

Caractérisation du comportement mécanique d'un composite (tissu de verre/résine époxyde) à différentes périodes de vieillessement hygrothermiques

A. NACERI^{1,*} et A. VAUTRIN²

¹*Laboratoire de matériaux, Faculté des sciences de l'ingénieur, Université de M'sila,
B.P 166, Ichbilia, M'sila 28000, Algérie*

²*Laboratoire de mécanique et matériaux, Ecole des mines de Saint-Etienne, 158 Cours
Fauriel, 42023 Saint-Etienne, France*

(Reçu le 19 Octobre 2005, accepté le 12 Mars 2006)

* Correspondance, courriel : abdelghani_naceri@yahoo.fr

Résumé

Cet article présente l'analyse du comportement mécanique d'un stratifié composite constitué de 12 plis de tissus de fibres de verre/résine époxyde conditionné en milieu humide à différents taux d'humidité relative 0, 60 et 96 % à 60 °C.

L'analyse des résultats expérimentaux obtenus du vieillissement hygrothermique sur la réponse mécanique a permis de montrer que l'influence de la concentration en eau sur les caractéristiques ultimes devient significative et importante pour le composite conditionné à 96 % d'humidité relative aux époques I et II (plateau de saturation et vieillissement).

Mots-clés : *Vieillessement hygrothermique, comportement mécanique, matériaux composites.*

Abstract

Characterization of the mechanical behaviour of composite (*woven fabric glass/epoxy resin*) at different times during hygrothermal ageing

This paper considers the analysis of the mechanical behaviour of a laminate constituted of 12 layers of glass fiber fabric/epoxy resin conditioned at different relative humidities of 0, 60 and 96 % at 60 °C.

The analysing of the experimental results obtained of hygrothermal ageing on the mechanical response has permitted to show that the influence of the moisture concentration on the ultimate mechanical properties becomes significant and important

for the composite conditioned at relative humidity of 96 % to the periods I and II (*state of saturation and ageing*).

Keywords : *Hygrothermal ageing, mechanical behaviour, composite materials.*

1. Introduction

L'expérience de ces dernières années souligne l'importance des effets de l'environnement (humidité et température) sur les propriétés mécaniques des plastiques renforcés [1] et la stabilité de leurs performances à long terme (durabilité).

La présence d'eau au sein des matériaux composites (fibres/polymère) provoque une détérioration des propriétés mécaniques [2].

On sait qu'au cours d'un vieillissement hygrothermique, la présence de molécules d'eau dans un composite à matrice polymère peut notamment dégrader les liaisons à l'interface renfort-matrice et entraîner ainsi une dégradation irréversible des propriétés du composite [3].

Ce sont surtout les applications aéronautiques qui ont initié l'étude des problèmes liés à l'environnement [3-4]. L'absorption d'eau [5] par un composite à matrice organique dépend de plusieurs paramètres tels que :

- la nature des fibres et de la résine,
- la disposition des fibres par rapport à la direction de diffusion,
- l'écart de concentration en eau entre le composite et le milieu environnant.

L'objectif principal de cette étude expérimentale consiste à étudier l'influence de l'environnement hygrothermique sur le comportement mécanique d'un stratifié composite constitué de 12 plis de tissus de verre E et d'une résine époxyde saturé à différents taux d'humidité relative 0, 60 et 96 % RH à la température constante de 60 °C. Dans cette étude les éprouvettes sont sollicitées jusqu'à rupture en traction uniaxiale dans les deux directions, chaîne et trame à vitesse de déplacement imposée constante ($V = 0,011$ mm/s).

2. Matériau, conditionnement et essai mécanique

L'étude porte sur un composite constitué de 12 couches (*937/EP/ES67*) de tissus à armure taffetas ou toile (le fil de chaîne et de trame s'entrecroisent alternativement) de fibres de verre E noyé dans une résine époxyde holt melt. Ce matériau a été réalisé par la société Hexcel Génin. Il est délivré sous forme de plaques planes de dimensions moyennes : 300 (sens trame) x 300 (sens chaîne) x 3,2 mm³. La fraction volumique des fibres a été déterminée selon la méthode de calcination et trouvée égale à $V_f = 55$ %.

La technique de mesure utilisée pour la détermination de la masse volumique du composite tissu est la méthode picnométrique (1,94 g/cm³). Sa composition pondérale est égale à 50 % dans chaque direction de renforcement fibreux (sens chaîne et trame).

La détermination de la cinétique d'absorption d'eau du matériau étudié a été effectuée par une mesure de reprise de poids en fonction du temps dans le but de déterminer les deux paramètres caractéristiques de la loi de diffusion de FICK qui admet la réversibilité du phénomène :

- le coefficient de diffusion D en cm²/s, et
- la quantité maximale d'eau retenue à la saturation M_m en %.

La loi de diffusion de FICK admet que le moteur de diffusion n'est autre que le gradient de concentration en eau. L'équation de bilan de matière s'écrit [6-7] :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x_i} (D_{ij} \frac{\partial C}{\partial x_j}) \quad (1)$$

Il s'agit d'une équation différentielle aux dérivées partielles, où la concentration en eau C dépend des variables spatiales x_i et du temps t .

où :

- D_{ij} : diffusivité du milieu,
- C : concentration en eau.

En ce qui concerne la diffusivité D , on la suppose dans ce modèle indépendante de l'humidité relative et seulement fonction de la température suivant une loi de type Arrhénius :

$$D = D_0 \exp\left(-\frac{E_d}{RT}\right) \quad (2)$$

avec,

- D : coefficient de diffusion ou diffusivité,
- R : constante des gaz parfaits,
- E_d : énergie d'activation du processus de diffusion,
- T : température absolue.

Par contre la quantité maximale d'eau retenue M_m à la saturation apparaît comme indépendante de la température et seulement fonction de l'humidité relative suivant une loi puissance :

$$M_m = a(RH)^b \quad (3)$$

où ,

- RH : humidité relative du milieu en %,
- a et b : constantes du milieu.

Le coefficient de diffusion D et la quantité maximale d'eau retenue à la saturation M_m sont deux paramètres matériels fondamentaux qui caractérisent l'aptitude du matériau à absorber l'eau dans le cadre de la théorie élémentaire de Fick.

Le choix des conditions d'environnement à température et aux taux d'humidité constants est essentiellement justifié par les deux considérations suivantes :

- au delà de 60°C , les échantillons pouvaient être endommagés,
- la température choisie de 60°C est largement suffisante pour accélérer la reprise en eau et obtenir un palier de saturation en un temps raisonnable.

La cinétique d'absorption d'eau a été suivie par la méthode gravimétrique (reprise de poids mesurée à l'aide d'une balance sartorius 2842 avec une étendue de pesée de 160 g et une précision de 0,1 mg) afin de contrôler le gain en poids du matériau conditionné en fonction de la durée de conditionnement.

Le calcul du coefficient de diffusion D et l'estimation de la quantité maximale d'eau retenue à la saturation M_m du composite sont effectués à partir de la courbe maîtresse présentant l'évolution de la quantité d'eau absorbée M en fonction de la racine carrée du temps (\sqrt{t}).

L'essai mécanique consiste à soumettre les échantillons à une rampe monotone en traction uniaxiale et analyser l'effet du conditionnement en humidité sur leur réponse mécanique. Le choix de l'essai de traction uniaxiale comme essai de caractérisation mécanique est justifié par le fait qu'il reste facile à mettre en œuvre pour les matériaux composites. L'essai est mené sur des éprouvettes normalisées de formes parallélépipédiques de dimensions moyennes $200 \times 30 \times 3,2 \text{ mm}^3$ selon les recommandations de la norme ASTM D3039.

Les échantillons équipés de jauges de déformation et de talons ont été soumis à un essai de traction uniaxiale en rampe monotone sur une machine de traction servohydraulique de type MST 810 (équipée de mors auto-serrants), contrôlé en vitesse de déplacement imposé constante ($V = 0,66 \text{ mm/min}$).

3. Résultats et discussion

3-1. Environnement hygrothermique

La courbe de la cinétique d'absorption d'eau (reprise en eau) des éprouvettes conditionnées en milieu vapeur (*figure 1*) précise le détail des deux lots d'éprouvettes à 60 et 96 % RH à 60°C à deux époques différentes (l'époque I qui suppose que le plateau de saturation est atteint et l'époque II qui correspond à l'étude du phénomène de vieillissement après la saturation) qui ont été testées en environnement contrôlé.

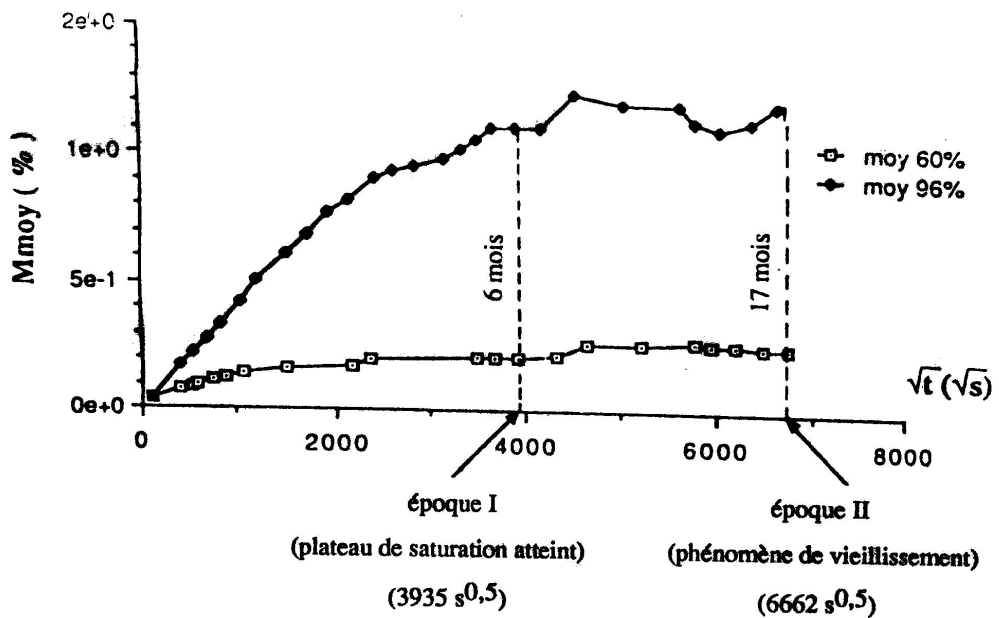


Figure 1 : Courbe de la cinétique d'absorption d'eau du matériau et définition des époques I et II d'essais

Le **Tableau 1** présente les valeurs des paramètres caractéristiques de la cinétique d'absorption d'eau (la quantité maximale d'eau retenue à la saturation M_m et le coefficient de diffusion D) obtenues par l'essai de conditionnement hygrothermique réalisé au laboratoire.

Tableau 1 : Résultats expérimentaux d'absorption d'eau (M_m et D) du composite époxyde/verre E à différents taux d'humidité relative à 60°C

Humidité relative (RH) en %	M_m en %	D en $cm^2/s (\times 10^{-8})$
60	0,170	1,200
96	1,120	0,210

Celui-ci confirme clairement les remarques principales observées :

- le coefficient de diffusion D dépend non seulement de la température mais aussi de l'humidité relative, et

- la quantité maximale d'eau retenue M_m à la saturation dépend fortement du taux d'humidité relative.

Les résultats de la cinétique d'absorption d'eau (**Tableau 2**) obtenues par Loos et Springer [8] du composite polyester/verre E (SMC-30EA) vont dans le même sens que nos valeurs expérimentales d'absorption d'eau (M_m et D). Cette comparaison nous permet de dire que les deux paramètres principaux de diffusion (M_m et D) dépendent non seulement de la température et du taux d'humidité relative mais aussi très fortement de la nature du matériau (type de résine, fibres, etc.).

Tableau 2 : Paramètres caractéristiques de la cinétique d'absorption d'eau du composite polyester/verre E à différents taux d'humidité relative à 65°C [6]

Humidité relative (RH) en %	M_m en %	D en $cm^2/s (10^{-8})$
60	0,45	23,0
100	2,75	3,80

3-2. Réponse mécanique

Le **Tableau 3** présente les résultats expérimentaux obtenus en environnement contrôlé à différents taux d'humidité relative (0, 60 et 96 % RH) à 60 °C de l'essai de traction uniaxiale réalisé dans le sens chaîne et trame.

Les valeurs obtenues des modules tangents axiaux (E_t) pour les trois conditionnements hygrothermiques effectués sont presque identiques (influence très faible de l'humidité de l'ordre de 0,4 % pour 60 % RH à 3 % pour 96 % RH pendant l'époque I et de 2 % pour 60 % RH à 4 % pour 96 % RH pendant l'époque II).

Par contre on remarque une diminution significative et marquante de l'ordre de 45 % en moyenne de la contrainte axiale et de la déformation longitudinale de rupture (σ_{rup} et ϵ_{rup}) des échantillons conditionnés à 96 % d'humidité relative pendant l'époque I et II (plateau de saturation et vieillissement).

Tableau 3 : Résultats des essais mécaniques

RH (%) à 60 °C	Condit- hygroth	E _t (GPa)	σ _{rup} (MPa)	ε _{rup} (%)
Chaîne 0 Sec	Sec	27,82	549	2,18
Chaîne 60 Humide	Epoq I	27,55	520	2,47
	Epoq II	27,35	500	2,19
Chaîne 96 Humide	Epoq I	27,01	313	1,31
	Epoq II	26,13	310	1,26
Trame 0 Sec	Sec	27,37	513	2,52
Trame 60 Humide	Epoq I	27,23	476	2,48
	Epoq II	27,05	437	2,15
Trame 96 Humide	Epoq I	26,42	293	1,34
	Epoq II	25,53	283	1,29

Les évolutions du module tangent axial en fonction de l'allongement longitudinal (**Figure 2**) pour les trois conditionnements hygrothermiques (sec, deux époques I et II) effectués sont globalement analogues pour une déformation axiale variant de 0 à 1 % (le module tangent axial passe de 27 GPa à 19 GPa, soit 30 % de diminution).

On observe également une évolution similaire fortement décroissante (fonction linéaire décroissante) du module tangent axial en fonction de la déformation longitudinale (phénomène lié à l'endommagement des échantillons).

L'équation représentant l'évolution du module tangent axial en fonction de la déformation longitudinale est :

$$E = E_0 \left(1 - \frac{\epsilon}{\epsilon_0} \right) = E_0 (1 - a \cdot \epsilon) \tag{4}$$

où :

E_0 : module initial tangent axial en GPa,

ϵ_0 : déformation longitudinale caractéristique en %,

a : coefficient angulaire homogène à $\text{GPa } \%^{-1}$ si \mathcal{E} est exprimée en %.

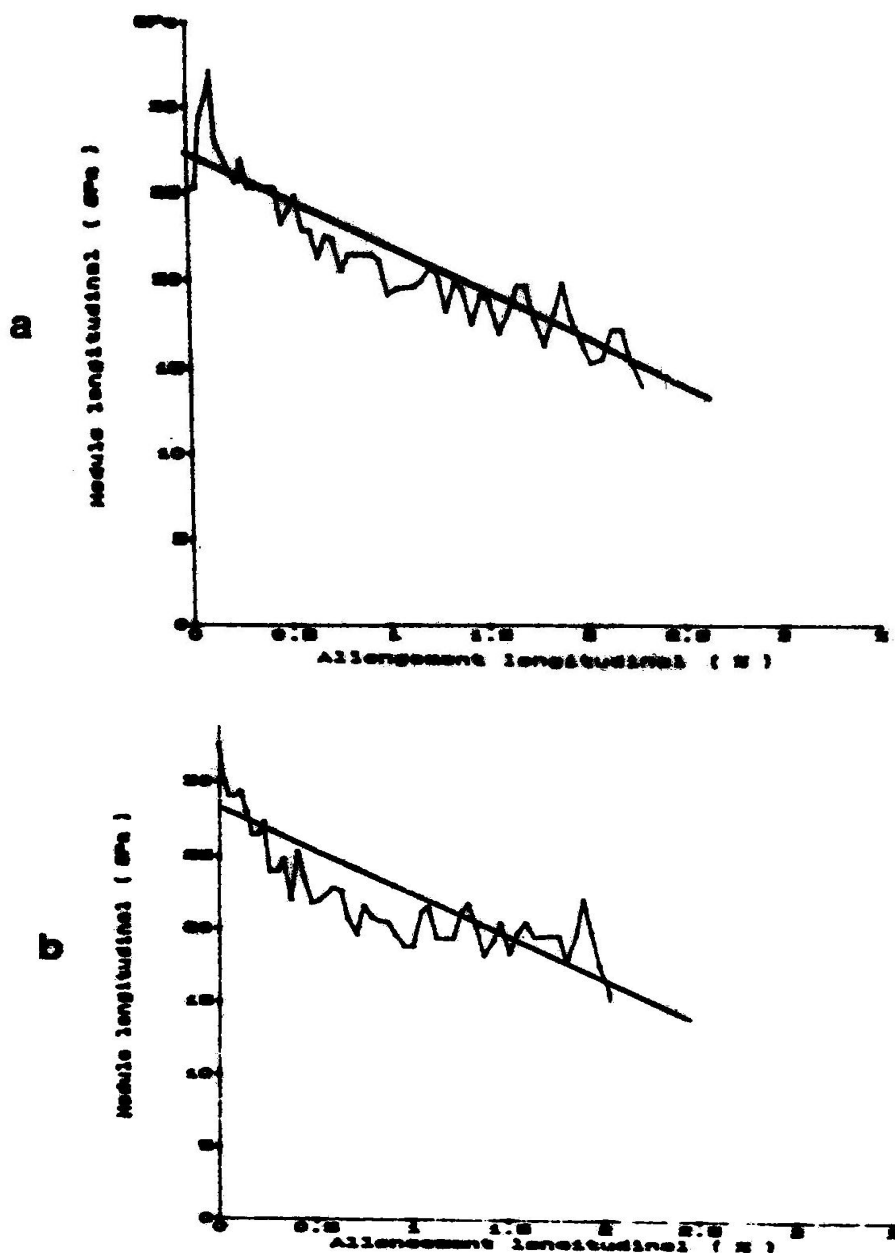


Figure 2 : Evolutions du module tangent axial en fonction de l'allongement longitudinal
 a) sens chaîne, b) sens trame.

La **Figure 3** présente les variations de la contrainte (résistance de traction) axiale de rupture en fonction de la déformation longitudinale de rupture pour le conditionnement hygrothermique (sec, aux époques I et II) réalisé dans le sens chaîne et trame.

On constate donc une décroissance significative de la contrainte axiale de rupture et de l'allongement longitudinal de rupture pour les quantités d'eau absorbées importantes (à 96 % d'humidité relative aux époques I et II du matériau testé). Ceci peut être dû à la fragilisation du composite en présence des molécules d'eau (dégradation des liaisons à l'interface renfort-matrice).

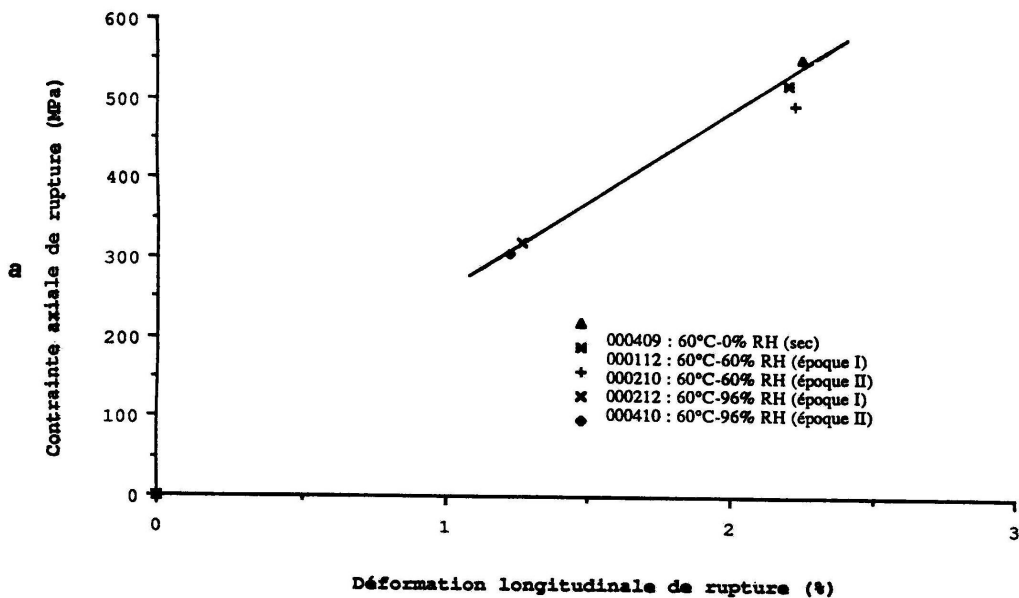
L'équation de la droite (**Figure 3**) obtenue est la suivante :

$$\sigma_{rup} = \sigma_0 + a \cdot \varepsilon_{rup} \tag{5}$$

où :

σ_0 : contrainte caractéristique en MPa,

a : paramètre caractéristique (pente de la droite en échelle linéaire).



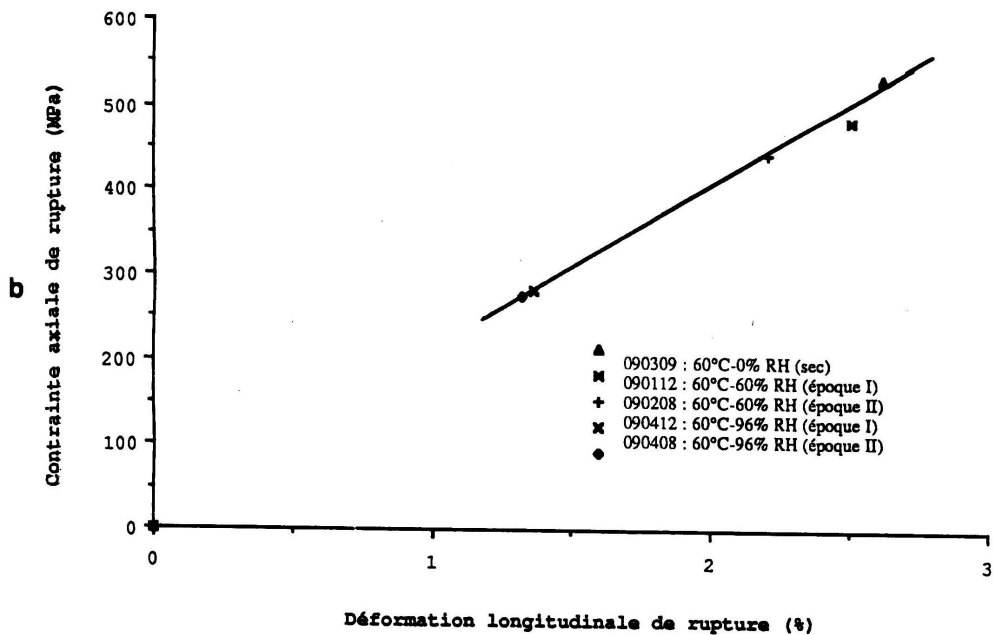


Figure 3 : Variations de la contrainte axiale de rupture en fonction de la déformation longitudinale de rupture

a) sens chaîne, b) sens trame.

4. Conclusion

Bien qu'il y ait une dispersion non négligeable des résultats expérimentaux obtenus, on peut relever que l'absorption d'eau se traduit par une diminution des caractéristiques mécaniques ultimes, cette chute est importante pour les échantillons conditionnés à 60°C-96 % d'humidité relative.

Une reprise en eau entraîne nettement une réduction de la résistance, les échantillons secs étant toujours les plus résistants et les échantillons conditionnés à 96 % RH étant toujours les plus fragiles.

Références

- [1] - F. FLLYIN and C. ROHRBACHER, *"The influence of aqueous environment, temperature and cyclic loading on glass-fiber/epoxy composite laminates"*, Journal of Reinforced Plastics and Composites, (2003) 615-635
- [2] - Y. SURREL and A. VAUTRIN, *"On a modeling of the plastic response of FRP under monotonic loading"*, Journal of Composite Materials, (1999) 232-250
- [3] - P. VADDADI, T. NAKAMURA and R.P. SINGH, *"Inverse analysis for transient moisture diffusion through fiber-reinforced composites"*, Acta Materialia, (2003) 177-193
- [4] - S. SRIRAHY, A. REVATHI and R.M.V.C.K. RAO, *"Hygrothermal effects on Rt-Cured glass-epoxy composites in immersion environments. Part A: Moisture absorption characteristics"*, Journal of Reinforced Plastics and Composites, (2002) 983-991
- [5] - I. VERPOEST and G.S. SPRINGER, *"Moisture absorption characteristics of aramid epoxy composites"*, Journal of Reinforced Plastics and Composites, (1998) 2-32
- [6] - J. ZHOU and Y. ZHONG, *"Effects of hygrothermal cycling on properties of glass vinyl ester composite"*, Journal of Reinforced Plastics and Composites, (2004) 483-490
- [7] - Y. HSIEN-LIANG and Y. HSIEN-YANG, *"The effect of lamina material properties on hygrothermal expansion coefficients of angle-ply laminates"*, Journal of Reinforced Plastics and Composites, (2004) 1673-1681
- [8] - A.C. LOOS and G.S. SPRINGER, *"Moisture absorption of polyester glass composites"*, Composite Materials, (1988) 51-62