

État de l'art sur la caractérisation et la modélisation de l'endommagement et des chemins de fuite en résultant dans les composites stratifiés

Sommaire

1.1 Mécanismes d'endommagement à l'origine des réseaux de fissures dans les composites stratifiés	6
1.1.1 Architecture d'un stratifié	6
1.1.2 Mécanismes et scénario d'endommagement	7
1.1.3 Objectifs et choix de la description de l'endommagement	10
1.2 Méthodes d'observation de l'endommagement et des réseaux de fissures	12
1.2.1 Méthodes d'observation des fissures en surface	12
1.2.2 Méthodes d'observation des réseaux de fissures à cœur	14
1.3 Transport de fluide dans les stratifiés	19
1.3.1 Écoulements types dans les milieux poreux	19
1.3.2 Notion de perméabilité	21
1.3.3 Perméabilité effective et perméabilité apparente	23
1.3.4 Ordres de grandeur	23
1.3.5 Méthodes de mesure de la perméabilité	24
1.3.6 Évaluation de l'effet de l'endommagement sur la perméabilité de matériaux composites	25
1.4 Modélisation de l'endommagement, des chemins de fuite et de la perméabilité	28
1.4.1 Approches pour la modélisation de l'endommagement	28
1.4.2 Modélisation de l'écoulement et de la perméabilité	33
1.5 Bilan de l'état de l'art et démarche retenue	34

1.1 Mécanismes d'endommagement à l'origine des réseaux de fissures dans les composites stratifiés

1.1.1 Architecture d'un stratifié

Un matériau composite stratifié est obtenu par l'empilement de couches élémentaires, appelées plis. Chaque pli est un assemblage de renfort fibreux dont la cohésion est assurée par une matrice. Le renfort présente en général de bonnes propriétés mécaniques (module et contrainte à la rupture élevés), tandis que la matrice est souvent plus souple et plus déformable que le renfort afin d'assurer le transfert des sollicitations mécaniques au renfort. Dans cette étude on s'intéressera aux stratifiés de plis unidirectionnels à fibre continue, c'est à dire que dans chaque pli, les fibres sont toutes parallèles et définissent l'orientation du pli.

La structure des composites stratifiés est donc fortement hétérogène et multi-échelles. On peut distinguer : l'empilement de plis d'orientations différentes, qui constitue la pièce (échelle macroscopique), les plis (échelle mésoscopique), les constituants élémentaires que sont les fibres et la matrice (échelle microscopique), voire même l'interface entre fibre et matrice où un ensimage peut jouer un rôle essentiel sur la cohésion des fibres et de la matrice à des échelles sub-microniques. Le comportement mécanique et les dégradations du matériau sont liés à cette organisation multi-échelles. En fonction de l'échelle choisie, on pourra donc modéliser le matériau et les dégradations qui s'y produisent plus ou moins finement.

Pour décrire un stratifié composé de plis unidirectionnels, il est nécessaire de connaître la séquence d'empilement, c'est à dire l'ordre et l'orientation de chaque pli. Pour cela, on définit un repère matériau $(\underline{x}_1, \underline{x}_2, \underline{x}_3)$, attaché à chaque pli et où 1 désigne la direction des fibres, 2 la direction transverse (dans le plan du pli), et 3 la direction (transverse) hors plan. On définit également un repère structure $(\underline{x}, \underline{y}, \underline{z})$ où $\underline{x}$ est l'axe de référence. Dans le cas d'un chargement uniaxial, l'axe de référence correspond à la direction de chargement ; dans le cas d'une structure cylindrique, c'est généralement l'axe de révolution. Les deux repères sont représentés en Figure 1.1. Par ailleurs il est à noter que du point de vue mécanique, plusieurs plis consécutifs de même orientation se comportent comme une couche unique. Un tel groupe de plis sera désigné dans la suite de ce mémoire par le terme «couche».

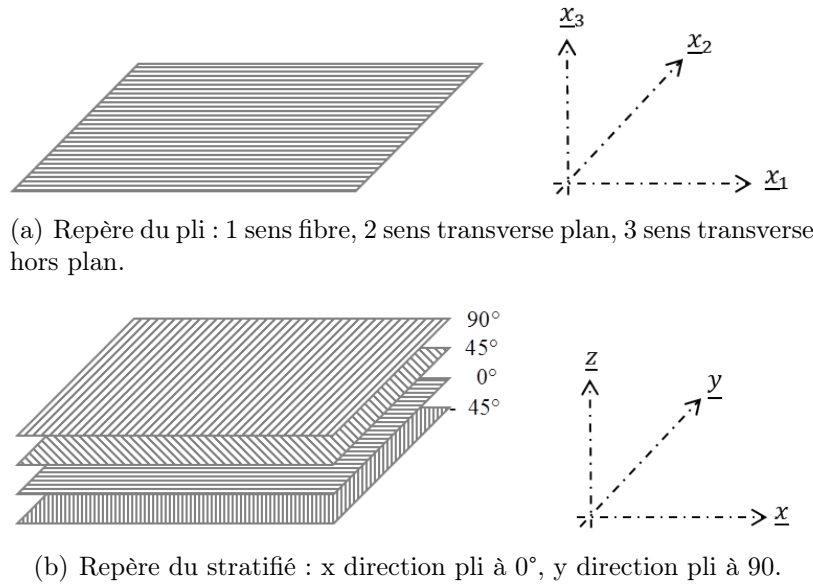


FIGURE 1.1 – Définition des repères «pli» et «stratifié».

1.1.2 Mécanismes et scénario d'endommagement

La forte hétérogénéité de la structure des stratifiés, en particulier les différences de propriétés mécaniques i) des constituants à l'échelle microscopique, et ii) des couches de différentes orientations à l'échelle mésoscopique, a pour conséquence une hétérogénéité du champ de contraintes. À cela s'ajoutent les contraintes résiduelles qui apparaissent lorsque l'on s'éloigne de la température à laquelle le stratifié est considéré libre de contraintes (température proche de la température de polymérisation) et qui sont dues aux différences de coefficients de dilatation thermique dans la direction des fibres et dans les directions transverses à l'échelle des plis. L'hétérogénéité des contraintes et des propriétés pilotent les mécanismes de dégradation du matériau aux différentes échelles, qui à leur tour modifient les propriétés physiques et mécaniques de la structure. L'ensemble de ces dégradations est regroupé sous le terme «mécanismes d'endommagement». Ceux-ci sont illustrés en Figure 1.2. L'accumulation des dégradations mène généralement à la perte des fonctions requises par le cahier des charges, voire à la ruine de la structure, d'où la nécessité de les comprendre et de les prendre en compte pour dimensionner une structure.

Les premiers mécanismes d'endommagement apparaissent à l'échelle microscopique avec la décohésion des fibres et de la matrice par rupture de l'interface, accompagnée de microfissuration matricielle. Ces microdommages coalescent jusqu'à former des fissures à l'échelle du pli [Nairn and Hu, 1992]. Ces fissures se propagent parallèlement aux fibres dans l'épaisseur et la longueur des couches sollicitées transversalement. On parle de fissuration transverse ou d'endommagement intra-laminaire.

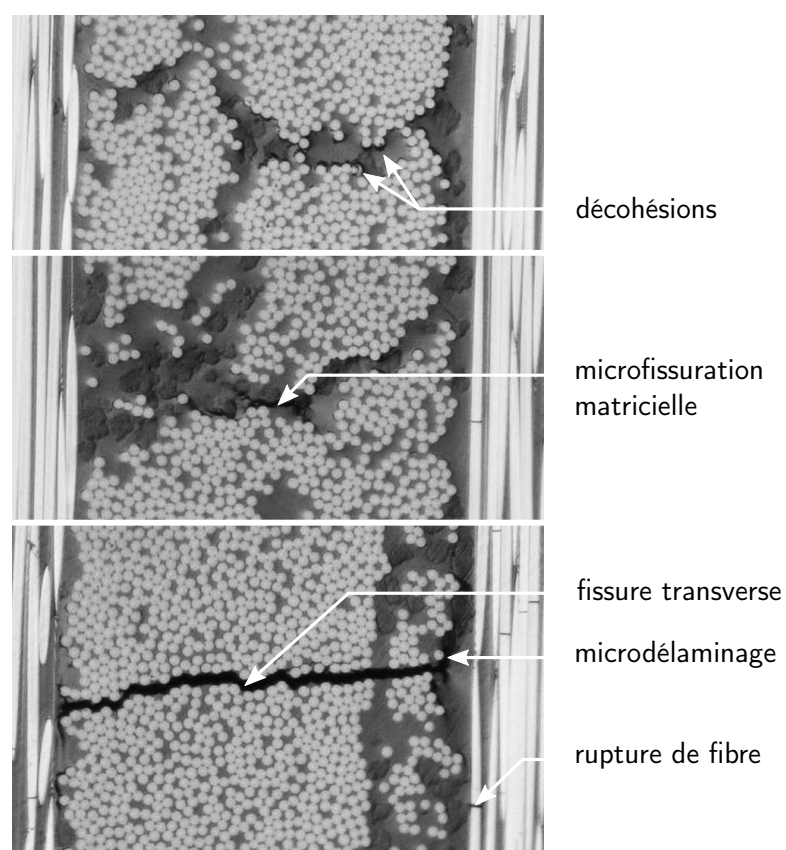


FIGURE 1.2 – Mécanismes d'endommagement à l'échelle de la fibre et à l'échelle du pli.

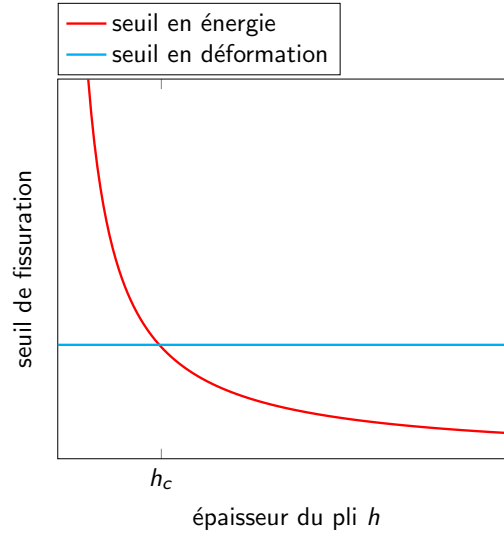


FIGURE 1.3 – Seuil de fissuration en fonction de l'épaisseur de la couche [Leguillon, 2002, Huchette, 2005].

Deux paramètres influent sur la cinétique de ce mécanisme d'endommagement. Le premier est l'épaisseur de la couche : plus une couche est épaisse, plus la quantité d'énergie libérée par la fissuration est importante, donc plus le seuil d'endommagement est faible [Parvizi et al., 1978]. En fait, il a été montré que la fissuration transverse est pilotée par un double critère en énergie et en déformation [Gudmundson and Alpmann, 2000, Leguillon, 2002]. Pour qu'il y ait fissuration, il est nécessaire que les deux critères soient atteints. Le critère en déformation ou en contrainte ne dépend pas de l'épaisseur et vient limiter la valeur minimale du seuil de fissuration pour les couches les plus épaisses, comme représenté Figure 1.3. Il existe une épaisseur de transition entre les deux critères, que l'on peut noter h_c . Pour les couches d'épaisseur $h < h_c$, le critère énergétique, qui définit le seuil d'apparition des fissures, dépend de l'épaisseur de la couche. Il est intéressant de noter que dans ce cas, réduire l'épaisseur de la couche permet de repousser significativement son seuil de fissuration. Cela rend l'utilisation de plis fins (épaisseur $< 80 \mu\text{m}$) très compétitive, malgré son coût élevé, pour des applications où la maîtrise de la fissuration transverse est cruciale. Généralement, lorsque le double critère d'amorçage est atteint, le critère de propagation reste vérifié et la fissure transverse se propage instantanément le long des fibres dans toute l'épaisseur de la couche et sur des distances relativement longues (*i.e.* plusieurs fois l'épaisseur de la couche).

Le second paramètre qui a un effet sur la cinétique de la fissuration transverse est la séquence d'empilement. En effet, les fissures transverses s'arrêtent en atteignant l'interface d'un pli adjacent, mais le comportement du pli adjacent et sa cinétique d'endommagement peuvent être modifiés par la redistribution des contraintes autour

des fissures transverses. Ce point étant jugé peu influent au regard de la complexité de sa prise en compte, il est généralement négligé et est peu abordé dans la littérature.

À l'échelle du pli, un deuxième mécanisme est associé à la fissuration transverse : l'arrêt d'une fissure transverse à l'interface de deux plis génère des concentrations de contraintes qui créent du microdélaminage en pointe de fissure transverse (Figure 1.2). On parle de fissuration inter-laminaire. Le développement du microdélaminage entraîne une saturation de la fissuration matricielle : le microdélaminage empêche le transfert de charge d'un pli à l'autre, ce qui limite la création de fissures transverses dans la zone déchargée.

A l'échelle du stratifié, des délaminages de tailles importantes peuvent résulter de la coalescence des microdélaminages, ou bien de sollicitations hors-plan (introduction d'effort, impact), ou d'un effet de bord libre. Enfin, la rupture des plis orientés dans la direction du chargement est conditionnée par la rupture des fibres et mène généralement à la ruine de la structure. Notons que les endommagements matriciels détaillés précédemment impactent la résistance dans le sens des fibres en modifiant la répartition des charges aux différentes échelles. Cet effet peut être bénéfique lorsque par exemple il réduit une concentration de contraintes générée par un accident géométrique (trou, entaille) [Curtis, 2003] ou néfaste lorsqu'il réduit la capacité de la matrice à répartir les contraintes entre les fibres [Hochard et al., 2014, Caous et al., 2017].

1.1.3 Objectifs et choix de la description de l'endommagement

Les différents mécanismes d'endommagement se traduisent, aux échelles macroscopique et mésoscopique, par une modification des propriétés physiques de la structure ou des plis. La fissuration transverse ainsi que les endommagements diffus (décohésion fibre-matrice et microfissuration matricielle) entraînent une perte de rigidité du pli fissuré et, à partir d'un certain niveau, une perte de résistance dans le sens des fibres. La représentation de ces deux effets est généralement suffisante pour dimensionner les structures composites. Cependant, dès que les critères fonctionnels reposent sur des propriétés qui dépendent de la continuité du matériau, et donc de la présence ou non de fissures transverses, il devient nécessaire de décrire l'endommagement autrement que par une perte de raideur. C'est le cas notamment pour les propriétés de transfert de fluide. En effet, si dans un stratifié tous les plis contiennent des fissures transverses, que ces fissures se croisent, et sont connectées grâce au microdélaminage en pointe de fissure transverse, le stratifié est alors tra-

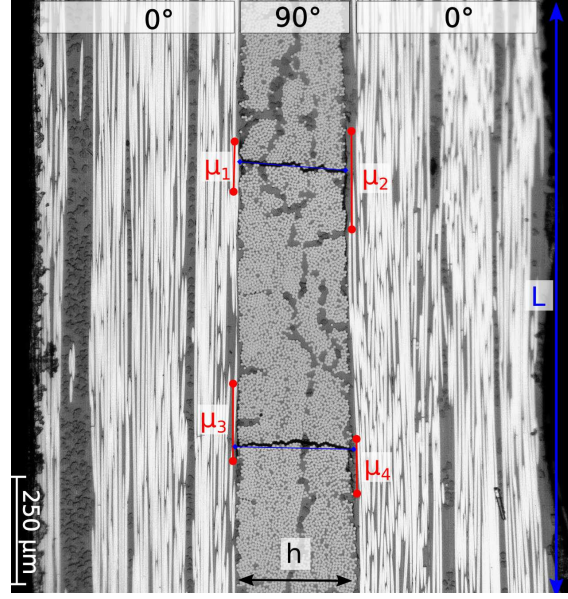


FIGURE 1.4 – Mesure du taux de fissuration $\rho = N_{fissures}/L$ et du taux de microdélaminage μ .

versé par un réseau de fissures intra et inter laminaires qui constituent un chemin privilégié pour l'écoulement d'un fluide à travers l'épaisseur du stratifié (Figure 2).

Il est alors avantageux d'adopter une description physique des endommagements à l'échelle du pli par le biais de variables comme le taux de fissuration transverse ρ et le taux de microdélaminage μ . Comme le montre la Figure 1.4, le taux de fissuration transverse ρ , ou densité de fissures, est le nombre de fissures transverses divisé par la longueur observée L , et le taux de microdélaminage μ est la moyenne des longueurs de microdélaminage mesurées à chaque pointe de fissure transverse.

Expérimentalement, la distance entre deux fissures et la longueur de microdélaminage sont sujettes à des variations. ρ et μ sont donc usuellement définies comme des variables représentatives d'un motif localement périodique [Ladevèze and Lubineau, 2003]. Afin de simplifier et généraliser l'effet de l'endommagement sur la raideur et les lois d'évolution de l'endommagement, on utilise généralement les variables adimensionnées comme suit :

$$\bar{\rho} = \rho h = \frac{N_{fissures}}{L} h \quad (1.1)$$

$$\bar{\mu} = \mu \rho \quad (1.2)$$

où $\bar{\rho}$ est le taux de fissuration réduit, $\bar{\mu}$ le taux de microdélaminage réduit, et h l'épaisseur de la couche considérée.

Dans le cas de la problématique du transfert de fluide à travers l'épaisseur d'un

stratifié, on s'intéressera en particulier à l'organisation des fissures transverses et microdélaminages en réseaux connectés. C'est pourquoi les sections suivantes sont consacrées aux moyens et résultats d'observation de l'endommagement et des réseaux de fissures dans les stratifiés, puis à l'étude du transport de fluide dans les stratifiés, et enfin à la modélisation des effets de l'endommagement sur les stratifiés en matière de perte de raideur, de création de réseaux de fissures et la modélisation de l'écoulement ou de la perméabilité résultant de l'endommagement.

1.2 Méthodes d'observation de l'endommagement et des réseaux de fissures

Comme la perte de raideur d'un pli n'est accessible que sur certaines stratifications, et que la quantité de fissures transverses ainsi que les longueurs de microdélaminage sont des variables plus pertinentes vis à vis de la problématique de la perméabilité, cette partie de l'état de l'art est focalisée sur l'observation des méso-endommagements.

1.2.1 Méthodes d'observation des fissures en surface

Il existe de nombreux moyens permettant de suivre l'apparition des fissures dans un composite stratifié. Exploiter les informations disponibles en surface présente l'avantage évident d'être non destructif, et semble intuitivement plus simple à mettre en œuvre en matière de moyens expérimentaux comme de savoir faire. Les observations optiques en surface se prêtent bien à l'observation de la fissuration transverse et du microdélaminage dans la mesure où l'on sait que dans la plupart des cas, dans les plis dont les fibres ne sont pas dans la direction du chargement, les fissures transverses se propagent instantanément le long des fibres.

À l'aide d'un microscope installé horizontalement sur une platine de positionnement adaptée sur une machine de traction, et en polissant au préalable la surface à observer d'une éprouvette de traction, la microscopie optique permet d'effectuer des observations *in situ* sous chargement de traction [Huchette, 2005, Malenfant, 2012, Bois et al., 2014]. Un exemple de ce dispositif expérimental est présenté en Figure 1.5. C'est avec ce type de dispositif que les micrographies des figures précédentes ont été faites. La réalisation des observations sous charge a le double intérêt de ne pas interrompre l'essai et d'ouvrir les fissures, ce qui les rend plus visibles.

Les images sont exploitées pour mesurer le taux de fissuration transverse et le taux de microdélaminage. Les taux de fissuration mesurés sont ensuite combi-

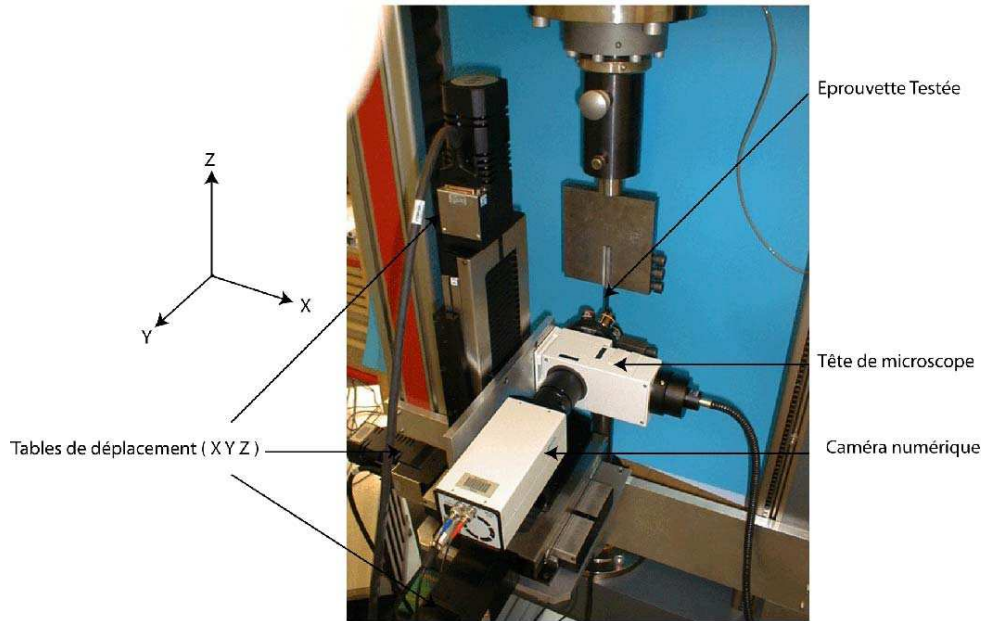


FIGURE 1.5 – Dispositif expérimental pour la réalisation de micrographies sous chargement de traction, d'après [Huchette, 2005].

nés avec un modèle multi-échelles et des essais numériques avec pour finalité de prédire la perte de raideur du pli endommagé (ce point de modélisation est détaillé en Section 1.4). Dans les trois références [Huchette, 2005, Malenfant, 2012, Bois et al., 2014], la zone observée va de 10 à 20 mm de longueur maximum sur l'épaisseur de la pièce, ce qui est trop faible pour représenter la variabilité inhérente au processus de fissuration transverse. Comme on le verra dans le Chapitre 2, cette variabilité impacte essentiellement l'apparition des premières fissures, et n'a donc que peu d'effet sur les propriétés mécaniques du pli.

Pour ce type d'essai sous chargement de traction, il est aussi possible d'utiliser un appareil photo équipé d'un objectif à fort grossissement, et de couvrir la surface à observer d'un mouchetis contrasté fait de fines gouttelettes de peintures noire et blanche. Les images seront alors nécessairement traitées par corrélation d'images numériques afin d'obtenir les champs de déplacements ou de déformations de l'éprouvette, et de remonter, en identifiant les discontinuités dans ces champs, à la localisation des fissures transverses. La Figure 1.6 montre le champ de déformations mesuré à la surface d'un stratifié $[90/0]_s$. Les discontinuités du champ de déformations permettent de quantifier la fissuration transverse du pli extérieur [Daghia et al., 2015]. La corrélation d'images numériques est aussi applicable sans mouchetis en s'appuyant sur la microstructure du matériau à condition que celle-ci soit suffisamment contrastée et aléatoire. Pour une revue plus large des techniques de mesure de champs pour la caractérisation des matériaux composites, le lecteur

peut se reporter à [Grédiac, 2004].

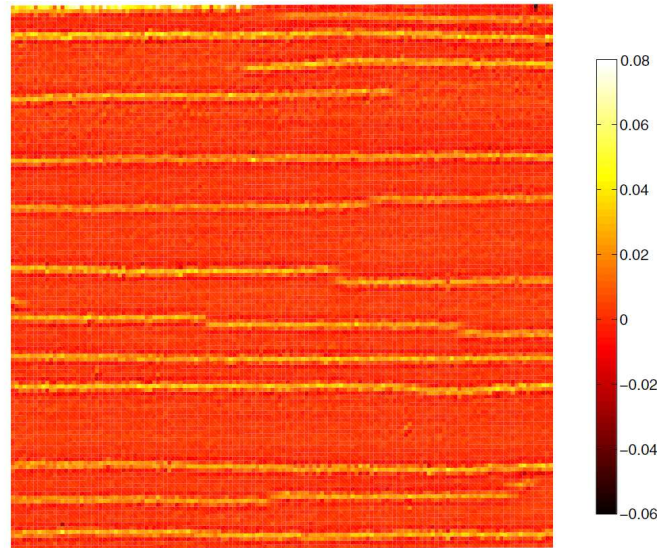


FIGURE 1.6 – Déformation longitudinale à la surface du pli à 90° d'une éprouvette $[90/0]_s$ soumise à une déformation longitudinale moyenne de 0.4%, d'après [Daghia et al., 2015], surface observée de $20 \text{ mm} \times 20 \text{ mm}$, résolution $7 \mu\text{m}/\text{pixel}$.

On peut aussi penser à la microscopie par balayage électronique, qui donnera des informations avec des résolutions très fines ($\leq 0.1 \mu\text{m}$) à la surface de l'éprouvette, mais semble difficilement applicable à des observations sous charge en raison du conditionnement sous vide que requiert le balayage électronique.

Ces méthodes ont toutes pour désavantage de donner accès à des informations en surface uniquement. Une conséquence est que la qualité et la validité des mesures effectuées ainsi est très sensible aux effets de bord. Il convient donc de s'assurer que l'état d'endommagement observé en surface diffère peu, ou dans quelles proportions, de l'état d'endommagement au cœur du matériau.

1.2.2 Méthodes d'observation des réseaux de fissures au cœur du matériau

L'observation des réseaux de fissures requiert de pouvoir regarder au cœur du matériau. On peut envisager pour cela plusieurs techniques expérimentales. La plus simple, utilisée ponctuellement pour vérifier l'influence des effets de bords lorsque l'endommagement est mesuré en surface, est la réalisation de coupes micrographiques. C'est le cas par exemple dans [Huchette, 2005], où l'auteur observe dans un stratifié $[0/+45/-45/90]_s$ une légère diminution de l'endommagement en s'éloignant de la surface dans les plis à -45° . La mise en œuvre de cette technique et ses inconvénients (tels qu'une éventuelle modification de la microstructure lors de la

coupe) sont très peu détaillés dans la littérature. Les inconvénients évidents sont le caractère destructif et discret des observations.

Du côté des techniques non destructives, le suivi des événements acoustiques est largement utilisé pour la détection de fissures in-situ mais pose le problème de la modification des propriétés acoustiques du stratifié avec l'augmentation des taux d'endommagement [Le Gall et al., 2017]. Le positionnement précis des fissures transverses peut alors s'avérer délicat voire impossible. De plus, la signature acoustique de la création d'une fissure transverse dépend de l'épaisseur du pli, ce qui complexifie l'identification des cinétiques d'endommagement par cette technique sur des stratifiés différents notamment si ceux-ci comportent plusieurs couches qui s'endommagent [Huchette, 2005].

Plus adaptée à la localisation des fissures, l'imagerie par ultrason ou par rayons X donne de bons résultats pour l'observation des fissures transverses au cœur des stratifiés. Les deux reposent sur le contraste qui existe entre les propriétés de transmission du stratifié et celles de l'air contenu dans les fissures. L'imagerie par ultrasons est efficace pour détecter la position d'interfaces stratifié-air et a notamment été utilisée par Kumazawa *et al.* dans [Kumazawa et al., 2006b, Kumazawa et al., 2006a] pour évaluer l'état d'endommagement de stratifiés soumis à un chargement mono ou bi-axial puis à des mesures de perméabilité. La résolution des images et l'ouverture des fissures observées ne sont toutefois pas spécifiées et les observations ne semblent pas être réalisées sous charge. Les résultats sont présentés comme satisfaisants comparés aux résultats obtenus par la technique de radiographie X après infiltration d'un agent dense.

L'imagerie par rayons X s'appuie sur le contraste de densité entre les différents constituants, l'absorption des rayons X par un matériau étant liée à sa densité. Une radiographie peut donc se lire comme la projection dans un plan selon une direction donnée de la densité en chaque point du matériau. Il en résulte une superposition des données dans la direction choisie, qui mettra en valeur les contrastes orientés dans cette direction mais masquera les autres. Typiquement, une fissure transverse sera plus facilement visible si elle est observée selon l'une de ses deux directions de propagation. En outre, pour être visible, un élément de microstructure doit être au minimum de l'ordre de la taille du pixel (en pratique, si le contraste de densité est très fort, l'élément sera détecté même s'il est plus petit qu'un pixel, mais si les densités sont proches, au moins un voire plusieurs pixels sont nécessaires car la densité associée à un pixel est une valeur moyenne).

Pour observer des fissures peu ouvertes par rapport à la résolution, il est usuel, afin de les rendre détectables, d'infiltrer dans les fissures un agent révélateur dense

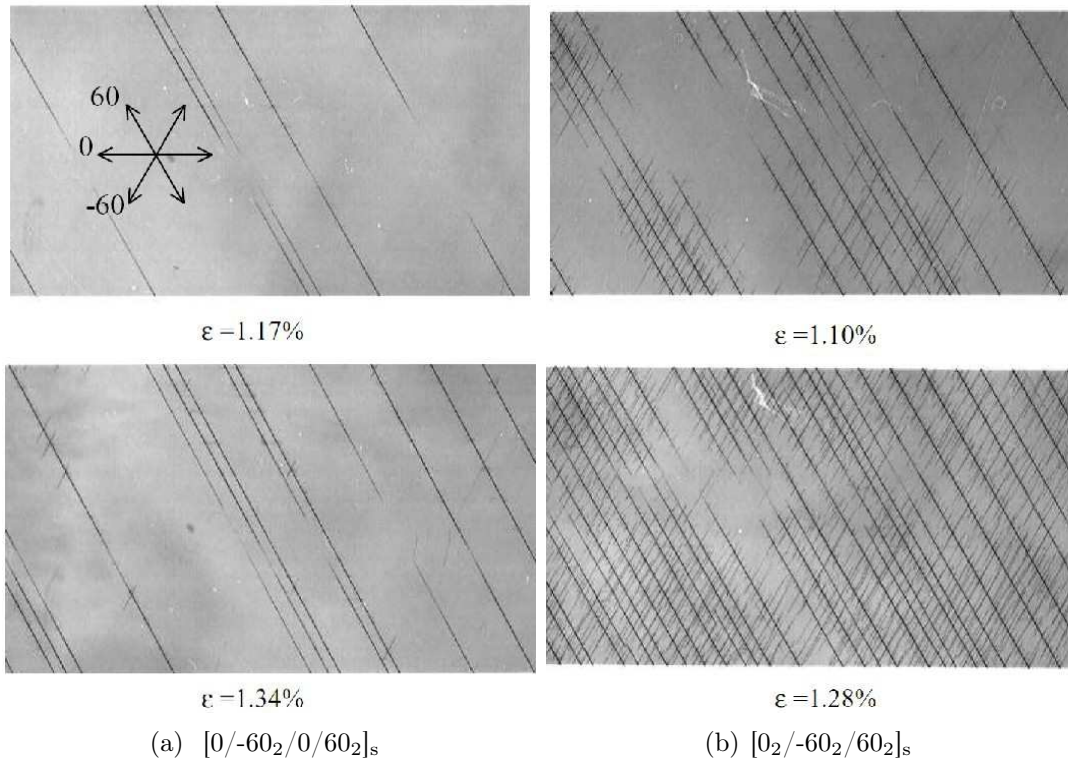


FIGURE 1.7 – Radiographies illustrant l’effet de la séquence d’empilement sur deux stratifiés à fibre de carbone et matrice époxy (M21/T700) [Yokozeki et al., 2002].

tel que de l’iodure de zinc [Elber, 1983] et dont la densité contraste plus avec celle du stratifié que la densité de l’air contenu dans les fissures. Cette manipulation rend l’observation destructive à cause de l’utilisation d’un solvant qui peut avoir un effet néfaste sur les propriétés de la matrice et des interfaces, et à cause du remplissage des fissures par l’agent révélateur. De plus, l’infiltration ne donne accès qu’aux fissures connectées à l’extérieur, et il subsiste toujours l’incertitude de savoir si les fissures sont toutes bien infiltrées ou non.

Malgré ces limites, quelques résultats obtenus par radiographie X avec agent révélateur méritent d’être mentionnés : Yokozeki *et al.* ont mis en évidence l’interaction entre les endommagements de plis adjacents et en particulier le rôle de l’angle relatif et de l’épaisseur des différentes couches dans la formation de fissures transverses courtes au détriment de fissures transverses traversantes [Yokozeki et al., 2005b] : les fissures courtes se forment préférentiellement dans des couches peu épaisses et qui font un angle d’approximativement 30 à 70° avec le chargement, et les radiographies de la Figure 1.7 tirées de [Yokozeki et al., 2002] illustrent l’influence de la séquence d’empilement sur les cinétiques de fissuration des différentes couches.

En particulier, ces images réalisées pour deux empilements dont seul l’ordre des plis varie, $[0_2/+60_2/-60_2]_s$ et $[0/+60_2/0/-60_2]_s$, suggèrent que l’amorçage et la pro-

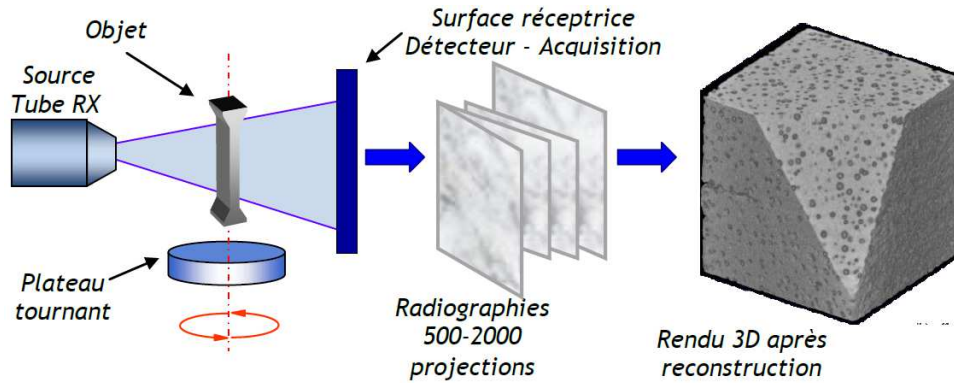


FIGURE 1.8 – Principe de la microtomographie par rayons X, d'après [Horsin Molinaro et al., 2016].

pagation des fissures dans les trois couches à ± 60 dépend de si elles sont adjacentes ou séparées par un pli à 0° . L'incertitude du bon fonctionnement de l'infiltration du révélateur reste malheureusement un frein important à l'exploitation de ces résultats.

La microtomographie par rayons X est une déclinaison de l'imagerie par absorption des rayons X qui permet d'obtenir une carte en trois dimensions des densités du matériau. Son principe de fonctionnement est illustré en Figure 1.8. En faisant tourner sur lui même l'échantillon à observer, on réalise un grand nombre de radiographies pour différents angles de rotation. A partir de l'ensemble de ces projections, il est possible de reconstruire numériquement le volume en trois dimensions. Le détail de cette technique est présenté dans les références [Salvo et al., 2010, Horsin Molinaro et al., 2016].

La résolution reste cependant une limite pour l'observation des fissures transverses, et plus généralement celle des mécanismes d'endommagement. En effet, l'image obtenue provenant de la part du faisceau de rayons X non absorbée par le matériau, il est nécessaire que cette part soit suffisante pour révéler un contraste de densité. Par conséquent, deux moyens d'augmenter la résolution sont i) d'augmenter le temps de capture de chaque image, ce qui conduit rapidement à des durées d'acquisition importantes : de une à deux heures pour une résolution de $5 \mu\text{m}/\text{pixel}$ avec un microtomographe de laboratoire, ou bien ii) d'augmenter l'énergie initiale du faisceau en recourant par exemple à une source synchrotron, le temps d'acquisition pour une résolution de $5 \mu\text{m}/\text{pixel}$ peut alors descendre en dessous de la seconde¹ [Maire and Withers, 2014].

Les références [Grogan et al., 2014b] et [Foti et al., 2015] présentent des observations par microtomographie de réseaux de fissures dans des stratifiés de plis uni-

1. Les deux durées d'acquisition indiquées correspondent aux performances des deux types de sources de rayons X en 2013.

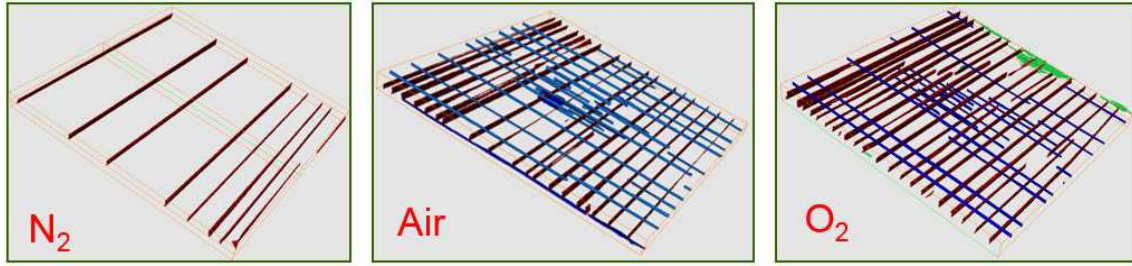


FIGURE 1.9 – Réseaux de fissures dans des stratifiés $[0_2/90_2]_s$ soumis à des essais de fatigue en environnement oxydant ou non, d'après [Foti et al., 2015]. Volume observé de 20 mm $\times$ 20 mm $\times$ 2mm, résolution $\approx 15 \mu\text{m}/\text{pixel}$.

directionnels à fibre de carbone et matrices polymères de séquences d'empilement diverses. Les observations sont réalisées sans révélateur et avec des tomographes de laboratoire. Dans [Grogan et al., 2014b], les stratifiés sont endommagés par fatigue thermo-mécanique cryogénique. Les observations sont réalisées avec des résolutions de $15 \mu\text{m}/\text{pixel}$ et $33 \mu\text{m}/\text{pixel}$. Les couches sont épaisses (0.56 mm et 1.12 mm), et les contraintes résiduelles d'origine thermo-mécanique sont importantes car la température de cuisson de ces stratifiés (à matrice thermoplastique) est supérieure à 370°C , ce qui favorise l'ouverture des fissures. Les fissures observées sont toutes traversantes dans l'épaisseur de chaque couche et dans la largeur des échantillons, ce qui est cohérent avec l'épaisseur importante des couches. Dans [Foti et al., 2015], l'endommagement résulte d'une sollicitation en fatigue dans un environnement oxydant (air, oxygène) ou non (azote). Les couches sont également épaisses (0.5 mm pour la couche centrale à 90°), et les fissures sont suffisamment ouvertes pour être visibles avec une résolution de $15 \mu\text{m}/\text{pixel}$. Comme le montre la Figure 1.9, les fissures sont relativement longues mais ne traversent pas tout l'échantillon entier. Il est cependant impossible de déterminer si les fissures s'arrêtent ou si leur ouverture devient insuffisante pour permettre leur détection.

L'ouverture des fissures transverses est donc un paramètre essentiel définissant la résolution nécessaire pour observer des réseaux de fissures par microtomographie. L'ouverture dépend du chargement thermo-mécanique, y compris les contraintes résiduelles, de l'épaisseur de la couche, du taux de fissuration transverse et du taux de microdélaminage. Des modèles multi-échelles, dont le principe est décrit plus loin dans ce chapitre, permettent de calculer l'ouverture des fissures transverses à partir de ces paramètres [Bois et al., 2014].

1.3 Transport de fluide dans les stratifiés

1.3.1 Écoulements types dans les milieux poreux

On considère qu'à travers la paroi en composite stratifié d'un réservoir, l'écoulement est monophasique et le milieu poreux saturé, ce qui signifie qu'il existe une seule phase fluide. On néglige donc la phase durant laquelle les pores se remplissent du fluide contenu par le réservoir. On s'intéresse uniquement à la perméation, c'est à dire au transport de fluide à travers un milieu sous l'effet d'un gradient de pression. Notons qu'il y a également transport de molécules par diffusion sous l'effet d'un gradient de concentration d'espèces moléculaires différentes. Ce phénomène prend toute son importance par exemple pour le stockage d'hydrogène à long terme en raison de la faible taille des molécules d'hydrogène qui facilite leur diffusion, et des durées de stockage qui sont relativement longues (quelques jours à quelques mois). La diffusion étant un phénomène lent, il est raisonnable de la négliger pour l'application visée, qui est du stockage à court terme (quelques heures à quelques jours).

L'étude se concentre donc sur le transport de fluide par écoulement à travers les pores, ou espaces vides, du matériau. Pour qu'il y ait écoulement, ces pores doivent être interconnectés, c'est à dire qu'ils doivent former une phase continue traversant le milieu poreux [Dullien, 1992]. Les milieux poreux sont par définition hétérogènes, y compris en matière de propriétés de transport des fluides, et il est nécessaire pour les caractériser de travailler sur des échantillons suffisamment grands par rapport aux hétérogénéités, afin que les grandeurs moyennes identifiées soient bien des caractéristiques du matériau à l'échelle macroscopique et non des propriétés locales.

Lorsqu'il existe une phase continue et traversante de pores interconnectés, on distingue plusieurs types d'écoulements en fonction de la taille des pores : le régime visqueux sans glissement aux parois et le régime visqueux avec glissement. En fait, les collisions individuelles des molécules sur les parois des pores ont pour conséquence que la vitesse du gaz aux parois n'est pas nulle, ce qui se traduit par un phénomène de glissement du fluide sur les parois des pores dénommé effet Klinkenberg. D'après la Théorie Cinétique des Gaz de Maxwell, on peut définir le libre parcours moyen des molécules λ_{lpm} qui correspond à la distance moyenne parcourue par une molécule entre deux collisions successives [Cercignani, 1969, Cercignani, 1988] :

$$\lambda_{lpm} = \frac{\mu_{gaz} \sqrt{\pi RT/2M}}{p} \quad (1.3)$$

où :

μ_{gaz} est la viscosité dynamique du gaz (Pa.s) et dépend de la température ;
 R est la constante universelle des gaz parfaits ($R = 8,314 \text{ J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$) ;
 T est la température (K) ;
 M est la masse molaire (g.mol^{-1}) ;
 p est la pression (Pa).

Plus le libre parcours moyen est proche de la taille des pores, plus les collisions sur les parois sont nombreuses, et donc plus le phénomène de glissement est important. Le nombre de Knudsen K_n définit le rapport entre le libre parcours moyen d'une molécule et la distance d caractéristique de la taille des pores :

$$K_n = \frac{\lambda_{lpm}}{d} \quad (1.4)$$

Il permet d'estimer la proportion de collisions des particules sur les parois des pores, et renseigne ainsi sur le type d'écoulement :

- si $K_n \ll 1$, c'est à dire si $d \geq 100\lambda_{lpm}$, l'écoulement est purement visqueux, avec une condition d'adhérence du fluide à la paroi ;
- si $0.01 < K_n < 0.1$, le glissement doit être pris en compte et vient s'ajouter à l'écoulement visqueux ;
- si $0.1 < K_n$, l'approche hydrodynamique n'est pas adaptée : il ne s'agit pas d'un écoulement mais de diffusion moléculaire.

On remarque que le libre parcours moyen augmente avec la viscosité dynamique et la température du gaz, tandis qu'il diminue lorsque la pression du gaz augmente. Ainsi, l'effet de glissement s'atténue lorsque la pression du gaz augmente. Pour le diazote, lorsque la pression est de 10^5 Pa , soit la pression atmosphérique, le libre parcours moyen est de $\lambda_{lmp} = 5.8 \cdot 10^{-8} \text{ m}$, ce qui signifie que l'effet Klinkenberg est significatif pour des écoulements traversant des pores interconnectés de diamètre allant jusqu'à $5 \cdot 10^{-6} \text{ m}$ maximum. Cette ouverture correspond à celle d'une fissure transverse peu ouverte. Si la pression est dix fois supérieure, soit $p = 10^6 \text{ Pa}$, alors l'ouverture jusqu'à laquelle l'effet Klinkenberg existe est $0.5 \cdot 10^{-6} \text{ m}$, ce qui correspond cette fois à une fissure transverse fermée (en fait, avec les contraintes résiduelles, il est très peu probable d'obtenir une ouverture de fissure aussi faible, même à chargement mécanique nul). Les données utilisées pour ces applications numériques sont issues de [AirLiquide, 2017], la température utilisée est $T = 25^\circ\text{C}$.

On peut conclure de cette application numérique que l'importance de l'effet Klinkenberg et la nécessité d'en tenir compte doivent être évalués en fonction de la pression en service du réservoir, de la taille caractéristique des pores ou fissures pouvant se former dans le matériau, et des caractéristiques du gaz utilisé.

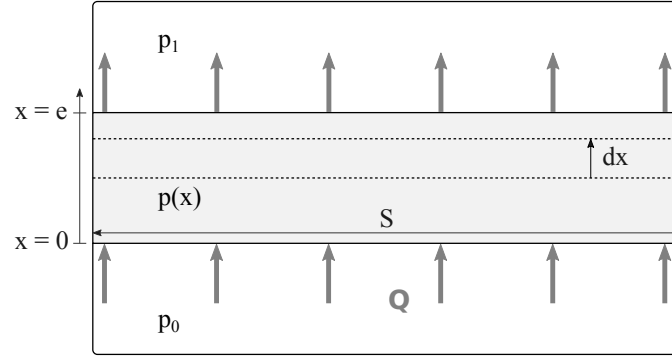


FIGURE 1.10 – Schéma de l'écoulement unidirectionnel considéré pour la mesure de la perméabilité.

1.3.2 Notion de perméabilité

La perméabilité d'un matériau poreux est définie comme sa capacité à être traversé par un fluide sous l'effet d'un gradient de pression. Dans le cas d'un écoulement visqueux sans glissement, stationnaire et uni-axial, comme schématisé en Figure 1.10, la loi de Darcy permet, en introduisant la perméabilité k , de relier proportionnellement le débit de fuite Q_v à travers la surface S , la viscosité dynamique μ du fluide, et le gradient de pression à travers l'épaisseur d'un échantillon dp/dx ² :

$$q_v = \frac{Q_v}{S} = -\frac{k}{\mu} \frac{dp}{dx} \quad (1.5)$$

$$\text{soit } q_v = \frac{k}{\mu} \frac{(p_0 - p_1)}{e} \quad \text{dans le cas unidirectionnel et incompressible.} \quad (1.6)$$

pour un fluide Newtonien et avec :

q_v le flux volumique (m.s^{-1}) ;

Q_v le débit volumique ($\text{m}^3.\text{s}^{-1}$) ;

S la surface extérieure traversée par le fluide (m^2) ;

k la perméabilité du matériau (m^2) ;

μ la viscosité dynamique du fluide (Pa.s) ;

$\frac{dp}{dx}$ le gradient de pression dans l'épaisseur de l'échantillon (Pa.m^{-1}) ;

e l'épaisseur de la paroi traversée par le fluide.

Les hypothèses permettant d'arriver à cette relation sont les suivantes : fluide parfait, écoulement uni-axial dans la direction $\underline{x}$, écoulement stationnaire et isotherme, effets inertiels négligeables (écoulement suffisamment lent), détente (rôle de la compressibilité) du fluide négligeable à l'échelle de l'éprouvette, et déformations du milieu

2. NB : la publication originale qui introduit la notion de perméabilité concerne l'écoulement dans les fontaines de Dijon [Darcy, 1856], mais on préférera s'appuyer sur une écriture plus récente de la loi de Darcy que l'on retrouve dans les ouvrages de référence tel que [Dullien, 1992].

poreux négligeables.

Cependant, pour un gaz le rôle de la compressibilité n'est pas négligeable et la vitesse d'écoulement varie avec la pression. Cela peut être ajouté dans la loi de Darcy en s'appuyant sur le fait qu'à température constante et en régime stationnaire, le produit de la vitesse du gaz par sa pression est constant dans l'éprouvette. L'Équation 1.5 devient alors dans le cas unidirectionnel et compressible, d'après [Dullien, 1992] :

$$q_v = \frac{Q_v}{S} = -\frac{k}{\mu} \frac{(p_1^2 - p_0^2)}{2p_1 e} \quad (1.7)$$

La perméabilité ainsi définie est une propriété intrinsèque du milieu : elle dépend essentiellement des caractéristiques morphologiques du milieu poreux (tortuosité, connectivité, taille et facteur de forme des pores) et ne dépend pas de la nature du fluide [Dullien, 1992].

D'autres grandeurs sont parfois utilisées dans la littérature et dans l'industrie pour caractériser les fuites à travers un milieu poreux. Les deux plus courantes sont le débit molaire Q_m et le flux volumique standard q_{st} . L'intérêt de ces deux grandeurs est de permettre de s'affranchir de l'effet de la compressibilité sur le flux volumique. Le débit molaire (en mol.s^{-1}) est obtenu en appliquant la loi des gaz parfaits pour calculer la quantité de matière (en mol) contenue dans le volume de fluide aux conditions de pression et de température de l'essai : $Q_m = Q_v \times p/RT$. Le flux volumique standard se définit par équivalence à partir du flux volumique expérimental pour des conditions de pression et de température standard. L'unité dans le système international est le $\text{m}^3\text{normaux.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$, mais une sous-unité usuelle est le $\text{cm}^3\text{normaux.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$, noté aussi scc/s/cm^2 . La pression standard est : $p_{st} = 1.013 \cdot 10^5 \text{ Pa}$, et la température standard dépend de la norme choisie : $T_{st(DIN1343)} = 273.15^\circ\text{K} = 0^\circ\text{C}$ ou $T_{st(ISO2533)} = 286.15^\circ\text{K} = 15^\circ\text{C}$. L'équivalence se fait en appliquant la loi des gaz parfaits : $q_{st} = q_v \times p_{exp}T_{st}/p_{st}T_{exp}$. La pression expérimentale à utiliser est la pression de sortie pour un flux sortant.

Une grandeur très utilisée dans l'industrie est le produit pression×volume par seconde q_{pv} , d'unité $\text{Pa.m}^3.\text{s}^{-1}$, souvent dénommé *leak rate* ou *throughput* ("débit sortant"), qui dérive du flux molaire. Il se calcule en appliquant de nouveau la loi des gaz parfaits au débit molaire : $q_m = q_{pv}/RT$. Ces trois grandeurs dépendent de la nature du gaz (de sa viscosité, notamment), mais aussi du gradient de pression qui génère l'écoulement et détermine l'amplitude du flux. Pour pouvoir comparer des mesures utilisant ces grandeurs, les pressions amont et aval et la viscosité doivent donc soit être connues, soit être identiques.

1.3.3 Perméabilité effective et perméabilité apparente

Lorsque le libre parcours moyen des molécules du gaz n'est plus négligeable devant la taille caractéristique des pores, le glissement des molécules sur les parois des pores à l'échelle des porosités, ou effet Klinkenberg, se traduit à l'échelle macroscopique par une augmentation de la perméabilité mesurée en appliquant la loi de Darcy. La perméabilité k obtenue avec la relation 1.5 n'est alors plus la perméabilité intrinsèque du matériau, mais sa perméabilité apparente, et l'effet Klinkenberg est formalisé par le coefficient de Klinkenberg b , homogène à une pression, qui confère au matériau une perméabilité apparente k supérieure à sa perméabilité intrinsèque k_{int} [Klinkenberg, 1941] :

$$k = k_{int} \left(1 + \frac{b}{p_m} \right) \quad \text{avec } p_m = \frac{p_0 + p_1}{2} \quad (1.8)$$

Le coefficient b est une constante associée au couple (gaz,matériau). Quand b devient très inférieur à p , la contribution du glissement aux parois devient négligeable, et la perméabilité apparente est alors égale à la perméabilité intrinsèque, comme l'indique également le nombre de Knudsen. L'identification de la perméabilité intrinsèque et du coefficient de Klinkenberg requiert donc plusieurs mesures de la perméabilité apparente à différentes pressions.

1.3.4 Ordres de grandeur

Afin d'illustrer le lien entre la perméabilité et l'écoulement qui traverse le milieu poreux, considérons une plaque carrée de côté 1 m et d'épaisseur 1 mm, soumise à une différence de pression constante $p_0 - p_1 = 10^5$ Pa avec $p_0 = 2 \cdot 10^5$ Pa, à une température de 25°C. Le gaz perméant est l'azote (N_2), à cette température sa viscosité dynamique est $\mu_{N_2}(298K) = 1.78 \cdot 10^{-5}$ Pa.s. En appliquant l'Équation 1.7, on peut alors calculer le flux d'azote à travers l'épaisseur de la plaque en fonction de la perméabilité de celle-ci. De cette manière, on trouve les valeurs indiquées dans la Table 1.1 ci après. À travers une plaque dont la perméabilité apparente est de 10^{-15} m² (N.B. : Les volumes exprimés ici correspondent à des volumes d'azote à pression atmosphérique et à une température de 25°C), $3 \cdot 10^4$ L soit 30 m³ d'azote s'écoulent en une heure, tandis qu'à travers une plaque de perméabilité 10^{-23} m², l'écoulement en une heure représente 0.3 mL, soit le volume de 6 gouttes d'eau.

TABLE 1.1 – Débit volumique Q_v et débit massique Q_m pour l'azote traversant une plaque de perméabilité apparente k_{app} .

k_{app} (m ²)	Q_v (L/h)	Q_m (kg/h)	commentaire
10^{-15}	$3 \cdot 10^{-1}$	$3.4 \cdot 10^{-1}$	= 34 m ³ /h ou 34 kg/h
10^{-20}	$3 \cdot 10^{-4}$	$3.4 \cdot 10^{-4}$	= 34 cL/h ou 0.34 g/h
10^{-23}	$3 \cdot 10^{-7}$	$3.4 \cdot 10^{-7}$	≈ volume de 6 gouttes d'eau/h ou 0.34 mg/h

1.3.5 Méthodes de mesure de la perméabilité

Un moyen générique pour déterminer la perméabilité consiste à garder constantes deux des trois grandeurs qui entrent en compte (la pression amont p_0 , la pression aval p_1 , et le débit de fuite Q), pendant que l'on mesure les variations de la troisième grandeur. Avec une méthode stationnaire comme l'expérience de Darcy, la grandeur mesurée est le débit volumique Q_v , et k est calculé à partir de l'Équation 1.5. Pour les milieux très peu perméables, c'est à dire pour lesquels $k < 10^{-15}$ m², le débit est extrêmement faible et pratiquement impossible à mesurer. Dans ce cas, la grandeur mesurée est usuellement le gain ou la perte de pression. Ainsi, des méthodes alternatives ont été mises au point pour mesurer la perméabilité de ces matériaux. Les méthodes instationnaires sont basées sur la mesure de l'évolution de la pression après sa modification brusque [Bruce et al., 1953, Yamada and Jones, 1980], et les méthodes quasi-stationnaires exploitent la linéarité de la variation de pression lorsque celle-ci est faible au regard de la différence de pression de part et d'autre de l'échantillon à caractériser [Jannot and Lasseux, 2012]. Les méthodes stationnaires et quasi-stationnaires restent les plus utilisées dans les études sur le lien perméabilité-endommagement car elles sont plus simples à mettre en œuvre donc plus accessibles à des laboratoires non nécessairement spécialistes en mécanique des fluides.

Un autre moyen très utilisé est la détection de fuites d'hélium par spectroscopie de masse (ou "reniflage"). Cela consiste à appliquer une pression d'hélium en amont, et à faire le vide en aval pour recueillir et compter par spectroscopie les molécules d'hélium qui ont traversé l'échantillon. La précision de la mesure dépend alors essentiellement du niveau de vide appliqué et de la qualité de l'étanchéité du système, et peut aller de 10^{-20} à 10^{-30} m² en termes de perméabilité. Pour une revue détaillée des méthodes de mesure de la perméabilité et du débit de fuite, le lecteur peut se reporter à [Bergoglio and Mari, 2012].

1.3.6 Évaluation de l'effet de l'endommagement sur la perméabilité de matériaux composites

Essais existants

Les essais conventionnels pour mesurer la perméabilité d'un composite stratifié consistent à appliquer de part et d'autre d'une plaque du stratifié à caractériser, une chambre d'admission et une chambre de détection [Disdier et al., 1998, Kumazawa et al., 2006b, Kumazawa et al., 2006a, Bechel, 2005, Bechel et al., 2006, Yokozeki et al., 2005a, Yokozeki et al., 2009, Malenfant, 2012, Jannot and Lasseux, 2012]. La création d'endommagement et la mesure de perméabilité sont souvent découplées [Disdier et al., 1998, Kumazawa et al., 2006b, Bechel et al., 2006]. Or, quand l'éprouvette est déchargée, les fissures se referment (au moins partiellement), ce qui modifie la perméabilité effective. Certaines études ont donc cherché à effectuer la mesure de perméabilité sous charge [Yokozeki et al., 2005a, Yokozeki et al., 2006, Yokozeki et al., 2009, Malenfant, 2012, Rastiello et al., 2014]. L'essai sur plaque se révèle rapidement inadapté pour la caractérisation de fuites induites par des fissures transverses. En effet, les fissures se propagent jusqu'au bord de l'éprouvette ou des chambres de détection et d'admission, et génèrent des fuites en dehors de la zone confinée [Bechel, 2005, Kumazawa et al., 2006b, Kumazawa et al., 2006a, Bechel et al., 2006, Yokozeki et al., 2006, Malenfant, 2012]. Une solution proposée pour mesurer la perméabilité sous charge est d'utiliser des éprouvettes tubulaires [Mallick et al., 2005, Yokozeki et al., 2005a, Mertiny and Gold, 2007]. Dans ces trois références, les tubes sont fabriqués par enroulement filamentaire. Dans [Mallick et al., 2005, Yokozeki et al., 2005a], le dispositif proposé est un tube fermé dans une chambre à vide ou une chambre cryogénique, et la mesure de la perméabilité est effectuée par détection au spectromètre de masse. Dans [Yokozeki et al., 2005a] l'éprouvette est soumise à la fois à des conditions cryogéniques (par conduction du froid) et à un chargement de traction. La température de l'éprouvette n'est pas mesurée. Dans [Mallick et al., 2005] le chargement est assuré uniquement par la pression interne. Dans [Mertiny and Gold, 2007], les éprouvettes sont sollicitées en traction, torsion, et pressurisées avec de l'huile. La perméabilité est mesurée par mesure du volume d'huile perdu. Le recours à des éprouvettes tubulaires résout le problème de l'étanchéité aux bords mais l'effet des interactions entre le dispositif et le tube pressurisé, sur l'état d'endommagement notamment, n'est pas abordé dans les travaux utilisant ce type d'éprouvette [Mallick et al., 2005, Yokozeki et al., 2005a, Mertiny and Gold, 2007]. De plus,

dans l'ensemble de ces travaux, la ou les chambres de conditionnement interdisent l'observation des sorties de chemins de fuite : l'imagerie par rayons X ou ultrason permet d'identifier les croisements de fissures, mais pas de vérifier si ces réseaux de fissures constituent effectivement des chemins de fuite.

Principaux résultats sur les liens entre endommagement et perméabilité

Cette section présente quelques valeurs de perméabilité ainsi que des observations et conclusions obtenues à partir des essais mentionnés ci-dessus.

La perméabilité d'un stratifié à fibre de verre et matrice époxy, non endommagé et de faible porosité, a été évaluée à 10^{-23} m² par [Jannot and Lasseux, 2012] par une méthode de décroissance de la pression en écoulement quasi-stationnaire. Les perméabilités mesurées avec de l'huile sur des tube bobinés à fibre de verre et matrice époxy dans [Mertiny and Gold, 2007] sont plus élevées : de 10^{-18} m² à 10^{-16} m². Les produits pression×volume par seconde relevés sur des tubes bobinés à fibre de carbone et matrice époxy dans [Yokozeki et al., 2005a] par quantification de l'hélium au spectromètre de masse sont compris entre $5 \cdot 10^{-6}$ et $5 \cdot 10^{-4}$ Pa.m³.s⁻¹, ce qui équivaut, pour une pression aval proche de zéro et un delta de pression de 10^5 Pa, à des perméabilités comprises entre 10^{-23} et 10^{-21} m². Dans [Mallick et al., 2005], aucune valeur n'est fournie, mais l'auteur annonçait dans une publication précédente [Mallick et al., 2004] un objectif de 10^{-4} scc/s à 1% de déformation, ce qui équivaudrait, selon les conditions expérimentales, à $4 \cdot 10^{-19}$ m² en appliquant 10^5 Pa d'hélium en amont et un vide très poussé en aval (par exemple 1 Pa), et à $1.2 \cdot 10^{-19}$ m² en appliquant $2 \cdot 10^5$ Pa d'hélium en amont et $1 \cdot 10^5$ Pa en aval.

Dans l'essai sur tube de [Yokozeki et al., 2005a], les flux pression-volume sont comparés sous chargement mécanique et pour des états d'endommagement identiques, à la fois à température cryogénique (-196°C) et à température ambiante. Le flux mesuré variant peu pour les deux températures, l'auteur en conclut que l'augmentation des contraintes d'origines thermo-mécaniques (qui augmente l'ouverture des fissures à froid) est compensée par une diminution de l'énergie cinétique moléculaire du fluide qui ralentit l'écoulement. Un seul état d'endommagement est étudié pour chaque éprouvette, les fissures transverses sont observées par ultrasons après l'essai mais ne sont pas quantifiées.

Dans [Yokozeki et al., 2006], l'étude porte sur l'effet de l'angle entre plis endommagés sur le débit de fuite, mais l'effet de l'angle sur l'endommagement lui même, ou sur l'ouverture des fissures n'est pas mentionné. Les stratifications étudiées sont $[0_2/\theta_2]_s$, avec $\theta = 45, 60, 75, 90^\circ$, sous forme de plaques. Une fissure transverse est

créée dans chacune des deux couches à 0° en les mettant successivement en traction par flexion 3 points. Les deux fissures transverses générées ainsi ne doivent pas dépasser quelques centimètres de long pour permettre le confinement de la zone de perméation, laquelle est définie par les chambres utilisées pour la mesure de perméabilité. Puis, les éprouvettes sont soumises à de la traction uni-axiale. La mesure de perméabilité est réalisée par comptage des molécules d'hélium dans la chambre aval sous vide, tandis que la chambre amont est remplie d'hélium maintenu à la pression atmosphérique. Les éventuelles fuites dues aux fissures de la couche centrale qui traversent toute la largeur de l'éprouvette et débouchent hors de la zone confinée sont considérées par les auteurs comme négligeables. En fait, le défaut d'étanchéité a pour effet d'alimenter l'écoulement avec de l'air, il n'y a donc pas de fuite d'hélium vers l'extérieur, mais l'écoulement et la composition du fluide sont modifiés. Dans les stratifiés $[0_2/\theta_2]_s$ où $\theta = 45$ et 60° , aucune fuite n'est observée avant rupture sous chargement quasi-statique. Des réseaux de fissures traversants sont finalement obtenus par chargement cyclique. Dans le cas d'un stratifié $[0_2/45_2]_s$, des fissures courtes dans la couche à 45° sont générées en même temps que les fissures des plis à 0° . Elles ont pu être observées par radiographie X après infiltration d'iodure de zinc. On remarque que lorsque les fissures des plis à 0° se trouvent être superposées, il y a fuite avant de charger en traction car les fissures courtes de la couche à 45° croisent plus facilement les deux fissures des plis extérieurs. Les chemins de fuite sont dénombrés en s'appuyant sur le nombre d'intersections qui apparaissent sur les radiographies et un débit de fuite par chemin de fuite est calculé. L'effet de l'angle est traité de manière géométrique : plus l'angle est petit et plus la surface connectant deux fissures est petite.

Enfin, Kumazawa *et al.* ont réalisé des essais de traction bi-axiale sur des stratifiés $[0_2/90_2]_s$ et $[0/90/0/90]_s$ et a établi en mesurant le flux sortant et la densité de fissures qu'il existe un lien entre taux de fissuration et perméabilité [Kumazawa et al., 2006b] et entre chargement, ouverture des fissures, et perméabilité [Kumazawa et al., 2006a]. Il en conclut que les fissures transverses servent de chemins de fuite et que ces chemins s'ouvrent lorsque les plis sont sollicités transversalement. Il identifie que les couches plus fines sont moins perméables que les couches plus épaisses, ce qu'il met en lien avec des taux de fissuration moindres. Ceci est cohérent avec l'effet connu de l'épaisseur de la couche sur la cinétique de la fissuration transverse. Le plus grand nombre d'interfaces entre couches (l'épaisseur des stratifiés est constante) et donc de goulets d'étranglements entre les fissures des différentes couches participe également à la baisse de la perméabilité. La double caractérisation du taux de fissuration et du flux sortant n'est réalisée que pour peu de

TABLE 1.2 – Valeurs de débit "volume-pressure" q_{vp} obtenues dans [Kumazawa et al., 2006b] et de perméabilité k correspondantes (calculées à partir des paramètres expérimentaux), pour deux stratifiés chargés en traction bi-axiale. ε^{max} est la déformation maximale appliquée dans les deux directions, $\bar{\rho}_\theta$ sont les taux de fissuration réduits des couches d'orientation θ . Les débits de fuite sont mesurés à chargement nul.

Stratification	ε^{max} (%)	$\bar{\rho}_{90}$ (-)	$\bar{\rho}_0$ (-)	q_{vp} (Pa.m ³ .s ⁻¹)	k (m ²)
[0 ₂ /90 ₂] _s	0.49	0.1	0.012	2 .10 ⁻¹⁰	7.5.10 ⁻²³
	0.50	0.35	0.025	2.7 .10 ⁻⁷	1 .10 ⁻¹⁹
[0/90/0/90] _s	0.70	0.56	0.006	1.8 .10 ⁻⁹	6.5 .10 ⁻²²
	0.75	0.87	0.013	7.9 .10 ⁻⁹	2.8 .10 ⁻²¹

points de mesure (deux par éprouvette) car elle impose de démonter successivement les dispositifs de chaque mesure (chambres de confinement et contreplaque réfléchissante en verre utilisée pour le comptage des fissures). Les valeurs ainsi obtenues sont présentées dans la Table 1.2. La perméabilité la plus faible est mesurée pour un taux de fissuration dans les plis à 0° qui correspond à une fissure observée dans une zone de 20 mm de long. Notons aussi que l'imagerie en deux dimensions ne permet pas de distinguer à quel couche appartiennent les fissures lorsqu'il y a différentes couches d'une même orientation. C'est le cas pour tous les plis à 0°, et pour les trois couches à 90° dans le deuxième stratifié. Les fissures transverses peuvent être aussi bien superposées dans les différentes couches, que ne pas l'être. En revanche, le problème ne se pose pas pour les plis à 90° du premier stratifié qui sont rassemblés en une seule couche. Il est aussi possible que les taux de fissuration des différentes couches d'une même orientation ne soient pas égaux, en particulier si les couches sont d'épaisseurs différentes.

1.4 Modélisation de l'endommagement, des chemins de fuite et de la perméabilité

1.4.1 Approches pour la modélisation de l'endommagement

Afin de décrire les chemins de fuite dans les stratifiés et prédire leur formation, il est nécessaire de modéliser l'apparition des dégradations telles que la fissuration transverse et le microdélaminage. Deux théories permettent de prévoir les dégradations qui se produisent au sein d'un matériau : la mécanique de la rupture (théorie

de la fissuration) et la mécanique de l'endommagement continu³.

Le principe de la mécanique de la rupture est de déterminer si une fissure existante s'accroît d'une longueur infinitésimale en s'appuyant sur le critère de Griffith qui est en fait le bilan des énergies mises en jeu dans ce processus. L'énergie élastique libérée par la structure lors de la propagation de la fissure doit être au moins égale à l'énergie nécessaire à la création de la nouvelle surface fissurée. L'énergie associée à une fissure est proportionnelle à la surface créée et caractérisée par le taux de restitution d'énergie critique qui est une grandeur caractéristique du matériau. La mécanique de la rupture, limitée à la propagation infinitésimale d'une fissure pré-existante, a été étendue à la création instantanée de fissures de longueur finie par Hashin, donnant naissance à la mécanique de la rupture finie sur laquelle on trouvera une revue détaillée dans la référence [Weißgraeber et al., 2016]. Hashin a établi dans [Hashin, 1996] que le taux de restitution d'énergie de fissures de longueur finie (il s'agit en fait de fissures transverses dans un stratifié) peut être utilisé pour appliquer le critère de Griffith. Il montre aussi que la valeur du taux de restitution d'énergie critique est limitée par un critère en résistance. En s'appuyant sur ce cadre, Leguillon propose un double critère en énergie et en résistance qui permet de décrire l'amorçage et la propagation sur une longueur finie d'une fissure [Leguillon, 2002].

Le principe de la mécanique de l'endommagement est de décrire l'évolution des dégradations à l'échelle microscopique en considérant le milieu comme continu à l'échelle mésoscopique (échelle du volume élémentaire représentatif) [Kachanov, 1986, Krajcinovic and Lemaitre, 1987, Lemaitre et al., 2009]. L'état de détérioration de la matière est représenté par une ou plusieurs variables d'endommagement, qui sont généralement basées sur les modifications des propriétés élastiques du matériau. Chaque variable d'endommagement est une variable d'état dont les lois d'évolution dépendent de forces thermodynamiques associées, conformément à la thermodynamique des processus irréversibles.

La mécanique de la rupture repose sur une description géométrique des dégradations qui s'appuie sur une grandeur physique unique pour gérer l'évolution (taux de restitution d'énergie critique). La mise en œuvre numérique de ce type d'approche nécessite une représentation géométrique explicite de la fissure à différents stades de sa propagation et des maillages raffinés, et donc un coût de calcul élevé. En homogénéisant le comportement induit par un grand nombre de dégradations, la mécanique de l'endommagement permet de réduire les temps de calcul. Cependant, cette économie se fait au détriment de la distinction entre les différents types de

3. Pour une introduction aux théories de la mécanique de la rupture et de la mécanique de l'endommagement continu, le lecteur peut se reporter à [Lemaitre et al., 2009]

dégradations. Par ailleurs, si les dégradations présentent une taille caractéristique proche de l'échelle de modélisation, se pose le problème de la séparation des échelles qui se traduira notamment par une mauvaise représentation des interactions entre mécanismes d'endommagement.

Ainsi, pour prévoir les dégradations dans le cas particulier des composites stratifiés, plusieurs approches découlant de l'une ou l'autre de ces deux théories ont été proposées. Quelques unes de ces approches sont présentées ci-dessous.

Approches du type "mésomodèle" d'endommagement Ce type d'approche est une application de la mécanique de l'endommagement continu aux composites stratifiés. L'endommagement n'est pas représenté explicitement, mais uniquement à travers une dégradation des propriétés élastiques. Le stratifié est représenté par un empilement de couches successives au comportement orthotrope. Pour connaître l'état de contrainte, on applique la théorie des stratifiés, puis dans chaque couche le chargement est analysé et l'évolution des variables d'endommagement est calculée en fonction d'un modèle d'endommagement. Le premier mésomodèle proposé [Ladevèze, 1992] distingue deux types de couches : le pli [Ladeveze and Le Dantec, 1992], et l'interface entre plis [Allix and Ladevèze, 1992]. Les déformations résiduelles liées aux dégradations ou au comportement des constituants peuvent être intégrées à ce type de modèle [Ladeveze and Le Dantec, 1992] en s'appuyant sur la notion de contrainte effective. Cette approche a été également étendue à la prédiction de l'endommagement en fatigue [Payan and Hochard, 2002, Hochard and Thollon, 2010, Caous, 2017], et à l'endommagement par matage [Le Goff et al., 2017]. Dans l'approche de type "mésomodèle" d'endommagement, l'ensemble des mécanismes d'endommagement matriciel : décohésion fibre matrice, microfissuration, fissuration transverse, microdélaminage, est représenté par une seule variable d'endommagement. En réalité l'évolution de chacun de ces mécanismes d'endommagement peut être différente en fonction des directions de sollicitation. Comme mentionné précédemment, ce type d'approche pose le problème de la séparation des échelles puisque, par exemple, les fissures transverses ont la dimension du volume élémentaire représentatif. Ce modèle sera donc représentatif d'un volume de matériau (longueur de pli) suffisamment important pour contenir un grand nombre de fissures transverses et cette approche ne pourra pas représenter correctement l'interaction entre ces fissures transverses et les endommagements adjacents : microdélaminage et fissuration transverse des plis voisins.

Approches utilisant l'énergie de fissuration Différentes approches s'appuient sur la mécanique de la rupture et utilisent le taux de restitution d'énergie pour

décrire la formation des fissures. On peut citer par exemple les applications de la mécanique de la rupture finie, avec [Nairn, 2000] où les énergies libérées par la création de fissures transverses et de microdélaminage sont calculées analytiquement. Du côté des méthodes numériques, des techniques ont été développées pour calculer le taux de restitution d'énergie avec des éléments finis classiques, comme la méthode par relâchement successif des nœuds (ou déboutonnage) suivant le chemin pré-supposé de la fissure, qui permet d'obtenir le taux de restitution d'énergie en dérivant le travail élastique, ou encore par perturbation en appliquant un déplacement infinitésimal du nœud situé en pointe de fissure, puis en évaluant la variation d'énergie élastique à partir des matrices de rigidité locale des éléments contenant le nœud perturbé. Il existe aussi deux types d'éléments spécialisés qui permettent de simuler l'apparition et la propagation des fissures. Les éléments finis enrichis, X-FEM pour *Extended Finite Element Method*, permettent d'introduire des discontinuités (coupure de l'élément, pointe de fissure,...) dans les éléments en enrichissant leurs fonctions de forme. Avec cette méthode le trajet de fissuration n'est pas présupposé. Elle est utilisée par exemple par [Grogan et al., 2014a] pour prédire l'apparition et l'ouverture des fissures transverses dans un stratifié en vue d'évaluer sa perméabilité. Une autre méthode consiste à placer des éléments cohésifs endommageables aux endroits susceptibles de fissurer. Pour cette méthode, le taux de restitution d'énergie critique est intégré dans la loi de comportement de l'interface cohésive. Les deux méthodes sont combinées par [Grogan et al., 2015] pour décrire d'une part les fissures transverses sans pré-supposer leur position, ce à quoi les éléments X-FEM se prêtent bien, et d'autre part les microdélaminages qui se développent nécessairement à l'interface entre plis d'orientations différentes et qui sont donc prévus en insérant des éléments cohésifs aux interfaces. L'inconvénient, déjà mentionné, de ce type de méthode est le temps de calcul important lié à la finesse de maillage nécessaire pour décrire les dégradations.

Approches multi-échelles Le principe des approches multi-échelles est de modéliser explicitement l'endommagement en s'appuyant sur les mécanismes à l'œuvre aux échelles micro et/ou méso, et de travailler ensuite avec des grandeurs moyennes aux échelles supérieures, plus appropriées au calcul de structure, pour décrire le comportement homogénéisé du matériau.

Les approches multi-échelles pour les composites stratifiés permettent de décrire séparément les dégradations microscopiques (décohésions, microfissures de la matrice) et les dégradations mésoscopiques (fissures transverses, microdélaminage). Les endommagements microscopiques sont prédits par la mécanique de l'endomma-

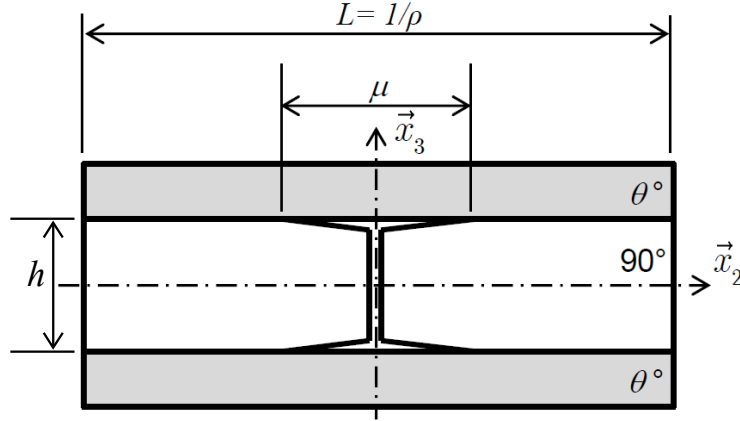


FIGURE 1.11 – Cellule élémentaire pour l’identification des effets de l’endommagement [Bois et al., 2014, Huchette, 2005].

gement [Ladeveze and Lubineau, 2002, Lubineau, 2010, Laurin et al., 2013], tandis que les endommagements mésoscopiques sont représentés explicitement sur une cellule élémentaire (Figure 1.11). La simulation de cette cellule élémentaire pour un ensemble de configurations d’endommagement préétablies permet de quantifier l’effet des endommagements sur la rigidité mésoscopique homogénéisée [Huchette, 2005] et éventuellement de définir des lois d’évolution basées sur la mécanique de la rupture [Nairn, 2000].

Effet des interactions Lorsque la géométrie des fissures est représentée explicitement, la mécanique de la rupture permet de prendre en compte les interactions entre celles-ci. En pratique, cela requiert d’avoir envisagé l’ensemble des trajets de fissuration possibles lors de l’évaluation de l’énergie restituée par la structure. Concernant la mécanique de l’endommagement, comme évoqué précédemment, les endommagements étant représentés par une perte de raideur moyenne, les interactions ne peuvent pas être prises en compte dès lors que les dégradations atteignent des dimensions voisines de celles du volume élémentaire représentatif. Seule l’interaction globale induite par la redistribution des contraintes générée par les pertes de raideur est prise en compte. Les approches multi-échelles vont permettre de prendre en compte les interactions entre mécanismes à l’intérieur de la cellule élémentaire, mais uniquement dans la ou les configurations sélectionnées pour la cellule élémentaire. Des interactions peuvent être ajoutées de manière phénoménologique en ajoutant un caractère non local aux lois d’évolution [Charrier et al., 2011].

1.4.2 Modélisation de l'écoulement et de la perméabilité

La prédiction de la perméabilité nécessite de disposer au moins des informations suivantes :

- le nombre de fissures transverses ou le taux de fissuration transverse dans chacun des plis, fixé au départ dans la plupart des simulations d'écoulement trouvées dans la littérature ;
- le nombre de croisements de fissures transverses aux interfaces inter-pli, en général déduit du taux de fissuration transverse en s'appuyant sur l'hypothèse de périodicité du volume élémentaire contenant une fissure transverse ;
- la section de connexion entre fissures transverses de plis adjacents, déduite de l'ouverture des fissures transverses et de la longueur de microdélaminage en pointe de fissure transverse.

Une solution simple consiste à s'appuyer sur une vision géométrique 2D de chaque croisement de fissures : la surface d'intersection des fissures de deux plis adjacents est considérée comme la section d'un canal droit traversant le stratifié, et est donc calculée à partir de l'ouverture de fissure en tenant compte du microdélaminage, et de l'angle entre les orientations des deux plis. La perméabilité par chemin de fuite est calculée géométriquement à partir de la section de ce canal. Un coefficient appelé conductance hydraulique doit ensuite être identifié expérimentalement à partir de mesures de la perméabilité et du décompte des croisements de fissures pour relier la section de connexion à la perméabilité ou au débit de fuite. Ce type de modèle a été proposé initialement pour des stratifiés croisés par Kumazawa *et al.* [Kumazawa *et al.*, 2003] puis par Roy *et al.* qui ajoutent l'effet du microdélaminage [Roy and Benjamin, 2004]. Ces modèles sont ensuite étendus pour d'autres orientations en ajoutant l'effet de l'angle sur la taille de la connexion [Yokozeki *et al.*, 2006, Nair and Roy, 2007] puis appliqués en affinant la modélisation des réseaux de fissures [Xu *et al.*, 2008, Xu and Sankar, 2008, Grogan *et al.*, 2014a, Grogan *et al.*, 2015]. Pour compléter ces modèles et alléger le besoin en valeurs expérimentales, il a aussi été proposé de modéliser explicitement en trois dimensions un réseau de fissures et le flux de gaz dans ce réseau pour identifier numériquement le coefficient de conductance. Cette approche a l'inconvénient d'être très lourde car la géométrie d'un réseau même simple devient rapidement complexe (en raison du microdélaminage en pointe de fissure transverse dont la forme est très aigüe, et du fait que les croisements de fissures aux différentes interfaces ne sont pas nécessairement superposés), et la simulation de l'écoulement nécessite un maillage très fin. Les simulations ont donc d'abord été réalisées en considérant le fluide incompressible [Peddiraju *et al.*, 2007], puis étendues au cas compressible [Kumazawa and Whitcomb, 2008]. Par ailleurs,

ces modèles négligent la perméabilité initiale du stratifié vierge d'endommagement, qui est certes très faible pour les composites à hautes performances utilisés pour les applications spatiales, mais pas nécessairement négligeable pour autant. Malenfant propose de prendre en compte d'une part la perméabilité des fissures, et d'autre part la perméabilité du matériau sain, afin d'offrir une prédiction du débit de fuite avant l'apparition du premier chemin de fuite [Malenfant, 2012]. Le principal verrou relevé dans la littérature reste cependant le manque de données expérimentales combinant à la fois mesure de la perméabilité et observation des réseaux de fissures pour différentes configurations de stratification, de chargement, de niveau d'endommagement et d'ouverture des fissures pour valider les modèles.

1.5 Bilan de l'état de l'art et démarche retenue

Le travail présenté ici a pour objectif de permettre le dimensionnement de réservoirs en matériau composite sans liner d'étanchéité. La problématique de cette application des matériaux stratifiés est l'endommagement de ce type de matériau, et notamment le développement de fissures transverses et de microdélaminage qui peuvent former des réseaux traversant la paroi stratifiée du réservoir. Le développement d'endommagement, et *a fortiori* la percolation des fissures affectent significativement la perméabilité et donc la fonctionnalité du réservoir. Ainsi, le dimensionnement des réservoirs sans liner repose sur un critère de résistance et de perméabilité. Les paramètres à définir lors du dimensionnement sont la référence du matériau et la stratification (nombre et épaisseurs des couches, orientations). Précisons que le procédé de mise en œuvre et les défauts associés conditionnent également le comportement mécanique. On a vu précédemment que l'épaisseur des couches avait une influence importante sur le processus de fissuration [Parvizi et al., 1978, Gudmundson and Alpman, 2000, Leguillon, 2002]. Ainsi, la conception d'un réservoir sans liner consiste à optimiser vis-à-vis de la masse et du coût un empilement constitué de plis de différentes épaisseurs et orientations. Vu le nombre quasi-infini de combinaisons, le choix ne peut reposer sur une approche exclusivement expérimentale. Pour réaliser cette optimisation, le concepteur doit donc disposer d'un modèle de prédiction fiable à l'échelle du pli. Le développement de cet outil est l'objectif de ces travaux de recherche.

Les variables d'endommagement usuelles décrivent l'effet de ces mécanismes sur les propriétés élastiques plutôt que les mécanismes eux-mêmes, et si des grandeurs physiques explicites comme la densité de fissure ou la longueur de microdélaminage sont parfois utilisées, la vocation des modèles d'endommagement reste le dimen-

sionnement en raideur et en résistance de structures. Or il est établi que ces deux critères sont peu impactés par l'apparition des toutes premières fissures. De plus, les interactions entre plis, bien que largement observées, sont le plus souvent négligées car le bénéfice de leur modélisation est jugé peu important au regard du coût de celle-ci. L'agencement des fissures, qui joue un rôle clef dans la percolation, n'est pas modélisé, et peu caractérisé même dans les travaux sur le lien entre endommagement et perméabilité. Il en résulte que les modèles d'endommagement disponibles, ainsi que les méthodes de caractérisation associées, manquent de précision pour prédire l'apparition des premiers chemins de fuite. Le Chapitre 2 est donc consacré à la caractérisation de l'endommagement et se focalise sur la formation des premières fissures et l'agencement des fissures en réseaux.

Par ailleurs, il est nécessaire de faire la distinction entre les fissures connectées ensemble qui participent aux fuites et les autres fissures. Pour prédire un débit de fuite avec un modèle d'écoulement en s'appuyant sur la description d'un réseau de fissures, il faut également caractériser finement les zones de connexion entre fissures transverses, et notamment le microdélaminage qui peut parfois se traduire par des déformations localisées très importantes sans création de fissure et donc de connectivité entre fissures transverses. La caractérisation du nombre de croisements comme celle des zones de connexion potentielles est délicate et sujette à beaucoup de variabilité. Le Chapitre 3 vise à pallier ces difficultés en proposant des moyens d'essai pour mesurer le nombre de sorties de chemins de fuite, ou «points de fuite», et recalibrer les modèles de prédiction en mesurant la perméabilité associée à ces points de fuite.

Enfin, à partir des résultats expérimentaux des Chapitres 2 et 3, des briques de modélisation de l'endommagement et des réseaux de fissures sont proposées au Chapitre 4. Un modèle d'endommagement à l'échelle du pli, basé sur des variables et des lois physiques, est développé pour prédire l'évolution des endommagements en s'attachant à décrire tout le processus de fissuration, y compris les faibles taux de fissuration qui ont peu d'effet sur les propriétés élastiques. Les taux d'endommagement sont ensuite exploités par l'intermédiaire de lois phénoménologiques pour prédire le nombre de croisements de fissures aux interfaces entre plis.

