

Caractérisation de l'endommagement des interfaces fibre-matrice dans les composites sous traction transverse

Characterization of fiber-matrix interfaces damage in composites under transverse tension

Milena Tosti Umemura^{1,2}, Florent Dalmas¹, Pascal Reynaud¹, Didier Long¹, Gilbert Fantozzi¹, Jérôme Bikard²

1 : Laboratoire MATEIS
Univ Lyon, INSA Lyon, CNRS, Université Claude Bernard Lyon 1, MATEIS, UMR5510
69621, Villeurbanne, France
e-mail : milena.umemura@insa-lyon.fr; florent.dalmas@insa-lyon.fr; pascal.reynaud@insa-lyon.fr;
didier.long@insa-lyon.fr; gilbert.fantozzi@insa-lyon.fr

2 : Syensqo
87 Avenue des Frères Perret, CS 70061, 69192 Saint Fons, France
e-mail : jerome.bikard@syensqo.com

Résumé

Les interfaces entre des fibres longues de carbone et une matrice polyétheréthercétone (PEEK) ont été étudiées par des essais de traction transversale sur des échantillons monofilaments couplés avec des observations in situ par microscopie électronique à balayage (MEB) et microtomographie à rayons X. Deux types de fibres de carbone, avec différents aspects de surface ont été étudiées. Les essais de traction transversale in situ au MEB ont permis d'observer l'endommagement à la surface libre des éprouvettes. La décohésion, l'ouverture et la déviation de fissure de l'interface vers la matrice ont été observés pour les deux types de fibres. Les angles de décohésion et de déviation de fissure ont été mesurés. Les essais de microtomographie ont montré l'évolution de l'endommagement à l'interface pour les zones éloignées de la surface libre de l'échantillon. Même si l'endommagement commence à la surface libre des échantillons, il évolue vers sa zone centrale quand la charge de traction augmente, en se développant principalement dans le plan perpendiculaire aux axes de sollicitation. Ces observations ont fourni des données complémentaires sur les mécanismes de décohésion interfaciale.

Abstract

Interfaces between long carbon fiber and polyetheretherketone matrix were studied by transverse tensile tests of single fiber samples with in situ observation of scanning electron microscopy and microtomography. Two different carbon fibers with varying aspects of the surface were employed. SEM in situ transverse tensile tests allowed the observation of the free surface of specimens, with decohesion, opening, and kink observation for both fibers. Kink angles were measured. Microtomography tests showed damage evolution on the interface for zones away from the free surface of the sample. Even though damage initiates at the free surface of the specimens, it evolves towards the specimen bulk region with the increase in tensile loading, developing predominantly in the perpendicular plan in relation to the sollicitation axes. These techniques provided complementary data on fibre/matrix debonding mechanisms.

Mots Clés : Interfaces, endommagement, in situ, microtomography, SEM

Keywords : Interfaces, damage, in situ, microtomography, MEB.

1. Introduction

Les interfaces entre fibres longues et matrice organique sont un paramètre clé pour l'optimisation des propriétés mécaniques finales des matériaux composites. Un certain nombre d'essais micromécaniques, utilisant des échantillons modèles de fibres individuelles, ont été développés dans le but de quantifier ces propriétés interfaciales, tels que l'essai pull out, l'essais de microgoutte et la multifragmentation de monofilament [1]. Cependant, ces essais sont basés sur des contraintes de cisaillement appliquées à l'interface et ne permettent qu'une estimation de la résistance au cisaillement interfacial.

Néanmoins, dans des conditions réelles, les contraintes de cisaillement agissant sur les interfaces de fibres longues sont couramment combinées à des contraintes d'ouverture, résultant en une sollicitation de modes mixtes complexe qui est habituellement négligée dans la caractérisation micromécanique des interfaces. Dans ce contexte, les essais de traction transversale imposent au voisinage de la fibre des modes de sollicitation aux interfaces variables, allant d'un mode pur I, pour un point aligné sur l'axe de chargement mécanique, à un mode II pour un point perpendiculaire à l'axe de charge. Les mécanismes d'endommagement interfacial sous charge transversale ont été étudiés précédemment, principalement par des modèles numériques. Paris et al [2] ont par exemple étudié l'évolution de l'endommagement interfacial dans le cas d'une fibre longue de carbone avec une décohésion initiale. Ils ont conclu que la propagation de la fissure dans l'interface est initialement instable jusqu'à atteindre un angle de décohésion de 60-70°. Ensuite, la fissure peut soit se propager de manière stable, soit dévier dans la matrice. Seule une caractérisation expérimentale limitée est disponible pour nourrir et valider les modèles numériques, car la caractérisation expérimentale est complexe en raison de la faible échelle des mécanismes d'endommagement. Plusieurs auteurs [3], [4], [5] ont utilisé des configurations modèles avec des fibres de verre de diamètre plus grand que celui des fibres usuelles afin de mettre en évidence les mécanismes d'endommagement et de faciliter l'observation expérimentale. Bien que ces études soient importantes pour une meilleure compréhension des mécanismes d'endommagement à l'interface, une réduction significative du diamètre de la fibre peut être à l'origine de la présence de phénomènes supplémentaires. De plus, les interactions spécifiques entre la surface de la fibre de carbone et la matrice polymère ne sont pas prises en compte car les mécanismes d'adhésion de la fibre de carbone sont considérablement différents de ceux des fibres de verre. De même, une matrice époxy est systématiquement utilisée pour les expériences et les modèles. La plasticité de la matrice étant régulièrement négligée dans la caractérisation interfaciale.

Dans cette étude, la caractérisation de l'interface entre une fibre de carbone (de faible diamètre) et une matrice thermoplastique (polyétheréthère) a été réalisée par des essais de traction transversale *in situ* de composites monofilamentaires modèles, étudiés par MEB et par microtomographie X au synchrotron.

2. Matériau et dispositif expérimental

Le polyétheréthère sous forme de films extrudés et les mèches de fibre de carbone ont été obtenus auprès de Syensqo. Deux types de fibres de carbone, avec une rugosité de surface différente et un diamètre de l'ordre de 5 μm , ont été utilisées. Les échantillons composites à fibres individuelles ont été préparés par thermocompression à l'aide d'une presse à haute température PEI (lab 600 PA). Des moules spécialement conçus ont été utilisés pour positionner les fibres de carbone et les fixer avec une colle céramique. Le cycle de moulage par compression consistait en une étape de chauffage de 60°C à 385°C à une vitesse de 20°C/min, suivie d'un isotherme de 15 minutes à 385°C et d'une étape de refroidissement de 385°C à 60°C à une vitesse de 10°C/min. La pression a été maintenue constante à 6 bar pendant le cycle de thermocompression.

Les essais de traction *in situ* sous MEB ont été effectués avec un microscope Zeiss Supra 55VP sur des échantillons préparés par polissage ionique. Un détecteur InLens et un grossissement de 4000x ont été utilisés pour l'acquisition des images sous ce microscope, avec une taille de pixel finale de 27,9 nm. Une platine de traction Gatan microtest série 2000E avec cellule de charge de 2kN a été couplée à la platine du MEB pour les essais de traction transversale *in situ*. Les échantillons ont été sollicités par incréments de chargements, et la charge de traction a été maintenue lors de l'acquisition des images.

Des essais de microtomographie X *in situ* ont été réalisés sur la ligne ANATOMIX du synchrotron SOLEIL, en France [6]. Une caméra Hamamatsu Orca Flash 4.0 V2, de taille 2048x2048 pixels, a été

utilisée avec un grossissement de 10x, ce qui conduit à une résolution des images numériques de 0,65 μm par pixel. Un filtre de Pagnanim a été appliqué à tous les scans avant la reconstruction. Une machine de traction développée par le laboratoire MateIS, à l'INSA de Lyon, avec une cellule de charge de 5 kN a été utilisée. Pour chaque type de fibre, 3 échantillons ont été testés. Pour obtenir une meilleure résolution finale, la position de la traverse du dispositif de traction a été maintenue constante pendant l'acquisition de tomographie. Une vitesse de déformation de 0,005 mm/s a été utilisée. Les valeurs de déformation ont été obtenues directement à partir des valeurs du déplacement de la traverse, et ont été corrigées pour tenir compte de la compliance de la machine. La fonction *minimum z project* sur ImageJ a été utilisée pour créer une image dont les pixels contiennent la valeur minimale sur l'ensemble de toutes les projections à l'emplacement particulier du pixel, ce qui permet de visualiser un volume 3D dans une image 2D et de mettre en évidence les zones endommagées de l'échantillon. Ensuite, les intensités de gris sur l'image ont été utilisées pour les mettre en évidence et quantifier les longueurs de décohesion.

3. Résultats

3.1 Microtomographie X

Les reconstructions volumiques des états initiaux et finaux pour les fibres lisses et crénelées sont présentées sur la Fig. 1. Une évolution importante des dommages a été observée autour de la zone interfaciale. Les fibres étaient bien alignées, avec un maximum de 2° d'écart par rapport à la position attendue. La contraction plus importante de la matrice dans le plan perpendiculaire à la direction de chargement a provoqué l'extrusion de l'extrémité de la fibre de la matrice, mettant en évidence les contraintes de cisaillement importantes auxquelles l'interface est soumise en fonction de la différence de coefficient de Poisson entre la fibre et la matrice. Des dommages importants autour de la fibre sont apparus dans le plan perpendiculaire à l'axe de chargement, même si les pôles supérieur et inférieur de la fibre sont soumis à des contraintes de mode 1 plus élevées. Une explication possible est la présence de décohesion dans les premiers stades de la charge de traction sur les pôles supérieur et inférieur de la fibre.

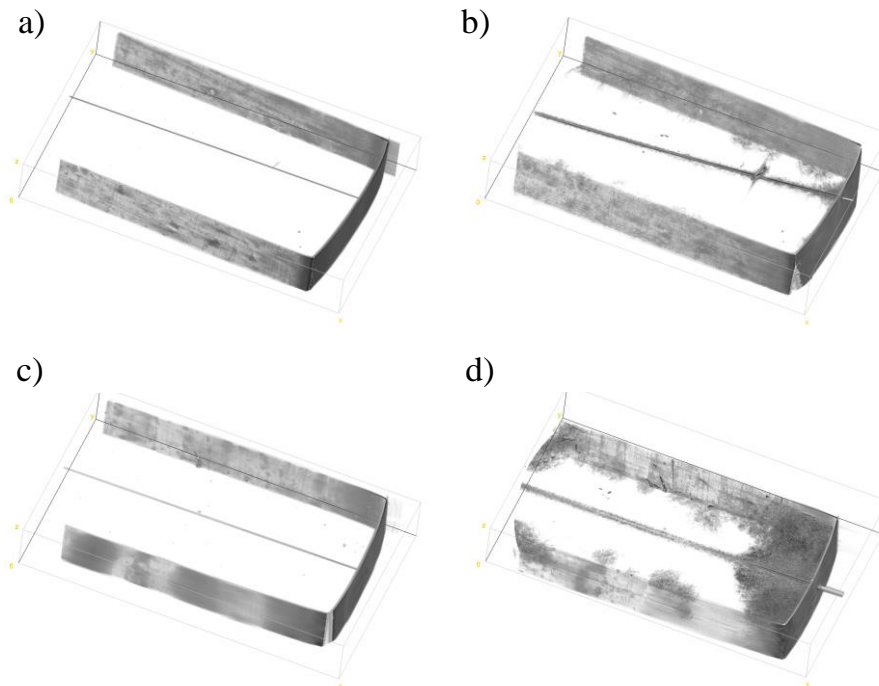


Fig. 1. Reconstruction volumique pour la fibre crénelée : a) état initial ; b) état final ; et la fibre lisse : c) état initial d) état final.

La Fig. 2 montre l'évolution de l'endommagement sur la surface libre de deux échantillons différents pour chaque type de fibre. Les valeurs de contrainte et de déformation ne se réfèrent pas aux valeurs locales de contrainte et de déformation dans l'interface, mais aux valeurs macroscopiques de l'échantillon. L'observation de l'ouverture est liée à la décohésion dans ces régions et à la présence d'une déformation locale élevée.

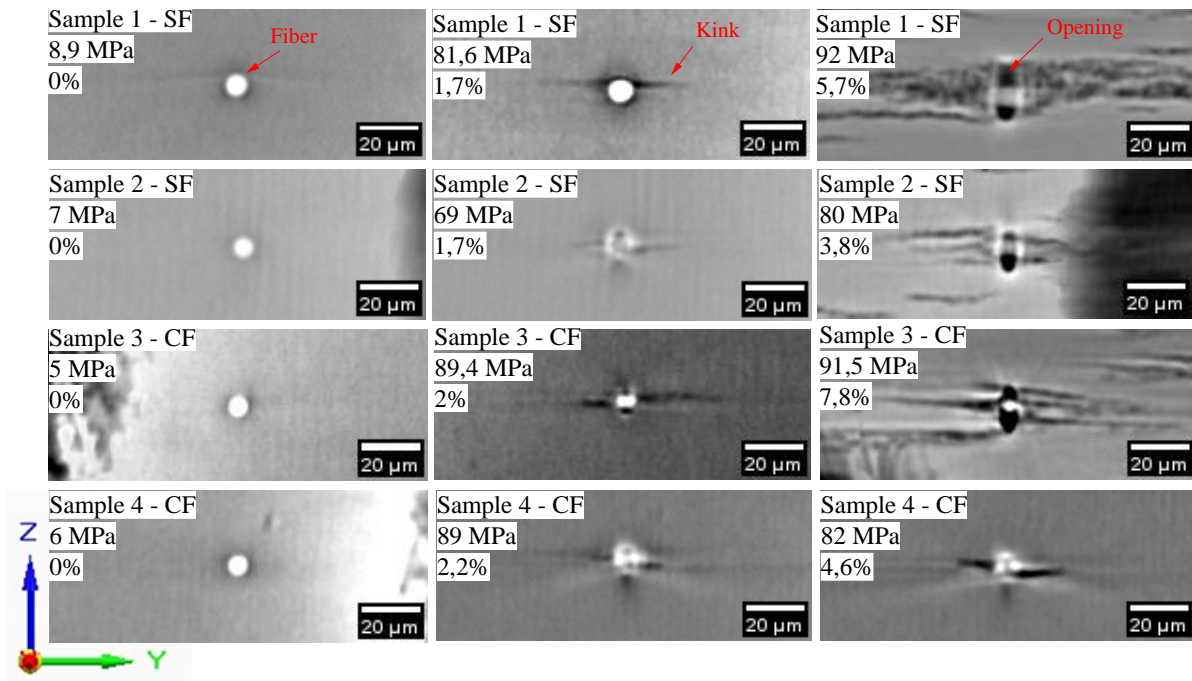


Fig. 2. Etat initial, première observation de fissure et état final de la surface libre pour 4 échantillons monofilamentaires différents sollicités en traction transverse pour des fibres lisses (SF) et crénelées (CF). Les valeurs de contrainte et de déformation macroscopiques sont indiquées. La déformation en traction se fait selon l'axe Z.

Cependant, comme le montre la Fig. 3, les microfissures entourant la fibre sont d'abord apparues à la surface libre, puis se sont propagées de la surface libre vers l'intérieur de l'échantillon dans le plan ZY. Une différence dans la vitesse de propagation a été observée. Alors que pour les échantillons avec fibres lisses, les dommages interfaciaux sont apparus soudainement dans toute la zone observée à 102 MPa et 3.4% de déformation macroscopique, les dommages ont évolué progressivement pour tous les échantillons avec des fibres crénelées. Cet effet est attribué aux mécanismes différents agissant sur les interfaces de chaque fibre.

Bien que des dommages significatifs aient été observés dans la matrice polymère entourant la fibre, ils n'étaient pas critiques pour la rupture de l'échantillon en raison du faible rapport de volume entre la fibre et la matrice de l'échantillon. Les échantillons ont donc développé la plupart du temps des strictionnements, dans des régions différentes de celles où se trouvait la fibre de carbone. Les observations des zones plus proches de la zone strictionnée ont révélé la présence d'une forte cavitation de la matrice.

3.2 Essais de traction transverse sous MEB

Les essais de traction transverse *in situ* sous MEB ont permis d'observer les champs de déformation développés à la surface libre de l'échantillon autour des fibres, ainsi que les phénomènes de décollement et d'ouverture à l'interface. La Fig. 4 montre l'état initial (avant chargement) et l'état final (après chargement) observés pour les fibres lisses et crénelées, ainsi que les données mécaniques obtenues. En observant les images de l'état initial, on constate un bon contact entre la fibre et le polymère, sans signe de porosités ou de zones de surface sans imprégnation de la matrice.

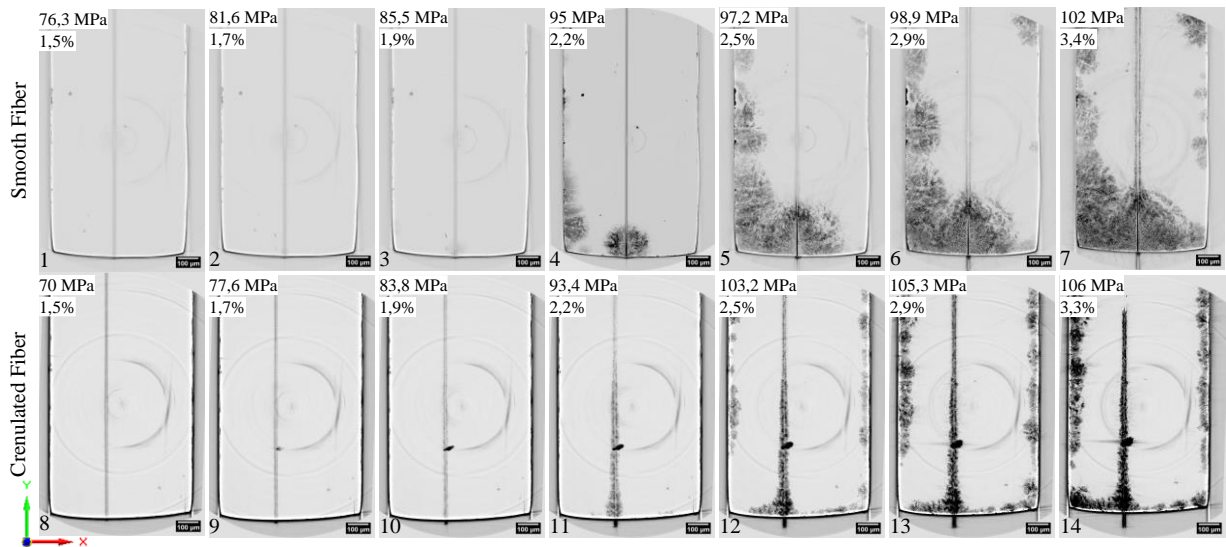


Fig. 3. Évolution des dommages interfaciaux pour les fibres lisses (smooth fiber) (images 1 à 7) et les fibres crénelées (crenulated fiber) (images 8 à 14). Charge de traction appliquée selon l'axe Z.

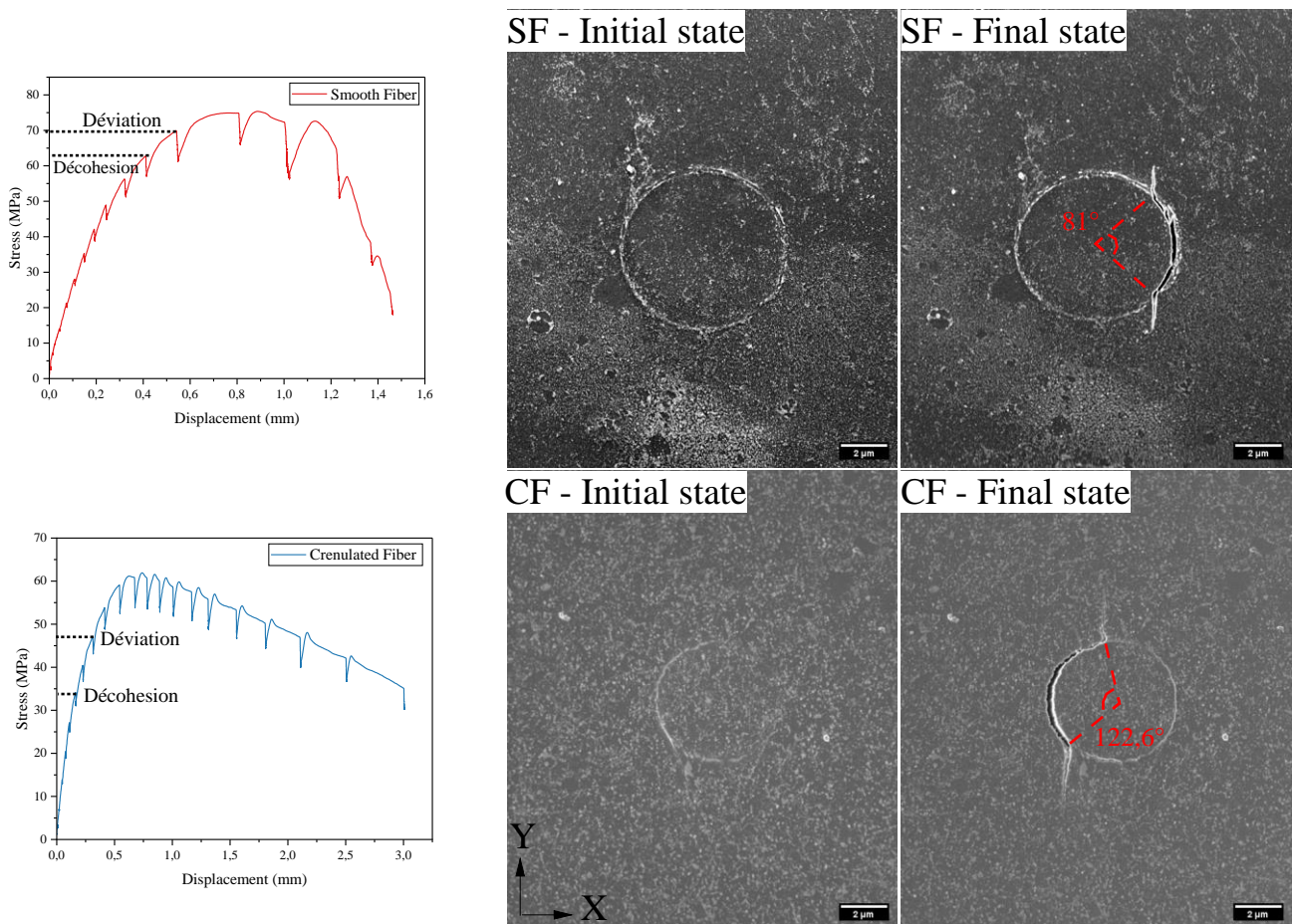


Fig. 4. Résultats de l'essai de traction transversale in situ sous MEB. Charge de traction globale appliquée dans la direction X.

Pour l'échantillon de fibre lisse, le début de la décohésion a été observée pour une contrainte macroscopique de 62 MPa, et la déviation de la fissure vers la matrice a été observée pour 68 MPa.

Les échantillons de fibres crénelées ont présenté des dommages pour des contraintes plus faibles, les premiers endommagements ayant été observés à 34 MPa et la déviation de la fissure vers 47 MPa. La différence de diamètre (7,2 μm pour la fibre lisse et 5,3 μm pour la fibre crénelée) peut avoir une influence importante sur la concentration locale des contraintes et donc sur le lieu d'apparition de la fissuration dans la matrice.

Pour les deux types de fibres, l'ouverture et la déviation de la fissure vers la matrice ont été observées simultanément, indiquant une propagation instable de la fissure à l'interface. La fibre lisse a présenté une propagation symétrique de la déformation tandis que la fibre crénelée a présenté des fissures asymétriques, probablement influencées par la présence de défauts au niveau de la surface décollée. Ensuite, la poursuite du chargement a entraîné une propagation stable des fissures dans la matrice et une augmentation de l'ouverture à l'équateur de la fibre. Pour l'échantillon CF, on a également observé l'apparition de dommages au deuxième pôle de la fibre pour une contrainte globale de 59 MPa, ce qui ne s'est pas produit dans le cas des fibres lisses.

4. Conclusions

L'initiation et la propagation de l'endommagement à l'interface des composites monofilamentaires avec fibres de carbone et matrice PEEK a été étudié *in situ* à différentes échelles. Deux fibres de carbone, avec une rugosité de surface différente, ont été étudiées. Des essais de traction transversale *in situ* sous MEB ont été utilisés pour étudier les dommages interfaciaux à la surface libre de fibres de carbone isolées insérées dans une matrice PEEK. La décohésion fibre/matrice, ainsi que la propagation de la décohésion, l'ouverture et la déviation de fissure ont été observées. Les angles de décohésion et de la déviation de la fissure ont été mesurés et sont différents pour les deux types de fibres. Les observations par microtomographie X ont montré l'évolution des dommages dans le volume des échantillons. Les dommages ont commencé à la surface libre et se sont ensuite propagés le long de l'interface fibre/matrice dans tout le volume observé.

Les deux techniques se sont révélées complémentaires, fournissant des informations intéressantes sur les dommages interfaciaux et sur les différents stades de leur développement.

5. Remerciements

Nous remercions SOLEIL pour la mise à disposition des installations de rayonnement synchrotron, en particulier la ligne de lumière ANATOMIX (numéro de projet 20231569).

6. Références

- [1] P. J. Herrera-Franco and L. T. Drzal, "Comparison of methods for the measurement of fibre/matrix adhesion in composites," *Composites*, vol. 23, no. 1, pp. 2–27, 1992.
- [2] F. Paris, E. Correa, and V. Mantič, "Kinking of transversal interface cracks between fiber and matrix," *J. Appl. Mech. Trans. ASME*, vol. 74, no. 4, pp. 703–716, Jul. 2007, doi: 10.1115/1.2711220.
- [3] R. Livingston and B. Koohbor, "Characterizing fiber-matrix debond and fiber interaction mechanisms by full-field measurements," *Compos. Part C Open Access*, vol. 7, p. 100229, Mar. 2022, doi: 10.1016/j.jcomc.2022.100229.
- [4] K. Z. Uddin, H. Girard, N. B. Mennie, A. Doitrand, and B. Koohbor, "Simultaneous Measurement of Fiber-Matrix Interface Debonding and Tunneling Using a Dual-Vision Experimental Setup," *Exp. Mech.*, Sep. 2024, doi: 10.1007/s11340-024-01111-8.
- [5] K. Martyniuk, B. F. Sørensen, P. Modregger, and E. M. Lauridsen, "3D *in situ* observations of glass fibre/matrix interfacial debonding," *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 55, pp. 63–73, 2013, doi: 10.1016/j.compositesa.2013.07.012.
- [6] T. Weitkamp et al., "Microtomography on the ANATOMIX beamline at Synchrotron SOLEIL," *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. 2380, no. 1, p. 012122, Dec. 2022, doi: 10.1088/1742-6596/2380/1/012122.