

Etude du comportement d'un matériau composite réalisé par injection-transfert de fibres mi longues discontinues de carbone et de résine époxyde

Investigation of the behaviour of a discontinuous medium length carbon fibres and epoxy resin composite material manufactured by injection-transfer molding process

Thomas Poumadère^{1,2}, Frédéric Lachaud², Gérard Bernhart², Robert Piquet², Florentin Berthet²

1 : Equip'Aero Techniques, Z.I. Buconis, 32600 L'ISLE JOURDAIN, France
E-mail : t.poumadere@equipaero.com

2 : Université de Toulouse ; INSA, UPS, Mines Albi, ISAE; ICA (Institut Clément Ader), 10 Avenue Edouard Belin, 31055 TOULOUSE, France
E-mail : thomas.poumadere@isae.fr, frederic.lachaud@isae.fr, gerard.bernhart@mines-albi.fr, robert.piquet@isae.fr, florentin.berthet@mines-albi.fr

Résumé

Les travaux portant sur le procédé de fabrication par injection de matériaux composites à fibres longues discontinues et à matrice thermodurcissable sont peu nombreux. Cette étude présente l'influence de la longueur des fibres sur les propriétés mécaniques en traction d'un matériau composite carbone/époxy à fibres mi longues discontinues fabriqué par un procédé d'injection-transfert. Les travaux présentés se concentrent sur des longueurs de fibres comprises entre 2 et 10mm, d'où l'appellation « fibres mi longues ».

Le travail présenté s'intègre dans un plan d'expériences plus conséquent, qui est en cours de réalisation, dans l'optique de qualifier ce procédé d'injection-transfert.

Abstract

Very few research have been carried out on discontinuous long fibers and thermosetting resin injection molding manufacturing process. This study presents the influence of the fibers length on tensile mechanical properties of a medium length carbon fibers and epoxy resin composite material manufactured by an injection-transfer molding process. The works that will be presented in this paper focus on fibers length between 2 and 10mm. This is the reason why this material is called "medium length fibers" composite.

The experiments presented in this study are a part of a larger design of experiments, in progress, which is expected to make it possible to qualify the injection-transfer molding process.

Mots Clés : procédé d'injection-transfert, fibres longues discontinues, essais de traction, optimisation de procédé

Keywords : injection-transfer process, discontinuous long fibers, tensile test, process optimization

1. Introduction

La société Equip'Aéro Technique a développé et breveté un procédé d'injection-transfert de pièces en matériaux composites à matrice organique. Il s'agit de pièces à fibres mi-longues discontinues (1-15 mm) et à matrice thermodurcissable. Les composites à fibres courtes (longueur allant de 100 µm à 1 mm) et à matrice thermoplastique sont bien connus tant d'un point de vue de leur mise en forme par injection que de celui de la prévision de leur propriétés mécaniques [1-3]. En revanche, les travaux portant sur les composites à fibres longues discontinues (dont la longueur est supérieure à 1mm) et à matrice thermodurcissable réalisés par injection sont peu nombreux [4].

Quelques études dont celle d'Odenberger et al. [5] ont toutefois montré que certains paramètres, dont la vitesse d'injection et la température du moule, avaient une influence considérable sur le profil du front de matière durant le remplissage d'un moule par compression pour des matériaux SMC (Sheet Molding Compound), constitués de résines thermodurcissables et de fibres longues continues. Or, le profil du front de matière est responsable de l'orientation des fibres dans le matériau final réticulé ainsi que d'une partie des porosités. Il est donc principalement responsable des propriétés mécaniques du matériau final.

Il est capital de déterminer l'influence des paramètres du procédé d'injection-transfert sur les propriétés mécaniques de façon à les optimiser. Pour ce faire, un plan d'expérience a été élaboré dans le but de qualifier le procédé développé par Equip'Aéro Technique. L'étude présentée ici s'insère dans ce plan d'expérience : il s'agit de la détermination de l'influence de la longueur des fibres sur les propriétés mécaniques en traction du matériau réalisé par injection-transfert.

2. Matériau et procédé utilisés

2.1 Matériau utilisé

Le matériau est constitué de fibres de carbone haute résistance (HR) et de résine époxyde. Le taux massique de fibres avant injection est de 62%.

Le moule utilisé permet de réaliser des éprouvettes rectangulaires par le procédé d'injection-transfert ayant des dimensions de 160mm x 20mm x 6mm.

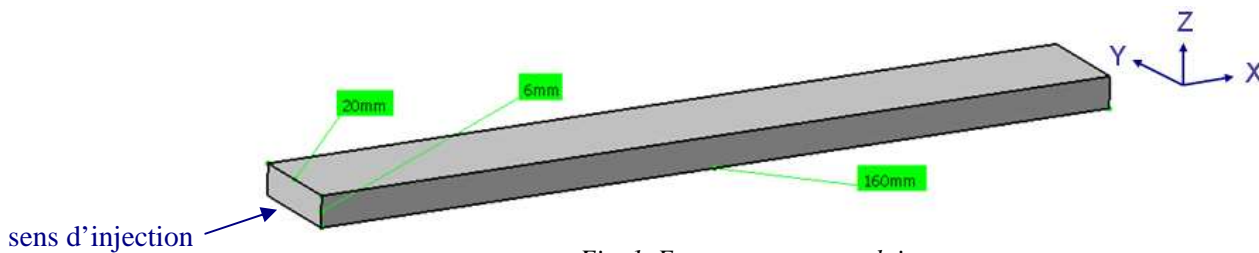


Fig. 1. Eprouvette rectangulaire

2.2 Procédé d'injection-transfert

Une machine de découpe des fibres développée par Equip'Aéro Technique permet de les couper à la longueur souhaitée (1mm au minimum). Le procédé consiste ensuite à chauffer le compound de fibres imprégnées de résine dans une chambre de préchauffage, puis de les transférer dans le moule fermé sous l'action d'un piston. L'injection-transfert n'est pas effectuée avec une presse à injecter couramment utilisée en plasturgie mais grâce à un moyen au coût plus adapté à une PME.

Ce procédé diffère du procédé SMC car les fibres sont beaucoup plus courtes (2-15 mm). De plus, il y a un écoulement de la matière sur plusieurs centimètres pendant le remplissage du moule au contraire du procédé SMC et des procédés de compression ou dits de « matriçage » durant lesquels le déplacement de la matière est beaucoup plus limité.

Un des avantages de ce procédé est qu'il permet de réaliser des pièces aux formes tridimensionnelles difficiles à obtenir sans usinage avec les procédés de moulage classiques. De plus, le matériau final possède des propriétés mécaniques dans les trois directions de l'espace en raison de l'orientation tridimensionnelle des fibres. En revanche, les propriétés mécaniques étant grandement dues à l'organisation de ces fibres, il est nécessaire de maîtriser cette organisation d'une part et d'être capable de la prédire d'autre part.

L'étude présentée dans cet article s'intègre dans le processus de détermination de l'influence des paramètres opérationnels sur l'organisation des fibres qui constitue la première étape de la maîtrise du procédé. La modélisation des propriétés mécaniques du matériau fabriqué par ce procédé d'injection-transfert sera étudiée dans des prochains travaux, une fois que cette première étape sera franchie.

Les paramètres opérationnels principaux du procédé sont la vitesse d'injection : V_{inj} (en mm/s), la pression maximale atteinte en entrée de moule pendant l'injection : $P_{inj\ max}$ (en bars), la pression de maintien pendant la réticulation : $P_{maintient}$ (en bars), la longueur des fibres : L (en mm), la température d'injection : T_{inj} (en °C), la température de réticulation : $T_{rét}$ (en °C) et la durée de réticulation $d_{rét}$ (min). Ce sont autant de paramètres d'entrée du plan d'expérience qui va être mené

afin de sélectionner les valeurs de chaque paramètre permettant d'obtenir les meilleures propriétés mécaniques du matériau final.

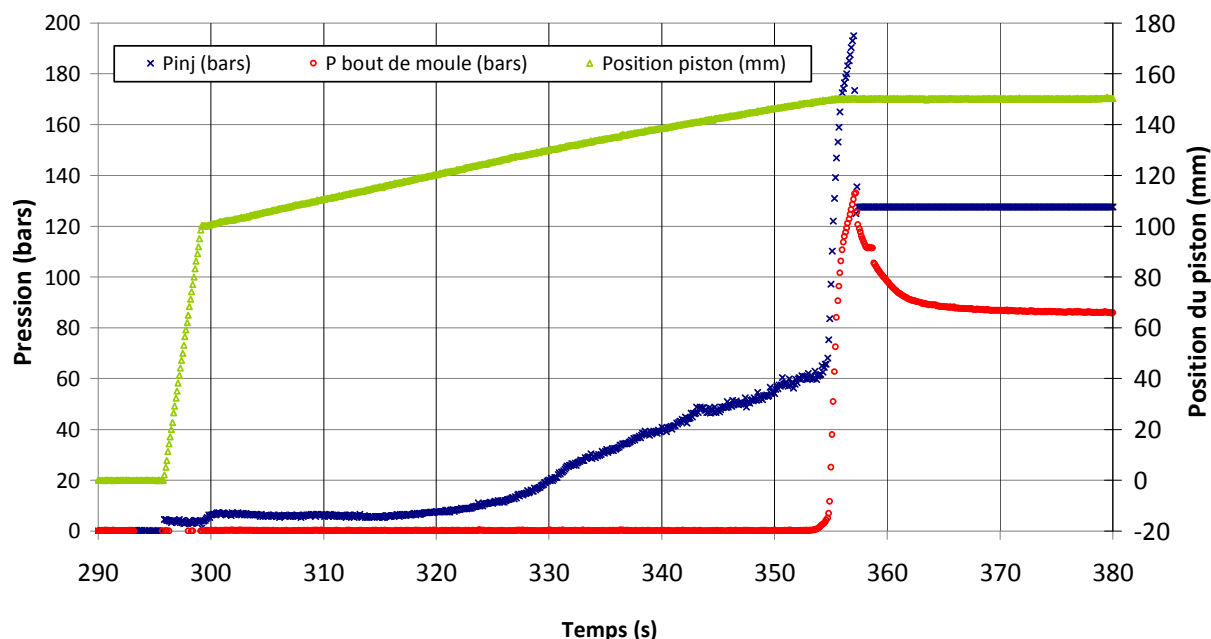


Fig. 2. Evolution des pressions au point d'injection et en bout de moule pendant la phase de remplissage du moule

Le graphe ci-dessus présente les pressions mises en jeu pendant le moulage d'une éprouvette rectangulaire (présentée dans le paragraphe précédent). Les pressions d'injection (pression au point d'injection) peuvent monter jusqu'à 195 bars (paramètre $P_{inj\ max}$) alors que la pression mesurée en bout de moule atteint 133 bars.

3. Présentation de l'étude menée

Pour la présente étude, tous les paramètres opérationnels autres que la longueur de fibres (V_{inj} , $P_{inj\ max}$, $P_{maintient}$, T_{inj} , $T_{rét}$, $d_{rét}$) sont identiques pour la fabrication de toutes les éprouvettes rectangulaires qui ont servi à la réalisation de l'étude.

Des mesures de taux volumique de fibres (V_f), de matrice (V_m) et de porosité (V_0) ont également été menées par la méthode d'attaque chimique à l'acide de la matrice dans le but de déterminer l'influence de la longueur de fibre sur V_f , V_m et V_0 tout au long de l'éprouvette. Trois longueurs de fibres ont été étudiées : 2 mm, 6 mm et 10 mm. Trois éprouvettes ont été fabriquées pour chaque longueur de fibre pour la détermination de V_f , V_m et V_0 , de façon à avoir trois échantillons pour chaque configuration.

Les propriétés mécaniques en traction ont été étudiées pour cinq longueurs de fibres : 2 mm, 4 mm, 6 mm, 8 mm et 10 mm. Dans chaque cas, cinq éprouvettes de traction ont été fabriquées.

Le tableau figure 3 regroupe les essais effectués pour la présente étude :

Longueur de fibres (mm)	Traction	Mesure de V_f , V_m , V_p
2	5 éprouvettes	3 éprouvettes
4	5 éprouvettes	
6	5 éprouvettes	3 éprouvettes
8	5 éprouvettes	
10	5 éprouvettes	3 éprouvettes

Fig. 3. Plan d'essai de l'étude

4. Résultats et discussion

4.1 Essais physico-chimiques

4.1.1 Principe

Les mesures de taux volumiques de fibres (V_f), de matrice (V_m) et de porosité (V_0) ont été réalisées par attaque chimique de la matrice à l'acide sulfurique et à l'eau oxygénée suivant la norme NF EN 2564.

Ces essais consistent tout d'abord à peser la masse dans l'air et dans l'eau des échantillons composites réticulés afin de déterminer leur densité. Puis, la matrice des échantillons est attaquée à l'acide sulfurique et à l'eau oxygénée dans le but de ne récupérer que les fibres. En pesant la masse des fibres contenues dans l'échantillon et connaissant la densité de l'échantillon ainsi que sa masse dans l'air et la masse volumique de l'eau utilisée pour les pesées, il est possible de déterminer V_f , V_m et V_0 .

Dans le cadre de cette étude, des échantillons ont été prélevés à différents endroits des éprouvettes rectangulaires comme le montre le schéma ci-dessous :

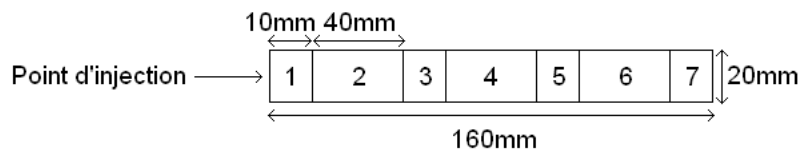


Fig. 4. Echantillons prélevés sur les éprouvettes rectangulaires pour la détermination de V_f , V_m et V_0

Les échantillons 3, 5 et 7 ont été soumis aux essais de détermination de V_f , V_m et V_p pour les longueurs de fibres de 2mm, 6mm et 10mm. Pour chaque longueur de fibre, trois éprouvettes ont été fabriquées dans le but d'obtenir trois valeurs pour chaque configuration.

4.1.2 Résultats

Les résultats des mesures de taux volumiques de fibres, de matrice et de porosité ont montré que V_0 augmente avec la longueur des fibres d'une part et en s'éloignant du point d'injection d'autre part.

Le premier résultat se comprend bien puisque plus les fibres sont longues, plus le front de matière durant le remplissage du moule va emprisonner des porosités plus importantes en nombre et en dimension. Le second résultat est quant à lui cohérent avec le fait que la pression dans le moule diminue au fur et à mesure que l'on s'éloigne du point d'injection, comme le montre la courbe de moulage présentée précédemment.

Il reste à présent à mettre en évidence les corrélations existant entre les taux de porosité et les faciès de rupture d'une part, entre les taux de porosité et les zones de rupture d'autre part.

De plus, il apparaît que les taux volumiques de matrice V_m augmentent en s'éloignant du point d'injection alors que les V_f diminuent.

4.2 Essais mécaniques

4.2.1 Principe

L'ensemble des essais a été effectué sur une machine de traction /compression Instron de 100kN du laboratoire DMSM de l'ISAE. Des talons en verre/époxy ont préalablement été collés sur les éprouvettes présentées sur la figure 1.

Pour chaque configuration, cinq éprouvettes rectangulaires ont été testées en traction. Les essais ont été pilotés en déplacement (0,5mm/min) jusqu'à rupture. Les déformations sens long des éprouvettes ont été suivies par extensomètre laser.

La figure 5 présente un comportement type en traction de ce matériau. La contrainte à rupture et la déformation à rupture ont été déterminées systématiquement comme indiqué :

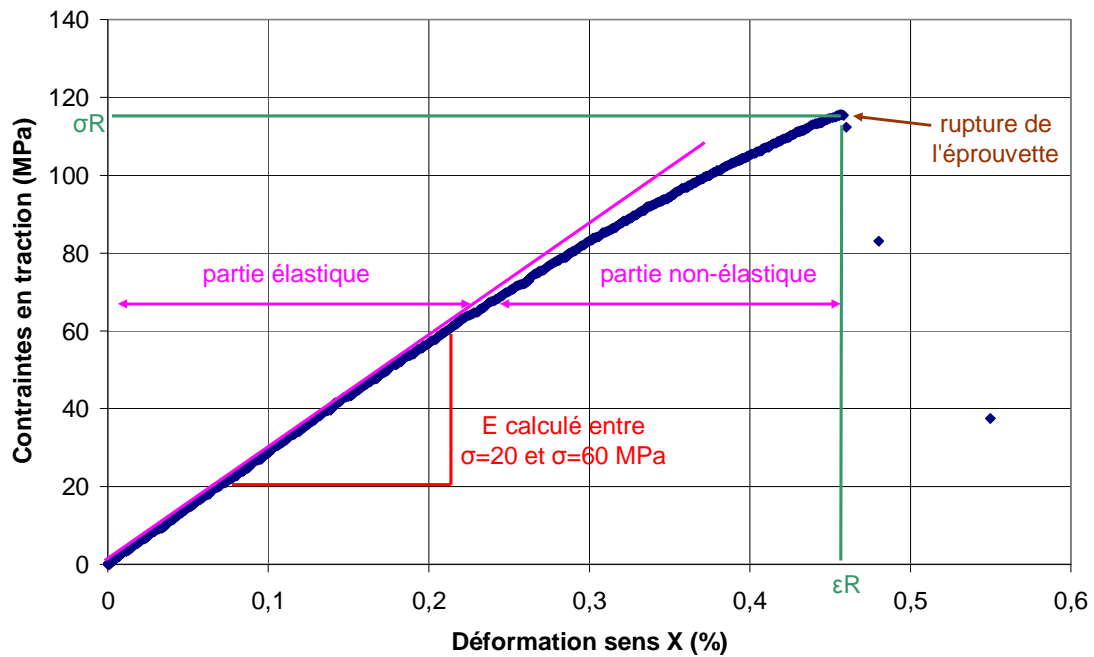


Fig. 5. Exploitation des courbes des essais de traction (courbe type)

Le module des éprouvettes ont été calculés sur la partie linéaire des courbes $\sigma = f(\epsilon)$, entre $\sigma = 20$ MPa et $\sigma = 60$ MPa.

4.2.2 Résultats

L'influence de la longueur de fibres sur les contraintes à rupture est présentée sur le graphe figure 6 :

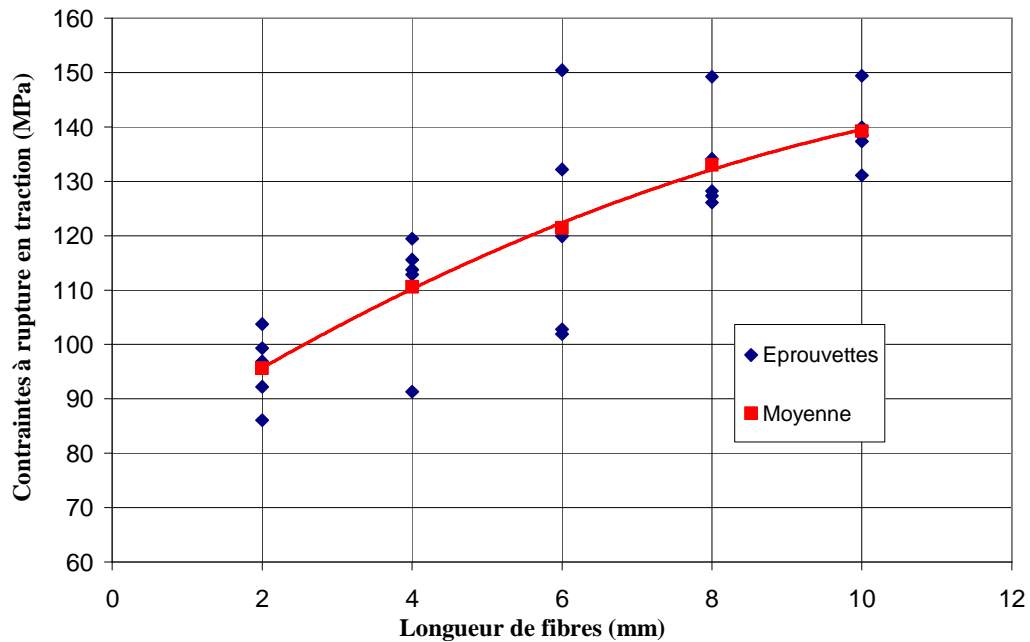


Fig. 6. Influence de la longueur des fibres sur la contrainte à rupture en traction du matériau à fibres longues discontinues de carbone et à matrice époxy fabriqué par injection-transfert

La contrainte à rupture du matériau augmente clairement avec la longueur de fibre. Les valeurs moyennes calculées sur les cinq éprouvettes pour chaque longueur de fibres vont de 95 à 140 MPa.

L'évolution du module en traction avec la longueur de fibre est présentée figure 7 :

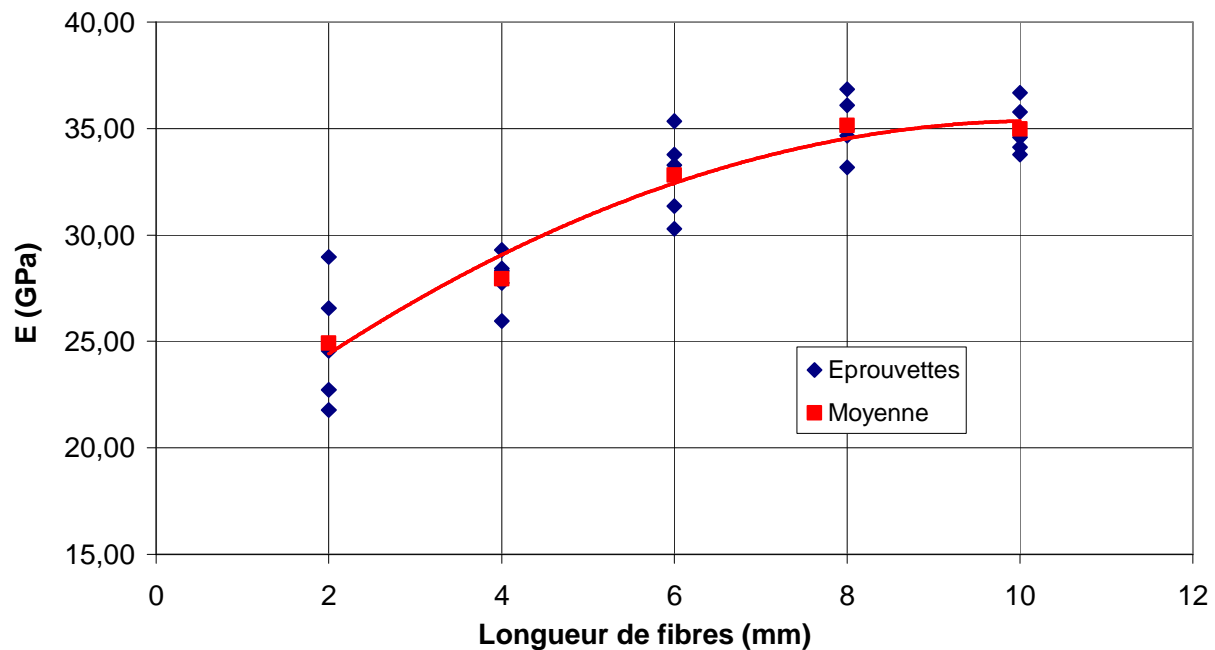


Fig. 7. Influence de la longueur des fibres sur le module en traction du matériau à fibres longues discontinues de carbone et à matrice époxy fabriqué par injection-transfert

Il apparaît que le module augmente avec la longueur de fibres jusqu'à atteindre. Les valeurs moyennes vont de 25 à 35 GPa. La courbe présente une allure asymptotique au-delà d'une longueur de fibres de 8 mm. Il serait intéressant d'effectuer les mêmes essais sur des éprouvettes fabriquées avec des fibres de 12 mm pour confirmer cette tendance.

L'influence de la longueur des fibres sur la déformation à rupture a également été étudiée. Les résultats sont présentés dans le graphique figure 8 :

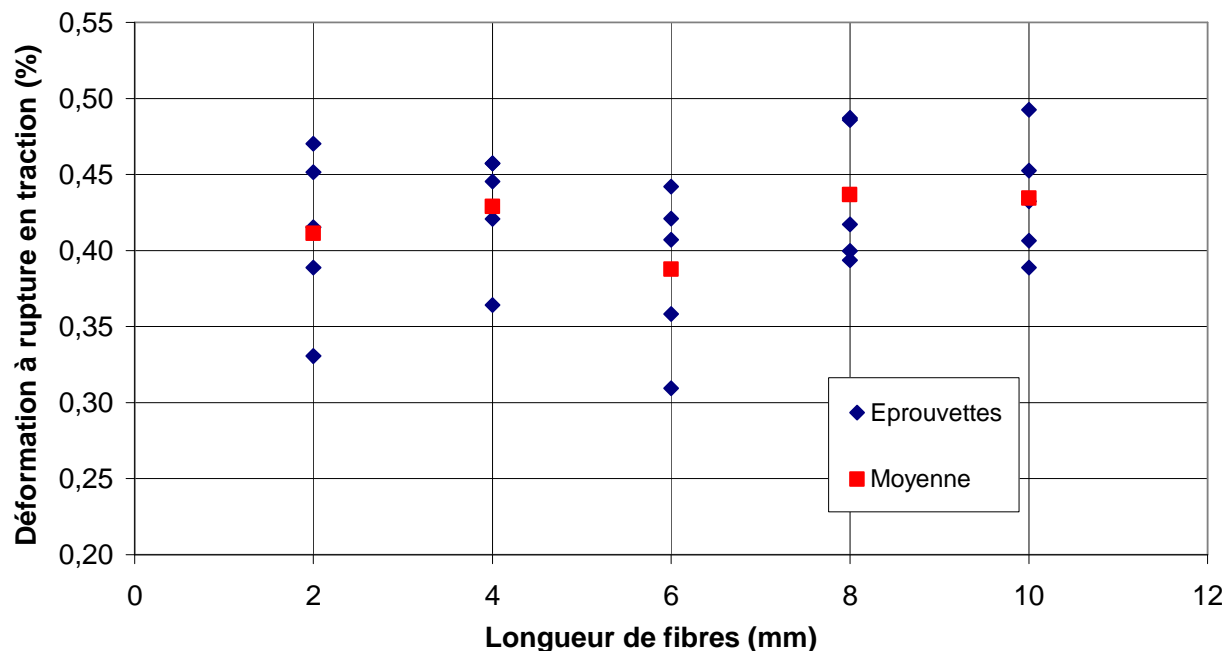


Fig. 8. Influence de la longueur des fibres sur la déformation à rupture en traction du matériau à fibres longues discontinues de carbone et à matrice époxy fabriqué par injection-transfert

On s'aperçoit que les valeurs moyennes des déformations à rupture en traction sont comprises entre 0,39% et 0,44%. Les déformations à rupture sont donc relativement proches pour les

différentes éprouvettes. La déformation à rupture étant propre au mode de rupture, le fait d'obtenir des ε^R proches signifie que le mode de rupture est a priori le même pour les différentes éprouvettes.

La photo de la figure 9 montre le faciès de rupture le plus redondant sur l'ensemble des éprouvettes. La rupture est orientée à environ 45° par rapport à la direction de traction ce qui laisse supposer que le mode de rupture prédominant est la décohésion entre les fibres et la matrice.



Fig. 9. Faciès de rupture d'une éprouvette rectangulaire après essai de traction

Pour identifier de façon certaine le mode de rupture soupçonné, des observations des faciès de rupture au microscope seront menées prochainement.

On observe une certaine dispersion dans les résultats des contraintes et déformations à rupture ainsi que des modules pour chaque longueur de fibres. Elle peut être imputée à la partie aléatoire du procédé d'injection-transfert retenu.

Le cliché microscopique de la figure 10 montre l'organisation des fibres de 2 mm de long dans l'éprouvette rectangulaire. Le plan de coupe est perpendiculaire à la direction d'écoulement. On s'aperçoit que les fibres s'organisent en amas, pouvant être plus ou moins désorientés par rapport à la direction d'écoulement (sens X). Néanmoins, la majorité de ces amas de fibres a une orientation parallèle à la direction d'écoulement.

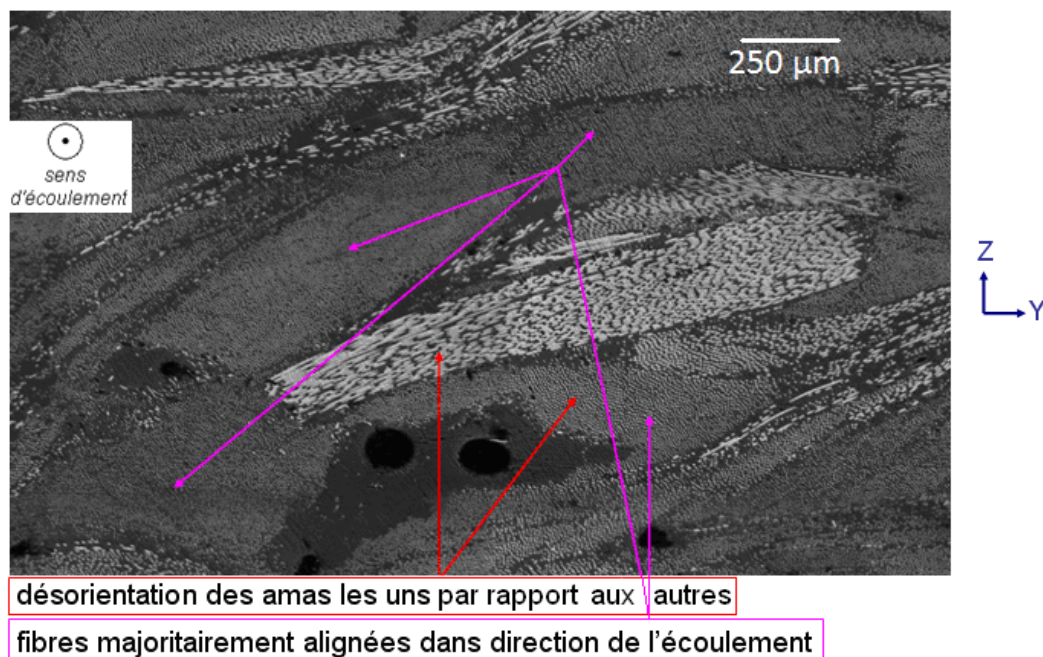


Fig. 10. Observation au Microscope Optique de la microstructure du matériau à fibres longues discontinues de carbone (2mm) et à matrice époxy fabriqué par injection-transfert

Le profil du front de matière durant l'écoulement dans le moule est principalement responsable de l'orientation des fibres. Mais le taux volumique de fibres ($> 50\%$) est élevé et les interactions entre fibres sont donc très importantes. Ces interactions peuvent engendrer une dispersion dans l'organisation des fibres et donc dans les propriétés mécaniques en traction du matériau final. Il y a donc une dispersion intrinsèque à ce procédé d'injection-transfert.

Il est également important de préciser que les résultats en terme de contraintes à rupture présentés figure 6 ne sont valables que pour le matériau fabriqué avec certains paramètres opérationnels bien précis. En changeant ces paramètres, la microstructure du matériau va changer (V_f , V_m , V_p , organisation et orientation des amas de fibres).

Des premiers essais préliminaires ont été effectués il y a quelques mois. Certains paramètres opérationnels étaient alors différents : les valeurs de $P_{inj\ max}$ et de $P_{maintient}$ étaient légèrement différentes alors que celle de V_{inj} était environ 10 fois plus élevée. Les résultats de l'influence des longueurs de fibres (2 mm, 6 mm et 10 mm) sur les contraintes à rupture en traction (avec le même protocole d'essai) sont présentés figure 11 :

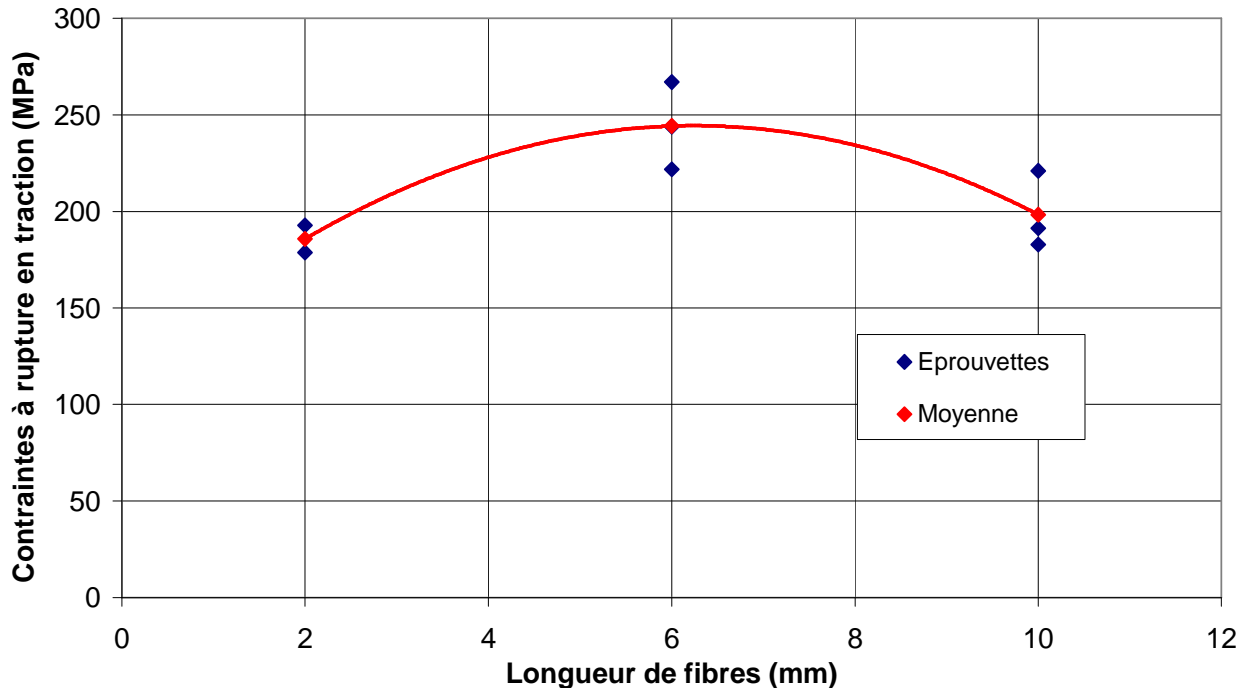


Fig. 11. Influence de la longueur des fibres sur la contrainte à rupture en traction du matériau à fibres longues discontinues de carbone et à matrice époxy fabriqué par injection-transfert avec V_{inj} 10 fois plus élevée

Avec les paramètres opérationnels utilisés sur l'étude préliminaire, la tendance était différente : le maximum des moyennes des contraintes à rupture (environ 250 MPa) était atteint pour une longueur de fibres de 6 mm et l'allure était de forme parabolique.

Or 6 mm correspond à l'épaisseur de l'éprouvette. La vitesse d'injection utilisée à l'époque était peut être telle que l'écoulement de la matière ne permettait pas aux fibres les plus longues (longueur supérieure à la dimension minimale de l'éprouvette) de s'orienter dans la direction de l'écoulement qui est également la direction de sollicitation lors de l'essai de traction.

En revanche, les valeurs des contraintes à rupture obtenues sur l'étude préliminaire, en utilisant les mêmes protocole et moyen d'essai, étaient plus élevées que celles présentées précédemment. La modification de certains paramètres opérationnels clefs du procédé ($P_{inj\ max}$, $P_{maintient}$ et surtout V_{inj}) est responsable de la modification de la microstructure du matériau final. Les valeurs de contraintes à rupture changent donc avec les paramètres opérationnels.

L'objectif du plan d'expérience en cours dans lequel s'inscrit cette étude est de mettre en évidence l'influence de chaque paramètre dans le but de pouvoir les adapter de façon à obtenir un matériau avec les meilleures contraintes à rupture possible. Les réponses à ces deux interrogations devraient être levées avec la réalisation du plan d'expérience.

5. Conclusion et perspectives

Des mesures de taux volumiques de fibres, de matrice et de porosité ont été effectuées à différents endroits d'éprouvettes en composites à fibres longues discontinues de carbone et à matrice époxy. Elles ont été fabriquées par un procédé d'injection-transfert. Ces mesures ont été réalisées sur des matériaux ayant des longueurs de fibres différentes (2 mm, 6 mm et 10 mm).

Des essais de traction ont également été menés sur des éprouvettes fabriquées avec le même procédé et dont les longueurs de fibres étaient comprises entre 2 mm et 10 mm.

Cette étude a mis en évidence l'influence nette de la longueur des fibres sur les contraintes à rupture et les modules en traction des matériaux composites à matrice organique et fibres mi-longues discontinues réalisés par le procédé d'injection-transfert. Néanmoins, les résultats présentés dans cet article sont valables pour un jeu de paramètres opérationnels donnés et il a été mis en évidence le fait que la modification d'un ou plusieurs de ces paramètres engendre un changement des propriétés mécaniques en traction du matériau.

Les essais présentés ont été effectués dans le cadre d'un plan d'expériences plus vaste, actuellement en cours de réalisation, ayant pour objectif final de déterminer l'influence exacte de chaque paramètre sur les propriétés mécaniques d'une part, et de sélectionner les valeurs de ces paramètres dans le but d'optimiser ces propriétés mécaniques d'autres part.

Les étapes suivantes consisteront à déterminer l'influence des paramètres opérationnels sur les modifications de la microstructure du matériau puis à établir le lien entre les variations des propriétés mécaniques et cette microstructure.

Remerciements

De sincères remerciements sont adressés à Raphaël Nardari, étudiant en Génie Mécanique à l'INSA de Toulouse pour son aide précieuse dans la réalisation des essais présentés, ainsi qu'à la société Equip'Aéro Technique, partenaire industriel dans le cadre de cette étude.

Références

- [1] Vincent M., « Etude de l'orientation des fibres de verre courtes lors de la mise en œuvre de thermoplastiques chargés ». Thèse de l'école Nationale Supérieure des Mines de Paris, Mars 1984.
- [2] Dray Bensahkoun D., « Prédiction des propriétés thermo-élastiques d'un composite injecté et chargé de fibres courtes ». Thèse de l'Ecole Nationale Supérieure d'Arts et Métiers, Mars 2006.
- [3] Haramburu E., « Approche intégrée du dimensionnement mécanique de structures en composite injecté avec fibres courtes : une interface entre injection et calcul de structure ». Thèse de l'Université Paul Sabatier de Toulouse III, Mars 2003.
- [4] Blanc R., « Etude de l'injection de composites polyesters thermodurcissables ». Thèse de l'Ecole des Mines de Paris, 1988.
- [5] Odenberger P. T., Andersson H. M., Lundström T. S., « Experimental flow-front visualisation in compression moulding of SMC ». Composites: Part A 35, pp. 1125–1134, 2004.