

Suivi et control de l'endommagement des matériaux composites à renfort carbone et résines nanochargées par la méthode piézorésistive

On the structural health monitoring of carbon fiber reinforced nanofilled matrix by the resistance variation method

Khalil HAMDI¹, Zoheir ABOURA¹, Walid HARIZI¹ et Kamel KHELLIL¹

1 : département génie mécanique, Laboratoire Roberval FRE-CNRS 2012
Sorbonne Université, Université de technologie de Compiègne
Rue Personne de Roberval (UTC) 60200 Compiègne
e-mail : khalil.hamdi@utc.fr 0626974932

Résumé

Cette étude consiste à déployer la méthode piézorésistive le suivi de l'endommagement pour des composites à matrice thermoplastique nanochargée. La résistance électrique pourrait constituer un complément intéressant aux méthodes de contrôle d'endommagements existantes/classiques. Cela passe par l'augmentation de la conductivité électrique des matériaux composites et il apparait que cette amélioration, par l'utilisation de nanocharges conductrices, améliore leur sensibilité aux endommagements. Des composites avec différents types et concentrations de nanocharges ont été fabriqués et testés en traction. Des concentrations de 8% en poids de noir de carbone (CB) et 2,5% en poids de nanotubes de carbone (CNT) ont été dispersées dans du polyamide 6 comme matrice. L'effet fragilisant des nanocharges a été examiné en fonction de leurs concentrations et de leurs types. L'émission acoustique (AE), la corrélation d'images numériques (DIC) et la microscopie in situ ont également été enregistrés au cours des tests. Une corrélation entre tous ces signaux et l'évolution de la résistance électrique des composites lors du chargement en traction a été réalisée. Il a été constaté que le CB augmente la sensibilité des CMO à la détection des dommages, en particulier au délaminage. Pour le CNT, les résultats sont moins prometteurs.

Abstract

In this work, electrical resistance change method is used for Carbon Fiber Reinforced Thermoplastic Polymers (CFRTP) damage monitoring. The electrical resistance could be an interesting complementary to existing/classical damage monitoring methods. It is extremely attributed to electrical conductivity of composite material and it appears that enhancing the conductivity of materials, by the use of conductive nanofillers in our case, improves their sensitivity to mechanical loading. CFRTP with different nanofillers types and concentrations were manufactured and tested in tensile loading. Concentration of 0 and 8wt % of carbon black (CB) and 2.5wt % of carbon nanotubes (CNT) were used with Polyamide 6 sheets as matrix. Nanofillers weakening effect was discussed according to their concentrations and types. The acoustic emission (AE), digital image correlation (DIC) and in situ microscopy were also recorded during testing. A correlation between all these signals and the evolution of the electrical resistance of the composites during the tensile loading was performed. It was found that CB enhances sensitivity of CFRTP to damage detection, especially delamination. For the CNT, results are less promising. A discussion is held about the nanofillers concentration influence.

Mots Clés : composite à matrice organique, nanocharges, piézorésistive, émissions acoustique, corrélation d'image numérique

Keywords : composite material, nanocharge, piezoresistf, acoustic emission, digital image correlation

1. Introduction

Un matériau multifonctionnel est supposé répondre au moins à une application/fonctionnalité supplémentaire, différente de sa tâche principale. Le matériau pourrait ainsi être considéré comme intelligent. Les matériaux composites classiques permettent d'alléger les structures grâce à leur important rapport «propriétés mécaniques/densité». Le rajout d'autres fonctionnalités à ces matériaux constitue l'une des préoccupations de plusieurs études [1, 2]. Parmi ces fonctionnalités, le suivi de l'endommagement des matériaux qui est l'une des applications attrayantes. Néanmoins,

utiliser le matériau composites lui-même comme étant un capteur et indicateur de son état de santé fait face à plusieurs verrous tel que leur faible conductivité électrique [2, 3].

Dans une étude précédente, l'amélioration des propriétés électriques et thermiques des matériaux composites a été traitée [4, 5]. Nous avons démontré que les nanocharges conductrices de carbone (noir de carbone CB) permettent d'augmenter la conductivité électrique des CMO pour se rapprocher de la tranche inférieure des matériaux conducteurs (avec 16% de CB en masse). L'intérêt des nanocharges - comme agent de fonctionnalisation - ainsi réside dans l'élargissement du champ d'adaptabilité/d'applications des CMO. De ce fait, la fonctionnalisation des CMO par les nanocharges rendrait envisageable une application qualifiée d'intelligente ou active des CMO. Une méthode basée sur la piézorésistivité des matériaux est particulièrement intéressante.

La méthode piézorésistive repose sur le lien (éq.1) entre *résistivité électrique*, *résistance électrique* et *dimension des matériaux* pour rendre possible de détecter la variation des dimensions ou l'apparition des discontinuités au sein de ce dernier (Fig.1).

$$R = \rho * L / S \tag{1}$$

Avec ρ ($\Omega \cdot m$) la résistivité électrique, R (Ω) résistance électrique, L (m) la distance entre électrodes et S (m^2) la section normale.

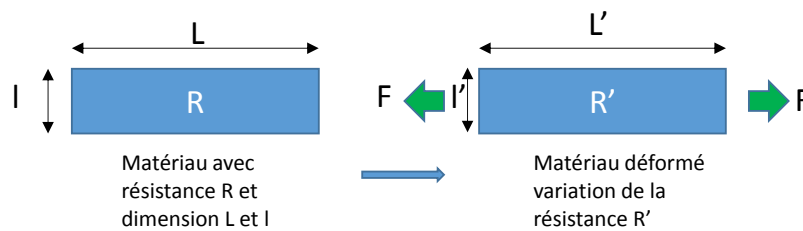


Fig. 1. Schématisation de la réponse piézorésistive d'un matériau sous sollicitation mécanique.

Il est ainsi évident qu'un chargement mécanique dans le domaine élastique est accompagné d'une variation de la résistance électrique [6–8]. Mais qu'en est-il du comportement endommageable ?

Dans la littérature, quelques études ont considéré cette question, et le lien entre endommagement et le signal résistif était creusé. Zhang et al ont considéré l'apparition de l'endommagement comme des coupures des lignes de courant et ont ainsi émis une relation entre avancée de fissures (essais de DCB) et variation de la résistance électrique du matériau. Toutefois, plusieurs autres auteurs pointent l'impossibilité de suivre les fissures dans les zones riches en résine avec cette méthode, notamment dans le cas de composites à renfort carbone (fibres conductrices) [9, 10].

En prenant en compte toutes ces considérations, notre étude tire son originalité de principalement :

- La fonctionnalisation des composites par nanocharges de carbone, et son potentiel rôle dans le passage d'information dans la zone de matrice, supposée être isolante dans les autres cas.
- La confrontation de différentes techniques d'instrumentation : émission acoustique (EA), la corrélation d'image numérique (CIN) et la microscopie in situ (μ -in situ) avec la nouvelle technique de suivi par la variation de la résistance électrique.

Comme cité auparavant, le travail de mise en œuvre des composites ainsi que la caractérisation électrique a été mené dans des travaux précédents [4, 5]. Sur cette base, l'évaluation de la méthode

piézorésistive en comparaison avec les autres moyens de multi-instrumentation sera donc menée sur les matériaux déjà développés. Une étude comparative serait entreprise en fonction le taux et le type de nanocharges (CB et CNT).

2. Matériaux, matériel et méthodes

Les matériaux composites nanochargés de notre étude ont été fabriqués par la méthode appelée ‘film stacking’. Le renfort est un tissu carbone satin de 5 (500g/m²). La résine est du polyamide 6 vierge et nanochargé mise sous forme de films par l’extrusion à racle (extrusion cast). Le nombre de plis par composite est de six donnant un taux de fibre autour de 50%. Au final, les composites de l’étude ont été fabriqués à partir du polyamide 6 vierge (matériau de référence), polyamide 6+8wt% de CB, polyamide 6 + 2.5wt% de CNT. La démarche expérimentale de fabrication a fait l’objet d’un brevet national [5], expliquant le processus de fabrication. Le process est résumé dans la figure 2.

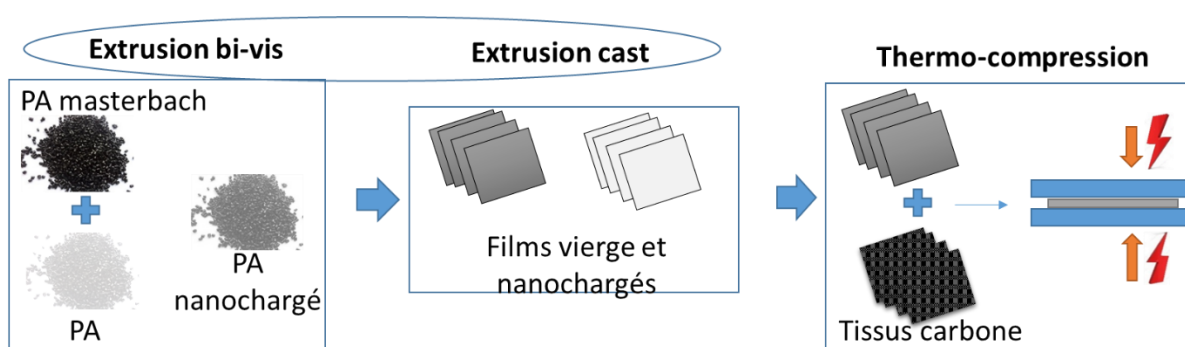


Fig. 2. Processus globale de fabrication des composites de l’étude.

A partir des matériaux composites ainsi fabriqués, des éprouvettes de traction selon la norme NF EN ISO 527-7 ont été découpées et préparées en fonction des techniques d’instrumentation choisies :

- CIN : un mouchetis de qualité suffisante a été effectué et systématiquement testé avant chaque essai. La condition est de respecter un nombre de marqueurs minimal de trois par pixel.
- μ -insitu : La tranche des éprouvettes polies pour permettre d’effectuer des observations au microscope pendant des essais mécanique.
- La variation de la résistance électrique : le branchement des électrodes de récupération du signal électrique traversant l’éprouvette pendant l’essai mécanique et servant à mesurer l’évolution de la résistance électrique.

La figure 3 présente un exemple d’éprouvette préparée pour l’essai multi-instrumenté. Celles-ci sont coupés à la taille de 250*20*3mm³. Tous les échantillons ont été doté de talons isolants (composite verre/époxy de 0,5 mm d’épaisseur) couvrant une surface de 50x20 mm² du matériau de chaque côté. Les matériaux testés sont exposés à des cycles de traction tout en étant traversés par un courant continu (200 μ A). Le courant de mesure étant faible, le réchauffement des matériaux par effet Joule est évité. Le circuit de mesure de la résistance électrique est un circuit à 4 points, permettant de s’affranchir de la résistance de contact. La partie de l’échantillon en contact avec la machine de traction est isolée par les talons en verre/époxy. La contrainte mécanique consiste en cycles incrémentés de charge-décharge avec un maintien d’une minute à chaque phase et une augmentation de 3000 N à chaque cycle jusqu’à la rupture de l’échantillon.

Le montage d'émission acoustique a été utilisé comme l'outil principal pour la surveillance de l'endommagement. Deux capteurs (MISTRAS PAC MICRO-80) en contact avec la face supérieure et inférieure de l'éprouvette selon son axe médian ont été mis en place. La distance entre les deux transducteurs était fixée à 120 mm). Le seuil AE était d'environ 40 dB et le gain de 40 dB (amplificateur MISTRAS[®]). Les paramètres de synchronisation utilisés sont présentés dans le tableau 2. Le traitement des données a été effectué à l'aide du logiciel AEWIN[®].

La déformation a été mesurée par la technique de corrélation d'images numériques (CIN) afin d'éviter de modifier la réponse électrique du matériau par les méthodes de mesures avec contact : jauges de déformation classiques ou d'un extensomètre. L'angle stéréo entre les deux caméras était d'environ 19 °. Des caméras ALLIED VISION TECHNOLOGIES (2048 * 2048 pixels) ont été utilisées avec des objectifs Xenoplan (2.0 / 28mm-0901) de Schneider Optics. Un calibrage a été effectué entre les deux caméras de chaque système (en enregistrement plan et hors plan), sur une distance de 200 mm et 355 mm respectivement. Pour le traitement des données, nous avons utilisé le logiciel VIC3D[®]. La pertinence et la bonne qualité du mouchetis ont été systématiquement contrôlées avant le début du test. Les valeurs de déformation ont ensuite été extraites à l'aide d'une jauge virtuelle d'environ 20*40 mm² et de 3*40 mm² pour les caméras frontales et latérales.

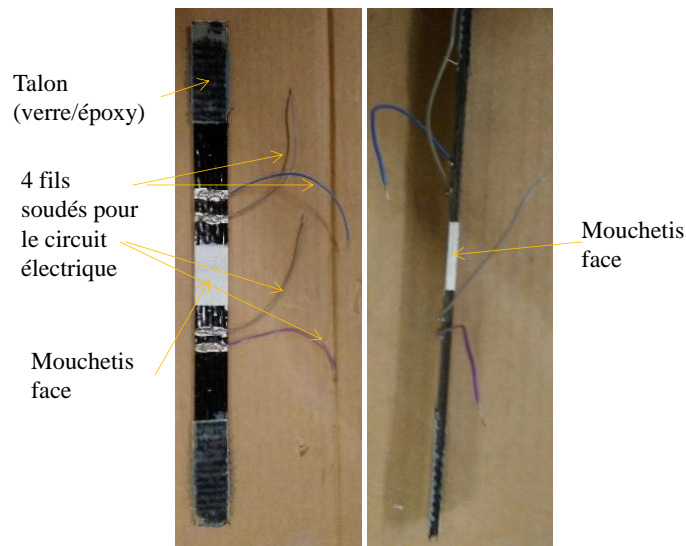
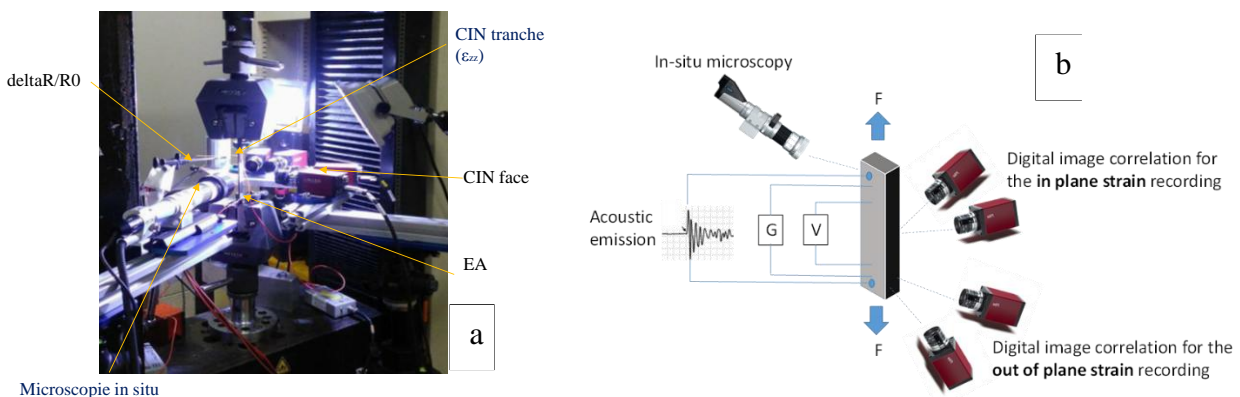


Fig. 3.Éprouvettes préparées pour un essai multi-instrumenté.

L'essai de traction est effectué sur une machine instron1186 rétrofittée Zwick/Roell dotée d'une cellule de force de 200kN. La vitesse de la sollicitation a été fixée à 1mm/min. Les figures 4 (a) et (b) résument la multi-instrumentation déployée pour les essais mécaniques de traction.

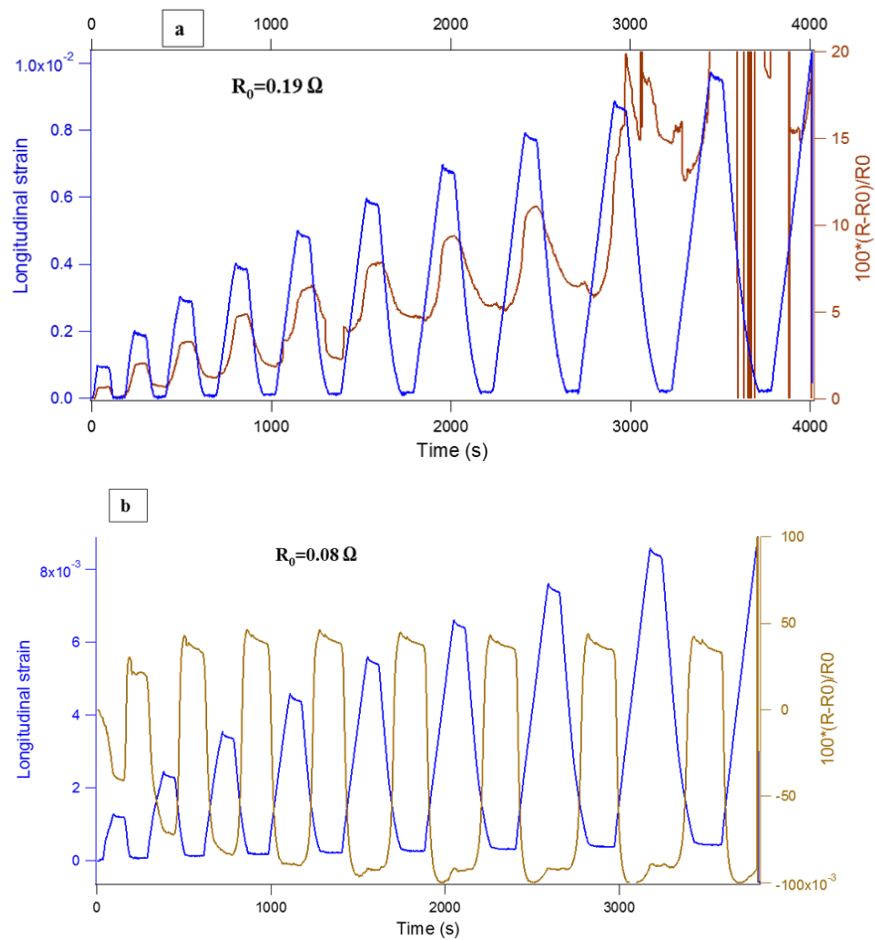


Microscopie in situ

Fig. 4. La disposition des composants de la multiinstrumentation : corrélation d'image numérique (CIN), émission acoustique (EA), microscopie in-situ (μ -in-situ) et variation de la résistance électrique (a) photo réelle et (b) schématisation.

3. Résultats et discussions

Les figures 2 (a) et (b) contiennent les résultats obtenus lors d'un essai de compression avec la variation de la contrainte mécanique en présence des trois composantes de la déformation moyenne mesurées par CIN. La première constatation à tirer de ces courbes est que la déformation de cisaillement est de moindre importance comparée aux deux autres composantes longi et transverse. Ceci



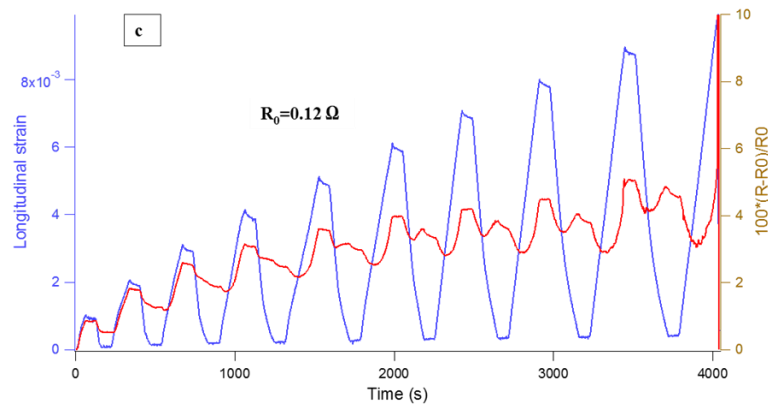


Fig. 5. Cycles de charge décharge : déformation et résistance électrique pour les matériaux (a) référence, (b) 2.5%CNT et (c) 8%CB.

Les figures 5 présentent la variation de la résistance électrique et la déformation longitudinale au cours des essais de charge décharge pour les matériaux de l'étude (vierge, 8wt%CB et 2.5%CNT). Ces résultats montrent que la résistance électrique suit celle du chargement mécanique pour tous les matériaux. Néanmoins, il est clair qu'il existe une différence de réponse électrique lors de ces essais selon la présence ou non des nanocharges.

Pour le matériau de référence (figure 5.a), la résistance électrique suit la variation de la contrainte mécanique, en particulier pour les quatre premiers cycles de chargement. La résistance électrique varie dans la plage de 0 à 5% par rapport à sa valeur initiale ($0,19 \Omega$). À partir du cinquième cycle de chargement, nous observons un signal électrique non exploitable. À la fin du chargement (les derniers cycles de chargement), le signal de résistance électrique est complètement flouté. Nous rappelons dans ce cas que le signal électrique est porté principalement par les fibres de carbone. Pour cette seconde partie de l'expérience, la résistance électrique varie entre 2,5 et 15% de sa valeur initiale.

Pour le matériau à 2,5% CNT (figure 5.b), on note une réponse électrique très sensible à l'évolution de la contrainte mécanique (à partir de $0,08 \Omega$ pour atteindre -100% à la fin des essais). Cependant, pour ce matériau, nous remarquons l'apparition d'une piézorésistivité négative. Ce phénomène consiste en une baisse de la résistance électrique quand la contrainte mécanique augmente. Des chercheurs ont lié cette propriété aux CNT. En effet, ces nanocharges sont responsables de la percolation électrique par effet Tunnel. Les croisements d'électrons ne se produisent pas par contact physique, mais par un «saut de pontage» entre deux nanocharges séparées par un intervalle résistif (polymère). Cette piézorésistivité inversée a été relayée dans la littérature dans plusieurs cas [11, 12]. Une autre constatation concernant ce matériau est la faible sensibilité aux dommages. Cette réponse est assez similaire à une jauge de déformation. Cependant, à partir du sixième cycle de charge (300 MPa), la réponse résistive semble saturer à un niveau minimum (correspondant au niveau de contrainte maximal). Pour les travaux futurs, il serait intéressant de fabriquer des matériaux à partir de taux de CNT plus bas. Choisir des taux de CNT autour du seuil de percolation électrique pourrait améliorer la sensibilité du matériau aux fissures se produisant lors des essais mécaniques [9, 13, 14].

Pour le matériau à 8% CB (figure 5.c) et pour le début des essais (jusqu'au quatrième cycle de chargement), on observe un comportement similaire pour la variation de résistance électrique par rapport au matériau de référence (figure 5.a). La résistance électrique de ce matériau (8% en poids de CB) suit les variations de contrainte mécaniques. La plage de résistance électrique varie entre 0

et 4% de la valeur de résistance initiale ($0,12 \Omega$). Toutefois, il existe une différence entre les deux matériaux pendant les phases de maintien de la contrainte. Pour le matériau de référence, la résistance électrique varie indépendamment du maintien de la contrainte/déformation. En revanche, pour le matériau 8% CB, la résistance électrique est sensible même à cette légère variation. Un autre fait important avec ce matériau est l'apparition d'un deuxième pic de résistance électrique à partir du cinquième cycle de chargement. Ce deuxième pic se produit à la phase de déchargement de chaque cycle. Cette réponse électrique est indépendante de la contrainte mécanique. De plus, la plage maximale de variation de résistance électrique est presque 50% celle de la référence. Ce fait est lié à la conductivité plus élevée du composite nanochargé, ce qui signifie des voies de courant plus redondantes. Même dans la phase endommageable, la résistance du matériau nanochargé varie mais ne dépasse pas 10%. Contrairement au composite de référence, avec une variation de résistance électrique vers les 20%.

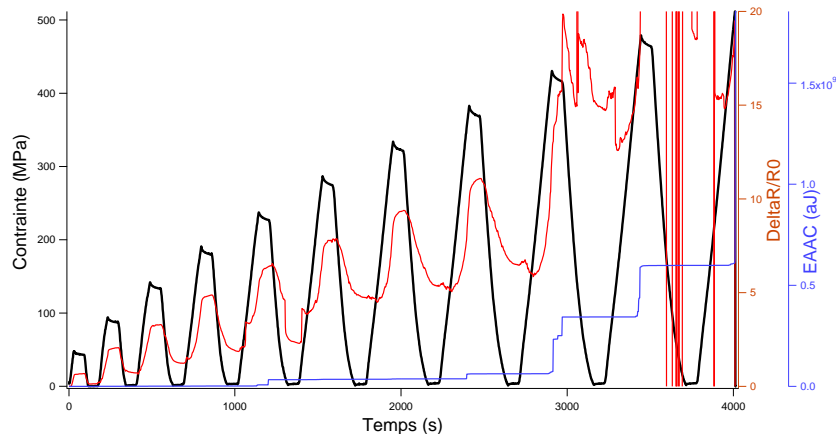


Fig. 6. Variation de la résistance électrique, la contrainte mécanique et Energie Acoustique Absolue Cumulée (EAAC) pour le matériau de référence.

La figure 6 représente l'activité acoustique en amplitude, la contrainte et la variation de la résistance électrique au cours de l'essai de charge décharge pour le matériau de référence. On remarque que le signal électrique se perd vers la fin de l'essai notamment pour les trois derniers cycles avant rupture. La mesure de la résistance commence par se bruyter avant de se perdre totalement. Le début de cette réponse chaotique coïncide avec une forte activité acoustique (Énergie Acoustique Absolue Cumulée EAAC). Cette dernière présente un saut important qui dénote d'un endommagement majeur dans le matériau. Cet endommagement aurait pour conséquence d'affecter les chemins de courant électrique ce qui se traduit par une perte de signal électrique.

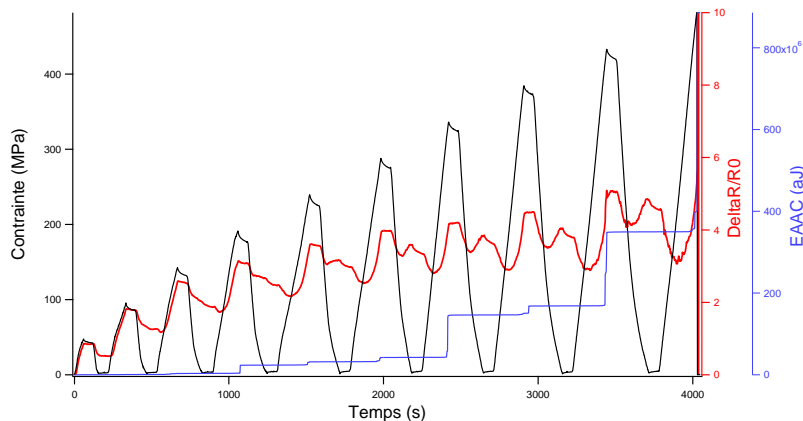


Fig. 7. Variation de la résistance électrique, la contrainte mécanique et Energie Acoustique Absolue Cumulée (EAAC) pour le matériau 8wt%CB.

Dans le cas du matériau composite à 8wt.% de NC, le précédent phénomène n'est pas observé. Le signal électrique continue d'évoluer convenablement jusqu'à la ruine complète de l'éprouvette (Fig 7). Et cela malgré une activité très importante de l'émission acoustique qui dénote d'endommagement sévère dans le matériau. Il semblerait que les nanocharges de carbones assurent le passage du courant dans le matériau malgré l'existence d'endommagements importants.

A ce stade de l'analyse, on peut dire que le signal en résistance suit bien la contrainte mécanique appliquée au matériau. Si on regarde de près les cycles de résistance électrique du matériau à 8wt%, on note qu'à partir de 250 MPa (troisième cycle de chargement) la résistance ne décroît pas de manière monotone lors de la phase de décharge comme on pourrait s'attendre. Elle présente une reprise d'activité caractérisée par une augmentation alors que le matériau est en phase d'être totalement déchargé.

Les observations microscopiques nous ont permis de confirmer la présence de fissures de type délaminage. Au bout du deuxième cycle de chargement mécanique (100MPa), les fissures commencent à apparaître. Ces fissures sont fines et difficilement décelables (Fig. 8). Le pic de résistance électrique commence à se manifester pendant la phase de décharge du second cycle (AE non négligeable). Au bout du troisième cycle (150MPa), les fissures commencent à devenir plus larges et plus longues. Ceci est accompagné d'un pic plus apparent de la résistance électrique.

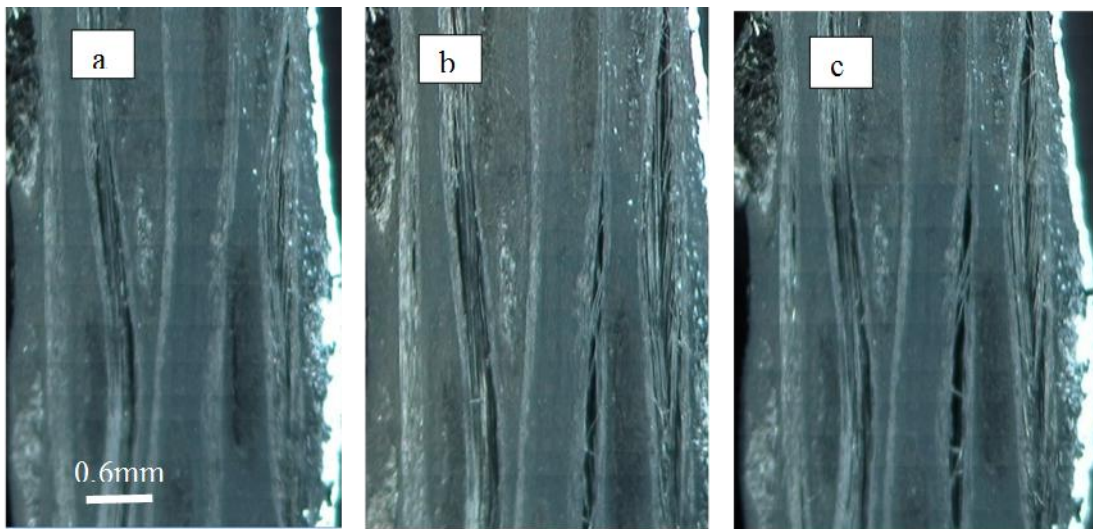


Fig. 8. Observations in situ du composite à 8wt.% de NC à (a) 150MPa (b) 300MPa (c) 350MPa.

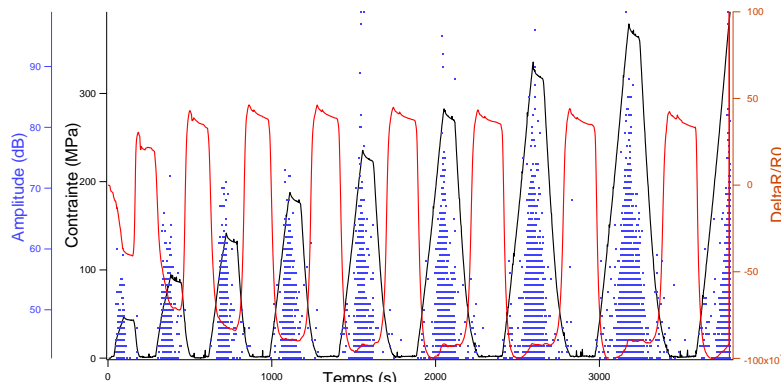


Fig. 9. Variation de la résistance électrique, la contrainte mécanique et l'amplitude acoustique pour le matériau à 2.5wt%CNT.

La figure 9 représente l'activité acoustique en amplitude, la contrainte et la variation de la résistance électrique au cours de l'essai de charge décharge pour le matériau à 8%CNT. En analysant ces cycles, la première remarque qu'on fait est que la réponse électrique du matériau n'est pas affectée par la manifestation des endommagements signalée par l'activité acoustique en amplitude. La résistance électrique est quasi constante en présence des salves d'amplitude non négligeables. L'activité de l'émission acoustique est intense pendant les phases de l'augmentation de la contrainte. Mais contrairement au matériau à 8wt% de NC, cette activité est absente pendant les phases de la décharge. Cela traduit des scénarios d'endommagement différents.

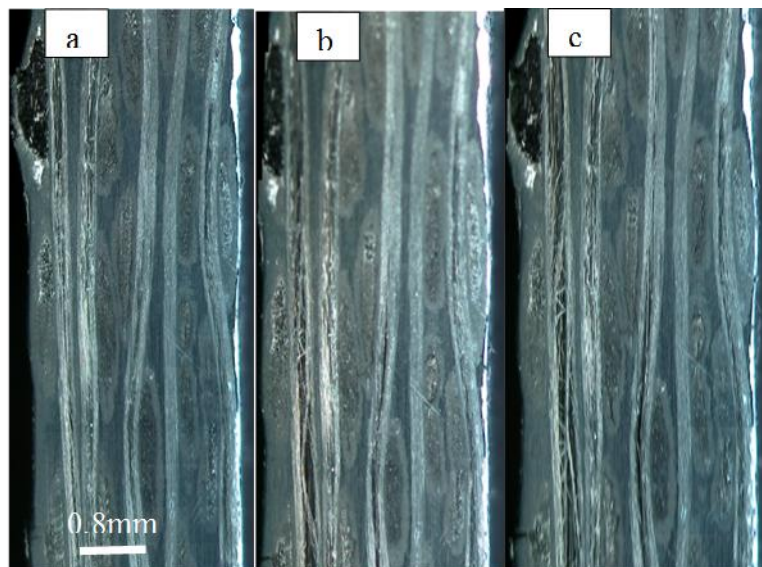


Fig. 10. Observations in situ du composite à 2.5wt.% de NTC à (a) 50MPa (b) 200MPa (c) 300MPa.

Les observations microscopiques montrent quand même que les fissures verticales sont présentes lors de l'essai mécanique. Ces fissures commencent à devenir nettes et larges à partir de 200MPa (Fig 10). La réponse résistive ne semble pas traduire les endommagements dans le matériau et répond presque de la même manière que ϵ_{yy} mesurée sur la face. Avec comme différence que cette dernière ne se sature pas à la fin de l'essai. Ce qu'on suppose dans ce cas est que vu l'amélioration importante de la conductivité électrique de ce matériau [4], l'endommagement n'affecte pas les chemins de courant. La variation de la résistance électrique de ce matériau n'est pas sensible à la coupure de quelques chemins de courant.

4. Conclusion

La relation entre la sollicitation mécanique et la résistance électrique des matériaux a été mise en relief. L'effet des nanocharges ainsi que l'état de santé des composites ont été étudiés. Les principales constatations suite à ces essais sont les suivantes.

- La variation de la résistance électrique au cours de l'essai mécanique pourrait être un indicateur de l'état de chargement mécanique. Cette grandeur semble être une piste prometteuse dans le suivi de l'état de santé des composites.
- Le taux de nanocharges ajouté au matériau influe directement sur la qualité du signal électrique sous chargement mécanique.

- Les fibres de carbone permettent de détecter la variation de la sollicitation mécanique (matériau 0wt% de NC). Avec l'apparition et l'évolution de l'endommagement, le signal électrique traversant ce matériau devient bruité et se perd progressivement. Ceci fait la différence avec les matériaux nanochargés avec un taux de nanocharges adéquat (à 8wt% par exemple) qui permettent le suivi de la variation de la sollicitation mécanique ainsi qu'une indication sur l'endommagement (spécialement le délaminage).

Ce qu'on peut retenir suite à cette partie du travail est qu'il faut trouver un compromis entre améliorations des propriétés électriques et la sensibilité des matériaux à la déformation mécanique et à l'endommagement. L'idéal serait de se placer à un taux de nanocharges avoisinant la percolation et suffisamment élevé pour faire passer le courant.

Références

X

1. Gibson RF (2010) A review of recent research on mechanics of multifunctional composite materials and structures. *Compos Struct* 92:2793–2810
2. González C, Vilatela JJ, Molina-Aldareguía JM, Lopes CS, LLorca J (2017) Structural composites for multifunctional applications: Current challenges and future trends. *Prog Mater Sci* 89:194–251
3. Sairajan KK, Aglietti GS, Mani KM (2016) A review of multifunctional structure technology for aerospace applications. *Acta Astronaut* 120:30–42
4. Hamdi K, Aboura Z, Harizi W, Khellil K (2018) Improvement of the electrical conductivity of carbon fiber reinforced polymer by incorporation of nanofillers and the resulting thermal and mechanical behavior. *J Compos Mater* 52:1495–1503
5. Aboura Z, HAMDI K, Harizi W, Khellil K (2016) Procédé De Fabrication D'une Pièce En Matériau Composite Renforcé. 36
6. Todoroki A, Samejima Y, Hirano Y, Matsuzaki R (2009) Piezoresistivity of unidirectional carbon / epoxy composites for multiaxial loading. *Compos Sci Technol* 69:1841–1846
7. Pissis P, Georgousis G, Pandis C, Georgiopoulos P, Kyritsis A, Kontou E, Micusik M, Czanikova K, Omastova M (2015) Strain and Damage Sensing in Polymer Composites and Nanocomposites with Conducting Fillers. *Procedia Eng* 114:590–597
8. Vertuccio L, Vittoria V, Guadagno L, De Santis F (2015) Strain and damage monitoring in carbon-nanotube-based composite under cyclic strain. *Compos Part A Appl Sci Manuf* 71:9–16
9. Kupke M, Schulte K, Schu R (2001) Non-destructive testing of FRP by d . c . and a . c . electrical methods. *Compos. Sci. Technol.* 61:
10. Todoroki A, Tanaka M, Shimamura Y (2005) Electrical resistance change method for monitoring delaminations of CFRP laminates: Effect of spacing between electrodes. *Compos Sci Technol* 65:37–46
11. Luo S, Obitayo W, Liu T (2014) SWCNT-thin-film-enabled fiber sensors for lifelong structural health monitoring of polymeric composites - From manufacturing to utilization to failure. *Carbon N Y* 76:321–329
12. Wang S, Chung DDL (1999) Apparent negative electrical resistance in carbon fiber composites. *Compos Part B Eng* 30:579–590
13. Boger L, Wichmann MHG, Meyer LO, Schulte K (2008) Load and health monitoring in glass fibre reinforced composites with an electrically conductive nanocomposite epoxy matrix. Available online www.sciencedirect.com *Compos Sci Technol* 68:1886–1894
14. Zhang H, Liu Y, Huo S, Briscoe J, Tu W, Picot OT, Rezai A, Bilotti E, Peijs T (2017) Filtration effects of graphene nanoplatelets in resin infusion processes : Problems and possible solutions. *Compos Sci Technol* 139:138–145