



HAL
open science

Le PvT-HADDOC : Mesure des déformations et suivi de cuisson de composites thermodurcissables durant leur mise en forme.

Mael Péron, Romain Cardinaud, Nicolas Boyard, Vincent Sobotka, Steven Le Corre

► To cite this version:

Mael Péron, Romain Cardinaud, Nicolas Boyard, Vincent Sobotka, Steven Le Corre. Le PvT-HADDOC : Mesure des déformations et suivi de cuisson de composites thermodurcissables durant leur mise en forme.. Journées Nationales sur les Composites 2017, École des Ponts ParisTech (ENPC), Jun 2017, 77455 Champs-sur-Marne, France. hal-01621605

HAL Id: hal-01621605

<https://hal.science/hal-01621605>

Submitted on 23 Oct 2017

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.

Le PvT-HADDOC : Mesure des déformations et suivi de cuisson de composites therm durcissables durant leur mise en forme.

PvT-HADDOC: Measuring the anisotropic strains and monitoring the curing of thermosetting composites during their forming.

Mael Péron^{1,2}, Romain Cardinaud^{1,3}, Nicolas Boyard¹, Vincent Sobotka¹, Steven Le Corre¹

1 : Laboratoire de Thermique et Energie de Nantes (LTEN)
Université de Nantes – UMR CNRS 6607
Rue Christian Pauc, CS50609, 44306 Nantes Cedex 3
e-mail : mael.peron@univ-nantes.fr

2 : IRT Jules Verne
Chemin du Chaffault, 44340 Bouguenais

3 : Plastic Omnium Auto Exterior
Simatech,
Avenue du Bois des Vergnes, 01150 Saint Julie

Résumé

Le développement des contraintes résiduelles lors de la mise en forme des composites joue un rôle majeur sur les dimensions finales et la santé matière de la pièce obtenue. Si l'on souhaite modéliser leur développement et *in fine* optimiser le procédé pour minimiser leur impact, il est indispensable de comprendre les différentes causes de ces contraintes. Les phénomènes de retrait chimique et thermique font partie des causes principales de leur développement et il apparaît donc indispensable de pouvoir les caractériser finement. Le nouveau dispositif de caractérisation PvT-HADDOC a été développé à cet effet. Celui-ci permet la mesure des déformations d'un échantillon de composite therm durcissable suivant deux directions (à travers l'épaisseur et dans le plan) et durant la totalité du cycle de cuisson. L'échantillon est soumis à des conditions représentatives du procédé de mise en forme (une température et une pression contrôlées jusqu'à 200°C et 0.7 MPa, respectivement). Un matériau de type Sheet Moulding Compound (SMC) est étudié. Les résultats indiquent que la majorité du retrait chimique se fait à travers l'épaisseur du matériau, de même que les dilatations thermiques à l'état réticulé. Ces résultats sont confrontés à des mesures faites sur un autre dispositif, permettant de valider la méthode.

Abstract

Process-induced stresses generated during thermosetting composite forming have an important role on the dimensions and health of the final part. Modeling the development of these stresses is necessary to optimize the process conditions and reduce their consequences. However, it requires the understanding of the phenomena that drive their development. Among them, chemical shrinkage and thermal expansion of the material appear as major causes in residual stresses development. It seems of utmost importance to characterize them correctly. A new device, called PvT-HADDOC, is presented for this purpose. It allows for the measurement of curing strains of thermosetting composite materials under process representative conditions (temperature and pressure up to 200°C and 0.7 MPa, respectively). The sample strains are recorded along two directions (through-thickness and in-plane). The surface temperature of the sample and its degree of cure are also monitored. A Sheet Moulding Compound (SMC) material was tested. Results indicate that most of the chemical shrinkage happens through the composite thickness, as well as the cured state thermal strains. These results are also compared with results obtained on another device, showing an excellent agreement and thus validating the presented method.

Mots Clés : composite therm durcissable, caractérisation, déformations, retrait chimique, dilatation thermique

Keywords: thermosetting composite, characterization, process-induced strains, chemical shrinkage, thermal expansion

1. Introduction

La réalisation de pièces de haute qualité en matériau composite, avec une forme et une santé matière parfaitement contrôlées représente toujours un objectif idéal et difficile à atteindre. La maîtrise du développement des contraintes résiduelles de fabrication est la clé pour répondre à cette

problématique. La modélisation fine de leur développement permettrait de prédire le comportement de la pièce durant sa fabrication, mais également d'optimiser les paramètres du procédé afin de limiter les conséquences de ces contraintes sur la qualité de la pièce. Cette modélisation requiert néanmoins la compréhension des causes de développement des contraintes. Parmi celles-ci, les phénomènes de retrait chimique et de dilatation thermique du matériau semblent primordiaux [1-2]. Une caractérisation précise des déformations, souvent anisotropes, du matériau est par conséquent nécessaire pour comprendre le comportement de celui-ci. Néanmoins, de nombreux phénomènes couplés ont lieu durant la cuisson du matériau, rendant l'identification souvent difficile.

On peut imaginer le cahier des charges d'un dispositif idéal de caractérisation de ces déformations durant la réticulation d'un composite thermodurcissable. Celui-ci doit permettre une mesure multiaxiale, du fait de l'anisotropie des composites. La mesure doit être réalisée durant tout le cycle de cuisson du matériau, afin d'identifier son comportement depuis l'état cru jusqu'à l'état parfaitement réticulé de la matrice. Les conditions de réalisation des essais seraient idéalement proches de celles du procédé de mise en forme, afin de pouvoir directement transposer les résultats obtenus à la modélisation du procédé. Ceci implique donc d'imposer un cycle de température atteignant 200°C, et une pression de 0,7 MPa. Le dispositif doit permettre de contrôler parfaitement l'état mécanique et thermique autour de l'échantillon, et doit permettre d'estimer le degré d'avancement de la réticulation. En effet, la maîtrise des conditions à la limite imposées autour de l'échantillon et la connaissance de son état de réticulation permettent de décorréliser les contributions des déformations thermique et chimique des déformations totales du matériau. Enfin, la mesure doit être non-intrusive, afin de ne pas perturber le comportement du matériau durant sa transformation.

Diverses méthodes de caractérisation ont été développées au cours des dernières décennies afin de caractériser ces déformations [3]. On retrouve des méthodes volumiques, employant par exemple des dilatomètres à piston [4-5], mais celles-ci ne permettent pas d'accéder aux déformations suivant plusieurs directions. D'autres techniques expérimentales existent pour contrer cette limitation. L'emploi de jauges de dilatométrie [6] a ainsi permis la mesure des déformations d'un échantillon durant sa cuisson suivant plusieurs directions et sous des conditions représentatives du procédé. De la même manière, l'utilisation de capteurs à fibres optiques [7-8] fournit une information locale sur l'état de déformations, avec les mêmes avantages que la solution précédente. Néanmoins, ces deux méthodes ne permettent d'obtenir une information qu'après le point de gel de la matrice. Certaines études se basent sur l'utilisation de dispositifs de caractérisation plus classiques, notamment l'emploi de TMA [9] ou de DMA [10], ou de méthodes innovantes, incluant des essais de traction sur une structure stratifiée multimatériaux [11] ou le suivi de courbure de bilame [12]. Ces différentes méthodes sont elles aussi efficaces après le gel de la matrice seulement, et ne permettent bien souvent pas d'appliquer une pression autre que la pression atmosphérique. Il apparaît qu'aucune méthode existante ne remplit parfaitement le cahier des charges présenté précédemment.

L'objectif de ces travaux est donc de présenter un nouveau dispositif permettant de caractériser les déformations d'un matériau composite thermodurcissable suivant différentes directions durant tout son cycle de cuisson. Appelé PvT-HADDOC (pour Pressure, volume, Temperature – Heterogeneous Anisotropic Deformation and Degree of Cure monitoring), son principe de fonctionnement est décrit dans la section suivante, avec le protocole expérimental et ses performances de mesure. Un matériau de type SMC servant à illustrer le principe de mesure est ensuite présenté. Enfin, les résultats obtenus sur ce matériau sont exposés et comparés à des résultats provenant d'essais sur un autre dispositif de caractérisation, le moule PvT α .

2. Le PvT-HADDOC

2.1 Principe général

Le schéma de principe du dispositif est donné en (Fig. 1a). L'échantillon de matériau composite, de surface carrée de 105 x 105 mm² pour plusieurs millimètres d'épaisseur, est placé entre un plateau et un piston d'acier. La préparation de l'échantillon demande de suivre un protocole précis qui sera décrit en section 2.2. Le plateau est assemblé à un échangeur de chaleur, lui-même vissé à un bloc isolant situé sur la partie fixe d'une presse électrique Instron Electro Plus E10000. Le piston est quant à lui fixé à la partie mobile de la presse. L'échantillon est immergé dans de l'huile silicone qui remplit une cavité. Cette dernière est fermée sur sa partie supérieure par un second échangeur de chaleur. La pression de l'huile silicone dans la cavité est contrôlée à l'aide d'un système de vérins, permettant une régulation de la pression jusqu'à 1,0 MPa avec une précision de 0,01 MPa. Il est également possible de contrôler l'effort appliqué par le piston dans la direction transverse à l'épaisseur de l'échantillon. En pilotant ainsi la pression appliquée par l'huile sur le pourtour de l'échantillon et l'effort du piston, il est possible de maîtriser finement l'état de contraintes autour de l'échantillon, à condition que les frottements entre celui-ci et le système soient négligeables.

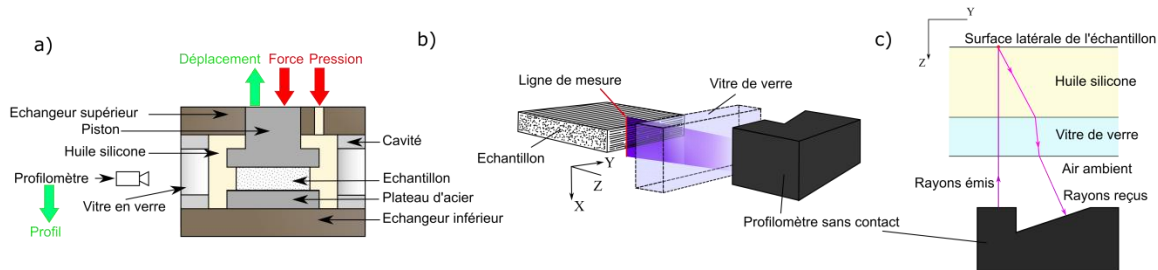


Fig. 1. a) Schéma de principe du PvT-HADDOC b) Principe de mesure latérale à l'aide du profilomètre c) Vue de dessus de la représentation précédente.

Les deux échangeurs sont connectés à un thermorégulateur pour assurer le contrôle thermique de la cavité. Une sonde PT100 est placée dans un des deux échangeurs et sert de donnée d'entrée au PID du thermorégulateur. L'huile silicone circule dans la cavité sous pression ainsi que dans les échangeurs afin d'assurer l'homogénéité thermique autour de l'échantillon. En théorie, le système de chauffe permet d'atteindre des températures jusque 250°C à une vitesse de 16K.min⁻¹. Cette dernière est néanmoins bridée à 5K.min⁻¹ afin de limiter les gradients de température à travers l'épaisseur de l'échantillon.

Les déformations de l'échantillon durant un cycle de cuisson sont enregistrées de deux façons. D'une part, les déplacements du piston sont dus aux variations d'épaisseur de l'échantillon. Ces déplacements étant enregistrés par la presse, il est possible d'estimer les déformations de l'échantillon à travers son épaisseur. Simultanément, un profilomètre laser sans contact Keyence LJ-V 7080 permet de suivre la surface latérale de l'échantillon (Fig. 1b). En effet, une vitre de verre est placée sur chacun des quatre côtés de la cavité. Le profilomètre est situé devant l'une d'elles. L'air ambiant, le verre et l'huile silicone étant transparents à la longueur d'onde du profilomètre, ce dernier détecte les déplacements de la surface latérale de l'échantillon.

La topologie de la surface latérale de l'échantillon est mesurée suivant une ligne verticale, parallèle à la direction à travers l'épaisseur de l'échantillon (axe X). Les rayons émis par le profilomètre (Fig. 1c) sont perpendiculaires à la surface de l'échantillon (axe Z), sont réfléchis sur cette surface et transmis au récepteur du profilomètre. Ce dernier est également fixé à un actionneur linéaire permettant de déplacer le profilomètre le long de l'axe Y avec une précision de 1,5 μm. Il est ainsi possible d'enregistrer les déplacements de la surface latérale de l'échantillon en différentes

positions du capteur le long de l'axe Y, voire même de reconstruire la totalité de la surface latérale de l'échantillon, à condition que la vitesse de déplacement de l'actionneur soit suffisamment élevée. Le traitement des données issues de ces deux systèmes de mesure est présenté dans la section 2.3.

Deux capteurs de flux sont présents dans le plateau et le piston, leur surface étant en contact avec le dessous et le dessus de l'échantillon, respectivement. Chacun est composé de trois thermocouples, comme décrit dans [13]. Le traitement des données issues de ces capteurs est réalisé à l'aide d'un algorithme séquentiel inverse de Beck [14], permettant ainsi d'obtenir les températures de surface de l'échantillon ainsi que les densités de flux échangées entre l'échantillon et le système. Le dispositif ayant été conçu de manière à ce que les transferts thermiques soient 1D à travers l'épaisseur de l'échantillon, on obtient ainsi directement le flux échangé entre l'échantillon et le système en multipliant la densité de flux par l'aire de la surface d'échange. L'analyse de ces flux permet par la suite d'obtenir une information sur l'avancement de la réticulation de l'échantillon, comme ce qui est déjà réalisé à l'aide du dispositif PvT α [5].

2.2 Protocole expérimental

Plusieurs étapes de préparation de l'échantillon sont nécessaires avant chaque essai, afin d'assurer la reproductibilité des résultats. Des plis carrés de composite pré-imprégné sont découpés, avec un côté de longueur supérieure à la longueur finale de l'échantillon (généralement 140 mm). Les plis sont empilés suivant la séquence d'empilement souhaitée et pré-consolidés à 25°C sous une pression de 1,0 MPa à l'aide d'une presse hydraulique, assurant ainsi l'extraction des porosités d'interface ainsi qu'une adhérence suffisante entre les plis. L'empilement est ensuite découpé à l'aide d'un emporte pièces en acier. L'échantillon est consolidé une seconde fois sous les mêmes conditions que précédemment, mais cette fois-ci dans un moule fermé dont les dimensions correspondent aux dimensions finales de l'échantillon. Cette étape permet ainsi d'obtenir les dimensions souhaitées et des surfaces les plus planes possibles.

Avant de placer l'échantillon dans la cavité, le piston est mis au contact du plateau inférieur, et le déplacement du piston est ainsi taré à zéro. De l'agent démoulant Loctite Frekote est appliqué sur les surfaces du piston et du plateau afin de faciliter l'extraction de l'échantillon après l'essai. Une couche de graisse silicone est alors déposée sur ces mêmes surfaces, excepté au centre de l'échantillon. La graisse permet ainsi d'obtenir un contact sans frottements entre l'échantillon et le dispositif. Les zones centrales non lubrifiées assurent une adhérence locale de l'échantillon afin d'éviter les mouvements d'ensemble de celui-ci (*i.e.* rotation, translation) qui pourraient altérer l'analyse de ses déformations. L'échantillon est ensuite placé sur le plateau et le piston est abaissé et mis au contact de la surface supérieure du matériau testé jusqu'à atteindre une compression de 2 kPa. Un film de PTFE de 75 μm est enroulé autour de la surface latérale de l'échantillon, l'isolant ainsi de l'huile silicone et empêchant l'écoulement de la résine et l'absorption d'huile. La cavité est fermée puis remplie d'huile silicone. La pression de l'huile est ensuite amenée progressivement à la valeur désirée, en parallèle de l'application de l'effort par le piston. L'essai peut alors commencer.

2.3 Calibration du dispositif

Mesure à travers l'épaisseur

Les déplacements du piston sont mesurés à l'aide de la presse. Ils sont la conséquence des variations d'épaisseur de l'échantillon, mais également des dilatations thermiques de toute la ligne de mesure, incluant le piston et la partie inférieure du dispositif. Afin de soustraire ces dilatations thermiques du déplacement total du piston, et ainsi obtenir les seules variations d'épaisseur de l'échantillon, une expérience préliminaire appelée *ligne de base* est réalisée sans échantillon et sous les mêmes conditions que l'essai sur l'échantillon. En soustrayant les déplacements issus de la ligne de base de ceux issus de l'essai sur l'échantillon, on obtient ainsi les variations d'épaisseur de l'échantillon seul. Cette méthode a été testée dans un premier temps sur un échantillon d'alliage

d'aluminium, en le chauffant de 30°C à 120°C à 1,5K.min⁻¹ sous une pression de 0,1 MPa. Le coefficient de dilatation thermique obtenu à l'aide du dispositif était de $23,7 \pm 6,2 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$. Le même matériau a été testé à l'aide d'un dilatomètre linéaire Linseis L75 PT sous les mêmes conditions de température, menant à une valeur de $24,2 \pm 0,4 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$. Cet excellent accord nous a permis de valider cette méthode de mesure.

Mesure latérale

Comme expliqué précédemment, la mesure latérale est réalisée à l'aide d'un profilomètre sans contact, dont les rayons émis et reçus traversent différents milieux transparents à leur longueur d'onde (Fig. 2b). Les zones d'émission et de réception de ces rayons n'étant pas confondues, les rayons sont soumis aux phénomènes de réfraction qu'il faut prendre en compte afin de corriger les informations données par le profilomètre. Ces corrections ne sont pas présentées ici. Néanmoins, elles ont permis d'assurer une précision de 0.5 µm selon cette direction de mesure. L'expérience réalisée sur l'alliage d'aluminium mentionnée précédemment a également permis de vérifier les performances de la mesure latérale des déformations. L'analyse des déformations dans le plan de l'échantillon conduit à un coefficient de dilatation thermique de $26,6 \pm 1,2 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, montrant là aussi un excellent accord avec la mesure dilatométrique et permettant de valider cette méthode.

Capteurs de flux

Les deux capteurs de flux ont été calibrés lors de la conception du dispositif. Pour cela, une chaufferette électrique était placée entre le plateau et le piston. Le système était régulé à 30°C à l'aide du thermostat. Une puissance électrique était dissipée dans la chaufferette, avec une densité de flux théorique de 3880 W.m⁻². L'erreur réalisée sur la densité de flux était de 4,6%, avec un bruit de mesure de 172 W.m⁻², ce qui est classique avec ce type de capteur de flux.

3. Matériau et méthodes

En plus de l'alliage d'aluminium cité précédemment, un matériau de type SMC a été testé. Il est composé à 28%_{vol} de fibres courtes de verre, orientées aléatoirement dans le plan. La matrice est une pâte industrielle complexe, composée d'un mélange de résine vinyloxy, d'additifs thermoplastiques et de charges minérales. Les échantillons étaient ainsi composés de deux plis de SMC, menant à une épaisseur initiale de $6,5 \pm 0,3 \text{ mm}$. Il est à noter que ces matériaux présentent initialement une variation importante d'épaisseur, ce qui est dû à la dispersion du taux volumique de fibres, conséquence du procédé d'élaboration du SMC. Les cycles de température et de pression imposés sur le matériau SMC sont présentés en (Fig. 2). Une étude thermochimique du matériau non présentée ici a permis de vérifier que la totalité de la réaction de réticulation avait lieu durant la phase isotherme à 100°C.

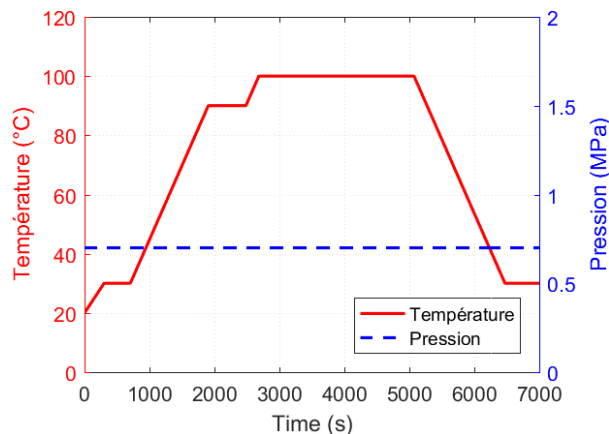


Fig. 2. Cycles de température et de pression imposés au matériau SMC

4. Résultats et discussion

4.1 Résultats des capteurs de flux

La densité de flux mesurée par les deux capteurs est donnée en (Fig. 3a), avec la température de surface du plateau. Durant les trois premières rampes de chauffage (de $t = 0$ à 2850s), la densité de flux est négative du fait de la montée en température de l'échantillon. Aux premiers instants de l'isotherme à 100°C, la densité de flux tend vers 0, indiquant que le système est proche de l'équilibre thermique. La transformation du matériau semble commencer au tout début de cette étape et se caractérise par un pic exothermique se terminant vers $t = 4000$ s. Pendant la réaction, la densité de flux est corrigée à l'aide d'une sigmoïde (Fig. 3a). La soustraction entre la densité et cette sigmoïde mène à la densité de flux corrigée (Fig. 3b). Après la réaction et durant le refroidissement (de $t = 5000$ à 8000s), la densité de flux est positive, ce qui est dû à la différence de température entre l'échantillon et le dispositif, ce dernier étant plus froid.

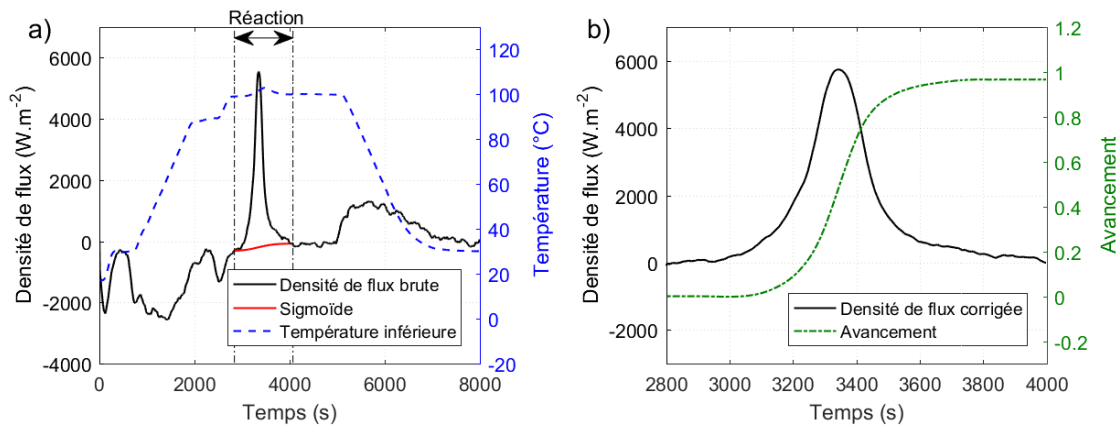


Fig. 3. a) Evolution de la densité de flux brute totale et de la température de la surface inférieure de l'échantillon de SMC b) Densité de flux totale corrigée et degré d'avancement de l'échantillon de SMC.

Le calcul de l'aire sous le pic de densité de flux corrigée $\phi(t)$ donne une estimation de l'enthalpie de la réaction ΔH_{tot} . Cet essai a mené à une valeur de $\Delta H_{tot} = 141 \pm 6 \text{ J.g}^{-1}$. Différents essais réalisés sur le même matériau en DSC ont donné une valeur de $\Delta H_{tot} = 141,0 \pm 4,8 \text{ J.g}^{-1}$. L'enthalpie de réaction a également été déterminée à l'aide du PvT α , menant à une valeur de $\Delta H_{tot} = 146 \pm 4 \text{ J.g}^{-1}$, ce qui est en accord avec les valeurs précédentes. On en conclut que la réaction a été complète durant l'essai fait sur le PvT-HADDOC. Ce dispositif permet donc d'accéder de façon précise à l'avancement de la réaction $x(t)$:

$$x(t) = \frac{S}{m} \frac{\int_0^t \phi(\tau) d\tau}{\Delta H_{tot}}, \quad (\text{Eq. 1})$$

où S est la surface totale d'échange, correspondant aux surfaces du piston et du plateau, et m est la masse de l'échantillon. L'avancement de la réaction ainsi obtenu est présenté en (Fig. 3b).

4.2 Déplacements à travers l'épaisseur

Le déplacement du piston enregistré durant l'expérience sur le SMC et ceux de la ligne de base associée sont représentés en (Fig. 4), avec le cycle de température imposé. Comme prévu, le déplacement lors de la ligne de base évolue de pair avec les variations de température, excepté à la fin du refroidissement où la température de l'eau de refroidissement du thermorégulateur (20°C) est trop haute pour assurer un bon contrôle thermique.

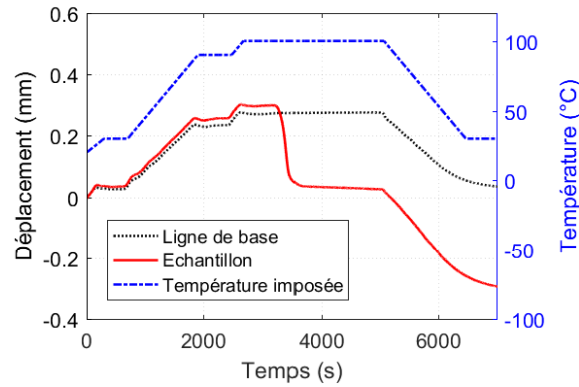


Fig. 4. Déplacements du piston durant l'expérience sur le SMC et la ligne de base associée, avec le cycle de température imposé.

Les déplacements du piston dans le cas du SMC suivent les variations de température depuis $t = 0s$ jusqu'au début de l'isotherme à $100^{\circ}C$ (avant $t = 3200s$). Durant cette première phase, ces déplacements sont légèrement supérieurs à ceux de la ligne de base, ce qui est lié à la dilatation thermique de l'échantillon. A $t = 3200s$, le retrait chimique lié à la réticulation de la matrice entraîne une diminution des déplacements du piston. Ce phénomène a lieu jusque $t = 4000s$. Les déplacements du piston restent relativement constants durant le reste de l'isotherme à $100^{\circ}C$. Finalement, pendant le refroidissement, les déplacements diminuent avec la température, comme déjà observé dans le cas de la ligne de base. La soustraction des déplacements de la ligne de base de ceux issus de l'essai sur le SMC mènent aux variations d'épaisseur de l'échantillon. Les déformations issues de ces variations sont présentées dans la section 4.4 et comparées aux déformations dans le plan de l'échantillon.

4.3 Déplacements dans le plan

Les données brutes issues du profilomètre, pour une position fixe le long de la vitre de verre (axe Y en (Fig. 5a)) sont représentées en (Fig. 5b). L'évolution de la position suivant l'axe Z de la ligne de mesure (axe X) y est représentée au cours du temps. Trois zones distinctes y apparaissent. La première, de 23 à 26mm suivant l'axe X, correspond au piston, celle comprise entre 26 et 33mm correspond à l'échantillon et celle de 33 à 34,75mm au plateau.

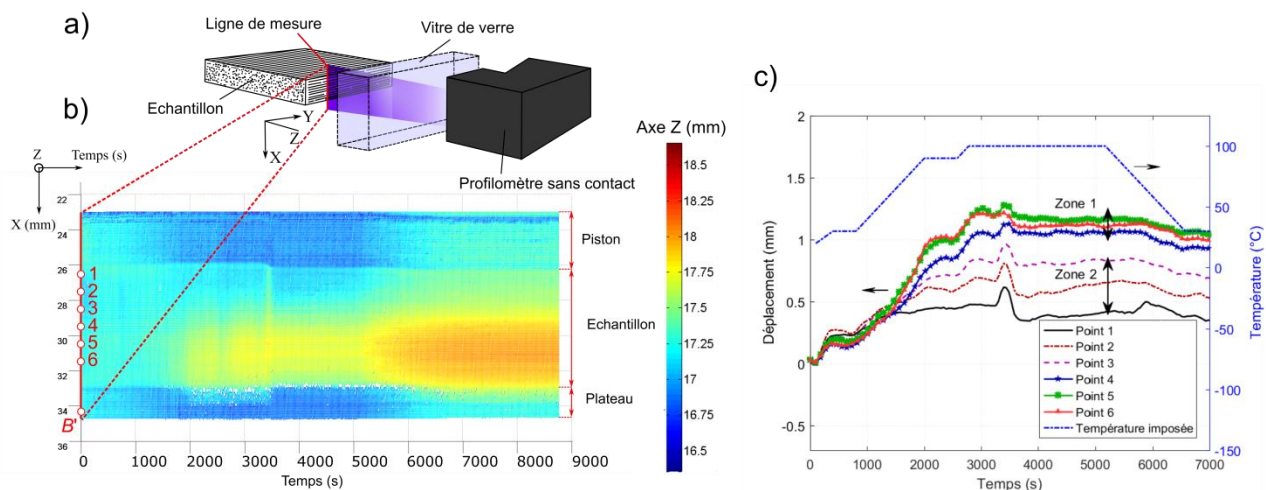


Fig. 5. a) Axes et ligne de mesure de la mesure latérale b) Evolution brute de la surface latérale le long de la ligne de mesure c) Déplacement dans le plan pour les différents points sélectionnés depuis leur position initiale.

Six points différents sont extraits le long de la ligne de mesure (Fig. 5b) afin d'analyser l'évolution de leur déplacement au cours du temps. Après application des corrections optiques mentionnées en

section 2.3, on obtient les déplacements de ces six points par rapport à leur position initiale. Ceux-ci sont représentés en (Fig. 5c), avec le cycle de température imposée.

Durant la première montée en température et de $t = 0$ à 1500s, les déplacements évoluent de la même façon et augmentent avec la température. Puis, à partir de $t = 1500$ s, deux zones distinctes apparaissent à travers l'épaisseur de l'échantillon. La Zone 1 inclut les points 1 à 3 et correspond au pli supérieur de l'échantillon. La Zone 2 inclut quant à elle les points 4 à 6 et correspond au pli inférieur. Durant la suite de la montée en température (de $t = 1500$ à 3000s), les points de la Zone 1 semblent plus sensibles aux variations de température. De par leur procédé d'élaboration, les matériaux SMC présentent souvent de fortes variabilités spatiales du taux volumique de fibres. Comme précisé par Dumont *et al.* [15], la taille représentative pour ce type de matériau est de l'ordre de 100mm. Le profilomètre donnant une information locale des déformations, les déplacements dans le plan peuvent mettre l'accent sur ces variations de propriétés du matériau. Ce dernier phénomène est pressenti comme la cause majeure des différences de comportement entre les zones 1 et 2. Après $t = 3000$ s, la réticulation a lieu. Pour tous les points, une augmentation du déplacement est visible vers $t = 3200$ s et suivie par une nette diminution qui se termine vers $t = 4000$ s. Ce phénomène s'explique par les effets simultanés de l'expansion thermique liée à l'exothermie de la réaction et du retrait chimique. Les déplacements ayant lieu durant la réaction semblent plus importants dans la zone 2 comparée à la zone 1. Durant la suite du palier isotherme à 100°C (de $t = 4000$ à 5200s), les déplacements sont relativement stables. Finalement, les déplacements diminuent globalement durant le refroidissement de l'échantillon (de $t = 5200$ à 6800s). Certains points présentent néanmoins des évolutions plus altérées que d'autres. Ceci s'explique par de possibles micro-mécanismes de déformations locales (*e.g.* contact entre fibres, rotations dans le plan...) ayant lieu dans ce matériau très hétérogène et amplifiés par la mesure locale du profilomètre.

4.4 Evolution des déformations durant la cuisson

A partir des déplacements présentés précédemment, il est possible d'obtenir les déformations de l'échantillon suivant les deux directions de mesure. Celles-ci sont appelées ε_i , avec $i = EP$ ou PL , pour la direction à travers l'épaisseur et dans le plan, respectivement. Elles sont représentées en (Fig. 6a) au cours du temps, avec la température mesurée en surface de l'échantillon et le degré d'avancement de la réticulation. Les déformations dans le plan sont celles déterminées au point 4.

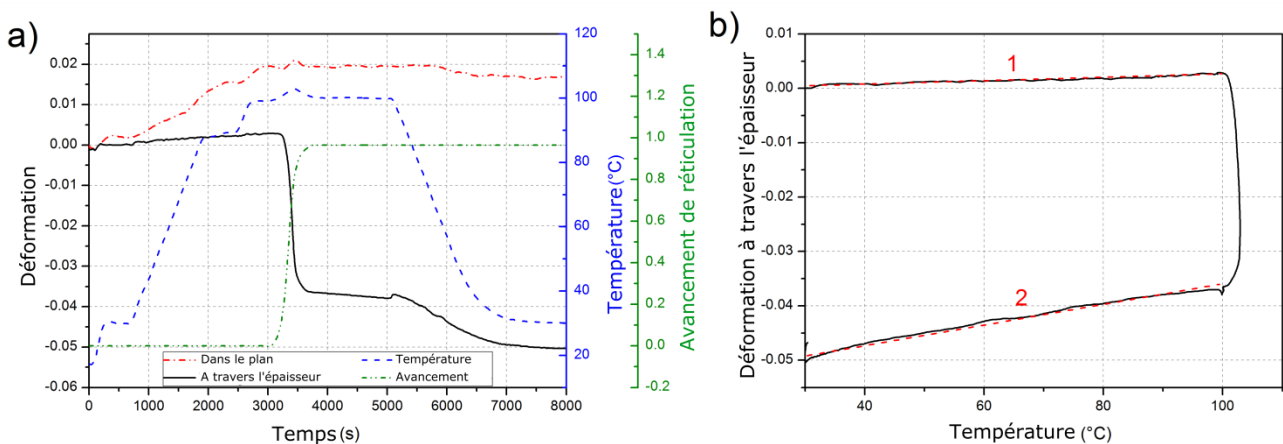


Fig. 6. a) Déformations dans les deux directions de mesure, température de surface et avancement de la réaction
b) Evolution de la déformation à travers l'épaisseur en fonction de la température.

De ces courbes, on peut tracer l'évolution des déformations en fonction de la température. Cette évolution est donnée, dans le cas des déformations à travers l'épaisseur, en (Fig. 6b). On remarque alors trois zones. Dans la zone intitulée « 1 » sur la figure, les déformations augmentent avec la température du fait de la dilatation thermique du matériau à l'état cru. La réticulation de la matière a

ensuite lieu durant le plateau isotherme à 100°C et se traduit par la chute de déformation, liée au retrait chimique. La zone intitulée « 2 » correspond au retrait thermique à l'état réticulé, la totalité de la réaction ayant eu lieu avant. Ces trois zones permettent d'obtenir directement les coefficients de dilatation thermique (CDT) à l'état cru et réticulé, notés α_i par la suite, ainsi que les coefficients de retrait chimique (CRC) durant la transformation, notés β_i . Les valeurs obtenues suivant les deux directions de mesure sont données dans le (Tab. 1).

CDT	Unité	Etat cru	Etat cuit	CRC	Unité	Valeur
α_{EP}	(10^{-6} K^{-1})	40±2	189±10	β_{EP}	(%)	-4.0±0.2
α_{PL}	(10^{-6} K^{-1})	180±67	38±7	β_{PL}	(%)	-0.2±0.1
α_{VOL}	(10^{-6} K^{-1})	400±136	266±15	β_{VOL}	(%)	-4.4±0.4
$\alpha_{VOL \text{ PvT}\alpha}$	(10^{-6} K^{-1})	413±15	206±20	$\beta_{VOL \text{ PvT}\alpha}$	(%)	-4.2±0.2

Tab. 1. Valeurs mesurées de CDT et de CRC pour le SMC

A l'état cru, le CDT déterminé dans le plan α_{PL} présente une variabilité importante. Ceci est dû aux fortes variations de taux volumique de fibres dans les matériaux SMC, comme énoncé précédemment. On remarque également que le CDT à travers l'épaisseur α_{EP} est plus faible que dans le plan, ce qui est surprenant compte tenu de la structure du SMC. En effet, l'orientation aléatoire des fibres dans le plan permet *a priori* à la matrice de se dilater majoritairement à travers l'épaisseur. Cette différence de comportement s'explique à l'aide de l'état de contraintes autour de l'échantillon. Dans le dispositif, si l'état de contraintes hydrostatique n'est pas parfaitement contrôlé, l'échantillon est soumis à un léger chargement déviatoire. Lorsque la matrice est à l'état cru, cet état peut entraîner un écoulement en compression ou en traction. Le temps de chauffe étant long et les dilatations thermiques faibles, cet écoulement peut sensiblement altérer la mesure. A l'état cru, on parlera plutôt de CDT *apparent* du fait de ce chargement mécanique. Le SMC étant théoriquement isotrope dans le plan, les propriétés suivant les deux directions principales du plan sont censées être identiques. Les CDT suivant les trois principales directions étant connu de ce fait, il est possible de calculer le CDT volumique α_{VOL} du matériau en sommant les trois valeurs précédentes. On obtient une valeur $\alpha_{VOL} = 400 \pm 136 \text{ } 10^{-6} \text{ K}^{-1}$. L'utilisation du PvT α [5] sur trois échantillons du même matériau donne une valeur de $\alpha_{VOL} = 413 \pm 15 \text{ } 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, ce qui est en accord avec la valeur précédente.

A l'état réticulé, les valeurs de α_{PL} présentent une variabilité moindre, allant de 31 à 45 10^{-6} K^{-1} . La valeur de $\alpha_{EP} = 189 \pm 10 \text{ } 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ est bien supérieure à celle dans le plan, ce qui est en accord avec la structure du matériau. La valeur du CDT volumique dans cet état atteint $266 \pm 15 \text{ } 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, inférieure à celle à l'état cru ce qui est dû à l'augmentation de la rigidité de la matrice et la valeur inférieure de son CDT dans cet état. Cette valeur reste néanmoins supérieure à celle obtenue par PvT α , qui est de $206 \pm 20 \text{ } 10^{-6} \text{ K}^{-1}$. Là encore, ceci peut s'expliquer par la variabilité des propriétés du SMC et par la taille plus faible des échantillons PvT α (40mm de diamètre, 6mm d'épaisseur), qui peut accentuer cette variabilité, la taille représentative d'un matériau SMC de ce type étant de 100mm [15].

Durant la transformation, les déformations sont uniquement dues au retrait chimique du matériau. Une forte diminution des déformations est visible dans la direction à travers l'épaisseur et est beaucoup plus faible dans le plan. Ceci est encore dû à la structure fibreuse du matériau, rendant le retrait de la résine plus facile à travers l'épaisseur du SMC, et menant à une valeur de β_{EP} plus importante. Ici aussi, la somme des coefficients suivant les trois directions mène à une valeur volumique de $\beta_{VOL} = -4,4 \pm 0,4 \text{ } \%$, ce qui est en très bonne adéquation avec la valeur obtenue à l'aide du PvT α $\beta_{VOL \text{ PvT}\alpha} = -4,2 \pm 0,2 \text{ } \%$.

5. Conclusions et perspectives

Un nouveau dispositif appelé PvT-HADDOC est présenté. Il permet de caractériser les déformations d'un matériau composite thermodurcissable durant toute sa transformation et sous

conditions représentatives du procédé. Il vérifie le cahier des charges d'un dispositif idéal de caractérisation de ces matériaux, permettant de maîtriser l'état thermo-mécanique de l'échantillon, d'évaluer l'avancement de la réticulation, et de suivre ses déformations suivant deux directions sans caractère intrusif. Les performances de ce dispositif ont été démontrées d'une part sur un échantillon d'alliage d'aluminium, puis sur un matériau de type SMC, indiquant ainsi que la majeure partie des déformations d'origine thermique et chimique avait lieu à travers son épaisseur. Les valeurs des coefficients de dilatation thermique et de retrait chimique obtenues ont été comparées à celles issues de mesures volumiques obtenues avec le dispositif PvT α , témoignant d'un excellent accord entre les différents résultats. Bien que certaines améliorations du dispositif restent à apporter, celui-ci peut déjà permettre d'investiguer de nombreux champs de la mise en forme des composites. Ainsi, il serait intéressant de tester différentes séquences d'empilement sur des matériaux UD, ce qui permettrait de valider les nombreuses théories développées dans ce domaine. La sollicitation mécanique de l'échantillon au cours de sa transformation permettrait également d'en déterminer l'évolution des propriétés mécaniques.

Remerciements

Ces travaux font partie de la Chaire COMPETH de l'IRT Jules Verne. Les auteurs souhaitent remercier les partenaires industriels de ce projet : Airbus Group, Airbus Group Innovations, Daher et Solvay.

Références

- [1] S.R. WHITE, H.T. HAHN, « Process modeling of composite materials: residual stress development during cure. Part II: Experimental validation ». *J. Compos. Mater.*, Vol. 26, pp. 2423-2453, 1992.
- [2] Y. ABOU MSALLEM, F. JACQUEMIN, A. POITOU, « Residual stresses formation during the manufacturing process of epoxy matrix composites: resin yield stress and anisotropic chemical shrinkage ». *Int. J. Mater. Form.*, Vol. 3, pp. 1363-1372, 2010.
- [3] Y. NAWAB, S. SHAHID, N. BOYARD, F. JACQUEMIN, « Chemical shrinkage characterization techniques for thermoset resins and associated composites ». *J. Mater. Sci.*, Vol. 48, pp. 5387-5409, 2013.
- [4] M. SADEGHINIA, K.M.B. JANSEN, L.J. ERNST, « Characterization and modeling the thermo-chemical cure-dependent properties of epoxy molding compounds ». *Int. J. Adhes. Adhes.*, Vol. 32, pp. 82-88, 2012.
- [5] Y. NAWAB, X. TARDIF, N. BOYARD, V. SOBOTKA, P. CASARI, F. JACQUEMIN, « Determination and modeling of the cure shrinkage of epoxy vinylester resin and associated composites by considering thermal gradients ». *Compos. Sci. Technol.*, Vol. 73, pp. 81-87, 2012.
- [6] Y.K. KIM, « Process-induced residual stresses analysis by resin transfer molding ». *J. Compos. Mater.*, Vol. 38, pp. 959-972, 2004.
- [7] M. MULLE, F. COLLOMBET, P. OLIVIER, Y.H. GRUNEVOLD, « Assessment of cure residual strains through the thickness of carbon-epoxy laminates using FBGs, Part I: Elementary specimen ». *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, Vol. 40, pp. 94-104, 2009.
- [8] S. MINAKUCHI, S. NIWA, K. TAKAGAKI, N. TAKEDA, « Composite cure simulation scheme fully integrating internal strain measurement ». *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, Vol. 84, pp. 53-63, 2016.
- [9] P. OLIVIER, « A note upon the development of residual curing strains in carbon/epoxy laminates. Study by thermomechanical analysis ». *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, Vol. 37, pp. 602-616, 2006.
- [10] J. JAKOBSEN, M. JENSEN, J.H. ANDREASEN, « Thermo-mechanical characterization of in-plane properties for CSM E-glass epoxy polymer composite materials – Part I: Thermal and chemical strain ». *Polym. Test.*, Vol. 32, pp. 1350-1357, 2013.
- [11] Y. NAWAB, P. CASARI, N. BOYARD, V. SOBOTKA, F. JACQUEMIN, « *In situ* characterization of in-plane chemical shrinkage of thermoset laminated composites using a simple setup ». *J. Reinf. Plast. Compos.*, Vol. 34, pp. 931-938, 2015.
- [12] O.G. KRAVCHENKO, S.G. KRAVCHENKO, R.B. PIPES, « Chemical and thermal shrinkage in thermosetting prepreg ». *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, Vol. 80, pp. 72-81, 2016.
- [13] H. MASSE, E. ARQUIS, D. DELAUNAY, S. QUILLIER, P. LE BOT, « Heat transfer with mechanically driven thermal contact resistance at the polymer-mold interface in injection molding of polymers ». *Int. J. Heat Mass Transf.*, Vol. 47, pp. 2015-2027, 2004.
- [14] J. BECK, B. BLACKWELL, C. CLAIR. *Inverse heat conduction*, Wiley, New-York, 1985.
- [15] P. DUMONT, L. ORGEAS, S. LE CORRE, D. FAVIER, « Anisotropic viscous behavior of sheet molding compounds (SMC) during compression molding ». *Int. J. Plast.*, Vol. 19, pp. 625-646, 2003.