

## CFA/VISHNO 2016

**Anisotropie Apparente d'un Adhésif Induite par des Interphases Imparfaites et Évaluation des Raideurs d'Interfaces**

E. Siryabe<sup>a</sup>, M. Renier<sup>a</sup>, A. Maziane<sup>a</sup>, J. Galy<sup>b</sup> et M. Castaings<sup>a</sup>

<sup>a</sup>Institut de Mécanique et d'ingénierie, I2M - UMR 5295 CNRS-Université Bordeaux,  
351 cours de la libération-Bat A4-RDC, 33405 Talence, France

<sup>b</sup>IMP, 17 avenue Jean Capelle, 69621 Villeurbanne, France  
emmanuel.siryabe@u-bordeaux.fr



LE MANS

Cette étude a pour objectif de caractériser, par une méthode ultrasonore, des propriétés mécaniques d'assemblages collés, qui soient représentatives des états adhésif et cohésif. Six assemblages sont réalisés avec différents niveaux d'adhésion et de cohésion à partir de substrats en aluminium et d'un adhésif à base d'époxy. La mesure du champ acoustique transmis est effectuée pour plusieurs angles d'incidence et dans une gamme de fréquence comprise entre 0.5 et 1.5 MHz. Un problème inverse est ensuite résolu afin de déduire les modules d'élasticité ( $C_{ij}$ ) de la colle et les raideurs d'interfaces correspondant à chaque état d'adhésion. Pour les assemblages présentant un faible ou très faible niveau d'adhésion, une légère ou forte anisotropie apparente est observée *via* les  $C_{ij}$  de la couche adhésive, alors que cette colle ne peut en aucun cas être anisotrope. Ce résultat est donc révélateur de l'état dégradé des interphases. En restituant à cet adhésif une rigidité isotrope vraisemblable, il est alors possible d'évaluer les raideurs ( $k_L$  et  $k_T$ ) des interphases correspondant aux différents niveaux de leur dégradation. Les potentialités et les limites de la méthode proposée sont aussi discutées.

## 1 Introduction

L'emploi d'assemblages collés dans l'industrie nécessite le développement de nouvelles méthodes d'évaluation non destructive permettant de garantir leur fiabilité. Un joint adhésif peut être divisé en deux zones sensibles et susceptibles d'être à l'origine d'une rupture mécanique : le corps même de la colle (zone cohésive) ou l'interphase colle-substrat (zone d'adhésion). Les défauts dits « cohésifs » peuvent provenir, par exemple, d'une réticulation imparfaite de l'adhésif. Les défauts dits « adhésifs » peuvent résulter d'un mauvais traitement des surfaces des substrats. D'un point de vue industriel, il est important de pouvoir distinguer de façon non-destructive ces deux types de défauts.

Des méthodes ultrasonores pour l'évaluation des assemblages collés ont été proposées [1]-[2]. Baltazar et al [1,3] ont mis au point une procédure d'évaluation non destructive qui permet d'estimer les valeurs des raideurs d'interfaces rugueuses entre deux couches en contact à partir des données ultrasonores mesurées en incidence normale et oblique.

Ils ont mis au point une procédure de spectroscopie ultrasonore qui permet de déterminer un ensemble complet de paramètres physiques et géométriques (coefficient de Lamé, densité, atténuation des ondes dans la colle) ainsi que les raideurs d'interfaces d'une couche de colle située entre deux substrats en aluminium. Ces raideurs d'interfaces et les propriétés de l'adhésif peuvent être évaluées simultanément à partir de la mesure des spectres des signaux réfléchis pour deux angles d'incidence. Les mesures sont réalisées sur une gamme de fréquence suffisamment large (4-20 MHz) de façon à observer plusieurs minima sur les spectres réfléchis. En dégradant les interphases sont dégradés en immergeant les assemblages réalisés dans une solution d'eau saturée de NaCl à 68 °C. Ils ont observé que seul le coefficient de réflexion en incidence oblique était sensible à la dégradation des interphases induite par la pénétration de l'humidité. Ainsi grâce à une procédure d'inversion, ils sont parvenus à estimer la valeur de la raideur tangentielle ( $k_T$ ) pour différents états de dégradations de l'assemblage.

Des mesures similaires, ont été réalisées sur des assemblages collés de substrats en composite par Kumar et al [4]. Différents degrés de dégradation de l'adhésif ont été obtenus en mélangeant du polyvinyl alcohol (PVA) à l'adhésif durant la conception du joint. Ils observent que la dégradation dans l'adhésif cause des changements sur les spectres de réflexion du joint : l'amplitude du coefficient de réflexion des ondes transverses augmente avec le taux de dégradation du joint et un décalage des minima de réflexion vers les basses fréquences. Ce décalage

fréquentiel augmente avec le taux de dégradation de l'interface. Ensuite, les échantillons ont été soumis à des essais mécaniques de cisaillement afin de déterminer leur contrainte à la rupture. Une corrélation entre essais mécaniques et mesures ultrasonores a été effectuée et ils constatent que la contrainte à la rupture décroît lorsque la dégradation inter-faciale augmente. Comme le coefficient de réflexion en incidence normale n'est pas sensible aux dégradations de l'adhésif, seule la raideur tangentielle  $k_T$  est estimée.

L'objectif du présent travail est d'étudier à la fois numériquement et expérimentalement l'influence des conditions d'interfaces sur l'évaluation des modules d'élasticité de la couche d'adhésif, lorsque ces modules d'élasticité sont évalués en supposant des conditions d'interfaces parfaites. La méthode utilisée est basée sur les mesures du coefficient de transmission d'ondes planes ultrasonores [5]. L'isotropie de la couche adhésive n'est pas *a priori* supposée. Les modules d'élasticité sont estimés à partir des mesures des champs acoustiques transmises à travers l'assemblage pour plusieurs angles d'incidence ( $\theta$ ). Nous montrons que la présence d'interphases dégradées se traduit par une anisotropie apparente, qui permet sous certaines conditions, de différencier les défauts de cohésion de ceux d'adhésion. D'autre part, si les propriétés élastiques de la couche adhésive sont connues, nous montrons que la caractérisation par ultrasons des propriétés mécaniques des interphases est possible.

## 2 Principe de mesure des modules d'élasticité

Le schéma du dispositif utilisé pour la mesure des modules d'élasticité est présenté à la Figure 1. Une onde quasi plane incidente rayonnée par un transducteur ( $E$ ) de grande dimension dans une cuve remplie d'eau, est transmise à travers un assemblage collé de type tri-couche avec un angle d'incidence ( $\theta$ ), puis reçue par un second transducteur ( $R$ ). Le spectre  $A_T(\theta, f)$  du champ transmis est mesuré pour différents angles d'incidence. Afin d'estimer les modules d'élasticité de l'adhésif en supposant que les propriétés élastiques des substrats connues, un processus d'optimisation basé sur le coefficient de transmission théorique des ondes planes est effectué [5].

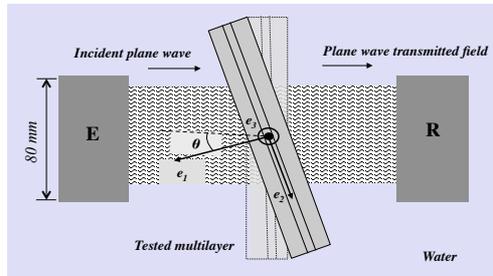


Figure 1: Principe de mesure

Pour un plan d'incidence donné ( $P_{12}$  dans la présente étude) 4 modules ( $C_{11}$ ,  $C_{22}$ ,  $C_{12}$  et  $C_{66}$ ) peuvent être déduits. Un calcul de l'erreur est effectué en utilisant la matrice d'insensibilité [6].

### 3 Assemblages étudiés

Six assemblages de type tri-couche ont été réalisés. Les substrats sont des plaques d'aluminium (2 mm d'épaisseur), milieu isotrope, qui peut être considéré comme parfaitement élastique pour les fréquences ultrasonores mises en jeu pour cette étude. 3 de ces assemblages sont réalisés avec un adhésif époxy durci à 100% (épaisseur 1 mm), tandis que pour les 3 autres l'adhésif est réticulé à 80% seulement. Les propriétés viscoélastiques de chacun des composants des assemblages ont d'abord été mesurées sur des plaques d'époxy ou d'Aluminium en utilisant la méthode du temps de vol. Les modules mesurés sont reportés dans le *Tableau 1*. Comme attendu, la résine époxy et de l'aluminium se révèlent être isotropes. Les valeurs des modules de l'époxy partiellement réticulé sont légèrement plus faibles que celles obtenues pour une réticulation totale.

Tableau 1 : Modules d'élasticité des composants des assemblages mesurés sur des échantillons individuels. Les parties réelles sont estimées avec une incertitude de  $\pm 1\%$ . Pour l'époxy, les parties imaginaires sont mesurées égales à 3% des parties réelles.

	$\rho$ ( $\text{g/cm}^3$ )	$h$ (mm)	$C_{11}$ (GPa)	$C_{22}$ (GPa)	$C_{66}$ (GPa)	$C_{12}$ (GPa)
<i>Al</i>	2.76	2	107	108	26	55
<i>Ep</i> 100%	1.16	2.93	7.77	7.75	1.71	4.35
<i>Ep</i> 80%	1.16	2.96	7.56	7.52	1.53	4.25

Pour chaque niveau de réticulation (totale ou partielle), afin de faire varier la qualité d'adhésion, différents assemblages sont réalisés avec trois différents traitements de surfaces appliqués aux substrats: (1) dégraissage, sablage et application du silane (conduisant *a priori* à un échantillon de référence avec des propriétés d'adhésion nominales, noté "DSSI"), (2) dégraissage et sablage (adhésion intermédiaire, "DS") et (3) dégraissage uniquement (adhésion faible, "D").

### 4 Etude numérique de l'influence des propriétés d'interphases sur la détermination des modules d'élasticité d'un adhésif entre deux substrats

Le coefficient de transmission à travers l'assemblage collé est calculé en utilisant les matrices d'impédances [7]. L'assemblage collé est modélisé comme une structure à 5 couches : 2 substrats en aluminium, 1 couche d'époxy dont les  $C_{ij}$  sont énumérés dans le *Tableau 1* et 2 interphases dont le comportement mécanique est modélisé par une couche isotrope mince ( $h^{int} = 1 \mu\text{m}$ ), avec des modules d'élasticité défini par  $C_{ij}^{int} = \alpha \cdot C_{ij}^{epoxy}$  où  $\alpha$  est un paramètre introduit afin de modéliser la dégradation inter-faciale (pour laquelle  $\alpha$  sera alors inférieur à 1). Dans ce qui suit, pour un état de dégradation, nous supposons que le paramètre  $\alpha$  est le même pour les deux interphases. Pour des interphases nominales les valeurs des modules d'élasticité inter-faciale ( $C_{11}^{int}$ ,  $C_{66}^{int}$ ) sont égales aux modules d'élasticité de la couche adhésive. A partir d'un spectre reproduisant celui d'une onde incidente, la simulation de la transmission des ondes planes à travers l'assemblage est réalisée pour différents  $\theta$ . Les champs acoustiques transmis ainsi calculés sont alors considérés comme des résultats expérimentaux pour le processus d'optimisation visant à mesurer les modules élastiques de l'adhésif. Puisque l'optimisation est effectuée en supposant que les interfaces sont parfaites, les modules mesurés sont les modules apparents, notés  $C_{ij}^{app}$  de la couche adhésive.

L'évolution des modules d'élasticité apparents de la colle époxy située entre deux substrats, en fonction du paramètre  $\alpha$  est présentée sur la *Figure 2*. On observe une diminution de l'ensemble des modules d'élasticité apparente de la colle époxy avec une anisotropie apparente (caractérisée par  $C_{11}^{app} < C_{22}^{app}$  et  $C_{12}^{app} \neq C_{11}^{app} - 2 C_{66}^{app}$ ) d'autant plus prononcée que les interfaces sont dégradées ( $\alpha \approx 10^{-2}$ ). Cette anisotropie apparente pourrait donc constituer un indicateur de la présence d'une dégradation des propriétés mécaniques des interphases.

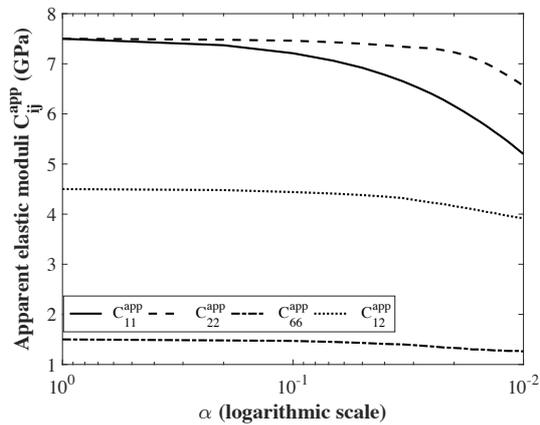


Figure 2: Evolution des modules d'élasticité apparents optimisés d'un adhésif époxy situé entre deux substrats en fonction de l'état de dégradation des interphases

## 5 Validation expérimentale

Les mesures sont effectuées pour les six assemblages décrits dans la session 3. Les spectres transmis (dans la gamme de fréquences de 0,5 à 1,5 MHz) à travers chaque assemblage sont mesurés pour différents  $\theta$  en utilisant le dispositif présenté à la Figure 1. Les modules d'élasticité apparents estimés pour les adhésifs époxy réticulés à 80% sont présentés dans la *Tableau 2*. Les résultats confirment ceux obtenus par simulations: les modules d'élasticité apparents diminuent lorsque les interphases sont légèrement ou sévèrement dégradées, avec anisotropie apparente ( $C_{11}^{app} < C_{22}^{app}$  et  $C_{12}^{app} \neq C_{11}^{app} - 2 C_{66}^{app}$ ). Ainsi, le traitement de surface appliqué a une influence notable sur la détermination des modules d'élasticité de l'adhésif. On remarque également que lorsque le joint possède des interphases nominales, les modules apparents correspondent à ceux obtenus sur les plaques adhésives individuelles. Les mêmes résultats sont obtenus pour un adhésif époxy 100% durci. Si les propriétés inter-faciales sont nominales, une faiblesse dans les propriétés de cohésion (réticulation incomplète) se manifeste par une diminution des modules d'élasticité apparente sans observer une anisotropie apparente.

*Tableau 2*: Présentation des  $C_{ij}^{app}$  mesurés sur les différents assemblages réalisés avec des adhésifs époxy 80% réticulés (TS: Traitement de Surfaces h: épaisseurs). Les erreurs sont évaluées à partir de la matrice d'insensibilité.

TS	h (mm)	$C_{11}$ (GPa)	$C_{22}$ (GPa)	$C_{66}$ (GPa)	$C_{12}$ (GPa)
<b>DSSi80</b>	1.09	7.42	7.05	1.67	4.35
	±	±	±	±	±
	0.01	0.04	0.28	0.08	0.13
<b>DS80</b>	0.78	6.23	6.87	1.41	4.10
	±	±	±	±	±
	0.01	0.07	0.50	0.19	0.11
<b>D80</b>	0.7	5.51	6.79	1.26	3.92
	±	±	±	±	±
	0.01	0.05	0.61	0.11	0.20

## 6 Caractérisation des propriétés d'interphases

Après avoir mis en évidence qu'une détection d'un défaut d'adhésion est possible, nous nous intéressons maintenant à la caractérisation des propriétés mécaniques des interphases, qui consiste en l'évaluation des raideurs inter-faciales ( $k_L = C_{11}^{int}/h^{int}$  et  $k_T = C_{66}^{int}/h^{int}$ ). Les raideurs d'interfaces sont estimées en utilisant un algorithme de minimisation basé sur la méthode des moindres des carrés [8], en supposant que les  $C_{ij}$  de l'adhésif correspondent aux modules apparents mesurés sur l'échantillon de référence DSSi (*Tableau 2*). La raideur longitudinale  $k_L$  est estimée à partir du coefficient de transmission en incidence normale ( $\theta = 0^\circ$ ) et la raideur tangentielle  $k_T$  est obtenue pour  $\theta = 21^\circ$ . Pour les assemblages au sein desquels l'adhésif est partiellement réticulé, la *Tableau 3* présente les valeurs des raideurs d'interfaces estimées. Des valeurs des raideurs d'interfaces relativement faibles sont obtenues lorsque les interphases sont dégradées. En outre, la raideur  $k_T$  semble diminuer plus que  $k_L$ . En fin, on observe que, que la colle époxy soit totalement (100%) ou partiellement réticulée (80%), les mêmes traitements de surfaces des substrats conduisent aux mêmes valeurs des raideurs d'interfaces (*Tableau 3*).

*Tableau 3*: Raideurs inter-faciales estimées pour chacun des 6 assemblages ( $1\text{PPa} = 10^{15}\text{ Pa}$ ).

Raideurs	DSSi 100	DS 100	D 100	DSSi 80	DS 80	D 80
$k_L$ (PPa/m)	2.08	0.25	0.10	2.09	0.23	0.13
$k_T$ (PPa/m)	1.00	0.10	0.02	1.00	0.10	0.02

## 7 Comparaison avec les essais mécanique

Des essais de cisaillement (NF EN 2243-1) réalisés sur de joints à simple recouvrement possédant les mêmes adhésifs (époxy 100% et 80% réticulés) et dont les surfaces des substrats ont subi les mêmes traitements que précédemment (DSSi, DS et D) ont été publiées récemment par Galy et al [9]. Les valeurs des contraintes moyennes à la rupture pour les assemblages au sein desquels l'adhésif est 100% réticulé et les écarts-types correspondants sont présentés dans le *Tableau 4*. De la même manière que les valeurs des raideurs inter-faciales, les valeurs de la contrainte à la rupture diminuent avec le niveau de dégradation des interphases. Par exemple, lorsque les substrats sont uniquement dégraissés (échantillons D), une faible valeur de la contrainte à la rupture est obtenue et des raideurs d'interfaces ( $k_L$  et  $k_T$ ) les plus basses sont également estimées. On observe également que le sablage des substrats améliore la résistance mécanique et conduit à des valeurs des raideurs  $k_L$  et  $k_T$  élevés.

Tableau 4 : Valeurs des moyennes des contraintes à la rupture et écart-types correspondants mesurés sur des assemblages avec un adhésif 100% réticulé.

<i>Moyenne des contraintes à la rupture</i>	<i>DSSi100</i>	<i>DS100</i>	<i>D100</i>
$\tau$ (MPa)	14.32 ± 1.13	13.16 ± 1.36	7.76 ± 0.66

## 8 Conclusion

La mesure des modules d'élasticité apparents d'une couche adhésive, réalisée sans faire d'hypothèse d'isotropie peut fournir une indication sur la faiblesse des interphases entre les substrats et l'adhésif. En outre, si les modules d'élasticité de la couche adhésive sont connus, une évaluation des raideurs d'interfaces est possible. Les résultats obtenus montrent que les raideurs d'interfaces (longitudinale et tangentielle) sont sensibles au traitement de surface des substrats. La comparaison avec des essais mécaniques réalisés sur des éprouvettes dont les substrats avaient été traités de manière identique permet d'affirmer qu'il est possible de faire la distinction entre une bonne ou mauvaise adhésion. En perspective de ce travail, l'étude des assemblages collés de matériaux composites est envisagée. Parallèlement, il est prévu d'étendre la méthode aux cas de faisceaux ultrasonores de taille plus réduite.

## Remerciements

Cette étude fait partie du projet ANR-ISABEAU coordonné par Joseph Moysan du LMA (UPR 7051).

## Références

- [1] A. Baltazar, L. Wang, B. Xie, and S.I. Rokhlin, Inverse ultrasonic determination of imperfect interfaces and bulk properties of a layer between two solids, *The Journal of the Acoustical Society of America* 114(3), 1424–1434 (2003).
- [2] M. Castaings, B. Hosten, and D. Francois, Corrélation entre contrôle destructif et non destructif du collage entre une plaque composite et une structure béton. *Acta Acoustica united with Acoustica* 90, 712–719 (2004).
- [3] A. Baltazar, S. I. Rokhlin, and C. Pecorari, On the relation between ultrasonic micromechanic properties of contacting rough surfaces, *J. Mech. Phys. Solids* 50, 1397–1416 (2002).
- [4] R.L. Vijaya Kumar, M.R. Bhat, C.R.L. Murthy, Some studies on evaluation of degradation in composite adhesive joints using ultrasonic techniques, *Ultrasonics* 53 (6), 1150–1162 (2013).
- [5] M. Castaings, B. Hosten, and T. Kundu, Inversion of ultrasonic, plane-wave transmission data in composite plates to infer viscoelastic material properties, *NDT & E International* 33(6), 377-392 (2000).
- [6] S. Baudouin, and B. Hosten, Comparison between prediction and measurement of viscoelastic moduli in composite materials versus temperature using ultrasonic immersion technique with oil. *The Journal of the Acoustical Society of America* 102(6), 3450-3457 (1997).
- [7] B. Collet, Recursive surface impedance matrix methods for ultrasonic wave propagation in piezoelectric multilayers, *Ultrasonics* 42, 189-197 (2004).
- [8] A.I. Lavrentyev and S.I. Rokhlin, Determination of elastic moduli, density, attenuation, and thickness of a layer using ultrasonic spectroscopy at two angles. *The Journal of the Acoustical Society of America* 102(6), 3467-3477 (1997).
- [9] J. Galy, N. Ylla, J. Moysan and A. El Mahi, Evaluation of the level of adhesion in epoxy-aluminum joints combining mechanical and NDT measurements, *Conference paper, Thermosets*, (2015).