

# Optimisation du comportement en vieillissement de composites stratifiés travaillant dans des conditions d'environnement

Abdelaziz LEKRINE<sup>1\*</sup>, Fayçal MILI<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Département de génie mécanique, Faculté de technologie Université du 20 août 1955- Skikda

\* E Mail : a.lekrine@gmail.com

<sup>2</sup>Laboratoire de Mécanique, Faculté des Sciences de la Technologie,  
Université Université Frères Mentouri – Constantine 1

## Résumé

Le processus de vieillissement et d'endommagement s'accélère et devient plus complexe. Pour cette raison, il est nécessaire de traiter les phénomènes de diffusion d'eau et de propagation de température au sein du matériau dans le temps afin de réduire ou d'éviter le phénomène de vieillissement qui a un rapport direct sur les propriétés mécaniques et le processus d'endommagement du matériau. Notre travail consiste donc à étudier la durabilité (vieillissement) en milieu humide des structures composites à base de matrice organique (CMO) et de leur rupture sous l'effet de la température. L'utilisation de la loi de Fick aide à déterminer l'influence de l'absorption d'eau sur le comportement mécanique du composite stratifié équilibré. L'appel à d'autres approches mathématiques, basées sur des critères énergétiques, permet de prévoir la résistance ultime du matériau et de définir la séquence d'empilement optimale capable de résister mieux aux sollicitations imposées pendant un temps donné et précis. Les résultats sont obtenus par modélisation de ces différents phénomènes en utilisant des outils numériques prépondérants.

**Mots clés :** composite, vieillissement, diffusion, endommagement, temps.

## Nomenclature :

D	coefficient de diffusion du milieu en $m^2.s^{-1}$	$[\bar{Q}]_{xy}$	matrice de rigidité réduite transformée.
t	durée de vieillissement	$[Q]_{ij}$	matrice de rigidité
Mt	masse totale d'eau, %	$A_{ij}$	rigidité de membrane
Ms	masse d'eau absorbée, %	$B_{ij}$	rigidité de couplage
h	épaisseur du matériau, mm	$\nu$	coefficient de poisson
		E	Module d'Young, MPa
G	modules de cisaillement.	$[90^\circ]$	
R	Limite élastique en traction, MPa	$\alpha_{ij}$	coefficients de dilatation thermique linéique $[0^\circ]$
X	contrainte de rupture en traction du pli		
Y	contraintes de rupture en traction du pli		

## 1. introduction

Les matériaux composites sont des arrangements de fibres d'un matériau résistant noyées dans une matrice dont la résistance mécanique est beaucoup plus faible. L'étude et l'exploitation des

matériaux composites sont plus que justifiées de nos jours, vu les performances structurales qu'ils présentent telles que la légèreté, la haute résistance aux différentes sollicitations mécaniques et la bonne tenue à la fatigue statique et dynamique.

Le comportement hygrothermo-mécanique à l'échelle macroscopique dépend directement des propriétés des constituants de base. L'effet de l'environnement, humidité et température, sur la résistance des matériaux composites provoque la détérioration rapide de leurs propriétés mécaniques et une dégradation progressive durant des longues années de service [1][2]. Les références [2] et [3] signalent l'importance des effets thermiques et hygroscopiques sur le fonctionnement adéquat de plusieurs applications aéronautiques. Lors d'une traction statique ou d'un chargement cyclique tension-tension, Kris et Stinchcomb [4] montrent la limite des stratifiées T300/5208 à absorber l'humidité et modifier l'état des contraintes et le processus de leur endommagement. Nairn et Han [5] réalisent des essais de vieillissement sur deux composites stratifiés à matrice polymère et à fibres de carbone, utilisés par la société aéronautique de Boeing pour la construction supersonique, sous des températures variant de 35°C à 95°C.

Notre travail consiste à déterminer l'effet de l'humidité et de la température sur l'effort limite que peut supporter le pli le moins résistant et sur les modes de rupture du matériau. Le matériau composite considéré est le carbone HR/époxyde renforcé à 60% de son volume par un réseau de fibres unidirectionnelles. Cette étude est effectuée sur des stratifiés symétriques composés de huit plis réguliers. Une approche mathématique, basée sur le critère de rupture de Tsai-Hill, est mise au point pour prévoir la résistance ultime du matériau. La prévision des différents modes de rupture du composite stratifié, s'effectue à l'aide de la théorie de la contrainte maximale.

## 2. Processus D'absorption D'eau

### 2.1. Diffusion Fickienne :

Le modèle le plus simple pour la diffusion d'un solvant (espèce diffusante) dans un solide est donné par la loi de Fick (1855) [6][7]. Le gradient de concentration du solvant induit un flux  $\bar{\varphi}$  qui lui est proportionnel. C'est donc le moteur de la diffusion. La vitesse de diffusion est caractérisée par le coefficient de diffusion D. On a ainsi la première loi de Fick donnée par l'équation suivante :

$$\varphi = -D \overrightarrow{\text{grad}C} \quad (1)$$

Où D : coefficient de diffusion du milieu en mm<sup>2</sup>/s

La seconde loi de Fick fait intervenir le temps. On considère que l'eau pénètre librement et sans interaction avec les composants. Selon la loi de conservation de la masse, on a l'équation :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \text{div} \left( -D \overrightarrow{\text{grad}C} \right) \quad (2)$$

Lorsque la diffusion est unidirectionnelle (suivant x), et que D est indépendant de la Concentration, on a :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \cdot \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad (3)$$

### 2.2. Diffusion Dans Une Plaque Mince :

Si on considère une plaque min e d'épaisseur h, au sein de laquelle diffuse le solvant, Initialement a la concentration C1, et dont les surfaces sont gardées a la concentration uniforme C2, alors l'évolution spatiale et temporelle de la concentration de solvant est donnée par [8] :

$$\lambda_k = \left[ C_1 + (C_2 - C_1) \frac{Z_k}{h} + \frac{2}{\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{C_2 \cos n\pi - C_1}{n} \cdot \sin \frac{n\pi Z_k}{h} \cdot \exp\left(-\frac{Dn^2 \pi^2 t}{h^2}\right) \right] \quad (4)$$

Ou : D : coefficient de diffusion

x : distance a partir du plan central de la plaque, suivant l'épaisseur

t : durée de vieillissement s

h : épaisseur de la plaque

La masse totale d'eau M<sub>t</sub> dans le matériau a un instant t est obtenue par intégration de la variable C sur l'épaisseur du matériau, et sur une aire A soumise au flux :

$$M = \int_0^h A \cdot C(x, t) dx \quad (5)$$

Si l'on note M<sub>s</sub> la masse d'eau absorbée après un temps infini, l'équation (4) s'écrit alors :

$$\frac{M_t}{M_s} = 1 - \frac{8}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{(2n+1)^2} \cdot \exp\left(-D \frac{(2n+1)^2}{h^2} \pi^2 t\right) \quad (6)$$

C'est généralement cette équation qui est la base des modèles de cinétique de diffusion.

### 3. Théorie Simplifiée Des Stratifiés:

Un stratifié résulte de plusieurs couches, nappes unidirectionnelles ou tissus, de séquences d'empilement différentes. Pour décrire le comportement d'un stratifié, il est nécessaire de connaître celui de chacun des plis composants. Les caractéristiques mécaniques des matériaux composites sont déterminées par ces équations [9]:

$$\begin{aligned} E_x(\theta) &= \frac{1}{\frac{c^4}{E_l} + \frac{s^4}{E_t} + C^2 S^2 \left( \frac{1}{G_{lt}} - 2 \frac{\nu_{tl}}{E_t} \right)} \\ E_y(\theta) &= \frac{1}{\frac{s^4}{E_l} + \frac{c^4}{E_t} + C^2 S^2 \left( \frac{1}{G_{lt}} - 2 \frac{\nu_{tl}}{E_t} \right)} \\ G_{xy}(\theta) &= \frac{1}{4C^2 S^2 \left( \frac{1}{E_l} + \frac{1}{E_t} + 2 \frac{\nu_{tl}}{E_t} \right) + \frac{(c^2 - s^2)^2}{G_{lt}}} \end{aligned} \quad (7)$$

La loi de comportement mécanique d'un pli seul, dans le repère d'orthotropie (1,2), est définie par la relation :

$$\{\sigma\}_{ij} = [Q]_{ij} \{\varepsilon\}_{ij} \quad , ij=1, \quad (8)$$

Dont  $[Q]_{ij}$  est la matrice de rigidité.

Dans le système d'axes de symétrie du matériau  $(x, y)$ , le comportement d'un pli généralement orthotrope d'ordre d'empilement  $k$ , soumis à un état de contraintes planes, est:

$$\{\sigma\}_{xy}^k = [\overline{Q}]_{xy}^k \{\varepsilon\}_{xy}^k \quad (9)$$

$[\overline{Q}]_{xy}$  est la matrice de rigidité réduite transformée.

Afin de décrire le comportement global d'un stratifié travaillant en membrane, on utilise les hypothèses de kirchoff [10]. Le stratifié est considéré comme une superposition de couches élémentaires parfaitement liées afin d'éviter le délaminage et d'empêcher le glissement relatif d'un pli par rapport aux autres. En conséquence, toute droite normale à la surface moyenne avant déformation restera droite et normale après déformation et gardera la même longueur.

Ainsi, les efforts de membrane seront exprimés en fonction des déformations planes  $\varepsilon_{ij}^0$  et des courbures  $k_{ij}$  provoquées en tout point de la surface moyenne du stratifié :

$$[N]_{xy} = \sum_{k=1}^n \int_{h_{k-1}}^{h_k} [\overline{Q}]^k (\{\varepsilon_{xy}^0\} + \{k_{xy}\}z) dz \quad (10)$$

Ou on peut les mettre sous la forme explicite suivante:

$$[N]_{xy} = [A]\{\varepsilon_{xy}^0\} + [B]\{k_{xy}\} \quad (11)$$

Les rigidités de membrane  $A_{ij}$  et les rigidités de couplage  $B_{ij}$  seront obtenues respectivement de la façon suivante:

$$A_{ij} = \sum_{k=1}^n (\overline{Q}_{ij})_k (Z_k - Z_{K-1}) \quad (12)$$

$$B_{ij} = \sum_{k=1}^n (\overline{Q}_{ij})_k (Z_k^2 - Z_{K-1}^2) \quad (13)$$

Lors d'un empilement symétrique, de part et d'autre de la surface moyenne du stratifié, les coefficients  $B_{ij}$  de la matrice de rigidité de couplage sont nuls et la relation (10) se simplifie à :

$$\{N\}_{xy} = [A]\{\varepsilon_{xy}^0\} \quad (14)$$

#### 4. Prise En Compte des Effets Hygrothermiques:

Lorsqu'un stratifié multidirectionnel est assujéti à des effets conjugués de changement de température et d'humidité et il travaille en plus à la traction, l'état principal est la superposition des déformations produites par toutes les contraintes dans le repère d'orthotropie (1,2) :

$$\{\sigma\}_{ij} = [Q]_{ij} \{\varepsilon_{ij} - \alpha_{ij}\Delta T - \beta_{ij}\Delta C\} \quad (15)$$

Il est supposé que la variation de température  $\Delta T$  et le changement de la teneur de concentration en humidité  $\Delta C$  sont uniformes.  $\alpha_{ij}$  et  $\beta_{ij}$  sont respectivement les coefficients de dilatation thermique linéique et les coefficients de gonflement par absorption d'eau.

Dans le système d'axes de symétrie du matériau (x, y), la relation (9) peut être réécrite sous la forme suivante :

$$\{\sigma\}_{xy} = [\bar{Q}]\{\{\varepsilon\}_{xy} - \Delta T\{\alpha\}_{xy} - \Delta C\{\beta\}_{xy}\} \quad (16)$$

En substituant cette dernière relation dans (7), on trouve :

$$[N]_{xy} = [A]\{\varepsilon_{xy}^0\} - [N^{HT}]_{xy} \quad (17)$$

Et en déduisant les résultantes des forces hygrothermiques  $[N^{HT}]_{xy}$  :

$$[N^{HT}]_{xy} = \int [\bar{Q}]\{\Delta T\{\alpha\}_{xy} + \Delta C\{\beta\}_{xy}\} dz \quad (18)$$

### 5. Mise En Evidence Des Critères De Rupture :

L'évaluation de la tenue du matériau composite à renforcement unidirectionnel carbone HR/époxyde, travaillant à la traction, à des températures d'utilisation et concentration en humidités différentes est basée sur un calcul de prévision de sa résistance limite que peut supporter lors de son chargement. Le critère de rupture de Tsai-Hill sera donc appliqué pour chaque pli composant:

$$\frac{\sigma_1^2}{X^2} + \frac{\sigma_2^2}{Y^2} - \frac{\sigma_1\sigma_2}{X^2} + \frac{\tau_{12}^2}{S^2} \leq 1 \quad (19)$$

X et Y sont respectivement les contraintes de rupture en traction du pli  $[0^\circ]$  et  $[90^\circ]$ . S est la contrainte de rupture en cisaillement dans le plan (1,2) du pli  $[0^\circ]$ . Il n'y a pas donc rupture du matériau tant que les contraintes régnant dans ce dernier ne dépassent pas les contraintes ultimes.

De plus, pour prévoir les différents modes de rupture du matériau (ou zones d'endommagement), on utilise la théorie de la contrainte maximale :

$$\begin{aligned} \sigma_1 &\leq X \\ \sigma_2 &\leq Y \\ \tau_{12} &\leq S \end{aligned} \quad (20)$$

Si l'une des contraintes  $\sigma_1$ ,  $\sigma_2$  ou  $\tau_{12}$  dépasse la limite correspondante suivant ces mêmes axes, la rupture sera produite.

### 6. Résultats Et Discussions :

Le matériau utilisé, dans cette contribution, est le carbone HR/époxyde dont ses propriétés élastiques et caractéristiques mécaniques sont résumées dans les tableaux 1 et 2. L'épaisseur de la plaque stratifiée est de 1.44mm. On ne considère les écarts algébriques respectifs  $\Delta T$  et  $\Delta C$ , lors du chargement mécanique de la structure, que par rapport à la température ambiante  $T_0=20^\circ\text{C}$  et l'humidité relative HR=50%.

Tableau 1. Propriétés élastiques du matériau [11].

$E_1$ GPa	$E_2$ GPa	$\nu_1$	$G_{12}$ GPa	$\alpha_1$ $10^{-6} \text{ } ^\circ\text{K}^{-1}$	$\alpha_2$ $10^{-6} \text{ } ^\circ\text{K}^{-1}$	$\beta_1$	$\beta_2$
135	9.14	0.32	3.99	-0.3	28.1	0	0.59

Tableau 2 : Résistances ultimes du matériau [12].

matériau	X (MPa)	X' (MPa)	Y (MPa)	Y' (MPa)	S (MPa)
Carbone HR/ époxyde	1447	1447	52	206	93

$X'$  et  $Y'$  sont respectivement les contraintes de rupture en compression du pli  $[0^\circ]$  et  $[90^\circ]$ .

A partir des spectres des efforts de membrane limites, représentés sur les figures 1-a et 2-b à l'humidité relative  $HR=50\%$  et à la température  $T=27^\circ\text{C}$ , on remarque la forte résistance des stratifiés unidirectionnelles ne comportant des fibres que dans le sens longitudinal de la plaque et l'endommagement intervient par rupture des fibres. La décroissance des résistances est rapide surtout lorsqu'on s'approche de la direction perpendiculaire aux fibres.

De plus, on constate que le changement de température ou de concentration en humidité ne présente d'influence sur l'évolution de la résistance en traction, par unité d'envergure, du matériau que lorsque l'orientation des fibres varie entre  $12^\circ$  et  $60^\circ$ .

En revanche, à partir du spectre de l'état de contraintes limites obtenu (Fig.2 a et 2b), par l'utilisation de la théorie de la contrainte maximale, on distingue trois modes de rupture du composite dépendant de l'orientation du renfort. La rupture par traction des fibres concerne les plis orientés à  $\theta = 0^\circ$  à  $12.10^\circ$ . Dans les intervalles angulaires ( $12.11^\circ$  à  $34^\circ$ ) et ( $50.11^\circ$  à  $90^\circ$ ), la ruine du matériau intervient parallèlement aux renforts par un phénomène de rupture en traction de la résine. Le mode d'endommagement des plis extérieurs, appartenant à la zone d'endommagement ( $34.01^\circ$  à  $50.10^\circ$ ), s'effectue par cisaillement de la matrice.

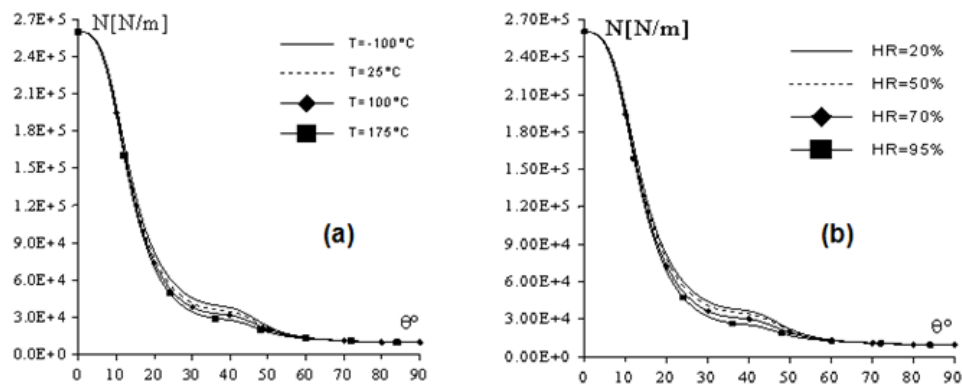


Figure 1 : Résistances limites en fonction de l'angle d'orientation des fibres calculée par le critère de TSAI-HILL, (a) l'humidité relative  $HR=50\%$ , (b) la température  $T=27^\circ\text{C}$ .

Nous constatons aussi que chaque fois le temps de l'essai augmente, la résistance à la rupture du stratifié généralement orthotrope diminue (fig.3) et les zones d'endommagement varient (fig.4). Cette différence montre l'influence de l'orientation des fibres et du degré d'anisotropie du matériau sur le comportement hygrothermo-mécanique des plaques composites.

Les résultats obtenus dans les figures 5 et 6 ont montré que la limite d'élasticité diminue de façon non linéaire avec l'augmentation de la température à une humidité relative constante HR=75%. La figure 7 montre que les constantes d'élastiques, pour la plaque composites [45/-45]<sub>4s</sub>, sont des paramètres très sensibles aux charges climatiques, on constate aussi une diminution des propriétés mécaniques du composite qui peut être expliquée par la détérioration de l'interface fibre /matrice. Par contre pour une plaque composite [45/90]<sub>4s</sub> (fig.8) les constantes d'élastiques E<sub>1</sub> et G<sub>12</sub> ne sont sensibles pas aux effets hygrothermique.

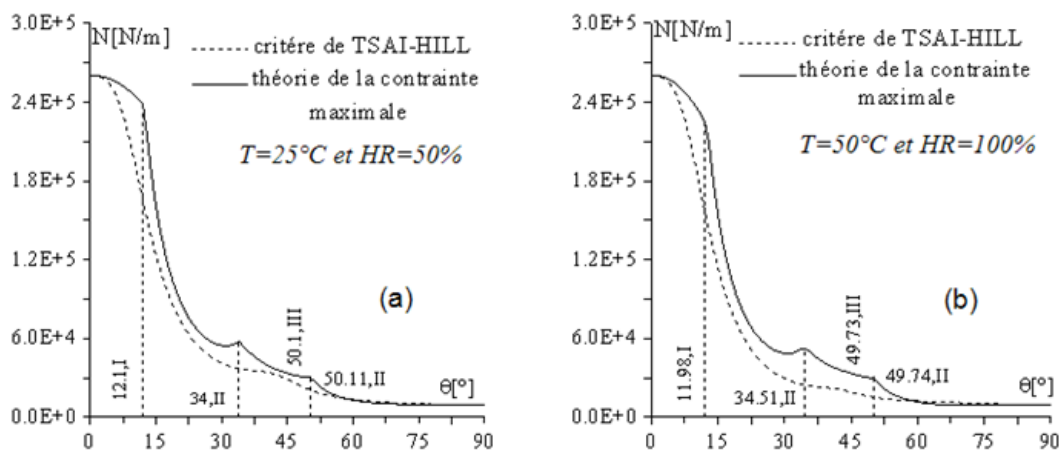


Figure 2 : Variation de la résistance à la rupture en traction en fonction de l'angle d'orientation des fibres

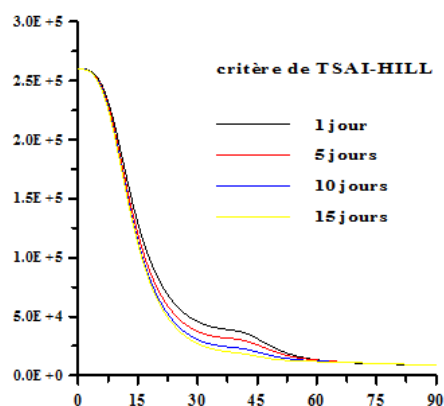


Figure 3 : Résistances limites en fonction de l'angle d'orientation des fibres et de temps  
à T=50°C et HR=50%

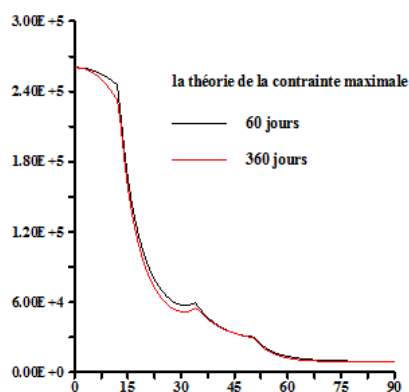


Figure 4 : Variation de la résistance à la rupture en traction en fonction de l'angle d'orientation

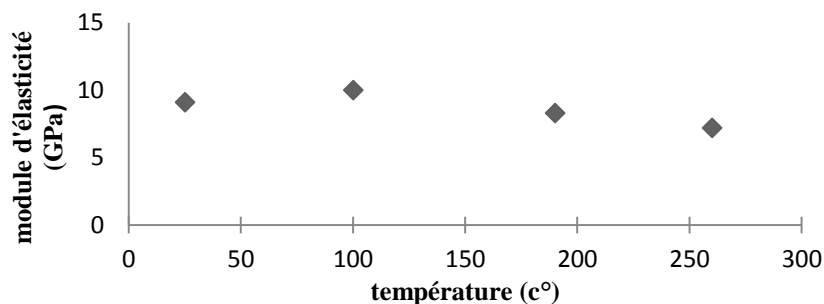


Figure 5 : Variation de module d'élasticité en fonction de la température a HR=75%

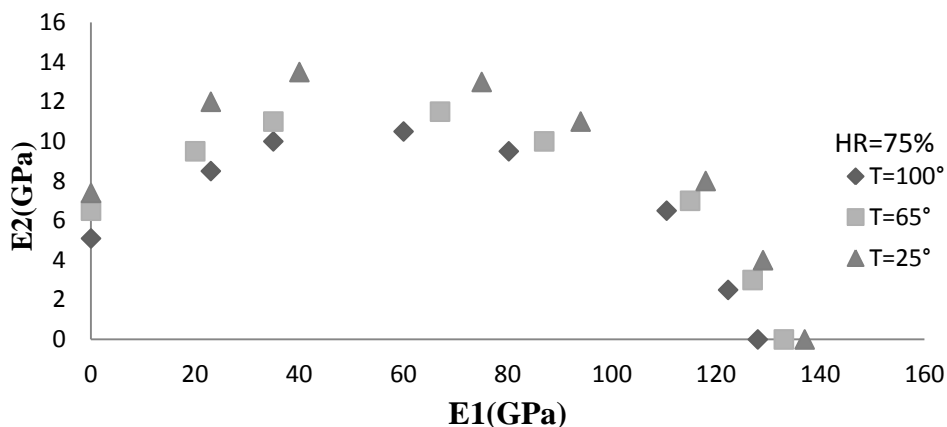


Figure 6 : Variations du module de Young en fonction de la température pour la plaque unidirectionnelle  $[0]_{4s}$

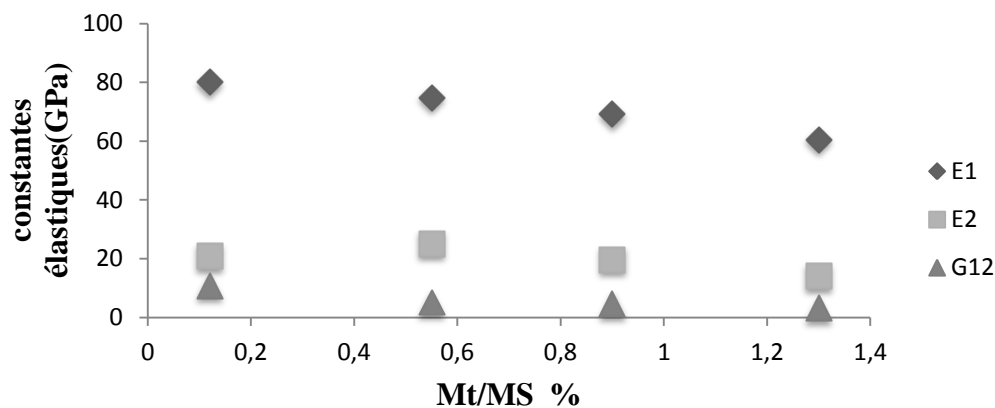


Figure 7 : Variations des constantes élastiques en fonction  $M_t/M_t$  à  $T=25^\circ$  et  $HR=75\%$  pour la plaque composite  $[45/-45]_{4s}$

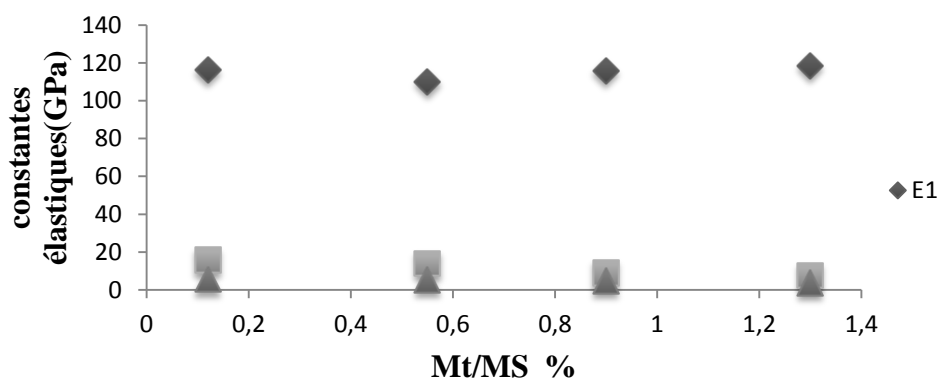


Figure 8 : Variations des constantes élastiques en fonction  $M_t/M_t$  à  $T=25^\circ$  et  $HR=75\%$  pour la plaque composite  $[0/90]_{4s}$

## 7. Conclusion:

Les effets hygrothermiques sur l'endommagement et la rupture ultime des composites à matrice époxyde ont été mis en évidence en prenant l'exemple de composites à renforcement



unidirectionnel carbone HR/époxyde. L'analyse des courbes de comportement en traction a montré que les stratifiés symétriques spécialement orthotropes résistent mieux au chargement mécanique, sous changement de température et de concentration en humidité, que les plaques généralement orthotropes. C'est l'anisotropie très prononcée du matériau et la faible résistance de la matrice au cisaillement qui sont responsables de cette dégradation de résistance à la rupture. La prévision du comportement mécanique du matériau, par le critère de rupture de Tsai-Hill, nous a permis d'adopter le stratifié équilibré  $[\theta/-\theta]_{4S}$  comme la séquence d'empilement optimale capable de résister mieux aux différentes sollicitations. Ce type de matériau reste élastique jusqu'à la rupture avec absence de la phase plastique et de distorsion angulaire. Malgré qu'elle présente le spectre de l'état de sollicitations ultimes sous forme de courbes discontinues, la théorie de la contrainte maximale aide bien à expliquer le phénomène de rupture et à prévoir les différentes zones d'endommagement du matériau. La diminution des propriétés mécaniques du composite qui peut être expliquée par la détérioration de l'interface fibre /matrice

### Référence :

- [1] A.C.Loss et G.S.Springer, Moisture absorption of graphite/époxy composites immersed in liquid and humid air, Environnement effects on composites materials, 1981.
- [2] Gigliotti, M., Jacquemin, F., Molimard, J., Vautrin A. « Modelling and Experimental Characterisation of Hygrothermoelastic Stress in Polymer Matrix Composites ». Macromolecular Symposia, Vol. 247, pp. 199-210, 2007.
- [3] A.Vautrin, Absorption de l'humidité: Synthèse pour les composites a matrice polymère comportement mécanique des composites à fibres, Compte rendu du colloque Greco 92, Ed. Pluralis, 1990.
- [3] B.Hu, X.J.Gong et G.Verchery, "Effets d'environnement hygrothermique sur le comportement mécanique des composites à matrice époxyde", Arcachon (France) ,1990
- [4] R.D.Kris, W.W.Stinchcomb, "Effet of moisture, residual thermal curing stresses and Mechanical load on damage developpement in quasi-isotropique laminates", Damage in composite materials, ASTM\_STP 775, Ed K.L Reifsnider, 1982
- [5] J.A.Nairn et M.H.Han,"Hygrothermal aging of polyimide matrix composite laminate",1999.
- [6] J. Crank "The mathematics of diffusion". Oxford: Clarendon Press; 1975
- [7] B.F. Boukhoulda \*, E. Adda-Bedia, K. Madani, The effect of fiber orientation angle in composite materials on moisture absorption and material degradation after hygrothermal ageing, Composite Structures 74 (2006) 406–418
- [8] Z.Sereir, E.A.Adda-Bedia, A.Tounsi " EFFect of temperature on the hygrothermal behaviour of unidirectional laminated plates with asymmetrical environmental conditions " Composite Structures Elsevier 72 (2006)383 .392
- [9] M. Assarar, D. Scida, A. El Mahi, C. Poilâne, R. Ayad, Influence of water ageing on mechanical properties and damage events of two reinforced composite materials: Flax–fibres and glass–fibres .Materials and Design, 32, pp. 788–795, 2011.
- [10] D.GAY, "Matériaux composites", Hermes, Paris, 1997.
- [11] H.T.Hahn, R.Y.Kim "Swelling of composite laminates", Advanced Composite Materials Environmental Effects, ASTM STP 658, American society for testing and Materials, pp.98-120, 1978.
- [12] S.W.Tsai, "Composite Design", 4<sup>th</sup> edition, Think composites, Dayton, USA, 1988.