ces deux cartographies (4.10a et 4.10b), une légère augmentation des concentrations de contraintes est observée dans le modèle sans interphase. En effet, le nombre d'éléments ayant atteint la valeur de contrainte maximale est plus important dans le cas du modèle sans interphase (i.e. plus grande surface de sur-contrainte dans le modèle sans interphase). Les figures montrent également une légère augmentation de la valeur maximale de contrainte moyenne dans le composite. Ces résultats étaient prévisibles car le VER sans interphase (zone plus souple que la matrice dans ce cas) conduit à un état de contraintes plus important comparé au comportement réel du composite. Sur les cartographies, deux échelles sont représentées : l'une affichant le critère de Mises avec des valeurs brutes (MPa) issues du calcul, l'autre sous la forme d'une échelle normalisée. Les valeurs brutes de Mises montrent des niveaux de contraintes très supérieurs aux valeurs classiquement mesurées expérimentalement. Toutefois, les mesures expérimentales donnent une moyenne en contrainte à l'échelle macroscopique du composite alors que la cartographie présente un état de contraintes localisé à l'échelle micro. Effectivement, les composites renforcés par des fibres de verre vont rompre pour des valeurs de contraintes entre 30 et 40 MPa. Par ailleurs, les interfaces/interphases vont rompre pour des valeurs de contraintes comprises entre 50 et 70 MPa [10, 110].

L'idée de cette comparaison est simplement d'appréhender le phénomène d'initiation de l'endommagement grâce aux champs de contraintes et aux zones de sur-contraintes.



(a) Modèle **sans** interphase.





FIGURE 4.10 – Champ de contraintes globales et locales (critère de Von Mises).

Les zones en rouges sur les cartographies 4.10a et 4.10b localisent ces zones de contraintes maximales qui pourraient être les sites de prédilection d'éventuelles initiations des fissures. En fonction de la présence ou pas d'interphase dans la matrice, la propagation de l'endommagement du composite peut différer. Toutefois, l'état de contraintes globales sera surestimé si la région d'interphase n'est pas prise en compte dans les modèles numériques.

#### 4.8 Contribution des éléments cohésifs

Dans une seconde approche, l'interphase est prise en compte dans les modèles par l'ajout d'éléments de type cohésifs. L'objectif étant de considérer l'initiation de l'endommagement et confirmer les sites préférentiels de concentration de contraintes identifiés précédemment.

#### 4.8.1 Modification du maillage

Quand les éléments solides homogènes sont substitués par des éléments cohésifs pour décrire le comportement de la région d'interphase, le nombre d'éléments nécessaire dans l'épaisseur de l'interphase se limite à 1 élément cohésif conformément à la définition de ce type d'éléments [8]. Par contre, la discrétisation de la géométrie de l'interphase sera uniquement faite avec des éléments de type quadrangles, seul forme géométrique disponible dans ABAQUS<sup>TM</sup> pour les éléments cohésifs.

Par conséquent, tout le VER est maillé à nouveau en commençant par la région interphase avec des éléments de type *quad* -COH2D4- alors que des éléments de type *quaddominated* sont conservés pour les fibres et la matrice. Pour discrétiser, correctement l'interphase un coefficient de courbure (*curvature control*) d'une valeur de 0,03 est fixé pour respecter la géométrie initiale de l'interphase. En effet, l'omission de cette valeur rendrait impossible la génération du maillage par ABAQUS<sup>™</sup>. La valeur de 0,03 a été déterminée par méthode inverse.



FIGURE 4.11 – Exemple de maillage du composite avec une interphase discrétisée par des éléments COH2D4.

Par ailleurs, un second paramètre doit être introduit lors de la réalisation du maillage pour permettre le bon déroulement du calcul. En effet, les éléments cohésifs lorsqu'ils vont perdre en rigidité, conduisent bien souvent à des difficultés de convergence dans des calculs implicites comme dans ABAQUS<sup>™</sup>/Standard. Une technique couramment utilisée pour s'affranchir de ces problèmes de convergence est l'utilisation d'un paramètre de stabilisation numérique dénommé *viscosity* dans ABAQUS<sup>™</sup>. Ce paramètre de stabilité joue un rôle sur la matrice de rigidité du matériau en garantissant des valeurs positives associées à des incréments de temps suffisamment petits [8]. L'absence de cette valeur de stabilité ne permet pas d'obtenir la convergence des simulations. Il est important de souligner qu'aucune valeur de stabilité n'est mentionnée dans la littérature scientifique, ni même la notion de ce paramètre dans les analyses implicites utilisant des éléments cohésifs. Pour définir une valeur de stabilité pertinente pour les modèles développés dans cette étude, une analyse paramétrique a été menée. Pour ce cas, le paramètre de stabilité est compris entre les valeurs égales à 0,4 et jusqu'à 3. En-dessous de cette valeur de 0,4, les modèles ne permettaient pas d'obtenir la convergence de la solution, d'où la définition de cette borne inférieure fixée à 0,4. Par ailleurs, une valeur de stabilité égale à 1000 à été également proposée comme limite supérieure pour le composite considéré dans cette étude. Toutefois, au-delà de la valeur de 3, l'influence est très faible avec un écart de l'ordre de 5% entre la solution finale obtenue avec le paramètre de stabilité égale à 3 ou 1000 comme le montre la figure 4.12. De plus, les résultats décrivent un fort impact de ce paramètre sur la solution finale (courbe contrainte/déformation) pour des valeurs variant de 0,4 à 3. Pour la suite de ce travail, une valeur de 0,7 a été choisie, cette valeur correspond à une solution moyenne dans l'intervalle défini précédemment.



FIGURE 4.12 – Effet du paramètre de stabilité *viscosity* sur la réponse macroscopique numérique du composite.

#### 4.8.2 Principe de la loi traction/séparation

ABAQUS<sup>™</sup> propose une bibliothèque d'éléments cohésifs pour modéliser le comportement de joints de colle, d'interfaces, ou toutes autres sections où le développement de fissures est attendu. Pour bien comprendre le principe, il faut imaginer l'élément cohésif comme un solide avec deux faces séparées par un plan médian comme illustré sur la figure 4.13. Le mouvement relatif entre les faces supérieure et inférieure mesuré tout au long de la direction de l'épaisseur, représente l'ouverture ou la fermeture de l'élément. Tout changement de position de ces mêmes faces par rapport au plan médian indiquera un cisaillement [8].

Ce comportement mécanique peut être défini par :

- un modèle de comportement de type continu;



FIGURE 4.13 – Chemin illustrant l'élément cohésif sous ABAQUS™ [8].

— un modèle de comportement basé sur la contrainte uni-axiale;

— un modèle de comportement spécifié directement par une loi de traction/séparation.

L'implémentation d'un modèle continu ne peut se faire qu'en utilisant ABAQUS<sup>TM</sup>/Explicit et le modèle basé sur la contrainte uni-axiale est principalement réservé aux assemblages de type joints. La loi de traction/séparation apparait donc la plus adaptée pour cette étude sachant que l'interphase considérée est très petite et qu'elle peut être implémentée sous ABAQUS<sup>TM</sup>/Standard en conservant l'hypothèse de petites perturbations. Ce modèle prend en compte une première partie sans endommagement, suivie d'une valeur seuil qui spécifie l'initiation de l'endommagement puis de la propagation de ce dernier traduite par la perte de rigidité de l'élément. Le comportement mécanique en amont de l'endommagement est souvent décrit par une loi similaire à une loi élastique linéaire (équation 4.2) avec une rigidité noté K [8].

$$\mathbf{K} = \frac{t^o}{\delta^o} \tag{4.2}$$

Dans ce cas,  $t^o$  représente la résistance élastique à la traction et  $\delta^o$  la séparation critique qui fixe le début du glissement de l'élément cohésif. La figure 4.14 illustre la loi traction/séparation et les paramètres associés. Enfin, un dernier paramètre intervient dans cette loi,  $\delta^f$ , et peut être physiquement interprété comme la ductilité du matériau. Dès que la valeur de séparation dépasse cette ductilité, la rupture est alors atteinte et l'élément cohésif est supprimé du maillage pour la suite de la simulation numérique.

Il faut rappeler que l'hypothèse d'un comportement homogène et isotrope est conservée pour décrire l'interphase. Alors les valeurs des paramètres en traction ainsi qu'en séparation dans les directions normales et transversales (cisaillement) sont égales (relations 4.3).

$$t^{o} = t^{o}_{n} = t^{o}_{s}$$
  

$$\delta^{o} = \delta^{o}_{n} = \delta^{o}_{s}$$
  

$$\delta^{f} = \delta^{f}_{n} = \delta^{f}_{s}$$
(4.3)

Le processus de dégradation des éléments commence quand la contrainte ou la déformation vont satisfaire un critère (donné par l'utilisateur) d'initiation de l'endommagement. Le critère de contrainte nominale maximale qui est choisi lors de cette étude, est défini par un ratio entre la traction actuelle et la traction critique, c'est-à-dire que l'élément commencera à perdre sa rigidité initiale quand ce ratio sera égal à 1. Ce critère est décrit par l'équation 4.4 en prenant en compte les relations 4.3.

$$max\left\{\frac{t^n}{t_n^o}, \frac{t^s}{t_s^o}\right\} = \left\{\frac{t}{t^o}\right\} = 1$$
(4.4)



FIGURE 4.14 - Réponse traction/séparation avec perte de rigidité linéaire d'un élément cohésif [8].

L'évolution de l'endommagement sera basée sur un critère d'énergie dissipée. Cette énergie de rupture critique correspond à l'aire de la courbe traction/séparation illustrée à la figure 4.14. Elle peut être calculée comme indiqué dans l'équation 4.5.

$$G_c = \frac{t^o \delta^f}{2} \tag{4.5}$$

Pour définir un élément cohésif il faut donc identifier 3 paramètres indépendants qui sont :  $t^o$ , K ou  $\delta^o$ ,  $G_c$  ou  $\delta^f$ . Dans la littérature, plusieurs auteurs ont recours à des éléments cohésifs pour décrire le comportement d'une interface. Ils proposent des jeux de paramètres pour des composites similaires aux matériaux considérés dans ce travail. Le paramètre de rigidité K, paramètre exclusivement numérique, est souvent compris entre les valeurs  $10^5$  et  $10^8$  GPa/m [43, 58, 111, 6, 112]. La résistance élastique à la traction  $t^o$  ainsi que l'énergie de décohésion  $G_c$  de l'interphase sont calculées analytiquement [10] ou bien mesurées à partir d'essais de push-out [9].

Dans une première approche, les paramètres  $t^o$  et  $G_c$  issus de la littérature ont été directement introduits dans les modèles numériques développés pour ce projet. La valeur K a été fixée à 10<sup>8</sup> GPa/m. Le tableau 4.2 résume les valeurs utilisées dans les modèles numériques.

TABLEAU 4.2 – Paramètres de la loi de comportement traction/séparation.

	K (MPa/µm)	t <sup>o</sup> (MPa)	$G_c (pJ/\mu m^2)$	δ <sup>ο</sup> (μm)	δ <sup>f</sup> (μm)
Zhou [9]	10 <sup>5</sup>	73	139	0,00073	3,80822
Mantic 1 [10]	10 <sup>5</sup>	60	10	0,00060	0,33333
Mantic 2 [10]	10 <sup>5</sup>	90	2	0,00090	0,04444

Les résultats obtenus à partir de trois séries de paramètres sont relativement proches comme le montre la figure 4.15. Un écart de l'ordre de 2% est identifié entre les trois modèles. Les deux modèles de Mantic encadrent la solution obtenue par le modèle de Zhou et peuvent être considérés comme les bornes supérieures et inférieures. Cependant, les trois modèles sont très éloignés des valeurs expérimentales avec un écart légèrement inférieur à 40%. Pour minimiser cet écart une optimisation paramétrique va être réalisée.



FIGURE 4.15 – Comparaison du comportement macroscopique du composite avec interphase COH2D4, paramètres expérimentaux proposés par Zhou [9] et Mantic [10].

#### 4.8.3 Optimisation paramètrique

Dans cette approche d'optimisation paramétrique, il a été choisi de maintenir constants les paramètres  $t^o$  et G<sub>c</sub>, paramètres ayant un sens physique plus simple à identifier. Les valeurs de la rigidité K utilisées dans la littérature (i.e.  $10^5$  et  $10^8$  GPa/m) [43, 58, 111, 6, 112] ne permettent pas de satisfaire les modèles numériques mis en place dans ce projet. C'est pourquoi, une optimisation paramétrique est proposée pour obtenir des valeurs capables de mieux décrire l'évolution expérimentale.

Cette méthodologie est communément appelé méthode d'identification inverse. Elle repose sur une approche essai/erreur où l'identification paramétrique d'une loi de comportement se fait à partir des résultats expérimentaux. La différence principale entre cette méthode et le balayage paramétrique précédemment présenté à la section 4.4 est l'absence d'un intervalle pour la variable examinée. L'algorithme est implémenté sous MAT-LAB® et schématisé à la figure 4.16.

Les paramètres à optimiser sont renseignés et sauvegardés dans un fichier dénommé "name.inp" qui va transmettre ces valeurs d'entrée à la simulation numérique. ABAQUS<sup>TM</sup> sera lancé directement par cet algorithme pour exécuter le calcul numérique sans l'affichage du GUI. Au final, le fichier de sortie dénommé "name.odb" sera créé. Ce dernier est ensuite lu par un script en PYTHON<sup>TM</sup> qui calculera les propriétés macroscopiques du composite (contrainte et déformation). Un fichier texte est créé à partir de ces informations et puis une vérification est faite. Cette vérification va confronter l'écart entre l'itération actuelle et l'itération précédente et comparer cet écart à la tolérance donnée. L'erreur est définie par l'écart entre la courbe numérique et la courbe expérimentale à chaque itération. Si la tolérance n'est pas atteinte, la fonction *fminsearch* calculera la nouvelle série de paramètres et relancera la procédure. L'algorithme s'arrête dès que la tolérance est inférieure à l'erreur.

#### CHAPITRE 4. MODÉLISATION DU COMPORTEMENT DU COMPOSITE AVEC PRISE EN COMPTE DES INTERPHASES



FIGURE 4.16 – Algorithme d'optimisation paramétrique développé pour ce projet.

A partir de cet algorithme, le paramètre K a été optimisé afin d'obtenir une bonne convergence entre la solution numérique et le résultat expérimental (figure 4.17 et figure 4.18). Les nouvelles valeurs obtenues sont décrites dans le tableau 4.3. Ces résultats montrent qu'il faut une valeur de K douze fois plus grande que celle proposée dans la littérature pour faire converger la réponse numérique du composite étudié vers l'expérimentale.



FIGURE 4.17 – Comparaison du comportement macroscopique du composite avec interphase COH2D4, paramètres expérimentaux proposés par Zhou [9].

Comme attendu, il n'existe pas de solution universelle pour un même composite.



FIGURE 4.18 – Comparaison du comportement macroscopique du composite avec interphase COH2D4, paramètres analytiques proposés par Mantic [10].

TABLEAU 4.3 – Paramètres de la loi de comportement traction/séparation.

	K (MPa/µm)	t <sup>o</sup> (MPa)	$G_c (pJ/\mu m^2)$	δ <sup>ο</sup> (μm)	δ <sup>f</sup> (μm)
Zhou optimisé	1267875,3	73	139	0,0000576	3,80822
Mantic 1 optimisé	1279658,75	60	10	0,0000469	0,33333
Mantic 2 optimisé	1256807,70	90	2	0,0000716	0,04444

L'écart significatif observé pour le paramètre K pose la question de l'influence de chaque paramètre sur la réponse numérique. Dès lors, il apparait pertinent d'effectuer une étude paramétrique sur les 3 paramètres indépendants qui mettra en évidence l'importance de chacun.

#### 4.8.4 Étude paramétrique de l'interphase

Pour mener cette étude paramétrique dédiée à l'interphase, les paramètres de Zhou [9] (tableau 4.2) ont été choisis. Ce choix a été motivé par le grand nombre de citations et des travaux sur des modèles numériques s'appuyant sur ses résultats. Ces données expérimentales peuvent être considérées comme références pour le composite étudié dans ce projet.

Cette étude paramétrique porte sur les trois variables K,  $t^o$  et G<sub>c</sub> qui décrivent la loi de traction/séparation. Pour chaque analyse, seule la valeur du paramètre étudié est modifiée alors que les autres paramètres sont maintenus constants (valeurs issues du modèle Zhou).

#### Paramètre de rigidité K

Le paramètre de rigidité K est un paramètre exclusivement numérique (pas de sens physique). Cette valeur doit être suffisamment grande pour assurer la continuité du déplacement dans l'interphase et pour empêcher la modification du champ de contraintes autour des fibres [58, 6]. La figure 4.19 montre l'influence de ce paramètre de rigidité de l'interphase sur la réponse contrainte/déformation à l'échelle macroscopique. Deux valeurs sont considérées,  $10^2$  et  $10^5$  MPa/µm qui comme indiqué précédemment sont les valeurs classiquement utilisées dans la littérature [43, 58, 111, 6, 112]. La contrainte du composite et son module d'élasticité varient en fonction de la rigidité de l'interphase. En effet, un écart en contrainte de l'ordre de 66% est constaté.



FIGURE 4.19 – Influence du paramètre de rigidité de l'interphase sur le comportement macroscopique du composite.

#### Paramètre de résistance élastique à la traction t<sup>o</sup>

Pour évaluer l'influence de la résistance élastique à la traction de l'interphase sur le comportement macroscopique du composite, trois valeurs ont été choisies. Une première valeur,  $t^o = 60$  MPa est retenue. Elle peut être assimilée à la valeur de résistance à la rupture de l'interphase fibre/matrice sur des systèmes époxy/résine similaires au composite considéré. Deux autres valeurs correspondants à la moitié et au double de cette première valeur ( $t^o = 30$  MPa et  $t^o = 120$  MPa) sont prises en compte pour identifier l'influence de ce paramètre. La figure 4.20 présente les trois résultats obtenus. Une faible différence de l'ordre de 7% dans la résistance globale du composite est observée. Au vue de ces résultats, l'influence de ce paramètre est mineure sachant que l'intervalle de valeur possible au sens physique se trouve entre 60 et 90 MPa [9, 110, 10].

Dans la littérature, il a été constaté que numériquement, l'endommagement plastique de la matrice arrive avant la décohésion interfaciale [6]. Ce qui indique que cette résistance élastique à la traction qui gouverne les éléments cohésifs, est contrôlée par la matrice.

#### Paramètre d'énergie de rupture Gc

Pour faire une comparaison de la dissipation de l'énergie au sein des interphases, deux valeurs ont été choisies :  $G_c = 10 \text{ pJ}/\mu\text{m}$  qui représente une interface fragile et  $G_c = 100 \text{ pJ}/\mu\text{m}$  pour décrire une interphase plus ductile [43].



FIGURE 4.20 – Influence de la résistance élastique à la traction de l'interphase  $t^o$  sur le comportement macroscopique du composite.



FIGURE 4.21 – Influence de l'énergie de rupture de l'interphase  $G_c$  sur le comportement macroscopique du composite.

L'influence de cette énergie de rupture de l'interphase sur le comportement macroscopique du composite est illustrée à la figure 4.21. Aucune influence n'est identifiée, les deux courbes sont complètement superposées. Ce résultat est en accord avec les travaux de Yang [6], où une divergence entre les courbes à différentes énergies est identifié uniquement au début de la rupture. La littérature décrit que ce comportement intervient lors de l'ajout d'un modèle de propagation de fissure pour la matrice (par exemple une loi Drucker-Prager). L'absence de ce modèle dans les simulations mises en place dans cette étude limitent l'influence de ce paramètre qui peut jouer un rôle important dans la propagation de l'endommagement comme le montrent les travaux de Yang [6].

De cette étude paramétrique de l'interphase, seul le paramètre de rigidité K apparait influent sur la réponse numérique. Ce résultat doit être modéré en particulier pour l'énergie comme mentionné précédemment. En revanche, le paramètre de résistance élastique à la traction joue un rôle limité sur la solution finale.

#### 4.8.5 Analyse numérique du champ de contraintes locales avec des éléments COH2D4

Le modèle proposé par Zhou avec les paramètres optimisés 4.3 est pris en compte pour l'analyse numérique du champ des contraintes locales. La figure 4.22 montre la cartographie des contraintes du modèle avec interphases décrites par des éléments cohésifs (COH2D4). En comparant cette distribution de contraintes, avec celle présentée précédemment à la figure 4.10b qui prenait en compte une interphase décrite avec des éléments de type solide et homogène (CPE4). Une baisse de la surface des contraintes maximales est remarquée immédiatement. La concentration des contraintes maximales est localisée dans les interphases et la contrainte dans les fibres est diminuée par rapport au modèle sans éléments cohésifs (figure 4.10b). La figure met en évidence que les fibres localisées aux bords du VER sont plus impactées mécaniquement (effet de bords). Cela est une description du comportement du composite qui se rapproche plus de ce qui se passe physiquement. Pour permettre la comparaison entre les modèles avec interphase, les deux échelles avec le critère de Mises sont similaires pour toutes les cartographies.

L'absence d'un critère de rupture pour la matrice, empêche la propagation de ces concentrations de contraintes maximales pour une représentation plus réaliste d'un chemin de rupture et d'une propagation de fissures. Seule une analyse qualitative du niveau de contraintes peut être envisagée à partir de ces résultats. Une analyse quantitative imposerait à minima l'ajout d'une loi d'endommagement pour la matrice.



FIGURE 4.22 – Champ de contraintes globales et locales, modèle avec interphase cohésive.

#### 4.9 Conclusion

Le comportement mécanique élastique d'un composite à matrice époxy renforcé par des fibres de verre (fraction volumique des fibres de 54%), est prédit avec une assez bonne précision par rapport aux valeurs expérimentales en utilisant une technique d'homogénéisation basée sur l'analyse par EF. Une approche multi-échelle à partir d'un VER numérique à été menée dans ce projet. Ce dernier est composé de fibres de verre distribuées aléatoirement (avec une approche probabiliste) de diamètre constant et d'une matrice époxy incluant la présence d'interphase au voisinage de chaque fibre.

Pour alimenter les données d'entrée propres au modèle numérique, la démarche mise en place a été de s'appuyer sur un maximum des valeurs expérimentales acquises, soit dans le cadre du laboratoire (études antérieures), soit, le cas échéant, de la littérature. Par exemple, l'épaisseur des interphases de 200 nm, le module d'élasticité moyen de l'interphase sont obtenus à partir des mesures AFM acquises dans le cadre d'une étude précédente [14, 113].

Trois paramètres de l'interphase ont été étudiés : l'épaisseur, le module de Young et le coefficient de Poisson. D'une manière générale, les propriétés d'un matériau composite sollicité dans la direction transversale des fibres sont influencées par les propriétés des interphases. Cet effet devient encore plus significatif avec l'augmentation de la fraction volumique des fibres. En effet, cela implique que la quantité d'interphase est plus importante dans la matrice. Pour le cas présent, la proportion de la matrice au voisinage des fibres a une rigidité plus faible (mesure AFM [14]), d'où la notion d'*interphase souple*.

Par conséquent, dans le modèle numérique, la valeur du module d'élasticité de la matrice est supérieure à celle du module d'élasticité des interphases. Dans ce contexte, le module d'élasticité du composite va augmenter avec la diminution de l'épaisseur de l'interphase. De même, une augmentation du module d'élasticité de l'interphase va augmenter le module d'élasticité du composite.

Pour résumer, si l'interphase représente une proportion significative de la matrice (pourcentage volumique des fibres élevé ou grande épaisseur d'interphase par exemple), une attention particulière doit être portée sur les propriétés introduites dans le modèle numérique. Dans le cas du module d'élasticité, ce travail montre que l'interphase ne peut plus être négligée compte tenu de son influence sur les propriétés macroscopiques. L'absence d'interphase dans les modèles conduit à une surestimation de la réponse numérique du composite. En ce qui concerne le coefficient de Poisson, l'étude a montré que son influence peut être négligée, ce qui est couramment fait dans la littérature.

Même dans le cadre très simple d'un comportement linéaire élastique et même en considérant des éléments *solides et homogènes*, la région interphase joue un rôle très important dans la prédiction du comportement global du composite. En effet, une amélioration de 6,8% sur la prédiction du comportement mécanique du composite lors de la prise en compte des interphases est observée.

Dans un seconde approche, l'interphase est prise en compte dans les modèles par l'ajout d'éléments de type cohésif. Une valeur pour le paramètre de stabilisation numérique, qui permet d'obtenir la convergence des calculs en implicite, est identifiée. Aucun sens physique n'a pu être donné à cette valeur, mais le choix correspond à la solution moyenne de l'intervalle qui a été fixé pour l'étude de son influence (V=0,7).

Une loi de traction/séparation est choisie pour décrire le comportement des zones cohésives. Ce modèle de comportement est décrit par 3 variables indépendants qui traduisent la partie sans endommagement contrôlée par la valeur de K, le seuil d'initiation de l'endommagement associé à la valeur de  $t^o$  et l'évolution de la perte de rigidité des éléments liée au paramètre  $G_c$ . Une analyse avec des valeurs issues de la littérature est faite et un écart de 40% est observé. C'est pourquoi, une optimisation paramétrique est proposée. Dans ce cadre, pour que les valeurs expérimentales ou analytiques de référence (celles proposées par Zhou et Mantic) puissent reproduire la réponse expérimentale de ce projet, le paramètre de rigidité K, doit être douze fois plus grand que les valeurs classiquement trouvées dans la littérature.

Une étude paramétrique est dédiée à l'influence des paramètres de la loi de traction/séparation. Le paramètre de rigidité de l'interphase apparait influent sur la réponse numérique. En revanche, le paramètre de résistance élastique à la traction a un impact moins important sur la solution finale. Enfin, l'influence de l'énergie de rupture sera uniquement identifiable lors de l'ajout d'un modèle de propagation de fissures pour la matrice.

Avec l'analyse du champ de contraintes du micro-modèle, la localisation des contraintes maximales est observée. L'absence des phénomènes comme l'endommagement de la matrice et les critères de ruptures pour la matrice ainsi que pour les interphases, ne permet pas de faire une étude quantitative des résultats. Toutefois, les interphases sont les sites préférentiels de concentration de contraintes et donc l'initiation de l'endommagement peut être attribuée à une décohésion dans l'interphase.

Les résultats présentés dans ce chapitre constatent que les futures approches micromécaniques doivent inclure les interphases pour mieux prédire le comportement réel des composites, spécialement lorsque la fraction volumique des fibres est élevée.

## **Chapitre 5**

# Simulation des phénomènes de durabilité des composites à partir d'une approche VER

« Une personne qui n'a jamais commis d'erreurs n'a jamais tenté d'innover »

Albert Einstein

#### Sommaire

5.1	Étude	e de cas : vieillissement naturel d'un composite UD 20% vol	83
	5.1.1	Matériaux	83
	5.1.2	Vieillissement naturel	85
	5.1.3	Modélisation	85
	5.1.4	Perspectives	90
5.2	Étude	e de cas : cinétique de diffusion d'un composite UD 50% vol	91
	5.2.1	Matériaux composites UD et propriétés initiales	91
	5.2.2	Vieillissement accéléré en immersion	93
	5.2.3	Modélisation	93
5.3	Concl	usion	96

Dans ce chapitre, deux études de cas sont proposées pour tester l'approche VER précédemment mise en place. L'objectif est de prédire le comportement des composites soumis à un vieillissement naturel ou accéléré. Pour chaque cas, les propriétés des matériaux et les résultats expérimentaux sont présentés. Ces informations seront prises en compte dans les modèles numériques dans le but de s'approcher du comportement réel du composite. Ce chapitre propose à partir de deux études de cas préalablement traitées au laboratoire, de tester l'approche VER mise en place pour ce travail afin de prédire le comportement des composites en vieillissement. Les matériaux mis en jeu seront des matrices de type époxy renforcées par des fibres de verre. Les études retenues pour la simulation ont été sélectionnées en fonction des données de caractérisation disponibles principalement pour la partie interphase. Le premier cas traite d'un composite UD renforcé à 20% vol. qui a subi un vieillissement naturel dans un environnement tropical. Le second cas traite d'un composite UD chargé à 50% vol. ayant subi un vieillissement accéléré en immersion.

# 5.1 Étude de cas : vieillissement naturel d'un composite UD 20% vol.

Ce premier cas aborde la problématique de la durabilité des composites UD dans le cadre d'un vieillissement naturel sous environnement tropical. Les travaux expérimentaux ont été réalisés dans le cadre d'une thèse en partenariat avec l'Université de Danang au Vietnam.

#### 5.1.1 Matériaux

La matrice du composite mis en œuvre au laboratoire repose sur deux constituants fournis par Sigma Aldrich : un pré-polymère de type DGEBA liquide (avec n = 0,13) associé à un durcisseur de type amine aliphatique (diéthylènetriamine – DETA avec une pureté à 99%). Les renforts sont des fibres de verre E fournies par la société Owens Corning Reinforcements sous forme de roving. Un ensimage simplifié à base d'agent couplant de type  $\gamma$ -AminoPropyltriéthoxySilane ( $\gamma$ -APS) sans ajout de composants tels que les agents filmogènes, les plastifiants ou les tensioactifs, a été retenu pour sa compatibilité avec la matrice résineuse et surtout pour obtenir un composite "modèle" en théorie plus simple pour identifier les phénomènes mis en jeu à l'interphase.

Ainsi, des plaques unidirectionnelles de 2 mm d'épaisseur, contenant environ 20% vol. de fibres, ont été obtenues par moulage après un cycle de cuisson (2 h à 60 °C, suivies de 2 h à 120 °C, puis de 2 h à 140 °C) permettant d'obtenir une conversion maximale.

Les observations au MEB (figure 5.1) montrent la présence de défauts sous la forme de porosités à l'échelle du micromètre (identifiée à 1,2% par mesure gravimétrique) et une forte hétérogénéité de la distribution spatiale des fibres dans la matrice. Toutefois, la figure 5.1b montre l'absence de décohésion entre la fibre et la matrice.

Des caractérisations aux échelles macroscopiques, par essai de flexion 3 points [114], ont permis d'identifier les propriétés d'élasticité de la résine seule et du composite. Les valeurs des modules d'élasticité sont regroupées dans le tableau 5.1. L'ajout d'un taux de fibres de 20% vol. permet d'augmenter le module d'élasticité avec un gain de plus de 40% par rapport à la résine seule. Une dispersion des valeurs expérimentales de l'ordre de 13% pour la résine et 6% pour le composite est observée.

TABLEAU 5.1 – Propriétés mécaniques à l'état initial de la résine et du composite [11].

	Module d'élasticité expérimental (MPa)
Résine t0	$1423 \pm 192$
Composite t0	$2059 \pm 136$

#### CHAPITRE 5. SIMULATION DES PHÉNOMÈNES DE DURABILITÉ DES COMPOSITES À PARTIR D'UNE APPROCHE VER



FIGURE 5.1 – Images MEB du composite (sens transverse) à différentes échelles de grossissement [11].

Les mesures par AFM ont permis de caractériser le voisinage des fibres et d'identifier les propriétés mécaniques des zones d'interphases comme le montre la figure 5.2. Deux zones ayant des propriétés d'élasticité bien différentes sont mises en évidence dans le composite. Lorsque les mesures sont réalisées au voisinage des fibres, sur une distance comprise entre 50 nm et 500 nm depuis l'interface, un module d'élasticité plus faible est observé. Au-delà d'une distance de 500 nm depuis l'interface, une valeur de module plus forte est observée. Cette dernière traduit la rigidité du réseau de la matrice époxy mieux réticulée loin de l'interface. Des valeurs moyennes égales à 1,9 GPa pour l'interphase et 3 GPa pour la matrice, seront prises pour les modélisations numériques. L'ensemble des données d'entrée utiles aux modèles numériques sont regroupées dans le tableau 5.2. La valeur du module d'élasticité de la matrice mesurée par AFM correspond au double de la valeur du module d'élasticité préalablement calculée lors des essais en flexion 3 points. Une discussion sur cette différence sera introduite lors de l'analyse des résultats numériques.



FIGURE 5.2 – Évolution du module d'élasticité mesuré par AFM à différentes distances à partir de la fibre -à l'état non vieilli-.

TABLEAU 5.2 - Propriétés des constituants du composite utilisées dans les modèles numériques.

	Matri	ce	Fibı	es	In	terphas	e
	E <sub>m</sub> (GPa)	$\nu_{\mathbf{m}}$	$E_f(GPa)$	$\nu_{f}$	$E_i(GPa)$	$\nu_i$	e <sub>i</sub> (nm)
t0	3 *	0,4 **	72 **	0,25 **	1,9 *	0,4 **	500 *

\* Valeurs mesurées expérimentalement.

\*\* Valeurs issues de la littérature.

#### 5.1.2 Vieillissement naturel

Les matériaux décrits dans cette étude ont subi un vieillissement naturel de type tropical. Les échantillons ont été positionnés sur le site de l'Université de Danang au Vietnam. La région est propice aux moussons avec un fort taux d'ensoleillement et de fortes pluviométrie et humidité. L'énergie solaire moyenne annuelle à Danang est de l'ordre de 6400  $MJ/m^2$  (pour une valeur moyenne d'environ 6000  $MJ/m^2$  pour Toulon [115]). Par ailleurs, le taux d'humidité relative moyen est de 82% ± 4% et les valeurs moyennes en température sont comprises entre  $T_{min} = 22,6 \ ^{\circ}C \pm 2,3 \ ^{\circ}C$  et  $T_{max} = 29,8 \ ^{\circ}C \pm 3,6 \ ^{\circ}C$ . Pour minimiser l'influence du vieillissement UV du composite, l'analyse a été réalisée sur des échantillons prélevés suffisamment loin des faces exposées. La figure 5.3, décrit l'influence du vieillissement de la face matricielle après 76 semaines d'exposition. Conformément à la littérature, les propriétés décroient au cours du temps. Une perte d'environ 60% de la rigidité initiale de la matrice est caractérisée par AFM. De plus, la zone d'interphase tend à s'agrandir avec une augmentation d'environ le double de sa taille initiale. Les valeurs introduites dans les modèles numériques sont regroupées dans le tableau 5.3.



FIGURE 5.3 – Évolution du module d'élasticité mesuré par AFM à différentes distances à partir de la fibre -avant et après vieillissement-.

#### 5.1.3 Modélisation

Le VER développé pour étudier ce composite UD chargé à 20% en volume sera réalisé à partir d'un unique arrangement des fibres. En effet, l'influence de la distribution peut

1 1	Matrice		Matrice Fibre		Interphase		
	E <sub>m</sub> (GPa)	$\nu_{\mathbf{m}}$	$E_f(GPa)$	$\nu_{f}$	E <sub>i</sub> (GPa)	$\nu_i$	$e_i(\mu m)$
t0	3 *	0,4 **	72 **	0,25 **	1,9 *	0,4 **	0,5 *
t76	1,2 *	0,4 **	72 **	0,25 **	1,1 *	0,4 **	1 *

TABLEAU 5.3 – Propriétés des constituants du composite à l'état vieilli utilisées dans les modèles numériques.

\* Valeurs mesurées expérimentalement.

\*\* Valeurs issues de la littérature.

être considérée comme négligeable pour les propriétés mécaniques (section 3.3.4). Les CL reposent sur la méthode KUBC en accord avec les travaux précédemment décrits dans ce manuscrit. Un essai de traction simple est modélisé par un déplacement imposé sur le VER.

La prise en compte du vieillissement est réalisée par l'introduction des propriétés différentes entre l'état initial (non vieilli) et l'état vieilli. Les propriétés de chaque constituant (matrice, interphase, fibre) sont décrites dans le tableau 5.3. Une modification géométrique de la taille de l'interphase (de 500 nm à 1  $\mu$ m) impose la réalisation de deux modèles numériques, présentés à la figure 5.4. Le maillage a été construit à partir d'éléments quadrangulaires linéaires de manière similaire aux modèles précédemment réalisées dans ce projet.





FIGURE 5.4 – Modèles 2D V<sub>f</sub> = 20%. A gauche, modèle à l'état non vieilli. A droite modèle après un vieillissement naturel de 76 semaines.

Les simulations d'essais de traction à partir du VER permettent de déterminer un module d'élasticité pour chacun des modèles considérés. Les résultats sont regroupés dans le tableau 5.4. En introduisant dans le modèle numérique la valeur obtenue expérimentalement par AFM loin de l'interface (i.e. 3 GPa), le module du composite calculé est légèrement inférieur à 5 GPa. Cette valeur surestime très largement les valeurs obtenues expérimentalement sur le composite par flexion 3 points (+ 140%). En revanche, en introduisant la valeur mesurée sur les échantillons de résine seule (i.e. 1,4 GPa) par essai de flexion 3 points, dans le modèle numérique, une valeur de module pour le composite plus proche de la valeur expérimentale est calculée (tableau 5.5). Un écart d'environ 20% est alors identifié.

La littérature propose plusieurs modèles analytiques plus ou moins simples permettant d'estimer l'évolution du module d'élasticité d'un matériau biphasé [105]. Ces modèles ont été développés à partir des hypothèses d'un comportement élastique et isotrope TABLEAU 5.4 – Module d'élasticité du composite à l'état initial et vieilli, obtenu expérimentalement et numériquement (prise en compte de la valeur du module de la matrice par AFM dans le modèle numérique).

	Module d'élasticité expérimental (MPa)	Module d'élasticité numérique (MPa)	Écart (%)
Composite t0	2059	4982	141%
Composite t76	2033	2078	2%

TABLEAU 5.5 – Module d'élasticité du composite à l'état initial, obtenu expérimentalement et numériquement (prise en compte de la valeur du module de la matrice par essai de flexion 3 points dans le modèle numérique).

	Module d'élasticité expérimental (MPa)	Module d'élasticité numérique (MPa)	Écart (%)
Composite t0	2059	2520	22%

pour chacune des phases. Le modèle le plus connu et aussi le plus simple est le modèle de Voigt et Reuss [116, 117] qui représente respectivement un assemblage en série et en parallèle (bornes de validité de la valeur du module d'élasticité). Le modèle analytique de Hashin et Shtrikman [118, 119, 120] permet un encadrement plus restrictif que le modèle de Voigt et Reuss. Ce modèle décrit le matériau comme l'assemblage de sphères homothétiques, constituées d'un noyau sphérique représentant une particule de rayon *a*, recouvert d'une enveloppe concentrique de rayon *b*, décrivant la matrice, de telle sorte que la fraction volumique de particules soit égale à  $\left(\frac{a}{b}\right)^3$ . Pour occuper tout l'espace, la distribution spatiale des particules est aléatoire et leurs diamètres peuvent atteindre de très petites valeurs.





En calculant le module de Young effectif pour le composite considéré dans cette section avec comme valeur de matrice un module de 3 GPa (mesure par AFM), les valeurs analytiques des bornes inférieures de chaque modèle surestiment fortement la valeur expérimentale comme le montre la figure 5.5. En règle générale, en l'absence de défaut, il est courant d'avoir des valeurs expérimentales comprise à minima entre les bornes supérieurs et inférieures du modèle de Voigt et Reuss qui peuvent être considérées comme le domaine d'existence du matériau biphasé. Ces résultats, similaires aux résultats numériques convergent vers une valeur de module vraisemblablement surestimée pour la matrice globale avec la mesure AFM.



FIGURE 5.6 – Bornes de validité de la valeur du module de Young (prise en compte de la valeur du module de la matrice par essai de flexion 3 points dans les modèles analytiques).



FIGURE 5.7 – Bornes de validité de la valeur du module de Young (prise en compte de la valeur du module de la matrice vieillie par AFM dans les modèles analytiques).

En introduisant dans les modèles analytiques, la valeur de module mesurée sur les

# CHAPITRE 5. SIMULATION DES PHÉNOMÈNES DE DURABILITÉ DES COMPOSITES À PARTIR D'UNE APPROCHE VER

échantillons de résine seule (i.e. 1423 MPa), la réponse expérimentale est comprise dans les bornes des deux modèles (figure 5.6). Il faut remarquer que dans cette partie analytique, le module de l'interphase n'a pas été considéré. La prise en compte de cette valeur doit permettre d'abaisser les valeurs des modèles analytiques sachant que la valeur du module globale de la matrice est plus souple à cause de l'interphase.

Ces résultats mettent en évidence l'importance des caractérisations expérimentales dès lors qu'elles sont utilisées comme données d'entrée. Les valeurs obtenues par AFM sont réalisées à des échelles nanométriques ne permettant pas de prendre en compte des défauts aux échelles micro ou macroscopiques (voir figure 5.1a). L'essai de flexion 3 points, à l'inverse, permet de caractériser globalement la rigidité pondérée par les défauts présents dans la phase matricielle. Par ailleurs, il faut rappeler qu'une porosité de l'ordre de 1,2% avait été déterminée expérimentalement. Ce taux de porosité joue également un rôle prépondérant sur la valeur du module d'élasticité de la résine.



(a) Module matrice = 3 GPa (mesure AFM)



(b) Module matrice = 1,4 GPa (mesure flexion)



(c) Module matrice = 1,2 GPa (mesure AFM)

FIGURE 5.8 – Champ de contraintes locales (critère Mises) dans le composite à l'état initial (a) et (b) et à l'état vieilli (c).

N'ayant pas de valeurs expérimentales pour les échantillons de résines vieillies audelà de 32 semaines [34], les valeurs de module introduites dans les modèles numériques reposent uniquement sur des mesures AFM du composite vieilli (i.e. 1,2 GPa). De la même manière que précédemment, cette valeur de module de la matrice vieillie a été introduite dans les différents modèles analytiques et les valeurs de modules sont schématisées à la figure 5.7. Les valeurs expérimentales sont comprises dans l'intervalle de Voigt et Reuss ainsi que celui de H&S. Après 76 semaines d'exposition au vieillissement naturel, le module d'élasticité du composite calculé numériquement, de l'ordre de 2 GPa, est très proche des valeurs mesurées expérimentalement. Le bon accord entre ces deux modèles peut se justifier par l'état de dégradation avancé de la phase matricielle qui devient prépondérant face aux défauts préexistants à l'état non vieilli.

Par ailleurs, l'état de contrainte présent dans les VER est décrit par les figures 5.8 et 5.9. Dans la figure 5.8, les cartographies sont présentées avec des échelles en isovaleurs sans quantifier l'intensité des contraintes dans le but d'une analyse uniquement qualitative. Une répartition du chemin de contraintes est similaire pour les 3 configurations. La valeur maximale est directement liée à l'arrangement des fibres indépendamment du degré de vieillissement du composite. Toutefois, les intensités en contrainte diffèrent entre ces 3 modèles (max. 1, max. 2 et max. 3) en bon accord avec la rigidité matricielle considérée pour chacun des modèles. Pour montrer l'influence du vieillissement sur les intensités de contraintes (figure 5.9), l'échelle des isovaleurs a été bornée pour tous les modèles en prenant comme référence l'échelle du modèle à l'état non vieilli (figure 5.9a). En fonction de la rigidité de la matrice considérée, l'état de contrainte évolue d'un facteur 2 en cohérence avec l'écart des valeurs de module de la matrice prises en compte dans les différents modèles.



(a) Module matrice = 3 GPa (mesure AFM)



(b) Module matrice = 1,4 GPa (mesure flexion)



(c) Module matrice = 1,2 GPa (mesure AFM)

FIGURE 5.9 – Champ de contraintes locales (critère Mises) dans le composite à l'état initial (a) et (b) et à l'état vieilli (c) - échelle normalisée -.

#### 5.1.4 Perspectives

De cette étude de cas, il apparait prépondérant d'améliorer la caractérisation des interphases pour pouvoir améliorer et fiabiliser la prédiction des modèles numériques. Pour cela, la mise en œuvre de matériaux modèles s'avère indispensable. Le laboratoire s'inscrit dans cette démarche dans le cadre d'une nouvelle thèse initiée en 2018. L'idée est de disposer de matériaux avec différents degrés de sous réticulation parfaitement contrôlés et maitrisés. La caractérisation de ces systèmes "modèles" à différentes échelles devrait permettre d'améliorer d'une part la compréhension des phénomènes de vieillissement dans les interphases et d'autre part de fournir les données d'entrée aux modèles numériques permettant une meilleure description des interphases et de leur évolution dans le temps.

L'approche VER utilisée dans le cadre de cette étude de cas a montré des écarts pouvant être assez importants par rapport aux résultats expérimentaux. Ces écarts, peuvent être justifiés par la présence de défauts plus ou moins importants et mériteraient une prise en compte dans les modèles numériques pour s'approcher du composite réel. Toutefois, il faut rappeler que le composite mis en œuvre a été fait au laboratoire avec des moyens d'élaboration limités qui d'un point de vue industriel n'ont pas lieu d'exister. De plus, l'évolution de la taille de l'interphase mériterait également d'être prise en considération de manière plus évolutive dans les modèles numériques pour améliorer le côté prédictif. Nul doute que ce dernier point serait un atout pour une application industrielle de l'outil VER dans le cadre de ce travail.

# 5.2 Étude de cas : cinétique de diffusion d'un composite UD 50% vol.

La seconde étude de cas présentée dans ce chapitre traite de la simulation numérique de la cinétique de diffusion d'un composite UD. L'intégralité des travaux expérimentaux ont été réalisés dans le cadre d'une thèse en amont [7], menée au laboratoire en partenariat avec des industriels. Le composite élaboré va subir un vieillissement accéléré en immersion en accord avec les normes aéronautiques en vigueur.

#### 5.2.1 Matériaux composites UD et propriétés initiales

Les matériaux choisis dans cette étude sont d'origine commerciale. Pour la phase matricielle, une résine époxy de type DGEBA (ARALDITE® LY556 - Ciba-Geigy) avec un durcisseur de type polyamine aliphatique (XB3486 - Huntsman) a été retenue. Pour les renforts du futur composite, des fibres de verre E (300 Tex, diamètre = 15  $\mu$ m) avec un ensimage commercial ont été utilisées.

Deux types de matériaux ont été mis en œuvre dans cette étude, le premier est une plaque de résine pure et le second une plaque de composite à matrice époxy renforcée par des fibres de verre. Les plaques composites ont été réalisées par un procédé similaire à l'enroulement filamentaire chez le partenaire industriel afin d'obtenir un composite unidirectionnel avec un taux de fibres de 50% en volume. Des plaques de résine seule ont été élaborées par moulage au laboratoire en suivant le cycle de cuisson préconisé par le fournisseur et permettant d'atteindre des propriétés mécaniques optimales.

L'analyse au MEB montre une dispersion des fibres dans le composite qui peut être considérée comme hétérogène avec des zones riches en fibres caractéristique des composites UD [121]. A titre d'exemple, la figure 5.10, montre des zones renforcées à 60% vol. (figure 5.10a) alors que d'autres zones ne contiennent qu'un taux de fibre de 30% vol. (figure 5.10b). La teneur en porosité a également été mesurée et reste inférieure à 1% en
volume. De plus, aucune décohésion à l'interface fibre/matrice n'a été constatée lors des observations du composite.







FIGURE 5.10 – Clichés MEB en contraste chimique du composite époxy-aliphatique [7].

Pour caractériser la présence d'interphases dans le composite, la microanalyse thermique ( $\mu$ -TA) a été utilisée. Une description détaillée de la technique est présentée à l'annexe B. Des mesures locales sur les échantillons de résine pure ont montré des températures comprises entre 110 °C et 127 °C (zone délimitée par les pointillés rouges de la figure 5.11). Ces premières valeurs montrent la dispersion des mesures locales par  $\mu$ -TA (supérieure à 10%). Au voisinage de la fibre, la température de ramollissement T<sub>s</sub> chute conformément à la littérature [4]. Dès lors, la taille de l'interphase présente au voisinage des fibres peut être estimée sur une distance d'environ 10 µm depuis l'interface fibre/matrice. Dans cette zone matricielle, la température de ramollissement chute progressivement de manière quasi-linéaire entre 4 µm et 10 µm depuis l'interface. Cette chute s'accélère avec une forte baisse entre 0 et 4 µm de l'interface. Des résultats analogues ont été obtenus par Mallarino [4] à partir de mesures en DMA sur un composite UD similaire.



FIGURE 5.11 – Évolution de la température de ramollissement  $T_s$  de la matrice en fonction de la distance à partir de l'interface de la fibre [12].

#### 5.2.2 Vieillissement accéléré en immersion

Les échantillons de composite et de résine de dimension  $75x75x2 mm^3$  ont été immergés dans une eau dé-ionisée à 70 °C pendant une durée de 16 semaines conformément à la norme NF EN 2489 [122]. La prise en eau a été mesurée régulièrement avec une balance de précision Ohaus (± 0,5 mg) et l'absorption d'eau a été reportée en fonction du temps. Sur les 10 essais réalisés (conformément à la norme), une dispersion sur les mesures en masse a été calculée comme inférieure à 2%.

Les résultats expérimentaux sont en bon accord avec le modèle analytique de Fick [123] aussi bien pour la résine seule que pour les composites unidirectionnels (figure 5.12). Le coefficient de diffusion calculé sur la résine seule est de  $15x10^{-13} m^2/s$ . Cette valeur sera utilisée pour décrire le comportement de la matrice dans la modélisation. Par ailleurs, le coefficient de diffusion obtenu est de 7.75x10<sup>-13</sup>  $m^2/s$  pour le composite.



FIGURE 5.12 – Cinétique de prise en eau dans les échantillons de résines et de composites.

#### 5.2.3 Modélisation

Un modèle 2D maillé principalement avec des éléments quadrangulaires (7483 éléments de type DC2D4 et 637 éléments de type DC2D3) est développé pour étudier un composite UD avec un taux volumique de fibres de 50% en volume. Une taille globale de maille de 1,5  $\mu$ m est utilisée en prenant comme référence des études précédemment faites au laboratoire [13]. Une interphase de 4  $\mu$ m d'épaisseur, préalablement identifiée par  $\mu$ -TA, est considérée dans les modèles (figure 5.13).

Les coefficients de diffusion ainsi que les masses à saturation d'eau utilisés pour les modélisations concernant les fibres [14, 124] et la résine, sont regroupés dans le tableau 5.6.

Pour décrire la partie interphase dans les modèles, deux valeurs provenant de la littérature seront considérées : une première valeur équivalente à 10 fois la valeur du coefficient de diffusion de la résine [125] et une deuxième 5 fois plus grande que le coefficient de diffusion de la résine [12]. Le tableau 5.7 regroupe ces informations. Les valeurs de



FIGURE 5.13 – Maillage global choisi, composite 2D V<sub>f</sub> = 50%.

TABLEAU 5.6 – Propriétés des matériaux pour modéliser la cinétique de diffusion.

	$D(m^2/s)$	<b>M</b> <sub>s</sub> (%)
Résine	$15 \text{x} 10^{-13} \text{ *}$	2,29 *
Fibres	$1 x 10^{-30} **$	1x10 <sup>-30</sup> **
<b>w T 7 1</b>	,	/ · · · 1 · ·

\* Valeurs mesurées expérimentalement.\*\* Valeurs issues de la littérature.

masse à saturation prises pour l'interphase sont égales à celles de la résine. Cette hypothèse contestable, repose sur l'absence de valeurs expérimentales pour cette zone. Une valeur supérieure à celle de la résine pourrait être envisagée dans le modèle pour l'interphase, justifiée par la sous-réticulation de son réseau [4].

TABLEAU 5.7 – Propriétés de l'interphase pour modéliser la cinétique de diffusion.

	$D(m^2/s)$	<b>M</b> <sub>s</sub> (%)			
Interphase [125]	150x10 <sup>-13</sup> **	2.29 *			
Interphase [12]	75x10 <sup>-13</sup> **	2.29 *			
* Valeurs mesurées expérimentalement					

\* Valeurs mesurées expérimentalement.

\*\* Valeurs issues de la littérature.

Une première simulation basée sur les travaux de Tual [126] et en considérant un échantillon de résine seule a été réalisée avec les CL décrites à la figure 5.14. Une bonne corrélation entre les valeurs expérimentales et numériques est obtenue (figure 5.15). Une analyse similaire a été réalisée sur le micro-modèle composite (figure 5.16). Les résultats obtenus à partir des deux valeurs d'interphase mentionnées précédemment (i.e. 5 et 10 fois plus grandes que le coefficient de diffusion de la résine), montrent une surestimation de la cinétique de diffusion. Dans le cadre des travaux de la littérature le composite avait un arrangement préférentiel des fibres d'une part et ne présentait pas d'interphase d'autre part.

Pour améliorer la modélisation de la cinétique de diffusion dans un composite, le développement d'un outil d'homogénéisation pourrait être pertinent de manière similaire à l'approche faite pour décrire le comportement mécanique au chapitre 3. Le plug-in "Homtools" permet d'accéder au formalisme mathématique mettant en œuvre les condi-



FIGURE 5.14 – Conditions aux limites de la simulation de la diffusion de l'eau dans le VER.



FIGURE 5.15 – Comparaison des résultats expérimentaux et numériques de cinétique de la prise en eau dans la résine.

tions d'homogénéisation en mécanique des modèles numériques. En s'inspirant de cet outil, une stratégie similaire devrait permettre de faciliter la mise en œuvre des CL pour l'utilisateur. Toutefois, par manque de temps, ce travail n'a pas pu être réalisé dans ce projet et devra donc être effectué ultérieurement. La stratégie est illustrée à la figure 5.17 et le formalisme mathématique repose sur les équations 5.1 [17, 127, 128] où le comportement macroscopique effectif est représenté par le tenseur de gradients de concentrations macroscopiques  $\bar{\nabla}_c$  et le tenseur de flux macroscopiques  $\bar{j}$ . A partir d'un VER, ce comportement macroscopique peut être retrouvé par les relations entre les gradients de concentrations  $\nabla_c$  et les flux j propres au VER et son volume V.

$$\bar{\nabla}_c = \frac{1}{V} \int_V \nabla_c dV \qquad \bar{j} = \frac{1}{V} \int_V j dV \tag{5.1}$$

#### CHAPITRE 5. SIMULATION DES PHÉNOMÈNES DE DURABILITÉ DES COMPOSITES À PARTIR D'UNE APPROCHE VER



FIGURE 5.16 – Comparaison des résultats expérimentaux et numériques de cinétique de la prise en eau dans le composite.



FIGURE 5.17 – Schéma de principe de l'homogénéisation pour modéliser la cinétique de diffusion.

### 5.3 Conclusion

Avec une approche de type VER, la simulation des phénomènes de durabilité des composites a été considérée à partir de deux études de cas issues des travaux de thèse antérieurs menés au laboratoire. Les caractérisations expérimentales utilisées pour obtenir des données d'entrée indispensables pour la construction des modèles numériques, sont extraites de ces travaux.

Pour la première étude de cas, un composite avec une fraction volumique de 20% est

## CHAPITRE 5. SIMULATION DES PHÉNOMÈNES DE DURABILITÉ DES COMPOSITES À PARTIR D'UNE APPROCHE VER

modélisé à l'état initial (non vieilli) et à l'état vieilli (après 76 semaines de vieillissement naturel de type tropical). L'approche VER à l'état initial considère deux valeurs différentes du module d'élasticité pour la matrice du composite. Ces valeurs ont été obtenues en utilisant deux techniques expérimentales différentes, par essai de flexion 3 points et par AFM. L'échelle de caractérisation est donc très différente, les essais de flexion 3 points permettent de calculer un module associé à la macro-structure alors que les mesures par AFM sont locales. C'est pourquoi les valeurs de ces deux mesures sont largement différentes, d'où l'intérêt d'analyser le résultat numérique en prenant les deux configurations. Un écart de 22% entre la réponse expérimentale du composite et la réponse numérique avec le module de la résine calculé par l'essai de flexion, est obtenu. D'autre part, en considérant le module de la matrice mesuré par AFM, un écart de 141% est identifié. En effet, la mesure locale du module d'élasticité de la matrice, néglige complètement les défauts (précédemment observés au MEB) aux échelles supérieures comme par exemple, les macro-porosités.

En l'absence de données expérimentales sur le module de la résine vieillie, les valeurs de module introduites dans les modèles numériques reposent uniquement sur des mesures par AFM du composite vieilli. Un écart de seulement 2% est identifié. Le bon accord entre ces deux modèles peut se justifier par l'état de dégradation de la phase matricielle qui devient prépondérant devant les défauts préexistants.

La deuxième étude de cas considère un composite chargé à 50% vol. et a comme objectif la validation du VER pour décrire la cinétique de diffusion de l'eau dans ce composite. Une première approche basée sur des travaux issus de la littérature, a permis de montrer une surestimation de la réponse numérique sur les valeurs expérimentales. Pour améliorer la prédiction des modèles, le développement d'un outil d'homogénéisation similaire à "Homtools" peut être une alternative. Toutefois, cette validation n'a donc pas pu être menée jusqu'à son terme par un manque de temps pour développer cet outil dédié à la diffusion et tout particulièrement à la gestion automatique des CL.

Au final, ce chapitre a permis de montrer la robustesse du micro-modèle développement dans cadre de ce travail de thèse pour la partie comportement élastique. Les pistes d'amélioration restent nombreuses et mériteraient une suite pour appréhender les évolutions des tailles d'interphases et de gradients de propriétés au cours du vieillissement ainsi que les phénomènes de diffusion et l'endommagement. Le VER a permis également un gain de temps significatif sur les calculs.

## **Conclusions et perspectives**

« La recherche doit avant tout être un jeu et un plaisir »

**Pierre Joliot** 

Les travaux menés dans le cadre de cette thèse contribuent à l'étude de l'influence des interphases sur les propriétés mécaniques à l'échelle macroscopique d'un composite fortement chargé (> à 50% en volume). L'étude, exclusivement numérique, a conduit au développement de plusieurs outils facilitant la mise en œuvre des micro-modèles. Pour alimenter les micro-modèles, l'introduction de données issues d'études expérimentales a été plébiscitée. Il faut rappeler que ce travail a été réalisé au sein d'un laboratoire principalement de physico-chimie qui dispose donc d'un grand nombre de valeurs expérimentales fiabilisées. De plus, une assez bonne compréhension des systèmes époxy/fibres de verre a été acquise sur ces dernières années au laboratoire et tout particulièrement sur les interphases présentes dans ces matériaux.

La mise en œuvre des composites à partir d'une matrice thermodurcissable et des fibres ensimées, conduit à la présence d'interphases au voisinage de chaque fibre. Suivant la formulation chimique de cet ensimage, cette interphase aura des propriétés plus ou moins différentes de celles de la matrice et aura une taille plus ou moins grande dans le composite. Caractériser cette interphase peut sembler être un défit compte tenu des dimensions nanométriques mises en jeu. Parmi l'ensemble des techniques disponibles, l'AFM apparait intéressant pour caractériser ces zones au voisinage des fibres.

Le développement des modèles numériques pour les composites permet d'estimer les propriétés de ces matériaux. Une grande majorité des modèles décrits dans la littérature représente les composites sous la forme simplifiée d'une fibre et d'une matrice. L'interface est alors décrite simplement par un contact ou par l'introduction d'éléments cohésifs. Cependant, en tout rigueur, il conviendrait de prendre en compte l'interphase dans ces modèles afin d'améliorer leurs prédictions. Par ailleurs, l'introduction des valeurs expérimentales dans les modèles participe à cette amélioration.

Il ressort des travaux antérieurs menés au laboratoire que plusieurs méthodes de caractérisation à différentes échelles permettent soit de mettre en évidence la présence de cette interphase, soit d'accéder aux propriétés de cette dernière. Ce volet expérimental est essentiel pour la stratégie mise en place dans cette thèse qui consiste à utiliser un maximum de données expérimentales dans les paramètres numériques du micro-modèle. De la même manière, les résultats numériques seront confrontés au valeurs expérimentales afin de mesurer la pertinence du micro-modèle.

Le micro-modèle retenu dans ce travail repose sur les hypothèses d'un VER. Pour la génération de sa géométrie, le développement d'un plug-in a permis de rendre accessible l'opération pour un simple utilisateur d'ABAQUS<sup>TM</sup> et donc de permettre une valorisation industrielle de cet outil à très court terme. Avant la mise en œuvre de ce VER, une étude

paramétrique a été souhaitée pour quantifier l'impact de chacun de ses paramètres sur la réponse numérique. Il en ressort que le ratio taille du VER/diamètre des fibres, doit être supérieur à 8. Cette valeur est confirmée par la littérature et conduit bien souvent à l'utilisation d'un ratio égal à 10. Par ailleurs, la distribution aléatoire des fibres et les CL ne présentent pas une influence significative sur le comportement mécanique. Les résultats numériques montrent une surestimation du module d'élasticité qui peut être directement imputée aux CL choisies qui par définition surestiment la réponse du modèle. Pour améliorer ces résultats, la prise en compte des interphases dans le VER est effectuée, dans une première approche, par l'ajout d'une troisième phase dans le modèle. Dès lors, une assez bonne précision du modèle par rapport aux valeurs expérimentales est obtenue. Ces résultats montrent bien une nouvelle fois que l'interphase, bien que de dimensions nanométriques impacte directement les propriétés macroscopiques du composite. Dans une seconde approche, cette interphase est modélisée par des éléments cohésifs. Le choix des paramètres de l'élément cohésif a été réalisé à partir d'une identification inverse en se basant sur la réponse expérimentale. Ces modèles montrent que les interphases sont les sites préférentiels de concentration de contraintes et donc de l'initiation de l'endommagement. L'ensemble des résultats présentés dans ce manuscrit convergent vers la nécessité d'introduire les interphases dans les modèles au risque de perdre en précision de calcul. Ce résultat est d'autant plus vrai que le taux de fibres est important. Comme attendu, l'approche VER a permis un gain de temps significatif sur les calculs tout en conservant une bonne précision du résultat numérique.

Dans une dernière partie, le VER mis en place dans ce travail a été utilisé sur deux autres composites différents de par leurs teneurs en fibres mais également leurs ensimages respectifs. Si des résultats satisfaisants ont été obtenus dans la première étude de cas, la transposition du VER au phénomène de diffusion requiert la mise en place de CL spécifiques qui n'ont pas pu être réalisées dans le cadre de ce travail.

Au final, ce travail montre la bonne robustesse du modèle VER développé pour la prédiction du comportement élastique. Les pistes d'amélioration sont nombreuses et mériteraient une suite pour appréhender les évolutions des tailles d'interphases et des gradients de propriétés au cours du vieillissement. De même, les phénomènes de diffusion et l'endommagement doivent être introduits dans le VER afin d'élargir son spectre.

## Bibliographie

- [1] Granta Design LTD : Granta's CES EduPack 2018.
- [2] D. GAY: Matériaux composites, volume 5. Lavoisier, Paris, 2005.
- [3] A. BERTHOZ, J. F. CARON et M. F. GRENIER-LOUSTALOT : Performance d'un ski de course : structure composite et glisse sur neige. *In La chimie et le sport*, page 16. EDP Sciences, Les Ulis Cedex A, France, décembre 2012.
- [4] S. MALLARINO, J. F. CHAILAN et J. L. VERNET : Interphase investigation in glass fibre composites by micro-thermal analysis. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 36(9):1300–1306, septembre 2005.
- [5] G. H. PAULINO et K. PARK : Cohesive zone models : A critical review of tractionseparation relationships across fracture surfaces. *Applied Mechanics Reviews*, 51: 61801, novembre 2011.
- [6] L. YANG, Y. YAN, Y. LIU et AL. : Microscopic failure mechanisms of fiber-reinforced polymer composites under transverse tension and compression. *Composites Science and Technology*, 72(15):1818–1825, octobre 2012.
- [7] M. B. HEMAN : Contribution à l'étude des interphases et de leur comportement au vieillissement hygrothermique dans les systèmes à matrice thermodurcissable renforcés de fibres de verre. phdthesis, Université du Sud Toulon Var, octobre 2008.
- [8] Dassault SYSTÈMES : Abaqus Analysis User's Manual (6.11), avril 2011.
- [9] X. F. ZHOU, H.D. WAGNER et S.R. NUTT : Interfacial properties of polymer composites measured by push-out and fragmentation tests. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 32(11):1543–1551, novembre 2001.
- [10] V. MANTIČ : Interface crack onset at a circular cylindrical inclusion under a remote transverse tension. Application of a coupled stress and energy criterion. *International Journal of Solids and Structures*, 46(6):1287–1304, mars 2009.
- [11] T. H. NGUYEN : *Vieillissement artificiel et vieillissement naturel en ambiance tropicale de composites modèles époxy/verre : approche nanoscopique de l'étude des interphases.* phdthesis, Université de Toulon, juillet 2013.
- [12] Y. JOLIFF, W. REKIK, L. BELEC et AL. : Study of the moisture/stress effects on glass fibre/epoxy composite and the impact of the interphase area. *Composite Structures*, 108:876–885, février 2014.
- [13] Y. JOLIFF, L. BELEC, M. B. HEMAN et AL. : Experimental, analytical and numerical study of water diffusion in unidirectional composite materials Interphase impact. *Computational Materials Science*, 64:141–145, novembre 2012.
- [14] Y. JOLIFF, L. BELEC et J. F. CHAILAN : Modified water diffusion kinetics in an unidirectional glass/fibre composite due to the interphase area : Experimental, analytical and numerical approach. *Composite Structures*, 97:296–303, mars 2013.

- [15] A. BERGERET et P. KRAWCAZAK : Liaison renfort/matrice Définition et caractérisation, janvier 2006.
- [16] J. M. BERTHELOT : *Matériaux composites*, volume 5. Editions TEC & DOC, Paris, 2012.
- [17] W. A. M. BREKELMANS et M. G. D. GEERS : Computational homogenization for heat conduction in heterogeneous solids. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, pages 185–204, 2008.
- [18] P. COGNARD : Résistance chimique et à la corrosion des composites, juin 2004.
- [19] J. RENARD : Fatigue des matériaux composites renforcés de fibres continues, juillet 2010.
- [20] R. KARAKUZU, H. KANLIOGLU et M. E. DENIZ : Environmental Effects on Mechanical Properties of Glass-Epoxy Composites. *Materials Testing*, 56(5):355–361, mai 2014.
- [21] F. ELLYIN et Rachel. MASER : Environmental effects on the mechanical properties of glass-fiber epoxy composite tubular specimens. *Composites Science and Technology*, 64(12):1863–1874, septembre 2004.
- [22] C. BATHIAS et AL. : *Matériaux composites*. Mécanique et Matériaux. L'Usine Nouvelle DUNOD, Paris, juin 2009.
- [23] J. L THOMASON et L. J. ADZIMA : Sizing up the interphase : an insider's guide to the science of sizing. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 32(3): 313–321, mars 2001.
- [24] M. DEY, J. M. DEITZEL, J. W. GILLESPIE et AL. : Influence of sizing formulations on glass/epoxy interphase properties. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 63:59–67, août 2014.
- [25] R. MCMICAN : Sizing stability is a key element for glass fibre manufacturing. *Reinforced Plastics*, 56(5):29–32, septembre 2012.
- [26] H. AL-MOUSSAWI, E. K. DROWN et L. T. DRZAL : The silane/sizing composite interphase. *Polymer Composites*, 14(3):195–200, juin 1993.
- [27] L. DRZAL : Interfaces and interphases. *In ASM Handbook, Composites (ASM International)*, volume 21, pages 169–179. D.B. Miracle and S.L. Donaldson, 2001.
- [28] I. JASIUK et M. W. KOUIDER: The effect of an inhomogeneous interphase on the elastic constants of transversely isotropic composites. *Mechanics of Materials*, 15(1):53– 63, mars 1993.
- [29] J. WANG, S. L. CROUCH et S. G. MOGILEVSKAYA : Numerical modeling of the elastic behavior of fiber-reinforced composites with inhomogeneous interphases. *Composites Science and Technology*, 66(1):1–18, janvier 2006.
- [30] Y. M. SHABANA : A micromechanical model for composites containing multilayered interphases. *Composite Structures*, 101:265–273, juillet 2013.
- [31] X. GAO, R. E. JENSEN, S. H. MCKNIGHT et AL. : Effect of colloidal silica on the strength and energy absorption of glass fiber/epoxy interphases. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 42(11):1738–1747, novembre 2011.
- [32] J. K. KIM, M. L. SHAM et J. WU : Nanoscale characterisation of interphase in silane treated glass fibre composites. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 32(5):607–618, mai 2001.

- [33] R. L. GOROWARA, W. E. KOSIK, S. H. MCKNIGHT et AL. : Molecular characterization of glass fiber surface coatings for thermosetting polymer matrix/glass fiber composites. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 32(3):323–329, mars 2001.
- [34] L. BELEC, T. H. NGUYEN, D. L. NGUYEN et AL. : Comparative effects of humid tropical weathering and artificial ageing on a model composite properties from nano- to macro-scale. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 68:235–241, janvier 2015.
- [35] S. L. GAO et E. MÄDER : Characterisation of interphase nanoscale property variations in glass fibre reinforced polypropylene and epoxy resin composites. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 33(4):559–576, avril 2002.
- [36] S. KARI, H. BERGER, U. GABBERT et AL. : Evaluation of influence of interphase material parameters on effective material properties of three phase composites. *Composites Science and Technology*, 68(3):684–691, mars 2008.
- [37] G. WACKER, A. K. BLEDZKI et A. CHATE : Effect of interphase on the transverse Young's modulus of glass/epoxy composites. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 29(5):619–626, janvier 1998.
- [38] J. L. THOMASON : The interface region in glass fibre-reinforced epoxy resin composites : 1. Sample preparation, void content and interfacial strength. *Composites*, 26(7):467–475, juillet 1995.
- [39] J. L. THOMASON : The interface region in glass fibre-reinforced epoxy resin composites : 2. Water absorption, voids and the interface. *Composites*, 26(7):477–485, juillet 1995.
- [40] E. MÄDER, E. MOOS et J. KARGER-KOCSIS : Role of film formers in glass fibre reinforced polypropylene — new insights and relation to mechanical properties. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 32(5):631–639, mai 2001.
- [41] B. K. LARSON et L. T. DRZAL: Glass fibre sizing/matrix interphase formation in liquid composite moulding: effects on fibre/matrix adhesion and mechanical properties. *Composites*, 25(7):711–721, 1994.
- [42] G. C. SIH, M. NAIT-ABDELAZIZ et T. VU-KHANH: Particle and continuum aspects of mesomechanics : Mesomechanics 2007. John Wiley & Sons, janvier 2010.
- [43] T. J. VAUGHAN et C. T. MCCARTHY : Micromechanical modelling of the transverse damage behaviour in fibre reinforced composites. *Composites Science and Technology*, 71(3):388–396, février 2011.
- [44] H. FRENZEL et E. MÄDER : Influence of different interphases on the mechanical properties of fiber-reinforced polymers. *In* H.-J. JACOBASCH, éditeur : *Interfaces, Surfactants and Colloids in Engineering*, numéro 101 de Progress in Colloid & Polymer Science, pages 199–202. Steinkopff, 1996.
- [45] M. LAGACHE, A. AGBOSSOU, J. PASTOR et AL. : Role of interphase on the elastic behavior of composite materials : Theoretical and experimental analysis. *Journal of Composite Materials*, 28(12):1140–1157, juin 1994.
- [46] A. B. TRAN : Développement de méthodes numériques multi échelle pour le calcul des structures constituées de matériaux fortement hétérogènes élastiques et viscoélastiques. phdthesis, Université Paris-Est, octobre 2011.
- [47] H. GHAYOOR, S. V. HOA et C. C. MARSDEN : A micromechanical study of stress concentrations in composites. *Composites Part B : Engineering*, 132:115–124, janvier 2018.

- [48] X. X. ZHANG, B. L. XIAO, H. ANDRÄ et AL. : Multiscale modeling of macroscopic and microscopic residual stresses in metal matrix composites using 3d realistic digital microstructure models. *Composite Structures*, 137:18–32, mars 2016.
- [49] S. DAI et P. R. CUNNINGHAM : Multi-scale damage modelling of 3d woven composites under uni-axial tension. *Composite Structures*, 142:298–312, mai 2016.
- [50] F. GRECO, L. LEONETTI et P. NEVONE BLASI : Adaptive multiscale modeling of fiberreinforced composite materials subjected to transverse microcracking. *Composite Structures*, 113:249–263, juillet 2014.
- [51] A. CATAPANO et M. MONTEMURRO : A multi-scale approach for the optimum design of sandwich plates with honeycomb core. Part I : Homogenisation of core properties. *Composite Structures*, 118:664–676, décembre 2014.
- [52] Y. F. XING, Y. YANG et X. M. WANG : A multiscale eigenelement method and its application to periodical composite structures. *Composite Structures*, 92(9):2265–2275, août 2010.
- [53] K. N. SPANOS, S. K. GEORGANTZINOS et N. K. ANIFANTIS : Mechanical properties of graphene nanocomposites : A multiscale finite element prediction. *Composite Structures*, 132:536–544, novembre 2015.
- [54] Y. ISMAIL, Y. SHENG, D. YANG et AL. : Discrete element modelling of unidirectional fibre-reinforced polymers under transverse tension. *Composites Part B : Enginee-ring*, 73:118–125, mai 2015.
- [55] L. L. MISHNAEVSKY et S. SCHMAUDER : Continuum mesomechanical Finite Element modeling in materials development : A state-of-the-art review. *Applied Mechanics Reviews*, 54(1):49–67, janvier 2001.
- [56] M. SALMI, F. AUSLENDER, M. BORNERT et AL. : Various estimates of Representative Volume Element sizes based on a statistical analysis of the apparent behavior of random linear composites. *Comptes Rendus Mécanique*, 340(4–5):230–246, avril 2012.
- [57] M. HERRÁEZ, C. GONZÁLEZ, C. S. LOPES et AL. : Computational micromechanics evaluation of the effect of fibre shape on the transverse strength of unidirectional composites : An approach to virtual materials design. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, décembre 2016.
- [58] C. GONZÁLEZ et J. LLORCA : Mechanical behavior of unidirectional fiber-reinforced polymers under transverse compression : Microscopic mechanisms and modeling. *Composites Science and Technology*, 67(13):2795–2806, octobre 2007.
- [59] P. A. TOULEMONDE, J. DIANI, P. GILORMINI et AL. : On the account of a cohesive interface for modeling the behavior until break of highly filled elastomers. *Mechanics of Materials*, 93:124–133, février 2016.
- [60] R. HUANG et P. LI : Elastic behaviour and failure mechanism in epoxy syntactic foams : The effect of glass microballoon volume fractions. *Composites Part B : Engineering*, 78:401–408, septembre 2015.
- [61] A. CATAPANO et J. JUMEL : A numerical approach for determining the effective elastic symmetries of particulate-polymer composites. *Composites Part B : Engineering*, 78:227–243, septembre 2015.
- [62] A. EL MOUMEN, T. KANIT, A. IMAD et AL. : Effect of reinforcement shape on physical properties and representative volume element of particles-reinforced composites : Statistical and numerical approaches. *Mechanics of Materials*, 83:1–16, avril 2015.

- [63] C. T. SUN et R. S. VAIDYA : Prediction of composite properties from a representative volume element. *Composites Science and Technology*, 56(2):171–179, 1996.
- [64] D. TRIAS, J. COSTA, J. A. MAYUGO et AL. : Random models versus periodic models for fibre reinforced composites. *Computational Materials Science*, 38(2):316–324, décembre 2006.
- [65] M. TANEMURA : On random complete packing by discs. *Annals of the Institute of Statistical Mathematics*, 31(1):351–365, décembre 1979.
- [66] J. S. WANG : Random sequential adsorption, series expansion and Monte Carlo simulation. *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications*, 254(1-2):179–184, mai 1998.
- [67] E. GHOSSEIN et M. LÉVESQUE : Random generation of periodic hard ellipsoids based on molecular dynamics : A computationally-efficient algorithm. *Journal of Computational Physics*, 253:471–490, novembre 2013.
- [68] D. ALI et S. SEN : Finite element analysis of boron nitride nanotubes' shielding effect on the stress intensity factor of semielliptical surface crack in a wide range of matrixes using RVE model. *Composites Part B : Engineering*, 110:351–360, février 2017.
- [69] D. ALI et S. SEN : Finite element analysis of the effect of boron nitride nanotubes in beta tricalcium phosphate and hydroxyapatite elastic modulus using the RVE model. *Composites Part B : Engineering*, 90:336–340, avril 2016.
- [70] K. SCHNEIDER, B. KLUSEMANN et S. BARGMANN : Automatic three-dimensional geometry and mesh generation of periodic representative volume elements for matrixinclusion composites. *Advances in Engineering Software*, 99(Supplement C):177– 188, septembre 2016.
- [71] O. Van der SLUIS, P. J. G. SCHREURS, W. A. M. BREKELMANS et AL. : Overall behaviour of heterogeneous elastoviscoplastic materials : effect of microstructural modelling. *Mechanics of Materials*, 32(8):449–462, août 2000.
- [72] B. PENG et W. YU : A micromechanics theory for homogenization and dehomogenization of aperiodic heterogeneous materials. *Composite Structures*, 199:53–62, septembre 2018.
- [73] L. BOUHALA, A. MAKRADI, S. BELOUETTAR et AL. : Modelling of failure in long fibres reinforced composites by X-FEM and cohesive zone model. *Composites Part B : Engineering*, 55:352–361, décembre 2013.
- [74] E. MÄDER, S.-L. GAO et R. PLONKA : Enhancing the properties of composites by controlling their interphase parameters. *Advanced Engineering Materials*, 6(3):147–150, mars 2004.
- [75] L. J. BROUTMAN et B. D. AGARWAL : A theoretical study of the effect of an interfacial layer on the properties of composites. *Polymer Engineering & Science*, 14(8):581–588, août 1974.
- [76] G. C. PAPANICOLAOU, S. A. PAIPETIS et P. S. THEOCARIS : The concept of boundary interphase in composite mechanics. *Colloid and Polymer Science*, 256(7):625–630, juillet 1978.
- [77] S. J. HWANG et R. F. GIBSON : Prediction of fiber-matrix interphase effects on damping of composites using a micromechanical strain energy/finite element approach. *Composites Engineering*, 3(10):975–984, 1993.

- [78] Y. XU, S. DU, J. XIAO et AL. : Evaluation of the effective elastic properties of long fiber reinforced composites with interphases. *Computational Materials Science*, 61:34– 41, août 2012.
- [79] J. WANG, S. L. CROUCH et S. G. MOGILEVSKAYA : Numerical modeling of the elastic behavior of fiber-reinforced composites with inhomogeneous interphases. *Composites Science and Technology*, 66(1):1–18, janvier 2006.
- [80] L. BELEC et Y. JOLIFF : Mechanically affected zone in AFM force measurements Focus on actual probe tip geometry. *Materials & Design*, 104:217–226, août 2016.
- [81] V. A. ÁLVAREZ, M. E. VALDEZ et A. VÁZQUEZ : Dynamic mechanical properties and interphase fiber/matrix evaluation of unidirectional glass fiber/epoxy composites. *Polymer Testing*, 22(6):611–615, septembre 2003.
- [82] H. F. WU, D. W. DWIGHT et N. T. HUFF: Effects of silane coupling agents on the interphase and performance of glass-fiber-reinforced polymer composites. *Composites Science and Technology*, 57(8):975–983, janvier 1997.
- [83] M. S. TILLMAN, B. S. HAYES et J. C. SEFERIS : Examination of interphase thermal property variance in glass fiber composites. *Thermochimica Acta*, 392–393:299–302, septembre 2002.
- [84] N. SPITZ : Relations entre les propriétés des interphases et les propriétés macroscopiques dans les composites à matrice organique – Influence de la nature des ensimages des fibres de verre, juin 2015. Confidentiel.
- [85] AFNOR : Norme européene, norme française NF EN ISO 527-5, octobre 2009.
- [86] AFNOR : Norme européene, norme française NF EN ISO 527-2, octobre 2009.
- [87] G. POMPE et E. MÄDER : Experimental detection of a transcrystalline interphase in glass-fibre/polypropylene composites. *Composites Science and Technology*, 60(11): 2159–2167, août 2000.
- [88] V. CECH, E. PALESCH et J. LUKES : The glass fiber–polymer matrix interface/interphase characterized by nanoscale imaging techniques. *Composites Science and Technology*, 83:22–26, juin 2013.
- [89] A. M. DÍEZ-PASCUAL, M. A. GÓMEZ-FATOU, F. ANIA et AL. : Nanoindentation in polymer nanocomposites. *Progress in Materials Science*, 67:1–94, janvier 2015.
- [90] H. J. BUTT, B. CAPPELLA et M. KAPPL: Force measurements with the atomic force microscope : Technique, interpretation and applications. *Surface Science Reports*, 59(1):1–152, octobre 2005.
- [91] Anne BERTHEREAU et E. DALLIES : Fibres de verre de renforcement, janvier 2008.
- [92] D. MOUNIER, C. POILÂNE, C. BÛCHER et AL. : Evaluation of transverse elastic properties of fibers used in composite materials by laser resonant ultrasound spectroscopy. *In* Société Française D'ACOUSTIQUE, éditeur : *Acoustics 2012*, Nantes, France, avril 2012.
- [93] S. LEJEUNES et S. BOURGEOIS : Une toolbox abaqus pour le calcul de propriétés effectives de milieux hétérogènes. *In 10e colloque national en calcul des structures*, 2011.
- [94] A. MACKRELL : Multiscale composite analysis in Abaqus : Theory and motivations. *Reinforced Plastics*, 61(3):153–156, mai 2017. https://multimechanics.com/.
- [95] R. MCLENDON : Micromechanics Plugin for Abaqus | LinkedIn.

- [96] S. BOURGEOIS et S. LEJEUNES : HOMTOOLS Homogeneization toolbox for Abaqus, 2011.
- [97] M. EL HACHEMI, Y. KOUTSAWA, H. NASSER et AL. : An intuitive computational multiscale methodology and tool for the dynamic modelling of viscoelastic composites and structures. *Composite Structures*, 144:131–137, juin 2016.
- [98] A. TCHALLA, S. BELOUETTAR, A. MAKRADI et AL. : An ABAQUS toolbox for multiscale finite element computation. *Composites Part B : Engineering*, 52:323–333, septembre 2013.
- [99] M. NESLÁDEK et M. ŠPANIEL : An Abaqus plugin for fatigue predictions. *Advances in Engineering Software*, 103:1–11, janvier 2017.
- [100] F. LÓPEZ JIMÉNEZ : On the isotropy of randomly generated representative volume elements for fiber-reinforced elastomers. *Composites Part B : Engineering*, 87:33–39, février 2016.
- [101] M. I. OKEREKE et A. I. AKPOYOMARE : A virtual framework for prediction of full-field elastic response of unidirectional composites. *Computational Materials Science*, 70(Supplement C):82–99, avril 2013.
- [102] L. RIAÑO, L. BELEC et Y. JOLIFF : Validation of a Representative Volume Element for unidirectional fiber-reinforced composites : Case of a monotonic traction in its cross section. *Composite Structures*, 154:11–16, octobre 2016.
- [103] J. FEDER : Random sequential adsorption. *Journal of Theoretical Biology*, 87(2):237–254, novembre 1980.
- [104] W. TIAN, L. QI, J. ZHOU et AL. : Representative volume element for composites reinforced by spatially randomly distributed discontinuous fibers and its applications. *Composite Structures*, 131:366–373, novembre 2015.
- [105] C. MARTIAS, Y. JOLIFF et C. FAVOTTO : Effects of the addition of glass fibers, mica and vermiculite on the mechanical properties of a gypsum-based composite at room temperature and during a fire test. *Composites Part B : Engineering*, 62:37–53, juin 2014.
- [106] W. SONG, V. KRISHNASWAMY et R. V. PUCHA: Computational homogenization in RVE models with material periodic conditions for CNT polymer composites. *Composite Structures*, 137:9–17, mars 2016.
- [107] E. MARTIN, B. POITOU et D. LEGUILLON : Initiation of fracture mechanisms at the fibre/matrix interface. *In Fracture of Nano and Engineering Materials and Structures*, pages 919–920. Springer, Dordrecht, 2006.
- [108] J. N. REDDY et K. L. REIFSNIDER : Local mechanics concepts for composite material systems : IUTAM Symposium Blacksburg. Springer Science & Business Media, 2013.
- [109] Y. LIU, Y. YAN, L. YANG et AL. : Prediction on macroscopic elastic properties of interphase-contained long-fiber-reinforced composites and multiple nonlinear regression analysis. *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, 31(17):1143–1157, septembre 2012.
- [110] S. KEUSCH, H. QUECK et K. GLIESCHE : Influence of glass fibre/epoxy resin interface on static mechanical properties of unidirectional composites and on fatigue performance of cross ply composites. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 29(5):701–705, janvier 1998.

- [111] L. YANG, Y. YAN, J. MA et AL. : Effects of inter-fiber spacing and thermal residual stress on transverse failure of fiber-reinforced polymer–matrix composites. *Computational Materials Science*, 68:255–262, février 2013.
- [112] L. YANG, Z. WU, Y. CAO et AL. : Micromechanical modelling and simulation of unidirectional fibre-reinforced composite under shear loading. *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, 34(1):72–83, janvier 2015.
- [113] L. RIAÑO, L. BELEC, J. F. CHAILAN et AL. : Effect of interphase region on the elastic behavior of unidirectional glass-fiber/epoxy composites. *Composite Structures*, 198:109–116, août 2018.
- [114] AFNOR : Norme européene, norme française NF EN 2746, novembre 1998.
- [115] MINISTRE DES RESSOURCES NATURELLES CANADA AVEC LA COORDINATION DES NASA, UNEP, GEF ET REEEP : Logiciel RETScreen Plus.
- [116] W. VOIGT : Lehrbuch der Kristallphysik (mit Ausschluss der Kristalloptik). Vieweg+Teubner Verlag, 1 édition, 1966.
- [117] A. REUSS : Berechnung der Fließgrenze von Mischkristallen auf Grund der Plastizitätsbedingung für Einkristalle. ZAMM - Journal of Applied Mathematics and Mechanics / Zeitschrift für Angewandte Mathematik und Mechanik, 9(1):49–58, janvier 1929.
- [118] Z. HASHIN : The elastic moduli of heterogeneous materials. *Journal of Applied Mechanics*, 29(1):143–150, mars 1962.
- [119] Z. HASHIN et S. SHTRIKMAN : On some variational principles in anisotropic and nonhomogeneous elasticity. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 10(4): 335–342, octobre 1962.
- [120] Z. HASHIN et S. SHTRIKMAN : A variational approach to the theory of the elastic behaviour of multiphase materials. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 11(2):127–140, mars 1963.
- [121] N. D. ALBEROLA, G. MERLE et K. BENZARTI : Unidirectional fibre-reinforced polymers : analytical morphology approach and mechanical modelling based on the percolation concept. *Polymer*, 40(2):315–328, janvier 1999.
- [122] AFNOR : Norme européene, norme française NF EN 2489, janvier 1996.
- [123] A. FICK : Ueber diffusion. Annalen der Physik, 170(1):59–86, janvier 1855.
- [124] D. A. BOND : Moisture diffusion in a fiber-reinforced composite : Part I Non-fickian transport and the effect of fiber spatial distribution. *Journal of Composite Materials*, 39(23):2113–2141, décembre 2005.
- [125] M. WOO et M. R. PIGGOTT : Water absorption of resins and composites : IV. Water transport in fiber reinforced plastics. *Journal of Composites, Technology and Research*, 10(1):20–24, mars 1988.
- [126] N. TUAL : *Durability of carbon/epoxy composites for tidal turbine blade applications*. phdthesis, Université de Bretagne Occidentale, novembre 2015.
- [127] D. JAIN, A. MUKHERJEE et N. KWATRA : Local micromechanics of moisture diffusion in fiber reinforced polymer composites. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 76:199–209, septembre 2014.
- [128] I. B. C. M. ROCHA, S. RAIJMAEKERS, F. P. van der MEER et AL. : Combined experimental/numerical investigation of directional moisture diffusion in glass/epoxy composites. *Composites Science and Technology*, 151:16–24, octobre 2017.

- [129] H. M. POLLOCK et A. HAMMICHE : Micro-thermal analysis : techniques and applications. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 34(9):R23, 2001.
- [130] R. HÄβLER et E. MÜHLEN : An introduction to μTA<sup>™</sup> and its application to the study of interfaces. *Thermochimica Acta*, 361(1):113–120, octobre 2000.
- [131] S. MALLARINO : *Caractérisation physico-chimique des interfaces des composites cyanate/ fibre de verre-D*. Thèse de doctorat, Université de Toulon, 2004.
- [132] Y. JOLIFF, L. BELEC et J. F. CHAILAN : Finite Element Analysis of the material's area affected during a micro thermal analysis applied to homogeneous materials. *Journal* of Surface Engineered Materials and Advanced Technology, 2011, mars 2011.

## Annexe A

# Instructions pour les utilisateurs du plug-in

Le plug-in a été développé en ABAQUS<sup>™</sup> 6.11-PR3. Par conséquent et pour éviter de problèmes de compatibilité au moment de son exécution, il est suggéré d'utiliser cette même version. Quant à l'interpréteur PYTHON<sup>™</sup> intégré dans ABAQUS<sup>™</sup>, la version 2.7.13 est utilisée.

L'installation est simple et intuitive :

- Le fichier doit être décompressé dans abaqus\_dir\abaqus\_plugins, où abaqus\_dir est le directoire père d'ABAQUS<sup>TM</sup>.
- Une fois qu'ABAQUS<sup>™</sup> est ouvert, **RVE for composites** doit être trouvé en cliquant sur l'onglet *Plug-ins*.

D'autres emplacements que le directoire père peuvent être utilisés pour stocker le plug-in. Dans ce cas, le chemin de ce directoire additionnel doit être spécifié en se servant de l'environnement variable plugin\_central\_dir dans le fichier abaqus\_v6.env. Des instructions plus précises par rapport au stockage des fichiers des plug-ins peuvent se trouver dans la section 81.6.1 de [8].

Grâce au plug-in, les géométries des VER peuvent être obtenues rapidement. Le tableau A.1 montre les temps de générations des géométries pour diverses fractions volumiques ainsi que pour quatre types de VER :

- 1. 2D sans interphase et avec des fibres à diamètre constant.
- 2. 2D avec interphase et avec des fibres à diamètre constant.
- 3. 2D sans interphase et avec des fibres à diamètre aléatoire dans un intervalle.
- 4. 3D sans interphase et avec des fibres à diamètre constant.

Chaque valeur est une moyenne de trois temps différents de génération de géométrie. La génération de géométrie la plus lente de toute cette analyse a pris 128 secondes. Cependant, il est important de remarquer que toutes les configurations de VER possibles n'ont pas été testées (2D avec interphases et avec des fibres à diamètre aléatoire dans un intervalle, 3D avec interphase et avec des fibres à diamètre constant, etc). De plus, le temps requis pour effacer manuellement les intersections des interphases a été estimé en effectuant cette opération sur trois VER différents avec une fraction volumique de 50%. En moyenne, pas plus de 4 minutes sont nécessaires.

	Temps	de géné	de la géométrie (s)	
V <sub>f</sub> (%)	2D			3D
	1	2	3	4
5	1,053	0,93	1,15	2,15
10	0,90	1,38	1,16	2,48
15	1,07	0,87	1,22	2,99
20	0,90	0,92	1,28	3,48
25	1,13	1,30	1,55	2,96
30	1,2	1,2	1,75	3,57
35	1,3	1,56	1,79	4,24
40	1,64	1,79	1,8	5,46
45	2,59	4,48	6,75	8,84
50	60,76	90,03	44,92	40,79

TABLEAU A.1 – Temps de génération de la géométrie pour les différentes configurations de VER.

## Annexe B

## **Microanalyse thermique (µ-TA)**

La microanalyse thermique ( $\mu$ -TA) est une technique de caractérisation thermomécanique locale à l'échelle micrométrique de la surface du matériau. La technique est basée sur le principe que l'AFM en mode contact avec pour principale différence la nature et la taille de la pointe (figure B.1a). En effet, la pointe conventionnelle d'AFM est substituée par un filament thermorésistif de type Wollaston [129, 130, 131]. Les pointes thermiques étant faites manuellement, une courbe d'étalonnage doit être réalisée pour chaque pointe. Comme toutes les techniques à des échelles de petite taille, la résolution latérale est un paramètre important. Cette résolution ne descend pas en dessous de 500 nm (figure B.1b) du fait de la taille de la sonde et de la zone thermiquement affectée lors de la mesure [132].



(a) Observation MEB de la pointe thermo- (b) Exemple de zone affectée thermiquement résistive de la  $\mu$ -TA [129]. lors d'une mesure locale [132].

FIGURE B.1 – Pointe thermo-résistive et zone affectée.

Le principe consiste à mettre en contact la pointe de  $\mu$ -TA avec la surface de l'échantillon et à caractériser en exerçant une force sur cette dernière. Puis le chargement thermique est réalisé soit par une source de chaleur localisée constante ou suivant une rampe.



FIGURE B.2 – Schéma de principe de fonctionnement de la µ-TA [12].

#### **B.1** Mesures topographiques

Le mode en imagerie va permettre d'obtenir en même temps des images en topographie et en cartographie des conductivités thermiques apparentes de la surface scannée comme le montre les figures B.3 et B.4 [13]. Les variations de conductivités thermiques locales de la surface imposent une régulation du courant à travers la sonde afin de maintenir la consigne en température. La cartographie à la figure B.3 illustre un exemple de conductivité thermique apparente qu'il est possible d'obtenir sur un composite UD fibre de verre/époxy avec 50% vol. de fibres. Les zones en jaune décrivent la forte conductivité thermique du verre (i.e. la présence des fibres de verre) et les zones en marron celles d'une conductivité plus faible (i.e. la matrice époxy).



FIGURE B.3 – Cartographie des conductivités thermiques apparentes mesurées par  $\mu$ -TA sur un composite UD chargé à 50% [13].

#### **B.2** Mesures locales

Une fois la surface des échantillons scannée et suite à l'obtention de la cartographie en conductivités apparentes (figure B.3), des mesures locales peuvent être réalisées en mesurant les températures de transitions de phases de l'échantillon en suivant le déplacement vertical de la pointe (figure B.4). Dans ce cas, une rampe en température depuis la température ambiante jusqu'à 250 °C avec une vitesse de 10 °C/s est appliquée pour identifier cette température de ramollissement de la zone locale considérée [35].



FIGURE B.4 – Exemple des évolutions de la température de ramollissement pour les mesures locales (1 à 6) réalisées sur un composite UD [14].

En connaissant la position de la sonde par rapport à l'interface fibre/matrice, il est possible de tracer l'évolution de la température de ramollissement en fonction de la distance avec l'interface et ainsi de mettre en évidence une taille d'interphase comme le montre la figure B.5.



FIGURE B.5 – Exemple de mesures locales dans la matrice du composite à différentes distances de l'interface de la fibre [13].