

# Analyse de l'effet du vieillissement en milieu humide sur le comportement mécanique d'adhésifs en assemblages sous sollicitations multi-axiales

**N. ARNAUD<sup>a</sup>, R. CREAC'HCADDEC<sup>a</sup>, J.Y. COGNARD<sup>a</sup>, P. DAVIES<sup>b</sup>**

*a. LBMS, ENSTA Bretagne, 2 rue F. Verny, 29806 Brest Cedex 9, France.*

*b. IFREMER, Centre de Brest, Materials & Structures Group, 29280 Plouzané, France.*

## Résumé :

*La technique du collage offre de nombreux avantages par rapport aux méthodes traditionnelles d'assemblages mécaniques et de soudage, et est utilisée dans de nombreuses applications où le poids est un facteur critique. Les adhésifs sont aussi employés pour de nombreuses applications en environnements humides, qui peuvent être très sévères, exposant l'adhésif à des changements réversibles ou permanents [1]. Cependant, dans le but de proposer des solutions fiables, il est essentiel de pouvoir garantir leurs propriétés à long terme.*

*Dans le but de développer des modèles numériques représentatifs, des résultats expérimentaux pour différents chargements multi-axiaux sont nécessaires. Pour cela, un dispositif Arcan modifié a été précédemment développé [2] pour analyser le comportement d'adhésifs en assemblages sous des chargements de traction/compression-cisaillement à l'aide d'un unique spécimen collé, conçu pour limiter les concentrations de contraintes. En outre, il a été montré que ce type d'essai est plus adapté que ceux de type simple-recouvrement pour analyser l'influence du vieillissement, car un état de contrainte bien plus uniforme est obtenu [3].*

*Le but de cette étude est d'analyser avec précision le comportement d'un adhésif en assemblage, à partir de l'essai Arcan modifié. En pratique, étant donné que la concentration d'eau dans l'adhésif peut avoir une grande influence sur ses propriétés mécaniques, l'analyse des résultats expérimentaux après une durée donnée en environnement humide nécessite de prendre en compte le gradient de comportement mécanique de l'adhésif.*

*La procédure proposée, basée sur l'utilisation de simulations éléments-finis et de techniques d'identification inverse, tient compte de l'état de contrainte non-uniforme dans l'adhésif, sous comportement élastique, supposant un modèle connu pour la diffusion d'eau. Le but est d'identifier les paramètres matériaux d'un modèle constitutif de plasticité non-associé et dépendant de la pression hydrostatique, dans le but de prédire précisément le comportement 3D d'un adhésif ductile en assemblage, en considérant l'effet de la concentration d'eau.*

## Abstract :

*Adhesive bonding offers many advantages over traditional mechanical assembly and welding, and is used in many applications where weight is critical. Adhesives are also used in many applications under humid environment, which can be really severe, resulting in reversible or permanent changes to the adhesive [1] (plasticization, swelling...). However, in order to propose reliable solutions, it is essential to be able to guarantee long term properties.*

*In order to develop representative numerical models, experimental results under various multi-axial loads are required. In a previous study, a modified Arcan test has been developed [2] to analyse the behaviour of an adhesive in an assembly under tensile/compression-shear loads using a unique bonded joint designed to limit stress concentrations. Moreover, it has been shown that such a test is more suited to analyse the influence of aging effects, with respect to single-lap type joints as a much more uniform initial stress state is*

obtained [3].

*The aim of this study is to precisely analyse the behaviour of an adhesive, starting from modified Arcan tests. In fact, as the water concentration in the adhesive can have a great influence on the mechanical properties of the adhesive, the analysis of experimental results after a given aging time in humid environment requires taking into account the gradient of mechanical behaviour of the adhesive.*

*The proposed procedure, based on the use of finite element simulations and inverse identification techniques, takes into account the initial non-uniform stress state in the adhesive, under elastic behaviour, assuming a known model for the water diffusion. The aim is to identify the material parameters of a non-associated pressure-dependent plastic type constitutive model in order to accurately predict the 3D behaviour of a ductile adhesive in an assembly with respect to the moisture concentration.*

## **Mots clefs:**

**Adhésifs, Durabilité, Vieillessement, Couplage, Comportement élasto-plastique 3D, Essai Arcan**

## **1 Introduction**

L'analyse du vieillissement d'un assemblage collé présente deux aspects. Premièrement, la caractérisation du comportement mécanique d'un assemblage collé. Cela passe par le choix d'un type d'essai permettant d'étudier proprement la réponse d'un adhésif et donnant suffisamment d'informations pour caractériser le comportement de l'adhésif. Dans le cas de l'étude, un essai de type Arcan modifié a été utilisé, ce qui a ensuite permis de déterminer, par identification inverse, les paramètres d'un modèle élasto-plastique 3D de type Mahnken-Schlimmer. Deuxièmement, il faut y intégrer l'effet du vieillissement, donc de la concentration d'eau dans le modèle identifié. La démarche classique pour cela est d'identifier les lois de diffusion d'eau par analyse gravimétrique, puis de réaliser des essais de traction sur éprouvettes massives pour obtenir l'évolution des paramètres élastiques de l'adhésif au cours de vieillissement. Pour finir, le passage au vieillissement d'éprouvettes Arcan permet d'obtenir la réponse mécanique d'une éprouvette vieillie. En couplant ces résultats à des simulations éléments-finis, il est possible, par identification inverse globale, d'obtenir les paramètres du modèle dépendants de la concentration.

## **2 Caractérisation du comportement mécanique d'un assemblage collé**

Il est désormais reconnu [4] que la modélisation du comportement des adhésifs nécessite de prendre en compte la dépendance à la pression hydrostatique et d'utiliser des modèles élasto-plastiques 3D avec des lois d'évolution non-associées. Pour identifier ce comportement, une large base de données expérimentales sous différentes directions de sollicitations est nécessaire. Pour ce faire, un montage Arcan modifié est utilisé dans cette étude, ce qui permet d'identifier les paramètres d'un modèle de comportement.

### **2.1 Essai Arcan**

L'originalité du montage Arcan est de permettre de réaliser des sollicitations multi-axiales avec une seule géométrie d'éprouvette collée : traction, cisaillement, traction-cisaillement, compression-cisaillement, comme le montre la figure 1. (a). Le design des éprouvettes (figure 1. (b)) a été étudié pour limiter fortement les effets de bords caractéristiques des assemblages collés grâce à des becs et pour garantir une faible dispersion des résultats expérimentaux. La figure 1. (c) présente la distribution non uniforme des contraintes dans le plan moyen du joint de colle. Elle met également en évidence la réduction des effets de bords aux extrémités du joint de colle. La non-uniformité des contraintes dans l'adhésif obligera par la suite à utiliser une technique d'identification inverse pour déterminer des lois de comportement. Un dispositif de corrélation 3D d'images permet une mesure des champs de déformations et ainsi de prendre en compte précisément la déformation des substrats lors de la mesure.

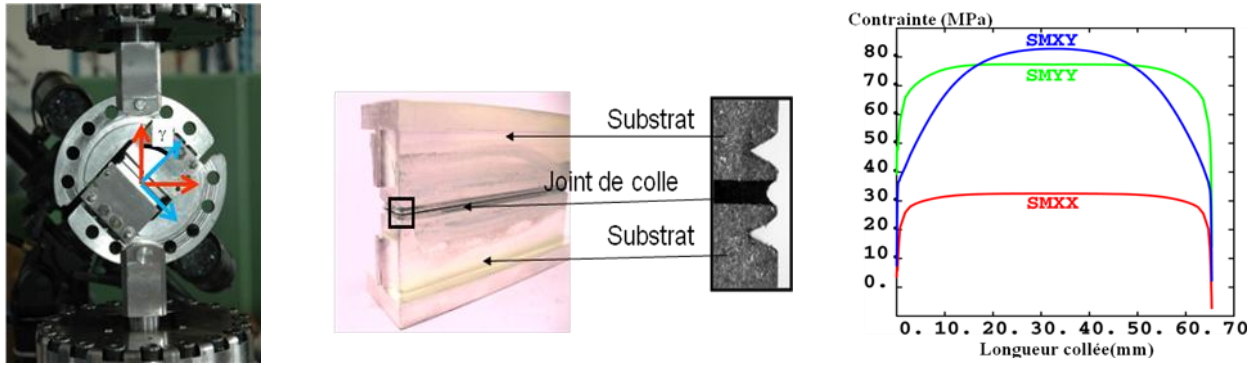


FIG. 1 - (a) Montage Arcan modifié, (b) Design des éprouvettes avec becs, (c) Répartition des contraintes dans le plan moyen du joint collé

### 2.2 Modèle élasto-plastique 3D

Récemment, Jousset et al. [5] puis Maurice et al. [4] ont montré que le modèle de Mahnken-Schlimmer est très efficace pour décrire le comportement des adhésifs structuraux. Ce modèle de plasticité non-associée tient compte de la dépendance des adhésifs à la pression hydrostatique et est résumé par les équations (1) à (4) qui représentent respectivement la fonction seuil, la fonction d'écoulement, l'écrouissage et la déformation équivalente.

$$F_0^{MS} = \sqrt{\sigma_{VM}^2 + a_1 Y_0 p + a_2 p^2} - Y_0 \tag{1}$$

$$G^{MS} = \sqrt{\sigma_{VM}^2 + a_1^* Y_0 p + a_2^* p^2} \tag{2}$$

$$Y = Y_0 + q(1 - e^{-be_v}) + He_v \tag{3}$$

$$\dot{e}_v Y_0 = \underline{\underline{\sigma}} : \underline{\underline{\dot{\epsilon}}}^{pl} \tag{4}$$

Avec  $\sigma_{VM}$  la contrainte équivalente de Von Mises,  $p$  la contrainte hydrostatique et  $a_1$ ,  $a_2$ ,  $Y_0$ ,  $q$ ,  $b$ ,  $H$ ,  $a_1^*$ ,  $a_2^*$  les huit paramètres du modèle à identifier. Le nombre conséquent de paramètres à identifier et l'état non-uniforme des contraintes dans un joint collé d'éprouvette Arcan, rendent nécessaire le recours à une stratégie d'identification inverse à partir de résultats d'essais Arcan. La surface seuil identifiée se trouve en figure 2. (a) et la figure 2. (b) montre la très bonne corrélation entre les essais expérimentaux Arcan et les résultats de l'identification inverse.

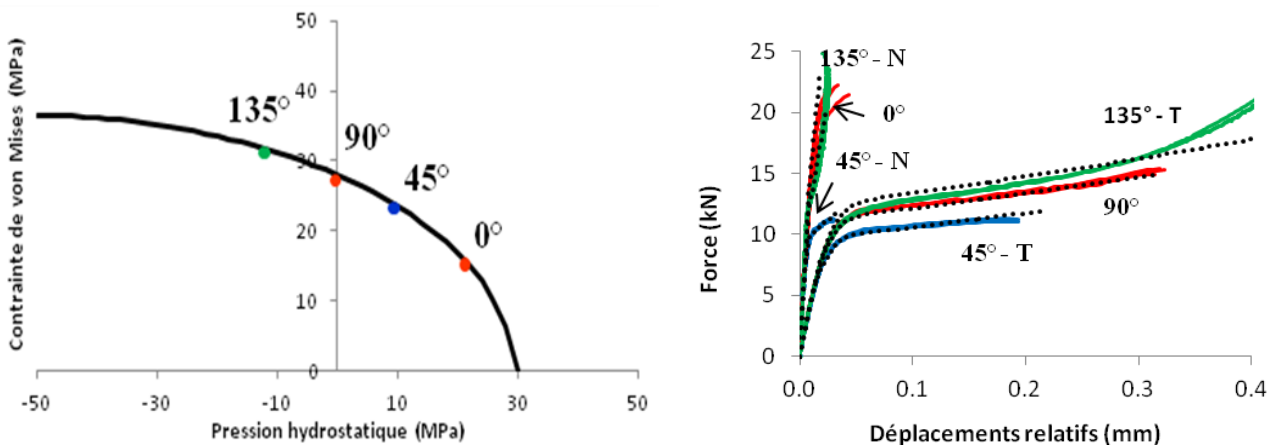


FIG. 2 - Résultats de l'identification inverse : (a) Surface seuil identifiée, (b) Comparaison entre les résultats expérimentaux (traits pleins) et les résultats issus de l'identification inverse (pointillés), dans la direction tangentielle (-T) et dans la direction normale (-N)

### 3 Vieillessement en milieu humide

L'objectif de l'étude est d'intégrer l'effet du vieillissement en milieu humide dans le modèle de comportement identifié sur un adhésif non vieilli. Pour cela, la démarche classique est, dans un premier temps, l'identification des lois de diffusion d'eau dans l'adhésif. Il est ainsi possible de planifier un vieillissement accéléré à l'aide de simulations numériques. L'étape suivante est la détermination de l'évolution des paramètres élastiques avec le temps de vieillissement (et donc avec la concentration) sur des éprouvettes de traction massiques. L'essai Arcan modifié sur des éprouvettes vieilles à des temps judicieux va permettre de suivre l'évolution de la réponse de l'assemblage au cours du temps. En couplant ces résultats expérimentaux à des simulations éléments-finis, il sera possible d'obtenir, via une identification inverse globale, l'évolution des paramètres du modèle avec la concentration d'eau.

#### 3.1 Identification des lois de diffusion

Connaitre les cinétiques de diffusion de l'eau dans l'adhésif permet de sélectionner un vieillissement accéléré pertinent. L'adhésif utilisé est une colle Structil Hysol, de référence EA9309.3NA, ayant subi un cycle de cuisson de 24h à 25°C suivi d'une post-cuisson de 1h à 80°C. Il est intéressant pour la suite de noter que cette cuisson ne garantit pas une totale réticulation de l'adhésif.

##### 3.1.1 Suivi gravimétrique

La démarche classique pour déterminer les lois de diffusion est le suivi gravimétrique qui consiste à peser à intervalles réguliers des éprouvettes massiques de colle pour connaître l'évolution de la masse au cours du temps. Il est réalisé sur des carrés massiques de dimension 50\*50 mm<sup>2</sup> et d'épaisseur 0.3 et 1 mm pour des températures de vieillissement en eau de mer de 25°C et 40°C. La température de transition vitreuse  $T_g$  de l'adhésif se situant vers 60°C, la limite de température de vieillissement fixée est de 40°C, ceci pour s'assurer que l'adhésif ne passera pas au dessus de sa  $T_g$  au cours du vieillissement. En effet, on observe dans la littérature [3] une chute de la  $T_g$  au cours du vieillissement. La figure 3. présente les courbes du suivi pour les carrés d'épaisseur 1 mm. Ces courbes sont caractéristiques d'une diffusion de type Fickienne, pour laquelle il est possible d'extraire le coefficient de diffusion qui sera utilisé par la suite pour simuler la diffusion.

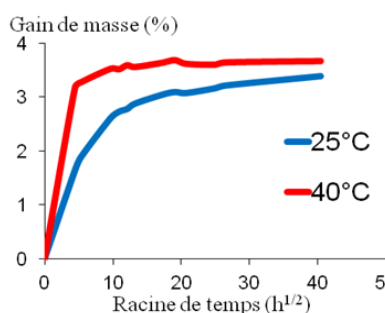


FIG. 3 - Suivi gravimétrique sur des carrés massiques d'épaisseur 1 mm

##### 3.1.2 Modélisation de la diffusion

Grace au coefficient de diffusion identifié, il est possible de simuler par éléments-finis la diffusion d'eau dans une éprouvette Arcan (figure 4. (a)). Cela permet dans un premier temps d'identifier des temps de sortie pertinents pour nos éprouvettes vieilles et dans un second temps, d'obtenir les profils de concentration qui seront nécessaires pour lier l'évolution des propriétés mécaniques à l'évolution de la concentration d'eau (vieillessement). En effet, le problème de diffusion étant à la fois dépendant du temps et de l'espace, en se plaçant à un temps donné, le problème devient simplement dépendant de l'espace, la concentration d'eau est connue dans la colle ce qui équivaut à une répartition non-uniforme des propriétés mécaniques.

La figure 4. (b) montre que dans le cas de l'étude, avec un vieillissement accéléré à 40°C, il faut 11 mois pour obtenir une éprouvette Arcan quasi-saturée en eau, ce qui reste raisonnable.

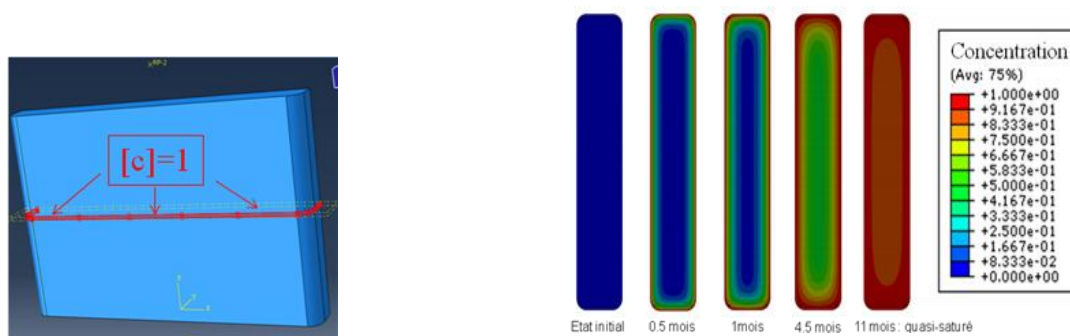


FIG.4 - (a) Modélisation de la diffusion d'eau sur une demi-éprouvette Arcan, (b) Evolution des concentrations d'eau dans un joint collé Arcan pour les 4 temps de vieillissements pertinents retenus

### 3.2 Traction sur éprouvettes massives vieilles

En parallèle de l'analyse gravimétrique, des éprouvettes de traction dog-bone d'épaisseur 1 mm sont immergées en eau de mer à 25°C et 40°C et sorties par lots de 3 à intervalles réguliers puis testées. Ceci permet de connaître l'évolution des propriétés élastiques (module d'Young, coefficient de Poisson et limite élastique) de l'adhésif au cours de la prise en eau. Les résultats sont présentés en figure 5. et peuvent paraître surprenants au premier abord. En effet, au premier temps de vieillissement, une chute des propriétés mécaniques est observable, puis une re-augmentation des propriétés mécaniques apparaît au cours du vieillissement. Cependant, ces observations s'expliquent par la compétition entre deux phénomènes. Premièrement, la dégradation de l'adhésif lors de la prise en eau, d'où une première chute de propriétés. Ensuite, l'adhésif n'étant pas totalement polymérisé, un suivi de polymérisation intervient, ce qui fait re-augmenter les propriétés mécaniques dans un second temps. Cette explication a été confirmée par analyses DSC.

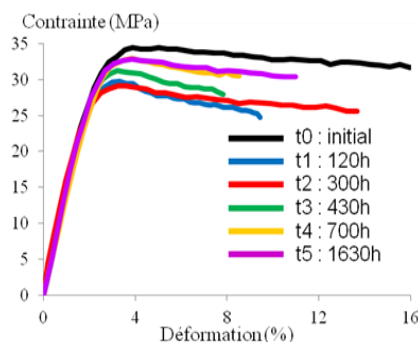


FIG.5 - Traction sur éprouvettes massives dog-bone, vieilles à 40°C

### 3.3 Essai Arcan sur éprouvettes vieilles

Grace à la modélisation de la diffusion, quatre temps de vieillissement pertinents ont été sélectionnés, ce qui, avec l'état non-vieilli, donnera une base de données expérimentales suffisamment riche pour identifier l'effet de la concentration d'eau sur l'assemblage par identification inverse globale.

Pour cela, 60 éprouvettes Arcan dont les substrats ont subi une anodisation par acide sulfurique ont été préparées. 12 ont servi à établir l'état non-vieilli, les 48 restantes ont été mises à l'eau, sorties après les 4 durées de vieillissement différentes et testées.

Comme le montrent les figures 6. (a) et (b), la tendance précédente (compétition entre deux phénomènes durant le vieillissement) semble se retrouver sur les essais Arcan. Pour s'affranchir de l'effet de la post-cuisson de l'adhésif et pouvoir identifier un modèle plus efficacement, une nouvelle campagne de vieillissement Arcan va être lancée en utilisant un cycle de cuisson permettant une réticulation totale de l'adhésif.

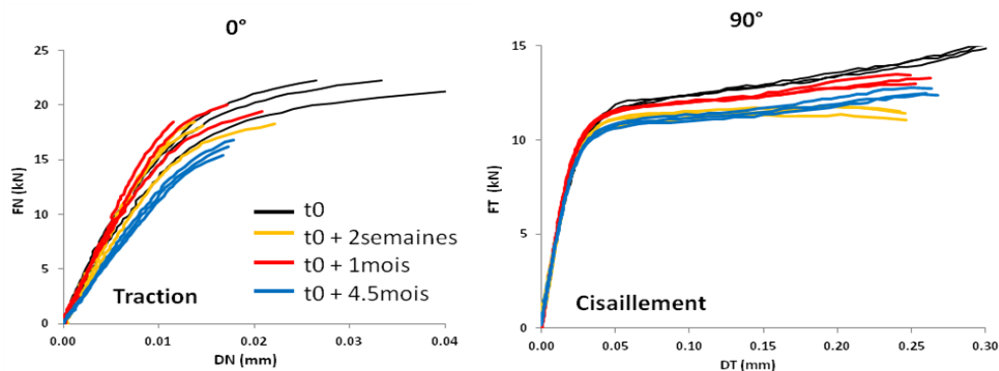


FIG.6 – Résultats d’essais Arcan après les 3 premiers temps de vieillissement (a) En traction, (b) En cisaillement

### 3.4 Intégration de la concentration d’eau dans le modèle

Via identification inverse, les essais Arcan non-vieillis permettent d’obtenir les paramètres de Mahnken-Schlimmer à l’état non-vieilli, c’est-à-dire pour une concentration d’eau égale à 0. Une hypothèse sur l’évolution de ces paramètres avec la concentration va permettre d’initialiser le problème. Pour les quatre temps de vieillissement identifiés plus haut par éléments-finis, les profils de concentration seront modélisés et l’hypothèse précédente pourra être intégrée dans les simulations éléments-finis. En parallèle, les essais Arcan seront réalisés pour les quatre temps de vieillissement identifiés. La confrontation essais/simulations éléments-finis permettra de mener une identification inverse globale pour valider l’hypothèse d’évolution des paramètres.

## 4 Conclusion et perspectives

Dans cette étude un montage Arcan modifié est utilisé ainsi qu’une géométrie d’éprouvette limitant les effets de bord pour caractériser finement le comportement d’un adhésif. Les cinétiques de prise en eau sont étudiées et l’effet du vieillissement en milieu humide est quantifié expérimentalement sur des éprouvettes massives et sur des éprouvettes Arcan. L’état non-vieilli est modélisé à l’aide d’un modèle élasto-plastique 3D de type Mahnken-Schlimmer par identification inverse. La diffusion d’eau dans une éprouvette Arcan est également simulée pour connaître les profils de concentration au cours du temps. Une démarche d’identification inverse globale est mise en place pour intégrer l’effet de la concentration d’eau au modèle de comportement identifié, cela pourra être réalisé prochainement, une fois que les derniers temps de vieillissement seront atteints.

Par ailleurs, il est prévu d’étudier l’influence du traitement de surface sur la durabilité d’un assemblage collé. Pour ce faire, le traitement des substrats par anodisation par acide sulfurique sera remplacé par un traitement plus « propre » du type poudre de graphite ou de thermoplastique. La question de l’influence de l’interface/interphase sera également étudiée.

## References

- [1] A. Mubashar, I. A. Ashcroft, G. W. Critchlow, A. D. Crocombe, “Modelling Cyclic Moisture Uptake in an Epoxy Adhesive”, *J. Adhesion*, 85, 711–735 (2009).
- [2] J.Y. Cognard, P. Davies, L. Sohier, R. Créac’headec, “A study of the non-linear behaviour of adhesively-bonded composite assemblies”, *Comp. Struct.*, 76, 34-46 (2006).
- [3] M. Bordes, P. Davies, J.Y. Cognard, L. Sohier, V. Sauvart-Moynot, J. Galy, “Prediction of long term strength of adhesively bonded joints in sea water”, *Int. J. Adhes. Adhes.*, 29, 595-608 (2009).
- [4] J. Maurice, J.Y. Cognard, R. Creac’headec, P. Davies, L. Sohier, S. Mahdi, “Characterization and modelling of the 3D elastic-plastic behaviour of an adhesively bonded joint under monotonic tension/compression-shear loads: influence of three cure cycles”, *J. Adhesion Science Technology*, Vol. 27, Iss. 2 (2013).
- [5] P. Jousset, M. Rachik, “Pressure-Dependent Plasticity for Structural Adhesive Constitutive Modeling”, *J. Adhesion Science Technology*, 24, 1995-2010 (2010).