



HAL
open science

Etude de la variabilité sur des composites carbone/époxy stockés

Ahmed El-Habib, Annette Roy, Cédric Courseault, Sylvain L'Heritier, Yves
Nadot

► **To cite this version:**

Ahmed El-Habib, Annette Roy, Cédric Courseault, Sylvain L'Heritier, Yves Nadot. Etude de la variabilité sur des composites carbone/époxy stockés. 17èmes Journées Nationales sur les Composites (JNC17), Jun 2011, Poitiers-Futuroscope, France. pp.91. hal-00598138

HAL Id: hal-00598138

<https://hal.science/hal-00598138>

Submitted on 4 Jun 2011

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Etude de la variabilité sur des composites carbone/époxy stockés

Study of variability on carbon/epoxy composites stored

Ahmed El-habib¹, Annette Roy¹, Cédric Courseault¹, Sylvain L'heritier¹, Yves Nadot²

Email : a.elhabib@crittmatériaux.fr

1 : CRITT MATERIAUX POITOU-CHARENTES
ZA Beligon, rue Maurice Mallet, 17300 Rochefort

2 : Institut PPRIME - Département Physique et Mécanique des Matériaux
ENSMA - Téléport 2 - 1 Avenue Clément Ader - BP 40109 - 86961

Résumé

L'aéronautique mise de plus en plus sur une utilisation en masse des matériaux composites qui apportent simultanément légèreté (donc diminution des coûts énergétiques) et rigidité aux structures par rapport aux matériaux métalliques classiques. Toutefois il est difficile de modéliser la durabilité de ces matériaux à cause de la complexité des mécanismes de vieillissement et d'endommagement. Ces mécanismes sont très divers et varient en fonction de la nature du polymère, des conditions de vieillissement, des conditions de mise en œuvre mais aussi des contraintes environnementales et mécaniques capables de dégradations irréversibles [1].

Dans le cadre de cette étude, nous disposons d'environ 850 échantillons (format A4) constituant une base d'empreintes de plaques stratifiées composites utilisées pour la fabrication de différents modèles d'aéronefs légers lors de ces treize dernières années. Ces stratifiés carbone/époxy de drapage $+45^\circ/-45^\circ$ et $0^\circ/+60^\circ/-60^\circ$ ont été stockés dans des conditions supposées à température ambiante et à pression atmosphérique. L'objectif est d'étudier la variabilité des différentes caractéristiques mécaniques et physico-chimiques de ces plaques suivant les années afin de distinguer au mieux les paramètres pertinents caractérisant l'état vieilli pour établir un lien entre les conditions de stockage, l'évolution des propriétés mécaniques et d'éventuelles modifications des propriétés physico-chimiques.

Abstract

Aeronautics bet more on a mass use of composite materials which bring at the same time lightness (thus decrease of the energy costs) and rigidity to structures compared to conventional metallic materials. However it is difficult to model the durability of these materials because of the complexity of the mechanisms of aging and damage. These mechanisms are very diverse and vary according to the type of polymer, aging and implementation conditions, but also environmental and mechanical requirements which are able to irreversible damages [1].

In this study, we have approximately 850 samples forming a print base of laminated composite panels used for the manufacturing of various models of light aircrafts during the last thirteen years. These carbon/epoxy laminates with layup $+45^\circ/-45^\circ$ and $0^\circ/+60^\circ/-60^\circ$ were stored in conditions assumed to room temperature and atmospheric pressure. The objective is to study the variability of the various mechanical and physicochemical characteristics of these panels according to years to distinguish the most relevant parameters characterizing the aged state to establish a link between storage conditions, variation of the mechanical properties and the potential changes in physicochemical properties.

Mots Clés : vieillissement, durabilité, variabilité, stratifié

Keywords : aging, durability, variability, laminate

1. Introduction

Les stratifiés carbone/époxy ont l'avantage de présenter une grande rigidité et une haute résistance mécanique. Pour mieux exploiter toutes ces capacités sur le long terme, plusieurs études ont été menées telles que : l'établissement des différentes lois de comportement des stratifiés composites et l'amélioration des processus de fabrication. Dans notre cadre d'étude, le processus utilisé est l'imprégnation à la main puis compression sous vide, le tout à la température ambiante.

L'objectif principal de cette étude est d'analyser la variabilité des caractéristiques mécaniques et physico-chimiques sur plusieurs plaques stratifiées composites suivant leurs dates de fabrication et leurs types de drapage. Dans un premier temps, nous présenterons le matériau étudié. Dans un

second temps, les méthodes d'analyse utilisées seront décrites tout en précisant les propriétés retenues pour l'étude de variabilité. Enfin les résultats obtenus seront exploités et une analyse critique sera apportée en vue de dégager une tendance quant à la variabilité des différentes caractéristiques du matériau.

2. Matériaux et techniques expérimentales

Le matériau étudié est fabriqué au même moment et dans les mêmes conditions que les structures d'aéronefs légers associées depuis ces treize dernières années.

2.1 Matériaux étudiés

Deux types de tissu sont utilisés pour la fabrication des stratifiés que nous étudions :

- Un tissu biaxial obtenu à partir de deux nappes de fibres de carbone unidirectionnelles drapées à $+45^\circ/-45^\circ$, de grammage de 440g/m^2 et d'une épaisseur d'environ 0.5 mm .
- Un tissu triaxial composé de trois nappes de fibres de carbone à $0^\circ/+60^\circ/-60^\circ$, de grammage de 760g/m^2 et environ 0.8 mm d'épaisseur.

Les nappes de chaque tissu sont maintenues par un fil de liage et le composite final est obtenu par imprégnation des tissus à la main d'une matrice époxy suivi d'une compression sous vide à la température ambiante. L'écartement des fils de liage est de 0.4 mm pour le tissu biaxial et 0.5 mm pour le triaxial. En plus des nappes de fibres, les stratifiés contiennent une fine couche de mat de verre et sur certains une couche de gel coat.

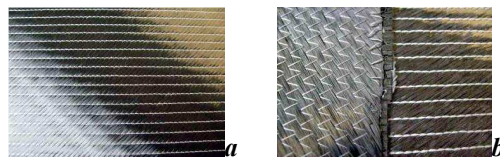
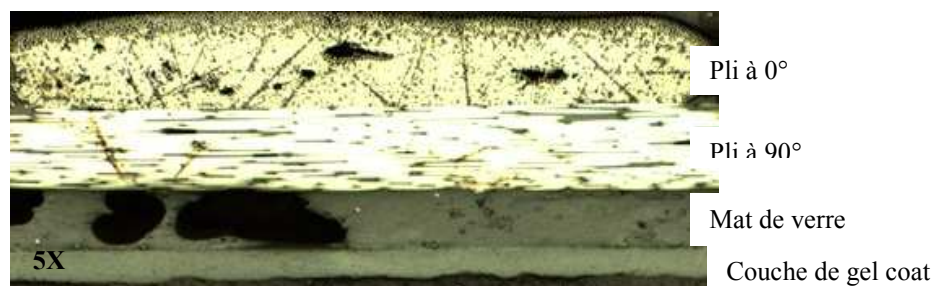


Fig. 1 : a. tissu $+45^\circ/-45^\circ$ - b. tissu $0^\circ/+60^\circ/-60^\circ$



c. Vue microscopique plaque $+45^\circ/-45^\circ$ dans le sens $0^\circ/90^\circ$

2.2 Essais de traction

Dans le cadre de cette étude, nous avons choisi nos échantillons sur certaines années. L'objectif est de déterminer la contrainte à la rupture avec ou sans gel coat afin de suivre son évolution suivant les années de fabrication. L'année 2005 est choisie arbitrairement pour étudier la variabilité de la contrainte à la rupture suivant les saisons. Les contraintes à la rupture de différentes éprouvettes avec ou sans gel coat sont simultanément comparées pour déterminer l'influence de ce dernier.

Dans le cadre de cette étude nous présentons uniquement les résultats des essais issus des plaques de drapage $0^\circ/+60^\circ/-60^\circ$. Une plaque est prélevée tous les trois ans (de 1997 à 2008) puis quatre plaques (une par saison) pour l'année 2005.

Date de fabrication	1997	1999	2002	18/01/2005	22/04/2005	19/07/2005	18/10/2005	30/05/2008
Gel coat	oui	oui	oui	non	oui	oui	non	non

Tab. 1. Plaques pour essais traction et DSC

Dimension des éprouvettes :

Suivant la norme ISO 527-4, les éprouvettes doivent présenter comme dimensions : 250 mm X 25 mm et d'une épaisseur minimale de 2 mm. Etant donnée la faible épaisseur de nos éprouvettes (0.5 mm pour les 0°/90° et 0.9 mm pour les 0°/+60°/-60° environ), nous avons effectué une série d'essais de comparaison dont le but est d'arriver à des dimension d'éprouvettes de 100 mm x 25 mm. L'intérêt d'avoir des dimensions réduites est la possibilité d'effectuer un maximum d'essais tout en prélevant le moins de matière sur les plaques.

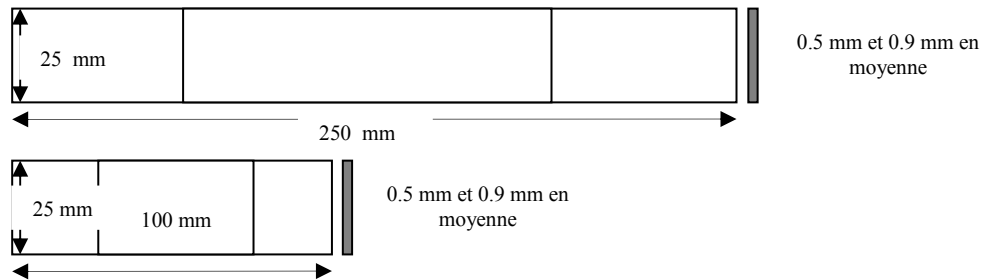


Fig. 2. Dimensions des éprouvettes. en haut, éprouvette normée; en bas, non normée

Deux plaques de format A4, de drapage +45°/-45° et 0°/+60°/-60° nous ont servi à faire ces essais. Sur chaque plaque, six éprouvettes sont prélevées, trois normées et trois autres hors normes. Les éprouvettes sont découpées à la scie diamant puis recuites à 60°C pour obtenir les mêmes structures internes des échantillons et accélérer le processus de collage des talons (uniquement pour l'étude dimensionnelle).

Les éprouvettes sont toujours prélevées à 10 mm des bords et auront des plis orientés à 0°/90° et 0°/+60°/-60° (0° étant le sens de chargement).

Au cours des essais, en plus de l'extensomètre "macro", des jauges de déformation de 6 mm de longueur de grille sont utilisées. L'utilisation de jauges et d'un extensomètre permet de vérifier la fiabilité de ce dernier lorsqu'on diminue l'écartement des couteaux.

Les essais sont réalisés avec une vitesse de chargement de 2 mm/min et à une température de 23°C. Les tableaux suivants donnent les valeurs récapitulatives des forces, contraintes et modules apparents mesurés lors des essais :

N° Epreuve	Fmax (N)	Cmax (Mpa)	E (Mpa)
1	11747	438	35157
2	8741	349	35816
3	9666	382	37413
Moyenne	10051	390	36129

N° Epreuve	Fmax (N)	Cmax (Mpa)	E (Mpa)
1	11528	459	35946
2	11351	459	37715
3	9946	365	32589
Moyenne	10942	428	35417

Tab. 2. à gauche, résultats pour les éprouvette normées; à droite, pour les non normées drapage : 0°/+60°/-60°, testées à 2mm/mn et à 23°C

En moyenne, les valeurs caractéristiques issus des essais de traction restent proches avec des écarts relatifs de 8.14% pour la force à la rupture, 8.87% pour la contrainte à la rupture et 1.97% pour le module apparent.

N° Epreuve	Fmax (N)	Cmax (Mpa)	E (Mpa)	N° Epreuve	Fmax (N)	Cmax (Mpa)	E (Mpa)
1	10172	668	49844	1	12473	734	48483
2	10416	670	54638	2	10457	717	52273
3	-	-	-	3	11252	687	48146
Moyenne	10294	669	52241	Moyenne	11394	713	49634

Tab. 3. à gauche, résultats pour les éprouvette normées; à droite, pour les non normées drapage : 0°/90°, testées à 2mm/mn et à 23°C

Les écarts relatifs des moyennes pour les deux types d'éprouvettes sont les suivants : 9.65% pour la force à la rupture, 6.17% pour la contrainte à la rupture et 5% concernant le module apparent.

Au vue des faible écarts enregistrés sur les caractéristiques en traction pour les deux types de drapage, nous retiendrons donc pour la suite de l'étude les dimensions d'éprouvettes réduites de 100 mm x 25 mm.

Mesures des épaisseurs :

Nous avons décidé de remesurer les épaisseurs à partir d'un microscope optique, ceci après les essais et en prenant soin d'effectuer les observation sur des zones non endommagées à savoir, la partie de l'éprouvette se trouvant entre les talons afin d'éviter une surestimation de ces valeurs dû à la présence du fil de liage.

Avec une zone d'observation de 2 mm avec un agrandissement 5X, nous avons la possibilité d'évaluer les épaisseurs des éprouvettes en dehors du fil de liage et déterminer l'épaisseur du gel coat (dans le cas où il est présent). Cela permet d'évaluer l'influence de ce dernier sur des plaques d'une même année.

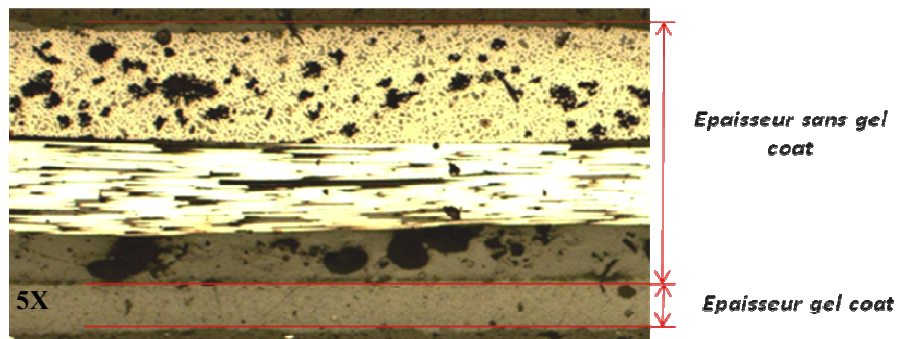


Fig. 3. Mesure épaisseur en microscopie optique

2.3 Differential Scanning Calorimetry (DSC)

La technique de DSC est utilisée pour étudier les transitions thermiques de la matrice époxy contenue dans les stratifiés. Cet essai permet de déterminer la température de transition vitreuse et le taux de réticulation. les essais de DSC sont réalisés sur les plaques de drapage 0°/+60°/-60° identiques à celles choisies pour les essais en traction.

Les essais de DSC sont effectuées sur la plage de température de 25°C à 300°C lors du premier passage. Un deuxième passage est effectué pour déterminer la température de transition vitreuse du composite totalement réticulé.

Le taux de réticulation sera déterminé pour un taux volumique de fibres de 60% et après essais sur la résine seule (mélange résine + durcisseur) sur une plage de température de 0°C - 300°C permettant d'obtenir l'énergie nécessaire qu'il faut apporter à la résine seule pour avoir une réticulation totale de cette dernière. Ainsi à partir de l'énergie de post-réticulation déterminée pour

chaque échantillon, nous pouvons calculer les taux de réticulation respectifs à partir de la formule suivante :

$$TR = 100 - \frac{\Delta H_{ech}}{w_r \times \Delta H_{R100\%}} \times 100 \quad (\text{Eq. 1})$$

Où ΔH_{ech} représente l'énergie de post-réticulation de chaque échantillon (J/g)
 $\Delta H_{R100\%}$, l'énergie de réticulation de la résine seule (J/g) et
 w_r , le taux massique de résine contenu dans chaque échantillon du stratifié (%).

3. Résultats

3.1 Essais de traction

La figure 5 présente l'évolution des contraintes à la rupture avec et sans prise en compte de l'épaisseur de gel coat : Si l'on ne tient pas compte de l'épaisseur du gel coat (Fig. 5.a), une croissance des contraintes maximales en moyenne est observée jusqu'en 2002, puis celles ci décroît jusqu'en 2008. Concernant les plaques présentant des épaisseurs de gel coat, les valeurs des contraintes varient suivant l'épaisseur totale de la plaque considérée. L'épaisseur de la couche de gel coat de la plaque de 1999 est de 314 micromètres alors que celle de la plaque de 2002 est de 90 micromètres. Il s'en suit donc une plus forte variation des contraintes calculées sur l'une par rapport à l'autre.

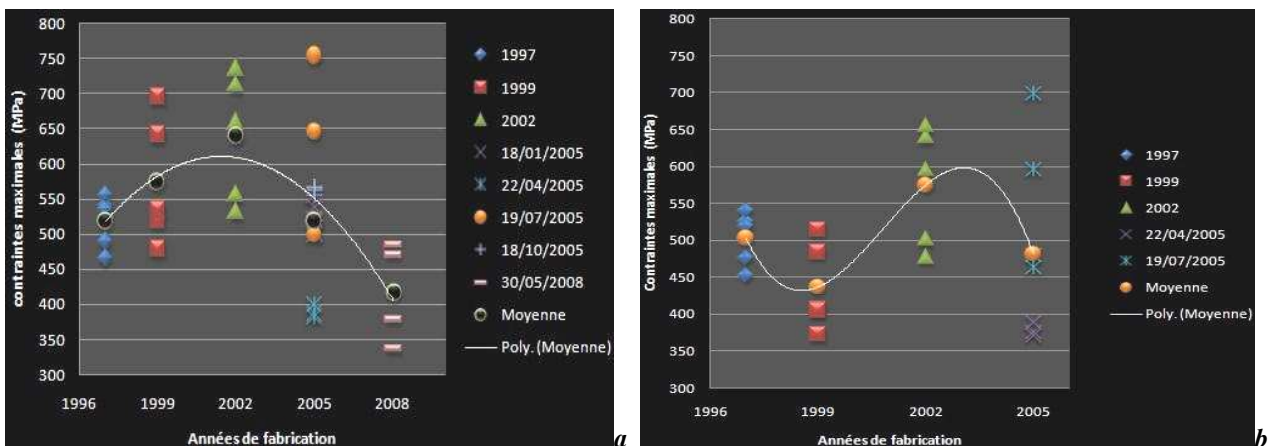


Fig. 5. Evolution des contraintes maximales : a. sans prise en compte de l'épaisseur de gel coat; b. prise en compte du gel coat dans l'épaisseur totale des éprouvettes. essais réalisés à 2mm/mn et à 23°C

Globalement une forte dispersion est observée sur les résultats issus des plaques de l'année 2005. En effet quatre plaques dont une par saison ont été choisies afin de suivre la variabilité sur la même année.

La figure 6 montre l'évolution des contraintes de ces dernières suivant les saisons avec et sans gel coat (Printemps et été) : la plus forte dispersion au sein d'une même plaque est enregistrée en été. Les hautes températures de cette saison ont pu avoir un impact lors du processus de fabrication notamment un durcissement accéléré de la matrice.

On remarque par ailleurs, suivant la même année, les contraintes à la ruptures varient aussi d'une plaque à l'autre.

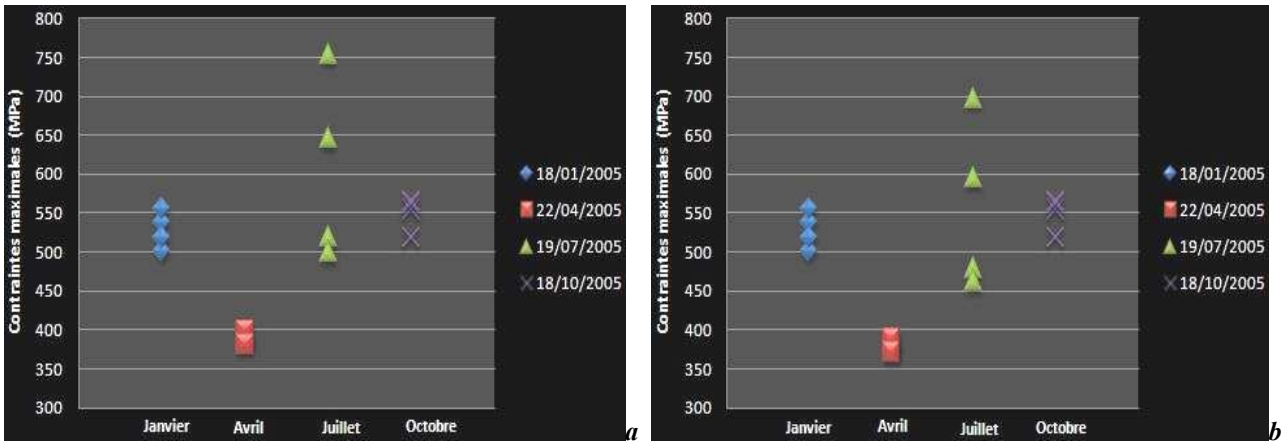


Fig. 5. Variabilité suivant les saisons : a. sans gel coat ; b. avec gel coat (uniquement plaques Avril et Juillet. essais réalisés à 2mm/mn et à 23°C

3.2 Essais de DSC

La figure 4 illustre la méthode d'exploitation des courbes obtenues après les essais de DSC. Les températures de transition vitreuse (Tg) sont déterminées au point milieu.

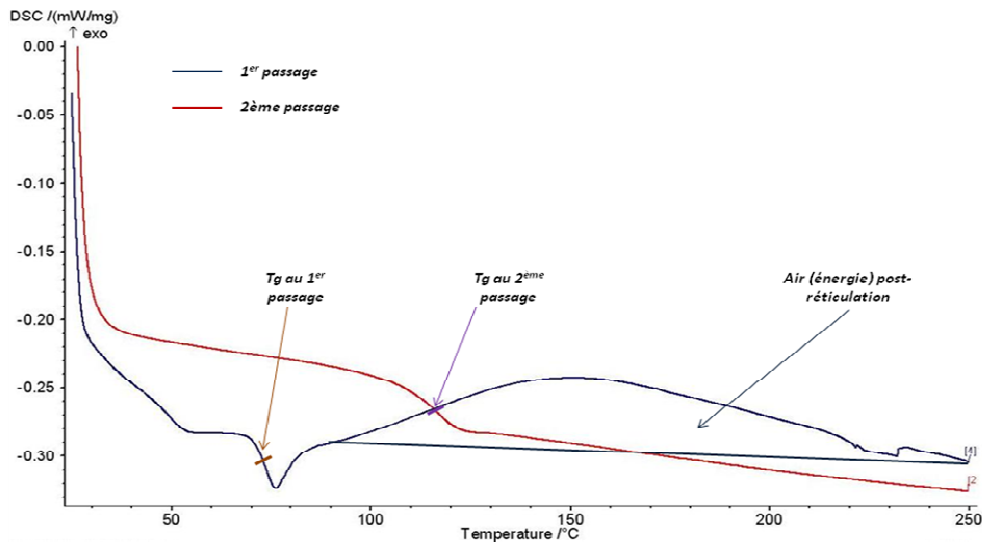


Fig. 4. Courbe de mesure DSC, échantillon 2008

Le tableau 4 résume les résultats issus des essais de DSC. Une grande reproductibilité est observée sur trois essais par plaques : celle-ci se voit surtout sur les températures de transition vitreuse que nous avons enregistrées. La plaque issue de l'année 2002 montre les plus faibles températures de transition vitreuse lors du premier comme du deuxième passage. Etant donné qu'il s'agit de la même matrice pour tous les échantillons, ceci est probablement dû à un défaut de mélange de cette dernière lors du processus de fabrication.

Date de fabrication	Air post-réticulation (j/g)	Taux de réticulation (%)	Tg 1er passage (°c)	Tg 2ème passage (°c)	Contraintes moyennes sans gel coat	Contraintes moyennes avec gel coat
1997	22,38	86,55	78 - 75,4 - 77,8	112,8	517	503
1999	29,85	82,06	76,3 - 76,5 - 75,7	112,8	574	437
2002	15,19	90,87	68,9 - 68,4 - 68,5	93	640	575
1-jan.-05	20,17	87,88	76,1 - 76 - 75,9	107,06	528	-
22-avr.-05	35,81	78,48	74,7 - 74,6 - 73,7	114,7	388	378
19-juil.-05	20,54	87,66	76,1 - 76,2 - 76,2	117,7	605	559
10-oct.-05	17,62	89,41	77,3 - 76,6 - 76,9	111,06	550	-
30-mai-08	31,47	81,09	72,1 - 71,2 - 71,8	116,9	417	417

Tab. 4. Résultats mesures DSC : température d'essais 25°C - 300°C

La figure 6 montre l'évolution de la contrainte maximale calculée sans tenir compte de l'épaisseur de gel coat, en fonction du taux de réticulation. Globalement une croissance de la contrainte avec le taux de réticulation est observée.

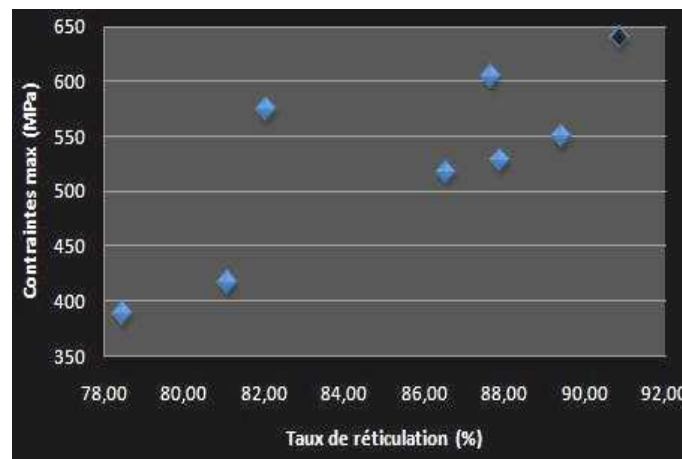


Fig. 6. Contrainte en fonction du taux de réticulation

4. Discussion

Plusieurs facteurs peuvent expliquer les grandes dispersions observées sur les essais :

- D'une plaque à l'autre, on a des épaisseurs allant de 0.7 mm à 1.2 mm et ce pour un même drapage sans gel coat; Ceci prouve une certaine influence du processus de fabrication qui peut intervenir à deux niveaux sur l'état du matériau à savoir, les taux de résine et de vide au sein du composite.
- Lors de ces mêmes mesures d'épaisseurs en microscopie optique, nous avons observé une porosité conséquente sur ces échantillons (voir figure suivante).

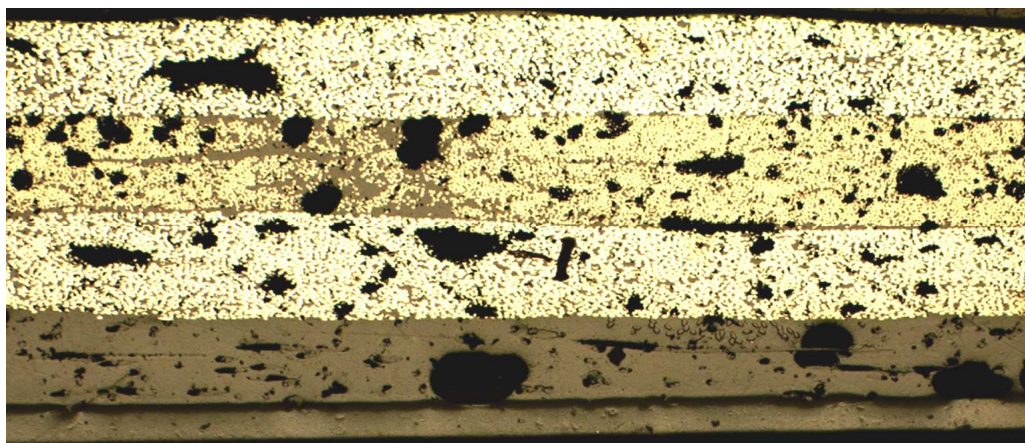


Fig. 7. Vue de la section de l'éprouvette 1 - plaque 19/07/2005

Evaluer cette porosité nous permettra de quantifier son influence sur les caractéristiques de traction de ces échantillons. En effet à partir d'un certain pourcentage volumique compris entre 0.5% et 1% suivant le matériau étudié [2], l'influence de la porosité est considérée négligeable sur le comportement du composite. En revanche pour des taux de porosité très élevés, les propriétés mécaniques du composite se trouvent affectées et plus particulièrement le cisaillement inter laminaire. De plus il est montré que la dispersion des résultats d'essais mécaniques augmentent avec le taux volumique de porosité [2]. La présence de porosité diminue à la fois le transfert d'effort entre la matrice et le renfort ainsi que la cohésion de ce dernier. Cette même porosité peut avoir d'autres conséquences comme une prise d'humidité au sein du composite et donc un vieillissement de ce dernier [1-2].

5. Conclusion

Globalement, aucune réelle tendance ne se dégage d'une plaque à l'autre suivant les années et au sein d'une même année de fabrication. Certaines plaques (1999, 2002 et 19/07/2005) présentent des contraintes à la rupture avec une forte dispersion. Ceci reste à confirmer en augmentant le nombre de plaques concernées par année et saison. c'est le cas de celle datant du 19/07/2005 dont l'écart type est de 119 MPa.

Contrairement aux essais de traction, une très bonne reproductibilité est observées sur la DSC pour des échantillons provenant d'une même plaque (tab. 4). De fortes contraintes sont enregistrées lorsque l'éprouvette provient d'une plaque présentant un taux de réticulation élevé (fig. 6).

Il faudra par la suite multiplier les essais de traction et de DSC dans la même année afin de confirmer ces résultats. Dans le cas de la DSC, il s'agira de valider ou non cette tendance montrant que la contrainte à la rupture augmente avec le taux de réticulation de la résine.

Ce travail nous a permis de soulever les différents paramètres influençant nos résultats d'essais. La suite sera dans un premier temps d'évaluer le taux volumique de porosité du matériau sous différentes méthodes : imagerie 2D, corrélation en 3D et chimiquement par attaque acide [3]. cela nous permettra de démontrer l'influence de cette porosité sur les propriétés de traction.

Références

[1] M.B. HEMAN, « Contribution à l'étude des interphases et de leur comportement au vieillissement hygrothermique dans les systèmes à matrice thermodurcissable renforcés de fibres de verre ». *Thèse de l'Université du Sud Toulon-Var*, 2008

[2] YOHANN LEDRU, « Etude de la porosité dans les matériaux composites stratifiés aéronautiques». *Thèse de l'Université de Toulouse*, 2009

[3] YOHANN LEDRU, ROBERT PIQUET, LAURENT MICHEL, FABRICE SCHMIDT et GERARD BERHNART « 2-D and 3-D void quantification with image analyses in aeronautic composite laminates». *Comptes Rendus des JNC16 Toulouse 2009*.

[4] M. VILLANUEVA, I. FRAGA, J. A. RODRIGUEZ-ANON, J. PROUPIN-CASTINEIRAS, J. L. MARTIN « Study of the influence of water absorption on different epoxy-diamine systems by DSC ». *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, Vol.87(2007)1,205–209