

Propriétés élastiques effectives d'un adhésif avec microporosité initiale

Effective elastic properties of an adhesive with initial microporosity

CARPENTIER Nathan¹, DEMOULIN Leyne¹, RAFFA Maria Letizia¹, DA SILVA BOTELHO Tony¹ et KLINKOVA Olga¹

1 : ISAE-Supméca, Laboratoire Quartz
3 rue Fernand Hainaut, 93400 Saint Ouen sur Seine, France
e-mail : nathan.carpentier@isae-supmeca.fr

Résumé

De nombreux secteurs industriels développent des assemblages collés métal/composite pour réduire la masse des assemblages et l'impact environnemental. Cette étude explore les propriétés élastiques effectives d'un adhésif structural époxy présentant une microporosité initiale, induite pendant la polymérisation et impactant significativement le comportement mécanique de l'adhésif. Une approche usant de modèles d'homogénéisation micromécanique et de simulations numériques par éléments finis (MEF) a été adoptée pour investiguer l'effet de cette microporosité initiale. Ces modèles théoriques incluent les schémas dilué, de Mori-Tanaka, de Maxwell, auto-cohérent et différentiel. L'étude numérique basée sur un volume élémentaire représentatif avec une distribution aléatoire de pores sphériques a permis de confronter ces modèles. La décroissance des propriétés élastiques avec l'augmentation de la porosité est représentée, et son évolution étudiée. À faible densité de pores, les prévisions numériques concordent avec les modèles de Mori-Tanaka et Maxwell, tandis qu'à haute densité de pores, elles tendent vers un comportement intermédiaire situé entre les comportements décrits par les modèles Mori-Tanaka et Voigt.

Abstract

In many industrial sectors, metal/composite bonded assemblies are developed to reduce weight and environmental impact of structures. This study investigates the effective elastic properties of a structural epoxy adhesive exhibiting initial microporosity induced during polymerization. This initial microporosity affects significantly the mechanical behavior of the adhesive. An approach combining micromechanical homogenization models and a finite element model (FEM) was adopted to analyze its influence. The theoretical models include the dilute, Mori-Tanaka, Maxwell, self-consistent and differential schemes. The FEM, based on a representative elementary volume with a random distribution of spherical pores, enabled the comparison of these models. The decrease in elastic properties with increasing porosity rate is demonstrated, and its evolution is analyzed. At low pore density, the numerical predictions align with the Mori-Tanaka and Maxwell models, whereas at high pore density, they converge to an intermediate behavior between those described by Mori-Tanaka and Voigt models.

Mots Clés : porosité initiale, adhésif époxy , homogénéisation, éléments finis

Keywords : initial porosity, epoxy adhesive, homogenization, finite elements

1. Introduction

Le collage structural est une solution technologique permettant d'atteindre de hautes performances mécaniques tout en maîtrisant l'impact environnemental global. Cependant, cette technique d'assemblage demeure difficile à maîtriser et l'évaluation de sa tenue mécanique est un sujet d'étude actuel. La nature de l'adhésif a un impact prépondérant sur la résistance mécanique d'un assemblage collé [1]. Pendant la fabrication, à cause des conditions de polymérisation (température, pression, dégazage), l'adhésif peut piéger des micro-vides [2–5]. Cette microporosité initiale influence fortement le comportement macroscopique de l'assemblage collé. Sa prise en compte dans la modélisation devient donc primordiale. D'un point de vue théorique, elle peut être modélisée à travers des schémas d'homogénéisation micromécanique permettant d'estimer les propriétés élastiques effectives de l'adhésif poreux [6–13]. L'efficacité de ces modèles dans la prévision du comportement des polymères est variable, et plusieurs études avancent des modèles différents [14–16]. L'objectif de ce travail est d'identifier les modèles d'homogénéisation micromécanique plus pertinents pour décrire les propriétés élastiques effectives d'un adhésif structural base-époxy avec une distribution spatiale isotrope de micropores sphériques. Afin d'opérer cette validation, un modèle numérique par élément finis (MEF) d'un volume représentatif de l'adhésif est proposé. Le MEF est également utilisé pour analyser l'influence du taux de porosité (fraction volumique des pores), de la densité de pores (nombre de pores par unité de volume) et de la distribution des pores.

2. Méthodologie

On considère une matrice en Araldite A420 (module de Young $E_m = 1800$ MPa, coefficient de Poisson $\nu_m = 0.4$, module de compression isostatique $K_m = 3857$ MPa et module de cisaillement $G_m = 642$ MPa) dont les propriétés (E_m, ν_m) ont été obtenues avec des essais de traction uni-axiale monotone quasi-statique (NF EN ISO 527). Le taux de porosité initial est noté φ . Les propriétés équivalentes homogénéisées sont notées avec une tilde.

2.1. Homogénéisation micromécanique

Nous comparons, dans un premier temps, plusieurs schémas d'homogénéisation micromécaniques : les bornes de Voigt [6] et Reuss [7], les modèles dilué [9], auto-cohérent [11], différentiel [12], Mori-Tanaka [10] et Maxwell [13]. Ces modèles sont appliqués dans le cadre de l'élasticité linéaire et d'une matrice isotrope. Les pores considérés sont sphériques, tous de même rayon et distribués aléatoirement. Ainsi, le matériau homogénéisé est isotrope.

Le modèle dilué s'appuie sur l'hypothèse d'un faible taux de porosité [9]. Dans ce cas, les modules de compressibilité et de cisaillement équivalents, \tilde{K}_D, \tilde{G}_D sont exprimés par les Eqs. 1.

$$\tilde{K}_D = K_m \left(1 - \varphi \frac{3K_m + 4G_m}{4G_m} \right) \quad \tilde{G}_D = G_m \left(1 - \varphi \frac{15K_m + 20G_m}{9K_m + 8G_m} \right) \quad (\text{Eqs. 1})$$

Le modèle de Mori-Tanaka repose sur l'hypothèse de non-interaction entre les pores, qui permet d'atteindre des taux de porosité plus élevés [17]. Les propriétés élastiques effectives sont alors données par les Eqs. 2.

$$\tilde{K}_{MT} = K_m \frac{4(1 - \varphi)G_m}{3\varphi K_m + 4G_m} \quad \tilde{G}_{MT} = G_m \frac{(1 - \varphi)(9K_m + 8G_m)}{9K_m(1 + \frac{2}{3}\varphi) + 8G_m(1 + \frac{3}{2}\varphi)} \quad (\text{Eqs. 2})$$

L'approche de Maxwell [18], superpose l'impact d'inclusions identiques isolées et permet d'aboutir aux expressions des Eqs. 3.

$$\tilde{K}_{Mw} = \varphi \left(\frac{1-\varphi}{K_A} - \frac{1}{K_m} \right)^{-1} + K_m \quad \tilde{G}_{Mw} = \varphi \left(\frac{1-\varphi}{G_A} - \frac{1}{G_m} \right)^{-1} + G_m \quad (\text{Eqs. 3})$$

où K_A et G_A s'expriment pour des pores sphériques d'après les Eqs. 4.

$$K_A = K_m + \frac{4}{3}G_m \quad G_A = \frac{5G_m(3K_m + 4G_m)}{6(K_m + 2G_m)} \quad (\text{Eqs. 4})$$

Les modèles autocohérent et différentiel, deux schémas à matrice effective, nécessitent une résolution numérique itérative (Newton-Raphson). Le modèle autocohérent, amène aux propriétés en Eqs. 5 :

$$\tilde{K}_{SC} = \left(1 - \varphi \right) \frac{K_m}{1 + \alpha(K_m - \tilde{K}_{SC})/\tilde{K}_{SC}} \quad \tilde{G}_{SC} = \left(1 - \varphi \right) \frac{G_m}{1 + \beta(G_m - \tilde{G}_{SC})/\tilde{G}_{SC}} \quad (\text{Eqs. 5})$$

où α et β :

$$\alpha = \frac{3\tilde{K}_{SC}}{4\tilde{G}_{SC} + 3\tilde{K}_{SC}} \quad \beta = \frac{6(2\tilde{G}_{SC} + \tilde{K}_{SC})}{5(4\tilde{G}_{SC} + 3\tilde{K}_{SC})} \quad (\text{Eqs. 6})$$

Dans le cas du modèle différentiel, les modules de compressibilité et de cisaillement équivalents sont respectivement définis par les Eqs. 7 :

$$\tilde{K}_{Dif} = \frac{\zeta}{\tilde{\zeta}} \left(\frac{\tilde{\zeta} - 3/4}{\zeta - 3/4} \right)^{5/3} K_m \quad \tilde{G}_{Dif} = G_m (1 - \varphi)^2 \left(\frac{2(1 + \nu_m) + (1 - 5\nu_m)(\tilde{G}_{Dif}/G_m)^{3/5}}{3(1 - \nu_m)} \right)^{1/3} \quad (\text{Eqs. 7})$$

où $\zeta = G_m/K_m$ et $\tilde{\zeta} = \tilde{G}_{Dif}/\tilde{K}_{Dif}$.

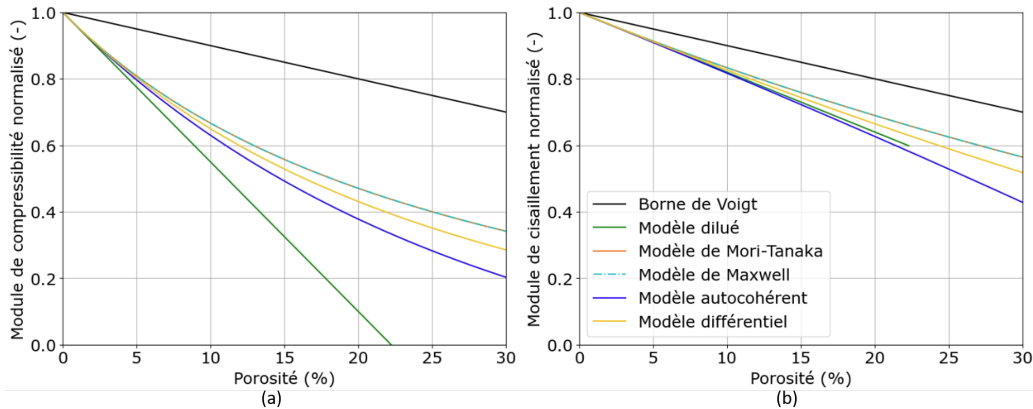


Fig. 1. – Modules de compressibilité (a) et de cisaillement (b) effectifs d'après les modèles présentés.

La figure 1 représente l'évolution des modules de compressibilité et de cisaillement équivalents normalisés par les propriétés de la matrice en fonction du taux de porosité initiale, obtenus pour les différents modèles théoriques. Pour tous les modèles, on observe la décroissance des propriétés mécaniques avec l'augmentation du taux de porosité. Le modèle dilué et la borne de Voigt donnent une décroissance linéaire du module de compressibilité en fonction du taux de porosité, qui conduit le modèle dilué à donner un comportement non physique au delà de 22 %. Il est donc tronqué sur la figure de droite. Les trois autres modèles présentent un comportement asymptotique avec des différences plus marquées lorsque le taux de porosité augmente, de l'ordre de 20% à $\varphi = 30\%$. Pour tous les modèles étudiés, le module de cisaillement normalisé diminue quasi-linéairement avec le taux de porosité et des écarts sont de plus en plus marqués lorsque le taux de porosité augmente.

2.2. Homogénéisation numérique

Afin de proposer un modèle théorique représentatif de l’effet de la microporosité sur les propriétés élastiques effectives, nous avons mis en place un modèle éléments finis (MEF). Ce MEF est constitué d’un volume élémentaire représentatif (VER) comprenant un cube unitaire de matrice (adhésif) avec une distribution aléatoire de pores de rayons identiques. Le VER est soumis à des conditions de traction pure et de cisaillement pur dans les trois plans orthogonaux, selon la composante du tenseur d’élasticité effectif à obtenir. Comme exemple, pour un traction pure selon la direction 1 et un cisaillement pur dans le plan (1, 2), les conditions limites imposées sont schématisées en Fig.2.

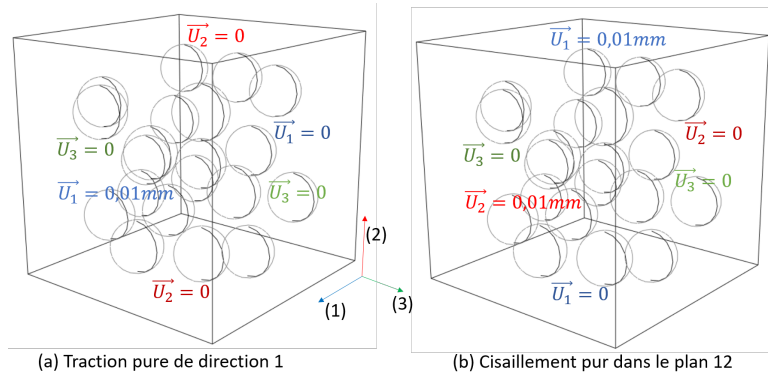


FIG. 2. – Conditions aux limites appliquées au VER en traction pure selon la direction 1 (a) et en cisaillement pur dans le plan 1,2 (b) sur un cube avec $\varphi = 10\%$ et une densité de pores de 20 pores/mm^3

Le matériau défini est élastique linéaire avec les propriétés de l’Araldite définies au paragraphe 2. Les déplacements imposés sont de 0.01 mm, soit 1% de l’arrête du cube, afin de satisfaire l’hypothèse des petites déformations. La composante du tenseur d’élasticité effectif est obtenue comme $C_{ij} = \sigma_{ij} / \varepsilon_{ij}$ avec l’hypothèse de milieu homogénéisé isotrope. Différentes configurations ont été étudiées en termes de taux de porosité (de 5% à 30%) et de densité de pores (entre $5/\text{mm}^3$ et $150/\text{mm}^3$). Les simulations ont été menées avec le logiciel Abaqus® complété par des scripts définis par l’utilisateur sous Python. Après validation via des études de convergence, le maillage est composé d’éléments tétraédriques avec intégration complète et interpolation linéaire. Sa taille dépend du taux et de la densité étudiés. Pour toutes les configurations étudiées 150 tirages aléatoires de la distribution des pores ont été effectués. Un exemple de configuration est donné en Fig. 3. Il a été démontré que les résultats numériques ne dépendent pas de la distribution des pores dans le VER et l’hypothèse de milieu homogénéisé isotrope a été validée.

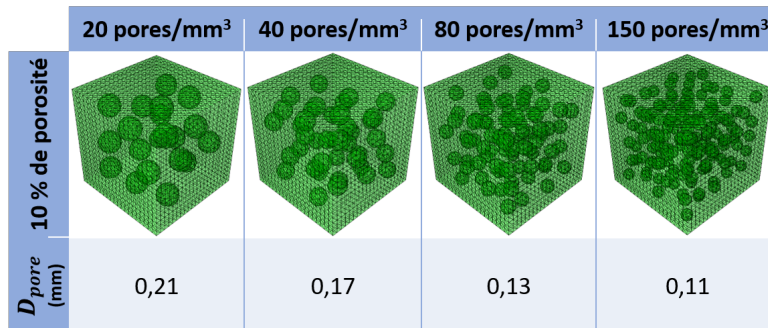


FIG. 3. – Représentation du VER à $\varphi = 10\%$ pour différentes densités de pores. A φ constant, le diamètre des pores dépend de leur densité. Pour ces configurations, la même taille de maille a été utilisée (0.05 mm).

3. Résultats et discussion

Par la suite on se focalise sur le cas de la traction. Les résultats théoriques et numériques en traction (moyennés sur les 3 directions) sont comparés en terme de la constante élastique $\lambda + 2G$ avec $\lambda = K - 2G/3$. Une étude de convergence du modèle numérique au regard de la densité de pores, pour $\varphi = 10 - 30\%$ est donnée en Fig.4a. On observe une correspondance des résultats entre les prévisions du modèle de Mori-Tanaka et le MEF lorsque la densité de pores est faible (11 pores/mm³) avec un écart de 0.30% à $\varphi = 10\%$ et de 4.25% à $\varphi = 30\%$. A taux de porosité donné, la valeur obtenue via le MEF croît avec la densité de pores et tend asymptotiquement vers une valeur constante à partir d'environ 80 pores/mm³. Ce palier est borné par valeur supérieure par le modèle de Voigt avec un écart de 11.5% pour $\varphi = 10\%$ et de 27.9% à $\varphi = 30\%$.

La Fig.4b présente la comparaison entre les valeurs théoriques obtenues avec les schémas d'homogénéisation micromécaniques et les résultats de simulations avec une densité de pores allant de 11 à 150 pores/mm³. Les prévisions numériques suivent la même tendance que celles théoriques en fonction du taux de porosité. Pour le cas à faible densité de pores, on retrouve la correspondance avec le modèle de Mori-Tanaka (ou de Maxwell, car ils sont confondus pour la configuration particulière matrice/pores choisie). De plus, avec l'augmentation de la densité de pores la prévision numérique tend à saturer autour d'un comportement intermédiaire entre le modèle de Mori-Tanaka/Maxwell et celui de Voigt.

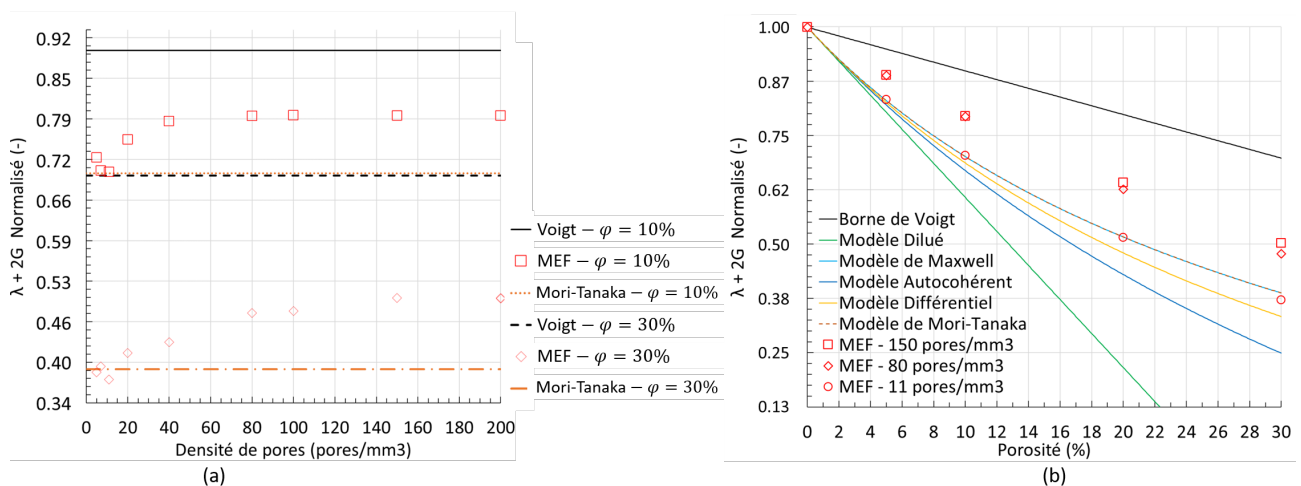


Fig. 4. – Évolution de $\lambda + 2G$, normalisé par les propriétés de la matrice, pour le MEF en traction ($\varphi = 10\%$ et $\varphi = 30\%$) en fonction de la densité de pores (a) et comparaison des résultats numériques en traction avec les résultats des modèles d'homogénéisation micromécanique en fonction du taux de porosité pour des densités de 11, 80 et 150 pores/mm³ (b).

4. Conclusion

Ce travail identifie les modèles d'homogénéisation micromécanique les plus pertinents pour décrire les propriétés élastiques effectives d'un adhésif structural base-époxy avec une distribution spatiale isotrope de micropores sphériques, représentant la microporosité initiale issue de la polymérisation. Un modèle numérique par élément finis d'un volume élémentaire représentatif de l'adhésif est proposé pour valider les résultats théoriques et pour analyser l'influence du taux de porosité (fraction volumique des pores), de la densité de pores (nombre de pores par unité de volume) et de la distribution des pores. Les résultats principaux de cette étude dans le cas de la traction :

- Décroissance des propriétés élastiques effectives avec l'augmentation du taux de porosité pour les modèles théoriques et numérique.
- Correspondance des modèles théoriques de Mori-Tanaka/Maxwell et le MEF pour de faibles densités de pores, autour de 10 pores/mm³.

- Les propriétés élastiques obtenues via le MEF augmentent avec la densité de pores et tendent à se stabiliser asymptotiquement à une valeur constante à partir de 80 pores/mm³, pour tous les taux de porosité. Ce palier est limité supérieurement par la borne de Voigt.
- Avec l'augmentation de la densité de pores le modèle numérique tend à saturer autour d'un comportement intermédiaire entre le modèle de Mori-Tanaka/Maxwell et celui de Voigt.
- Les résultats numériques ne dépendent pas de la distribution des pores et l'hypothèse de milieu homogénéisé isotrope a été validée.

Ces résultats sont complémentaires aux résultats de [14] qui montrent une correspondance avec les prévisions du modèle de Hashin-Shtrikman [8, 19] pour des adhésifs époxy quasi-fragiles. Une campagne expérimentale est actuellement en cours afin de conforter ces observations.

Remerciements

Ce travail a été réalisé dans le cadre du projet ANR-22-CE08-0002.

Références

- [1] C. Li, L. Ke, J. He, Z. Chen, Y. Jiao « Effects of mechanical properties of adhesive and CFRP on the bond behavior in CFRP-strengthened steel structures », *Composite Structures* Vol. 211, pp. 163–174, 2019.
- [2] C. Pupin, A. Ross, C. Dubois, J.-C. Rietsch, N. Vernet, E. Ruiz « Formation and suppression of volatile-induced porosities in an RTM epoxy resin », *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing* Vol. 94, pp. 146–157, 2017.
- [3] A. S. Ismail, M. Jawaid, N. H. Hamid, R. Yahaya, A. Hassan, M. Asim, A. B. M. Supian, Effect of Curing Temperature on Mechanical Properties of Bio-phenolic/Epoxy Polymer Blends, vol. 30, Springer Science and Business Media LLC, 2021.
- [4] S. Hernández, F. Sket, J. Molina-Aldaregui, C. González, J. LLorca « Effect of curing cycle on void distribution and interlaminar shear strength in polymer-matrix composites », *Composites Science and Technology* Vol. 71 n° 10, pp. 1331–1341, 2011.
- [5] B. Ben Lazreg, F. Chinesta, A. Tcharkhtchi « Modélisation de l'expansion d'une bulle dans le rotomoulage des mousses polymères par agent porogène chimique », *Matériaux et Techniques* Vol. , pp. , 2008.
- [6] W. Voigt « Ueber die Beziehung zwischen den beiden Elasticitätsconstanten isotroper Körper », *Annalen der Physik* Vol. 274 n° 12, pp. 573–587, 1889.
- [7] 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* Vol. 9 n° 1, pp. 49–58, 1929.
- [8] Z. Hashin, S. Shtrikman « A variational approach to the theory of the elastic behaviour of multiphase materials », *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* Vol. 11 n° 2, pp. 127–140, 1963.
- [9] J. D. Eshelby « The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion, and related problems », *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences* Vol. 241 n° 1226, pp. 376–396, 1957.
- [10] T. Mori, K. Tanaka « Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions », *Acta Metallurgica* Vol. 21 n° 5, pp. 571–574, 1973.
- [11] R. Hill « A self-consistent mechanics of composite materials », *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* Vol. 13 n° 4, pp. 213–222, 1965.
- [12] R. McLaughlin « A study of the differential scheme for composite materials », *International Journal of Engineering Science* Vol. 15 n° 4, pp. 237–244, 1977.
- [13] V. Levin, S. Kanaun, M. Markov « Generalized Maxwell's scheme for homogenization of poroelastic composites », *International Journal of Engineering Science* Vol. 61, pp. 75–86, 2012.
- [14] M. A. El-Hadek, H. V. Tippur « Simulation of porosity by microballoon dispersion in epoxy and urethane : mechanical measurements and models », *Journal of Materials Science* Vol. 37 n° 8, pp. 1649–1660, 2002.
- [15] A. S. Sangani « An application of an homogenization method to a model of diffusion in glassy polymers », *Journal of Polymer Science Part B : Polymer Physics* Vol. 24 n° 3, pp. 563–575, 1986.
- [16] Y. Wu, R. Shivpuri, L. J. Lee « Effect of Macro and Micro Voids on Elastic Properties of Polymer Composites », *Journal of Reinforced Plastics and Composites* Vol. 17 n° 15, pp. 1391–1402, 1998.
- [17] I. Sevostianov, M. Kachanov « Effective properties of heterogeneous materials : Proper application of the non-interaction and the “dilute limit” approximations », *International Journal of Engineering Science* Vol. 58, pp. 124–128, 2012.
- [18] J. C. Maxwell, A Treatise on Electricity and Magnetism, Cambridge University Press, ISBN 9780511709333, 1873.
- [19] V. Krstic, U. Erb, G. Palumbo « Effect of porosity on Young's modulus of nanocrystalline materials », *Scripta Metallurgica et Materialia* Vol. 29 n° 11, pp. 1501–1504, 1993.