

Identification du comportement mécanique des constituants de composites par homogénéisation inverse : Application à un composite carbone / LMPAEK™

Identification of the mechanical behavior of the composites constituents using inverse homogenization : application to carbon / LMPAEK™ polymer composites

Robin Valmalette¹, Cédric Bellis¹, Christian Hochard¹ et Noël Lahellec¹

1 : LMA, UMR 7031

Aix Marseille Univ, CNRS, Centrale Med

4 impasse Nikola Tesla , 13453 Marseille Cedex 13

e-mail : {valmalette, bellis, hochard, lahellec}@lma.cnrs-mrs.fr

Résumé

La caractérisation des constituants d'un matériau composite peut représenter un défi expérimental, en particulier aux petites échelles. L'homogénéisation inverse permet de déterminer les propriétés microscopiques des phases à partir de données macroscopiques, plus faciles à obtenir. Ce processus repose sur la minimisation d'une fonction coût, laquelle compare les données mesurées aux résultats issus de modèles. Ici, les propriétés effectives du matériau sont dérivées de manière continue par rapport aux paramètres locaux des différentes phases. Le problème inverse peut ainsi être résolu en champs complets avec des algorithmes basés sur le gradient. Cette méthode a été mise en œuvre sur un composite prototype carbone/LMPAEK™ polymer, pour lequel des essais de traction et de fluage ont été réalisés sur des stratifiés. Un algorithme de Newton et des calculs d'homogénéisation basés sur les FFT sont utilisés. Les propriétés élastiques anisotropes des fibres et le comportement viscoélastique de la matrice ont été identifiés. Afin de valider la qualité des résultats obtenus, des analyses de sensibilité et de propagation d'incertitudes ont été réalisées via un modèle de regression.

Abstract

The characterization of the constituents of a composite material can present an experimental challenge, particularly at small scales. Inverse homogenization enables the determination of the microscopic properties of the phases based on macroscopic data, which are easier to obtain. This process involves minimizing a cost function that compares measured data with model results. Here, the effective properties of the material are continuously derived with respect to the local parameters of the different phases. The inverse problem is thus solved in full-fields using gradient-based algorithms. This method was applied to a prototype carbon/LMPAEK™ composite, for which tensile and creep tests were conducted on laminates. A Newton algorithm and homogenization calculations based on FFT were employed. The fibers' anisotropic elastic properties and the matrix's viscoelastic behavior were identified. Sensitivity analyses and uncertainty propagation studies were performed using a regression model to validate the quality of the results obtained.

Mots Clés : identification de paramètres, homogénéisation, simulation en champs complets

Keywords : parameters identification, homogenization, full-field simulations

1. Introduction

Afin de mieux prédire le comportement des matériaux hétérogènes, notamment les composites, les modèles micromécaniques sont largement utilisés dans la littérature. Ces modèles permettent de reproduire des comportements complexes, comme, par exemple, dans le cas des FRP (Fiber Reinforced Plastics), l'endommagement matriciel, la décohésion fibre/matrice ou les ruptures de fibres [1].

Les trois éléments clés de ces modèles sont : le modèle d'homogénéisation, la description de la microstructure et les comportements des phases. Si la microstructure est généralement accessible, notamment grâce à l'imagerie par tomographie, les propriétés mécaniques des phases peuvent être difficiles à mesurer. Dans le contexte des FRP, les fibres de carbone, d'un diamètre d'environ 7 μm , sont isotropes transverses, ce qui rend la mesure des cinq modules élastiques particulièrement complexe à l'échelle microscopique [2, 3]. Même pour un type de fibre donné, une forte variabilité des

propriétés est observée selon les auteurs [4, 5, 6]. Faute de pouvoir mesurer ces paramètres, les auteurs les estiment de manière approchée à partir de quelques références [7]. Une autre difficulté provient des modifications des propriétés d'un matériau lors de la fabrication du composite. Toujours dans le cadre des FRP, les matrices thermoplastiques semi-cristallines sont souvent soupçonnées d'avoir des propriétés différentes au sein d'un composite par rapport à celles mesurées sur des échantillons de thermoplastique pur [8].

Une alternative aux essais complexes à l'échelle microscopique consiste à identifier les paramètres des phases grâce à une méthode inverse d'homogénéisation, en se basant sur les paramètres macroscopiques du composite, plus faciles à mesurer. Pour ce faire, une fonction coût est définie afin de quantifier l'écart entre les paramètres effectifs mesurés et ceux obtenus à partir de simulations. L'objectif est de minimiser cette fonction coût, le plus souvent de manière itérative. Les propriétés effectives simulées sont calculées à partir d'un problème d'homogénéisation, généralement en champs moyens ou complets. Étant donné le caractère mal posé du problème inverse, des problématiques d'existence, d'unicité et de stabilité émergent, comme illustré par Hartmann and Gilbert [9]. Cette méthode d'identification permet, par exemple, d'identifier les cinq paramètres élastiques des fibres de carbone à partir des modules élastiques du composite et de ceux de la matrice [10, 11]. Sevenois et al. [10] ont mesuré par ultrasons les raideurs du composite étudié et déterminé les propriétés des fibres à l'aide d'un modèle d'homogénéisation par éléments finis (EF). Bien que la méthode employée semble fournir de bons résultats, la sensibilité au bruit des paramètres n'a pas été étudiée. De plus, l'algorithme utilisé ne prend pas en compte le possible couplage entre les paramètres et pourrait ne pas converger pour d'autres composites. Enfin, une alternative récente consiste à utiliser des techniques de régression sur des simulations déjà réalisées afin d'interpoler les paramètres recherchés [12]. Les résultats sont concluants, mais la méthode reste spécifique à chaque cas d'application et demeure coûteuse en temps de calcul pour des besoins souvent limités.

Dans ce travail, une méthode plus générale pour l'identification inverse est proposée. Basée sur un développement asymptotique de la réponse effective, elle permet de calculer de manière continue les dérivées des propriétés effectives par rapport aux paramètres des phases. Par conséquent, le gradient et la matrice Hessienne des fonctions coût peuvent être déterminés plus précisément que par d'autres techniques (*e.g.* différences fines), et ce parfois sans simulation supplémentaire. Une application est ensuite proposée sur un composite carbone/LMPAEK™. Les paramètres élastiques du composite sont mesurés ainsi que ceux de la matrice à partir d'éprouvettes de résine pure. La méthode inverse est utilisée une première fois pour identifier les modules élastiques des fibres isotropes transverses. La qualité de la simulation est évaluée par une analyse de sensibilité et une quantification des incertitudes à l'aide d'un modèle de régression gaussienne. Une fois les propriétés des fibres identifiées, le comportement viscoélastique de la résine est déterminé grâce à des essais de fluage du composite. La méthode inverse est à nouveau appliquée, et les résultats sont comparés à ceux obtenus à partir des essais de fluage sur des éprouvettes de résine pure. Pour l'ensemble des identifications, un algorithme de Newton est utilisé pour minimiser la fonction coût, et les comportements effectifs sont calculés par champs complets grâce aux techniques d'homogénéisation par FFT [13].

2. Identification par homogénéisation inverse

2.1. Problème direct

Considérons un composite périodique avec pour volume représentatif périodique $\Omega \subset \mathbb{R}^d$, et $\boldsymbol{\eta}$ désigne un vecteur comprenant des paramètres d'intérêt, notamment les paramètres constitutifs des phases. On suppose que la réponse mécanique dérive d'un potentiel local $w(\boldsymbol{x}, \boldsymbol{\varepsilon}, \boldsymbol{\eta})$. Pour un chargement moyen

$\mathbf{E} \in \mathbb{R}_{\text{sym}}^{d \times d}$, le problème mécanique associé revient à trouver le champ de déplacement \mathbf{u}_η qui satisfait :

$$\begin{cases} \boldsymbol{\varepsilon}_\eta(\mathbf{x}) = \mathbf{E} + \boldsymbol{\varepsilon}[\mathbf{u}_\eta](\mathbf{x}), & \mathbf{u}_\eta \text{ periodic on } \partial\Omega, \\ \boldsymbol{\sigma}_\eta(\mathbf{x}) = \frac{\partial w}{\partial \boldsymbol{\varepsilon}}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\varepsilon}_\eta, \boldsymbol{\eta}), \\ \operatorname{div} \boldsymbol{\sigma}_\eta(\mathbf{x}) = \mathbf{0}, & \boldsymbol{\sigma}_\eta \cdot \mathbf{n} \text{ anti-periodic on } \partial\Omega, \end{cases} \quad (\text{Eq. 1})$$

avec $\boldsymbol{\varepsilon}[\cdot]$ l'opérateur gradient symétrique et \mathbf{n} le vecteur unitaire normal sortant sur $\partial\Omega$.

Dans certains cas¹, il est possible de définir des paramètres effectifs $\boldsymbol{\eta}_{\text{eff}}$ tels que la réponse macroscopique donnée par :

$$W_{\text{eff}}(\mathbf{E}, \boldsymbol{\eta}_{\text{eff}}) = W_{\text{eff}}(\mathbf{E}, \boldsymbol{\eta}) = \langle w(\cdot, \boldsymbol{\varepsilon}_\eta, \boldsymbol{\eta}) \rangle, \quad (\text{Eq. 2})$$

avec $\langle f \rangle = \int_{\Omega} f(\mathbf{x}) \, d\mathbf{x} / |\Omega|$.

2.2. Problème inverse

Considérons maintenant un composite pour lequel $\boldsymbol{\eta}^*$ désigne le jeu de paramètres à identifier. Le problème inverse à résoudre s'écrit

$$\min_{\boldsymbol{\eta}} J(\boldsymbol{\eta}) \quad (\text{Eq. 3})$$

avec la fonction J mesurant l'écart avec les paramètres effectifs mesurés $\boldsymbol{\eta}_{\text{eff}}^d(\boldsymbol{\eta}^*)$. Par exemple au sens de la norme Euclidienne :

$$J(\boldsymbol{\eta}) = \frac{1}{2} \|\boldsymbol{\eta}_{\text{eff}}(\boldsymbol{\eta}) - \boldsymbol{\eta}_{\text{eff}}^d(\boldsymbol{\eta}^*)\|^2. \quad (\text{Eq. 4})$$

2.3. Résolution du problème inverse

En utilisant une variante du développement de celui de Castaneda et Suquet[14], ainsi que le lemme de Hill, on peut montrer qu'à l'ordre 1 :

$$\frac{\partial W}{\partial \boldsymbol{\eta}}(\mathbf{E}, \boldsymbol{\eta}) = \left\langle \frac{\partial w}{\partial \boldsymbol{\eta}}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\varepsilon}_\eta, \boldsymbol{\eta}) \right\rangle \quad (\text{Eq. 5})$$

et à l'ordre 2 :

$$\frac{\partial^2 W}{\partial \boldsymbol{\eta}^2}(\mathbf{E}, \boldsymbol{\eta}) = \left\langle \frac{\partial^2 w}{\partial \boldsymbol{\eta}^2}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\varepsilon}_\eta, \boldsymbol{\eta}) - \boldsymbol{\varepsilon}[\mathbf{u}_\eta^{(1)}](\mathbf{x}) : \frac{\partial^2 w}{\partial \boldsymbol{\varepsilon}^2}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\varepsilon}_\eta) : \boldsymbol{\varepsilon}[\mathbf{u}_\eta^{(1)}](\mathbf{x}) \right\rangle \quad (\text{Eq. 6})$$

avec $\boldsymbol{\varepsilon}[\mathbf{u}^{(1)}]$ solution du problème

$$\operatorname{div} \left(\frac{\partial^2 w}{\partial \boldsymbol{\varepsilon}^2}(\mathbf{x}, \boldsymbol{\varepsilon}_\eta, \boldsymbol{\eta}) : \boldsymbol{\varepsilon}[\mathbf{u}_\eta^{(1)}](\mathbf{x}) \right) = - \operatorname{div} \left(\frac{\partial \boldsymbol{\sigma}_\eta}{\partial \boldsymbol{\eta}}(\mathbf{x}) \right). \quad (\text{Eq. 7})$$

Le calcul du gradient et de la matrice Hessienne de la fonction coût J peut alors se faire simplement par dérivation de fonction composée. Notons que le calcul du gradient est direct et aucune simulation supplémentaire est nécessaire, et le calcul de la matrice Hessienne requiert autant de simulations qu'il en faut pour déterminer $\boldsymbol{\eta}_{\text{eff}}$.

Le cadre viscoélastique est analogue au cadre élastique dans l'espace de Laplace-Carson, dans lequel les phases viscoélastiques admettent un tenseur de rigidité complexe.

Dans la suite, les calculs en champs complets sont réalisés via un schéma d'homogénéisation par FFT, méthode originellement développée par Moulinec and Suquet [13]. Un volume élémentaire représentatif de 100 fibres est utilisé avec une discrétisation spatiale $1024 \times 1024 \times 1$ pixels. Afin de résoudre le problème de minimisation Eq. 3, l'algorithme de Newton est utilisé pour lequel le gradient et la matrice Hessienne de la fonction coût sont calculés en partie avec Eq. 5, Eq. 6 et Eq. 7.

1. Dans le cas général, le potentiel effectif dépend implicitement de \mathbf{E} et $\boldsymbol{\eta}$ via la solution $\boldsymbol{\varepsilon}_\eta$ au problème Eq. 1. Par conséquent, il n'existe à priori pas de forme explicite pour W_{eff} qui peut être exprimé avec un nombre fini de paramètres contenus dans $\boldsymbol{\eta}_{\text{eff}}$. Dans quelques cas, cela reste possible comme dans le cadre de phases élastiques linéaires ou viscoélastiques linéaires.

3. Matériaux et essais

Le composite étudié, fourni par Airbus, est composé d'une matrice Low-Melting PAEK (LMPAEK™ polymer) développée par Victrex² et renforcée par des fibres continues de carbone prototype³. Le matériau a été fourni sous forme de préimprégné unidirectionnel, ce qui a permis la fabrication de plaques par pressage à chaud. Les éprouvettes $[0]_8$, $[-45, 45]_{2s}$ et $[90]_8$ ont ensuite été découpées au jet d'eau (CPT = 0.185 mm). En complément, une plaque de LMPAEK™ pur a été utilisée pour fabriquer et tester des éprouvettes correspondantes.

Chaque éprouvette, au nombre de deux par type de stratifié, a été instrumentée avec des jauges de déformation XY et testée à l'aide d'une machine de traction uniaxiale. Un essai quasi-statique à température ambiante a d'abord été réalisé pour chacune d'entre elles. Ensuite, des essais de fluage ont été effectués (à l'exception des éprouvettes $[0]_8$). Ces essais comprenaient des paliers de 10 ou 20 MPa maintenus pendant 1 heure, à différentes températures comprises entre 20 et 140 °C⁴. Chaque palier de chargement était suivi d'une phase de repos de 3 heures afin de garantir un retour à l'état initial du matériau.

4. Résultats

4.1. Identification de la fibre élastique

Les essais quasi-statiques ont permis d'obtenir les paramètres Tab. 1. Étant donné les éprouvettes de composite testées, le module ν_t du composite n'a pas pu être mesuré. Par conséquent, l'identification des propriétés des fibres a été réalisée en supposant le coefficient ν_t des fibres sur la base des données de la T300 rapportées par [7], soit $\nu_t = 0.07$. La fraction volumique de fibres a été mesurée à 54 % par microscopie optique.

Les paramètres identifiés sont présentés Tab. 2. L'identification a nécessité 6 itérations, correspondant à environ 36 résolutions des problèmes élastique décrits Eq. 1 et Eq. 7.

	E [GPa]	ν	G [GPa]	E_l [GPa]	E_t [GPa]	ν_l	G_l [GPa]
LMPAEK	3.8	0.39	1.37	-	-	-	-
Composite UD	-	-	-	147	10.4	0.35	4.6

TAB. 1. – Paramètres mesurés à partir des essais quasi-statiques.

	E_l [GPa]	E_t [GPa]	ν_l	G_l [GPa]	ν_t	G_t [GPa]
Fibre identifiée	269(±1.2%)	28.2 (±3.5%)	0.32 (±3.2%)	36.2 (±13%)	0.07	13.2
T300 [7]	230	15	0.2	15	0.07	7

TAB. 2. – Paramètres identifiés de la fibre, la quantification des incertitudes est donnée pour 2 écarts-type (95%). Les paramètres de la T300 sont donnés à titre de comparaison.

Une quantification des incertitudes associée aux paramètres identifiés a été réalisée à l'aide d'un modèle de régression gaussienne (GPR) entraînée sur une base de 300 composites différents. Des bruits gaussiens ont été appliqués sur les paramètres suivants : l'angle d'empilement de chaque pli dans les stratifiés, l'angle de découpe des éprouvettes, l'angle de collage des jauges, la mesure de la force, la mesure des déformations, la mesure de la section des éprouvettes et la mesure de la fraction volumique de fibres. L'amplitude des bruits a été choisie en accord avec les moyens expérimentaux disponibles. En appliquant ces bruits indépendamment les uns des autres, les analyses ont révélé que

2. Également utilisée dans les composites Toray Cetex® TC12225 à base de LMPAEK™ polymer de Victrex de Toray.

3. Les propriétés attendues sont similaires à celles de la T700, avec un module légèrement plus élevé.

4. Température correspondant à la transition vitreuse du thermoplastique LMPAEK™.

les sources ayant la plus grande influence sur l'erreur des coefficients identifiés sont la mesure de la force, la mesure de la fraction volumique de fibres et l'angle d'empilement des plis.

4.2. Identification de la matrice viscoélastique

Les résultats des essais de fluages des éprouvettes $[90^\circ]_8$ et $[+45^\circ, -45^\circ]_{2s}$ sont donnés Fig. 1. Après avoir déterminé les modèles de Maxwell généralisés associés, l'identification viscoélastique de la matrice est montrée Fig. 2 et comparée à celle issue des éprouvettes de LMPAEKTM testées. Une reconstruction du module de cisaillement G_ℓ avec soit la matrice identifiée, soit la matrice issue des éprouvettes de LMPAEKTM pur est également montré Fig. 2.

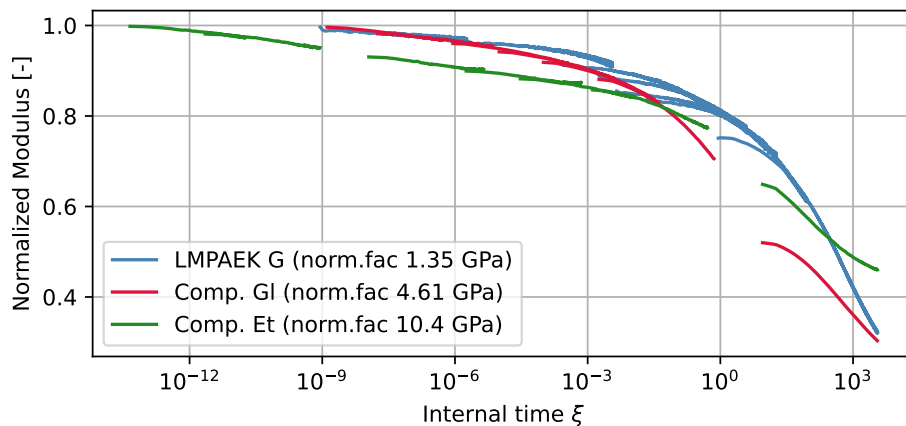


FIG. 1. – Courbes maitresses du composite issues des essais de fluages $[90^\circ]_8$ et $[+45^\circ, -45^\circ]_{2s}$

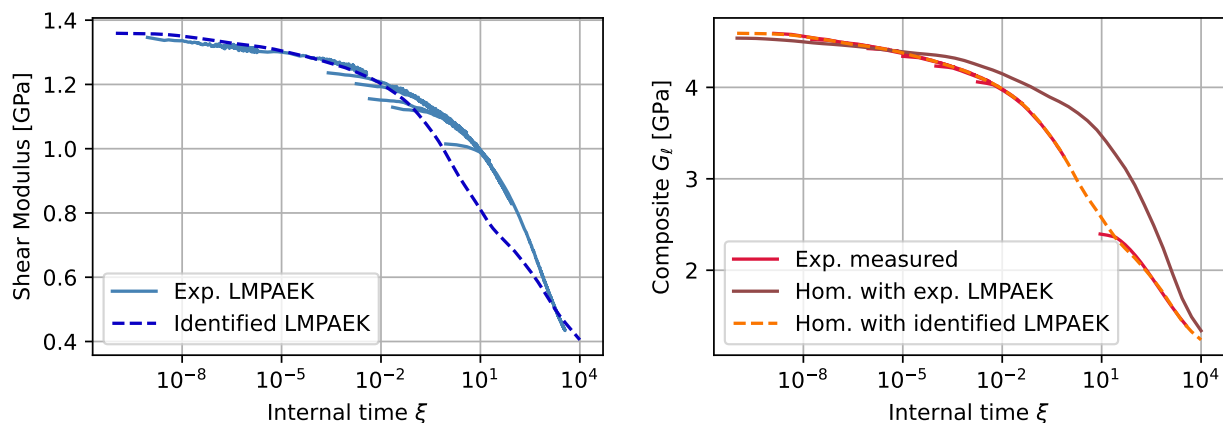


FIG. 2. – Courbes maitresses de la matrice l'une obtenue par identification, la seconde mesurée à partir des éprouvettes de LMPAEKTM pur (gauche). Reconstruction du module de cisaillement G_ℓ du composite avec la matrice issue de l'identification et celle calibrée sur les éprouvettes de LMPAEKTM pur (droite).

L'écart observé peut s'expliquer par plusieurs facteurs. Le premier est une différence de comportement du thermoplastique LMPAEKTM dans le composite et dans un échantillon pur. Un deuxième facteur est une non linéarité de la viscoélasticité de la matrice. Des essais de fluages sur la matrice et le composite à température constante mais à différents niveaux de contrainte (entre 10 et 40 MPa) ont montré une non linéarité d'environ 10%. Au sein du composite, pour une déformation transverse donnée, la matrice située entre les fibres subissent une contrainte plus élevée, et donc une plus fortes chances de

s'éloigner le domaine de viscoélasticité linéaire. Enfin, une dernière explication qui pourrait expliquer ces écarts serait des phénomènes non-linéaires liés au réalignement des fibres avec les éprouvettes ± 45 . Ce phénomène semble néanmoins peut probable compte tenu des faibles niveaux de déformation durant les essais.

5. Conclusion

Cette nouvelle méthode a permis l'identification des fibres élastiques anisotropes et de la matrice viscoélastique d'un composite carbone / LMPAEK™. Des incertitudes entre 1 et 10% ont été trouvées sur les modules identifiés de la fibre validant le montage expérimental ainsi que la méthode d'identification (stabilité). L'identification de la matrice a montré une différence par rapport aux essais sur LMPAEK™pure.

Références

- [1] Y. Swolfs, R. M. McMeeking, I. Verpoest, L. Gorbatikh « Matrix Cracks around Fibre Breaks and Their Effect on Stress Redistribution and Failure Development in Unidirectional Composites », *Composites Science and Technology* Vol. 108, pp. 16–22, 2015, ISSN 02663538.
- [2] D. Mounier, C. Poilâne, H. Khelifa, P. Picart « Sub-Gigahertz Laser Resonant Ultrasound Spectroscopy for the Evaluation of Elastic Properties of Micrometric Fibers », *Ultrasonics* Vol. 54 n° 1, pp. 259–267, 2014, ISSN 0041-624X.
- [3] F. Islam, S. Joannès, S. Bucknell, Y. Leray, A. Bunsell, L. Laiarinandrasana « Investigation of Tensile Strength and Dimensional Variation of T700 Carbon Fibres Using an Improved Experimental Setup », *Journal of Reinforced Plastics and Composites* Vol. 39 n° 3-4, pp. 144–162, 2020, ISSN 0731-6844.
- [4] M. Katouzian, S. Vlase « Creep Response of Neat and Carbon-Fiber-Reinforced PEEK and Epoxy Determined Using a Micromechanical Model », *Symmetry* Vol. 12 n° 10, pp. 1680, 2020, ISSN 2073-8994.
- [5] P. T. Gonçalves, A. Arteiro, N. Rocha, L. Pina « Numerical Analysis of Micro-Residual Stresses in a Carbon/Epoxy Polymer Matrix Composite during Curing Process », *Polymers* Vol. 14 n° 13, pp. 2653, 2022, ISSN 2073-4360.
- [6] H. Miyagawa, C. Sato, T. Mase, E. Drown, L. Drzal, K. Ikegami « Transverse Elastic Modulus of Carbon Fibers Measured by Raman Spectroscopy », *Materials Science and Engineering A* Vol. 412, pp. 88–92, 2005.
- [7] P. D. Soden, M. J. Hinton, A. S. Kaddour « Lamina Properties, Lay-up Configurations and Loading Conditions for a Range of Fibre-Reinforced Composite Laminates », *Composites Science and Technology* Vol. 58 n° 7, pp. 1011–1022, 1998, ISSN 0266-3538.
- [8] C. Breite, A. Melnikov, A. Turon, A. De Morais, F. Otero, F. Mesquita, J. Costa, J. Mayugo, J. Guerrero, L. Gorbatikh, L. McCartney, M. Hajikazemi, P. Camanho, R. Tavares, S. Lomov, S. Pimenta, W. Van Paepegem, Y. Swolfs « Blind Benchmarking of Seven Longitudinal Tensile Failure Models for Two Virtual Unidirectional Composites », *Composites Science and Technology* Vol. 202, pp. 108555, 2021, ISSN 02663538.
- [9] S. Hartmann, R. R. Gilbert « Identifiability of Material Parameters in Solid Mechanics », *Archive of Applied Mechanics* Vol. 88 n° 1, pp. 3–26, 2018, ISSN 1432-0681.
- [10] R. D. B. Sevenois, D. Garoz, E. Verboven, S. W. F. Spronk, F. A. Gilabert, M. Kersemans, L. Pyl, W. Van Paepegem « Multiscale Approach for Identification of Transverse Isotropic Carbon Fibre Properties and Prediction of Woven Elastic Properties Using Ultrasonic Identification », *Composites Science and Technology* Vol. 168, pp. 160–169, 2018, ISSN 0266-3538.
- [11] M. K. Ballard, W. R. McLendon, J. D. Whitcomb « The Influence of Microstructure Randomness on Prediction of Fiber Properties in Composites », *Journal of Composite Materials* Vol. 48 n° 29, pp. 3605–3620, 2014, ISSN 0021-9983.
- [12] Z. Qi, N. Zhang, Y. Liu, W. Chen « Prediction of Mechanical Properties of Carbon Fiber Based on Cross-Scale FEM and Machine Learning », *Composite Structures* Vol. 212, pp. 199–206, 2019, ISSN 0263-8223.
- [13] H. Moulinec, P. Suquet « A Fast Numerical Method for Computing the Linear and Nonlinear Mechanical Properties of Composites », *Comptes Rendus de l'Académie des sciences. Série II. Mécanique, physique, chimie, astronomie* .
- [14] P. Ponte Castañeda, P. Suquet « Nonlinear Composites », *Advances in Applied Mechanics* , pp. 171–302, 1997.