



HAL
open science

Investigation de la microstructure d'un composite polyamide recyclé à base de renforts tissés en vue d'une simulation multi-échelle en champs complets

Saif Eddine Sekkal, Fodil Meraghni, George Chatzigeorgiou, Frédéric Pelascini

► To cite this version:

Saif Eddine Sekkal, Fodil Meraghni, George Chatzigeorgiou, Frédéric Pelascini. Investigation de la microstructure d'un composite polyamide recyclé à base de renforts tissés en vue d'une simulation multi-échelle en champs complets : Microstructure investigation of recycled polyamide woven fabric-based composite towards full-field multiscale simulation. Journées Nationales sur les Composites 2023 (JCN23), Jul 2023, Besançon, France. pp.8. hal-04158467

HAL Id: hal-04158467

<https://hal.science/hal-04158467>

Submitted on 11 Jul 2023

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.

Investigation de la microstructure d'un composite polyamide recyclé à base de renforts tissés en vue d'une simulation multi-échelle en champs complets

Microstructure investigation of recycled polyamide woven fabric-based composite towards full-field multiscale simulation

Saif Eddine Sekkal¹, Fodil Meraghni¹, George Chatzigeorgiou¹ et Frédéric Pelascini²

1 : Arts et Métiers Institute of Technology, CNRS, LEM3-UMR 7239
4 rue Augustin Fresnel, Metz, 57078, France
saif_eddine.sekkal@ensam.eu, fodil.meraghni@ensam.eu et georges.chatzigeorgiou@ensam.eu

2 : Cetim
21 Rue de Chemnitz, Mulhouse, 68200, France
frederic.pelascini@cetim.fr

Résumé

Les composites à base de polymères thermoplastiques renforcés de fibres sont de plus en plus utilisés dans l'industrie du transport pour leurs excellentes performances mécaniques. Toutefois, leur impact sur l'environnement et les voies de recyclage soulèvent des inquiétudes. Le recyclage mécanique utilisant les propriétés de fusion des polymères thermoplastiques est une méthode efficace pour augmenter la valeur des composites recyclés. Ce travail vise à étudier la relation entre la microstructure de ces matériaux et leurs propriétés mécaniques. Le matériau étudié est constitué d'une matrice en polyamide 6 renforcée par des fibres de verre. Une étude microstructurale utilisant à la fois des techniques destructives et non destructives a révélé une structure hiérarchique complexe des fibres. Cette structure entraîne une variabilité des performances mécaniques, ce qui entrave la commercialisation à grande échelle de ces matériaux. Par conséquent, les modèles prédictifs de la réponse mécanique de ces matériaux sont importants pour une optimisation rapide de la conception. Un modèle multi-échelle a été proposé sur la base d'une étude microstructurale et validé sur des données expérimentales d'un composite PA6/fibres de verre recyclé. Cette approche peut être utilisée pour d'autres matériaux recyclés et peut aider à développer des stratégies de recyclage respectueuses de l'environnement pour ces matériaux.

Abstract

Fiber-reinforced thermoplastic polymer composites are becoming more popular due to their lightweight properties and excellent mechanical performance. However, concerns have been raised about their environmental impact and recycling routes. Mechanical recycling using the melting properties of thermoplastic polymers is an effective method of increasing the value of recycled composites. This research aims to investigate the relationship between the microstructure of these materials and their mechanical properties. The studied material was made of a polyamide 6 matrix reinforced with glass fibers, and a microstructural investigation using both destructive and non-destructive techniques revealed a complex hierarchical fiber structure. This structure causes variability in the mechanical performance, hindering the large-scale commercialization of these materials. Therefore, predictive models for the mechanical response of these materials are important for fast design optimization. A multi-scale predictive model was proposed based on microstructural investigation and validated on experimental data from a recycled PA6/Glass fiber composite. This approach can be used for other recycled materials, and it can help develop eco-friendly recycling strategies for these materials.

Mots Clés : Matériaux composites recyclés, Modélisation multi-échelles, Investigation microstructurale des composites

Keywords : Recycled composite materials, Multiscale modeling, Composite microstructural investigation

1. Introduction

Les composites thermoplastiques renforcés de fibres continues sont une solution technologique avantageuse dans les secteurs de l'automobile, de l'aérospatiale et des énergies renouvelables. Ils offrent d'excellentes propriétés mécaniques et sont recyclables à faible coût par rapport aux composites thermodurcissables [1, 2]. Avec la demande croissante de ces matériaux, leur recyclage en boucle fermée est devenu un enjeu environnemental majeur. Les technologies de recyclage des composites peuvent être divisées en recyclage mécanique, thermique et chimique. Le choix de la technologie est lié au type de matériau et à l'application visée par le produit recyclé [2]. Néanmoins, les composites thermoplastiques sont considérés comme de bons candidats pour le recyclage mécanique, qui est généralement réalisé en déchiquetant des chutes de production ou des pièces en fin de vie, suivi d'un processus de thermocompression ou de moulage par injection [3, 4]. Cette étude concernera principalement les techniques de recyclage par moulage par compression. Ces dernières ont été exploré par de nombreux travaux scientifiques, en utilisant des long rubans en composite thermoplastique pour la mise en oeuvre de leurs matériaux [5, 4]. Une autre variante de cette technologie a été utilisée par Kiss et al. [1] en moulant conjointement des matériaux déchiquetés comme couche centrale entre deux couches de fibres continues. Ces plaques en forme de sandwich avaient un véritable potentiel de surcyclage pour atteindre les propriétés originales des stratifiés composites à fibres continues en termes de résistance en flexion et aux chocs.

La modélisation des propriétés mécaniques des composites recyclés nécessite une compréhension approfondie de la microstructure induite par le procédé. La difficulté réside dans la quantification des paramètres microstructuraux et géométriques qui affectent les performances des composites recyclés, tels que l'orientation des fibres, la longueur des fibres, la teneur en vides, la dégradation de la matrice... D'autre part, plusieurs travaux de recherche sur la modélisation des composites renforcés par des fragments (tapes) fibreux coupés ont été publiés. Ces types de matériaux sont similaires aux composites thermoplastiques recyclés dans leur mis en oeuvre et leur microstructure. Visweswaraiyah et al. [6] ont présenté les principales méthodes de modélisation analytiques et numériques utilisées pour prédire les propriétés mécaniques des composites à mèches orientés de manière aléatoire et de leurs hybrides, en mettant l'accent sur la prédiction de la rigidité et de la résistance. Harper et al. [7] ont développé un schéma de modélisation géométrique pour générer des architectures de fibres aléatoires pour les composites à fibres discontinues, permettant une modélisation des propriétés mécaniques. En outre, Tang et al. [8] ont étudié le comportement en fatigue pour les composites renforcés par des fragments de fibres de carbone

expérimentalement et numériquement. D'une autre part, les auteurs du présent travail ont proposé une procédure d'analyse qui lie la microstructure au comportement mécanique du matériau, en tenant en compte le comportement visco-élastique de la matrice en polyamide [9].

L'objectif du présent travail est d'étudier les performances des composites thermoplastiques recyclés mécaniquement en termes de résistance à la traction et à la flexion, en mettant particulièrement l'accent sur l'impact de la taille des fragments, ainsi que sur les mécanismes d'endommagement observés. Une étude approfondie des microstructures de ces composites recyclés est menée, et un modèle multi-échelle en champ complet est développé sur la base de ces observations pour prédire leurs propriétés mécaniques. Il est démontré que les propriétés mécaniques des matériaux recyclés ne sont pas affectées de manière significative par la longueur des fragments. Le modèle proposé est comparé aux données expérimentales obtenues à partir d'essais de traction dans deux directions perpendiculaires, et il est démontré que l'anisotropie du matériau peut être capturée avec précision.

2. Matériaux et caractérisation microstructurale

2.1. Matériaux et procédé de recyclage

Les matériaux composites recyclés étudiés sont fabriqués et fournis par le CETIM (Centre technique des industries mécaniques). Des stratifiés composites Tepex® Dynalite sont déchiquetés et thermocomprimés pour former des plaques de composites recyclés. Le matériau Tepex® Dynalite 102-RG600(x)/PA-GF/47% utilisé est fabriqué et fourni par Bond-Laminates GmbH (Am Patbergschen Dorn 11-D-59929 Brilon, Allemagne). Les stratifiés tissés Tepex® PA-GF de 1 mm d'épaisseur sont découpés en fragments carrés de 20 x 20 mm et en fragments rectangulaires de 160 x 20 mm. Les fragments sont moulés par compression en deux matériaux différents sous forme de plaques de 5 mm d'épaisseur. Cette opération est réalisée à l'aide de la ligne de production modulaire "Thermosaic®". Les fragments sont répartis uniformément dans le moule pour assurer une bonne consolidation. Un exemple de distribution des fragments avant le moulage par compression est représenté sur la figure 1. Le produit fini est formé en deux étapes de compression : la première préchauffe et précompacte les fragments, ensuite une deuxième compression est effectuée à une température plus élevée afin d'assurer une fusion correcte de la matrice.

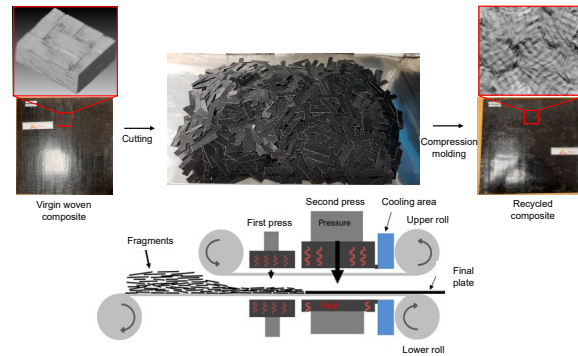


FIG. 1. – Schéma de la ligne de production Thermosaic® pour le recyclage mécanique des composites thermoplastiques.

Dans le cadre de ce travail, deux matériaux recyclés aux dimensions de fragments différentes sont étudiés. Le premier, dénommé RTPC-SQR (Recycled ThermoPlastic Composite – SQuaRe chip), est constitué de fragments carrés de 20 x 20 mm. Le second, désigné de RTPC-REC (Recycled ThermoPlastic Composite – Rectangular chip), est fabriqué à partir de copeaux rectangulaires de 160 x 20 mm. L'objectif est de comparer ces matériaux en termes de propriétés mécaniques et d'effectuer une analyse microstructurale approfondie pour comprendre l'impact du procédé de fabrication.

2.2. Mesure de la fraction volumique des fibres

Pour les matériaux composites, l'une des méthodes d'essai les plus utilisées pour déterminer la fraction volumique de fibres est la calcination. Ce dernier consiste à éliminer la matrice par incinération, tout en laissant le renfort intact. Pour chacun des deux matériaux examinés, RTPC-SQR et RTPC-REC, un échantillon préalablement pesé de 200 x 200 x 5 mm a été découpé au centre de la plaque composite et placé dans un four à 450°C pendant 24 heures. En pesant chacun des deux échantillons avec une précision de 0,001g et en utilisant les densités spécifiées par le fabricant pour les fibres de verre et le polyamide 6, les fractions volumiques de fibres ont été calculées à l'aide de la formule Eq. 1.

$$v_f = \frac{(M_f \times \rho_m)}{(\rho_f - M_f \times (\rho_f - \rho_m))} \quad (\text{Eq. 1})$$

Les résultats de la calcination de la matrice montrent que la fraction volumique initiale de fibres de 47% a effectivement été conservée pendant le traitement. Cela suggère que les méthodes de traitement utilisées n'ont pas affecté de manière significative la fraction volumique de fibres.

2.3. Investigation microstructurale par microscopie optique

Cette étude de microscopie optique vise à comparer les microstructures des RTPC-REC et RTPC-SQR et à comprendre l'effet du traitement et du recyclage sur ces dernières. L'objectif est d'évaluer quantitativement certains paramètres microstructuraux, considérés comme des entrées pour la modélisation du comportement mécanique.

Pour préparer les échantillons en vue de l'observation, trois surfaces mesurant 22 x 5 mm ont été découpées au centre des plaques recyclées à l'aide d'une scie automatique Secotum munie d'une lame de 0,5 mm d'épaisseur. Ces échantillons sont observés à travers l'épaisseur.

Les observations de microscopie optique des échantillons produits à partir de fragments de 20x20 mm et de 160x20 mm révèlent une microstructure pouvant être analysée à deux échelles différentes : une échelle microscopique et une échelle mésoscopique. La principale raison de cette séparation d'échelle est la distribution irrégulière de la matrice dans le matériau, comme le montre la figure 2. Cette hétérogénéité est caractérisée par la présence de zones riches en matrice et d'autres riches en fibres. À l'échelle mésoscopique, les fibres forment un motif ondulé avec une orientation principalement dans le plan. Il est possible de distinguer deux mèches différentes en fonction des changements d'orientation ou de la présence de zones riches en matrice. À l'échelle microscopique, la structure à l'intérieur des mèches est plus homogène, avec plusieurs fibres ayant une orientation uniforme.

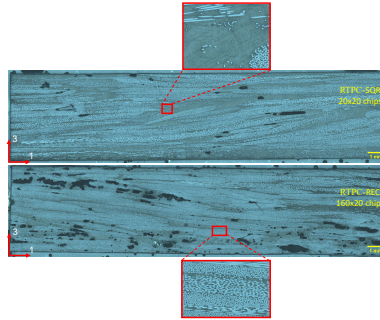


FIG. 2. – Microstructure RTPC capturée par microscopie optique pour des matériaux recyclés avec différentes longueurs de copeaux.

Les observations microstructurales ont conduit à des mesures quantitatives qui alimentent les simulations numériques ultérieures. Cela est dû au fait que les mesures quantitatives fournissent des informations détaillées sur la microstructure du matériau, y compris la taille, la forme et la distribution des fibres et de la matrice, qui peuvent ensuite être utilisées comme entrée pour les simulations numériques. Afin de déterminer la fraction volumique de fibres à l'intérieur des mèches, des mesures ont été effectuées à la fois à l'échelle microscopique et à l'échelle mésoscopique. À l'échelle microscopique, 15 échantillons aléatoires de fibres et de matrice au sein des mèches ont été analysés par des techniques de traitement d'image et de seuillage. Ces informations sont utilisées pour déduire la fraction volumique des mèches à l'échelle mésoscopique grâce à la formule Eq. 2.

$$v_{f/c} = v_{f/m} \times v_{m/c} \quad (\text{Eq. 2})$$

où $v_{f/c}$ est la fraction volumique de fibres dans le composite, $v_{f/m}$ est la fraction volumique de fibres dans les mèches et $v_{m/c}$ est la fraction volumique de mèches dans le composite.

Les résultats sont présentés dans le tableau 1. La fraction volumique de mèches à l'intérieur du composite est calculée en supposant une fraction volumique de fibres à l'intérieur du composite de 47% obtenue par incinération de la matrice. Cette analyse à deux niveaux permet de comprendre de manière complète la microstructure du matériau composite, ce qui est crucial pour prédire ses propriétés mécaniques à l'aide d'une simulation numérique.

$v_{m/c}$ (Écart-type)	$v_{f/m}$
75,36% (2,70%)	62,36%

TAB. 1. – Résultats de quantification des paramètres microstructuraux à l'échelle microscopique à l'aide du traitement d'images.

2.4. Investigation des composites recyclés par microtomographie aux rayons X

Les microstructures des matériaux RTPC-SQR et RTPC-REC ont été comparées en analysant un volume de 125 x 55 x 5 mm à l'aide de la microtomographie aux rayons X (mCT). Les échantillons ont été prélevés dans la même zone de leurs plaques respectives à l'aide d'une scie automatique Secotum afin d'assurer la cohérence des échantillons. Cette technique permet d'obtenir des images en 3-D de haute qualité des matériaux, ce qui est essentiel pour comprendre leur microstructure et leur comportement mécanique. Les deux matériaux ont été examinés suivant leur épaisseur et une conservation du tissage des fibres est observée au centre des échantillons, comme le montre la figure 3. Dans le cas de l'échantillon du RTPC-SQR, les fragments sont clairement visibles et dans certains cas, la structure tissée a été déformée par rapport aux orientations initiales de 0° et 90°. Pour l'échantillon du RTPC-REC, les fragments de 160 x 20 mm peuvent être distingués les uns des autres. Dans certains cas extrêmes, les fragments semblent avoir été sévèrement déformés et pliés comme le montre la figure 3a. Cette déformation est probablement due aux phénomènes complexes d'écoulement de matière lors de la mise en œuvre.

3. Caractérisation du comportement mécanique par essais de traction et de flexion

3.1. Essais de traction sur des échantillons de composites thermoplastiques recyclés à partir de fragments carrés (RTPC-SQR)

Des essais de traction monotones ont été réalisés sur le composite RTPC-SQR. En raison de leur microstructure spécifique, il est essentiel de s'assurer que les échantillons d'essai en traction représentent le comportement macroscopique mécanique du matériau. Pour cela, des éprouvettes de 25 mm et 40 mm de largeur sont découpées dans une plaque par usinage par jet d'eau. Les échantillons sont

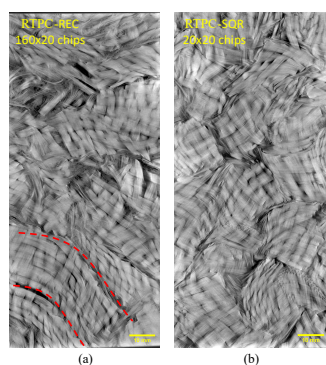


FIG. 3. – Comparaison des microstructures des matériaux recyclés à partir de différentes longueurs de fragments ((a) 160x20 mm et (b) 20x20mm) ; la structure initiale des fragments a été mieux conservée pour l'échantillon RTPC-SQR (b), tandis que plusieurs fragments semblent être déformés pour l'échantillon RTPC-REC (a).

découpés au centre de la plaque, dans deux directions différentes : la direction de fabrication de la plaque qui sera désignée par 0° et la direction perpendiculaire 90° .

Un extensomètre est utilisé pour mesurer le déplacement. Les tests ont été effectués à une vitesse de déformation constante de 0.01 s^{-1} . Les résultats sont présentés sous forme de courbes contrainte-déformation dans la figure 4 et dans le tableau 2.

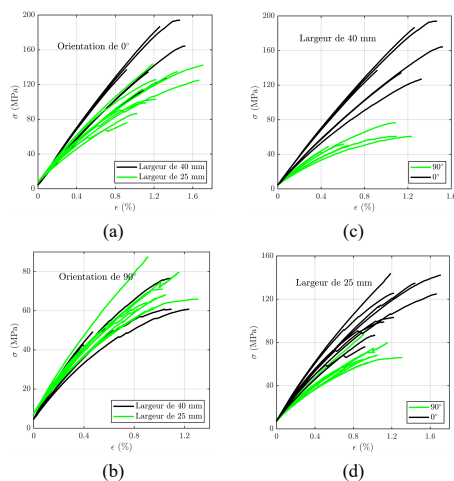


FIG. 4. – Comparaison des courbes contrainte-déformation pour essais de traction sur RTPC-SQR. Les graphes (a) et (b) comparent la réponse mécanique d'échantillons ayant des largeurs différentes, tandis que les graphes (c) et (d) montrent les résultats pour différentes orientations de découpe des échantillons.

Pour la largeur, les résultats sont similaires pour les orientations à 90° pour les spécimens de 25 mm et 40 mm. Cependant, pour l'orientation à 0° , trois spécimens de 40 mm ont une réponse plus rigide que les autres cas. En ce qui concerne l'effet de l'orientation des éprouvettes, une différence significative de réponse mécanique entre les orientations à 0° et à 90° est observée. Les éprouvettes coupées dans l'orientation à 0° ont un comportement plus rigide que celles orientées suivant 90° , ce qui peut être dû à une orientation préférentielle des fibres suivant la direction à 0° pendant la thermocompression.

Cela montre que le matériau RTPC-SQR est anisotrope et non pas isotrope transverse comme attendu. Ces résultats doivent être pris en compte dans la modélisation numérique du comportement de ce matériau.

3.2. Essais de flexion à trois points sur des composites thermoplastiques recyclés fabriqués à partir de fragments carrés et rectangulaires.

Des essais de flexion à trois points ont été réalisés sur les matériaux RTPC-SQR et RTPC-REC. Contrairement aux essais de traction, les essais de flexion à trois points ont pu être réalisés sur des échantillons plus larges, ce qui permet de tester un volume plus représentatif, en particulier pour les échantillons RTPC-REC qui sont fabriqués à partir de fragments de 160 x 20 mm. Les résultats sont présentés sous forme de courbes force-déplacement sur la figure 5. En examinant les courbes, on constate que les deux matériaux présentent une réponse mécanique relativement identique. Ceci est également démontré par les valeurs des modules de flexion dans le tableau 3. Les résultats sont en accord avec ce qui a été présenté dans la littérature [10], la taille des fragments n'ayant pas un impact considérable sur la performance mécanique.

4. Modélisation multi-échelles par champs complets des composites thermoplastiques recyclés

Les analyses microstructurales des composites thermoplastiques recyclés révèlent une structure hiérarchique complexe de fibres avec un mélange de fragments tissés intacts et de mèches de fibres unidirectionnelles orientées de manière aléatoire. Cette complexité

Largeur d'éprouvette	Module de Young moyen en GPa (Ecart-type en GPa)	
	Orientation 90°	Orientation 0°
40 mm	9,03 (1,14)	14,9 (1,84)
25 mm	8,47 (0,98)	12,38 (1,14)
Valeurs moyennes pour les deux largeurs d'éprouvette	8.69 (1.05)	13.46 (1.91)

TAB. 2. – Valeurs des modules de Young obtenus pour les éprouvettes testées et comparaison des valeurs obtenues pour différentes orientations d'éprouvette.

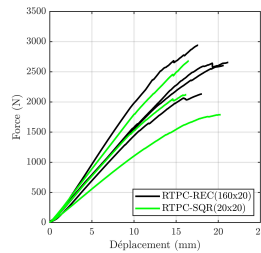


FIG. 5. – Load-displacement curves for three-point flexural tests performed on specimens recycled using different sized chips.

induite par des phénomènes d'écoulement locaux pendant la compression entraîne des mécanismes complexes de propagation des endommagements et une variabilité des performances mécaniques. Cela entrave le développement et la commercialisation à grande échelle de ces matériaux et favorise d'autres stratégies de recyclage moins respectueuses de l'environnement. Il est donc important de développer des modèles prédictifs précis pour la réponse mécanique de ces matériaux afin de permettre une optimisation rapide de la conception.

Le modèle multi-échelle proposé permet de prédire avec précision les propriétés des matériaux RTPC. Ce modèle est basé sur des études qualitatives et quantitatives approfondies de la microstructure et permet de capturer l'anisotropie du matériau. L'approche est validée par des comparaisons avec les résultats expérimentaux d'un composite fibre de verre - PA6 recyclé et peut être appliquée à d'autres composites recyclés de la même manière.

4.1. Génération d'un volume élémentaire représentatif (VER) pour des composites thermoplastiques recyclés

Les définitions d'un volume élémentaire représentatif varient dans la littérature. Dans le contexte de ce travail, un VER est considéré comme un volume qui accueille un nombre suffisant de mèches, le rendant ainsi représentatif en termes de fraction de volume de fibres et de leur orientation. Sur la base des observations microstructurales des matériaux TPRC à différentes échelles pertinentes, un VER constituée de multiples mèches orientées de manière aléatoire est choisi pour modéliser ces milieux. Cette stratégie de modélisation est capable de capturer le comportement de matériaux élaborés de manière similaire [9, 8, 11, 12]. La taille des mèches est basée sur la taille des fragments utilisés pour le procédé. D'autre part, la fraction volumique des mèches à l'intérieur d'une RVE (v_s/c) est un paramètre microstructural qui a été déterminé par la procédure décrite dans la section 2.3. En outre, comme le montrent les micrographies μ CT et de microscopie optique, les mèches après thermocompression présentent une orientation majoritairement dans le plan. Par conséquent, l'orientation hors plan des mèches a été omise pour la génération des VERs. Cela présente l'avantage supplémentaire de générer des VERs avec des fractions volumiques de mèches plus élevées, sans intersection entre elles. La présence de ces dernières peut poser des problèmes dans les calculs numériques.

4.1.1. Algorithme de génération des VERs : l'adsorption séquentielle aléatoire

L'algorithme de génération suit un schéma d'adsorption séquentielle aléatoire. Pour chaque couche, les mèches sont placées séquentiellement dans le VER, initialement avec une orientation aléatoire en utilisant une fonction de distribution uniforme, jusqu'à ce que le ratio de mèches requis soit atteint. Le code a été implémenté dans MATLAB et exploite les fonctions **polyshape** et **intersect** pour mesurer la présence d'intersections entre les mèches générées.

La version finale de l'algorithme de génération du VER positionne les mèches de manière aléatoire dans un VER défini par l'utilisateur. Pour assurer la périodicité du VER, dans le cas d'une intersection avec une bordure, la mèche est dupliquée de l'autre côté. Pour chaque mèche déposée dans l'un des sommets, elle est dupliquée sur tous les autres sommets. Une fonction de distribution d'orientation (ODF) peut être assignée aux angles d'orientation dans le plan des mèches. Si une mèche coupe une autre, l'itération est annulée et un compteur du nombre de tentatives est déclenché. Si le nombre maximum de tentatives est dépassé, le VER en cours est éliminé et un nouveau est créé. Cette procédure est exécutée en boucle jusqu'à ce que la fraction de volume de mèches souhaitée soit atteinte.

4.1.2. Modélisation par éléments finis du VER des TPRC

Une cellule unitaire VER est composée de quatre couches. Pour chaque couche, la position et l'orientation de chaque mèche sont enregistrées dans un fichier texte. Le modèle d'éléments finis est créé dans Abaqus à l'aide d'un code python. Ce dernier crée et assemble les mèches pour le VER entier, crée le matériau de la matrice et affecte les propriétés matériaux. Le matériau en excès sur les

	Module de flexion (GPa)	
	Moyenne	Ecart-type
RTPC-REC (fragments de 160 x 20 mm)	7,90	1,09
RTPC-SQR (fragments de 20 x 20 mm)	7,61	2,10

TAB. 3. – Module élastiques de flexion obtenus par des essais de flexion à trois points réalisés sur des échantillons recyclés à partir de fragments de différentes tailles.

bords du VER est éliminé, et la matrice est assemblée avec les mèches. Ensuite, l'orientation du matériau est assignée à chacune des mèches, et la cellule unitaire est maillée. Des éléments tétraédrales linéaires avec intégration réduite (C3D4) sont utilisés pour l'analyse par éléments finis. Enfin, des conditions aux limites périodiques sont appliquées et un fichier ".inp" est généré. Pour plus de détails sur les aspects théoriques de l'homogénéisation périodique, les lecteurs sont référés à [13, 14, 15, 16, 17].

4.2. Résultats de la simulation numérique

4.2.1. Homogénéisation à l'échelle microscopique et les propriétés matériau des mèches

Comme l'a montré l'analyse de la microstructure, les matériaux RTPC peuvent être analysés à deux échelles différentes : la micro-échelle et la méso-échelle. À l'échelle microscopique, la structure est constituée d'une forte densité de fibres étroitement serrées. À la méso-échelle, de multiples mèches semblent être imbriquées dans une solution matricielle. D'où la nécessité d'une modélisation à plusieurs échelles. À l'échelle méso, l'approche d'homogénéisation périodique aux champs complets est adoptée [13, 14, 15, 16, 17]. Pour la modélisation à l'échelle microscopique, les mèches sont supposées être à structure unidirectionnelle. Ceci est le résultat de multiples observations microstructurales qui illustrent la complexité de la structure du matériau après traitement, avec certains fragments conservant une structure tissée et d'autres manifestant une structure unidirectionnelle. Les propriétés effectives de la fibre de verre et du PA6 utilisées pour la micro-homogénéisation sont présentées dans le tableau 4.

Fibre de verre	Polyamide 6
$E_f = 81\,000\text{ MPa}$	$E_m = 3000\text{ MPa}$
$\nu_f = 0,25$	$\nu_m = 0,3$

TAB. 4. – Les propriétés matériau de la fibre de verre et du polyamide 6 utilisé pour la micro-homogénéisation

En outre, pour l'homogénéisation à l'échelle micro, un schéma d'homogénéisation Mori-Tanaka à champ moyen est utilisé pour calculer les propriétés matérielles des mèches [18, 19, 20]. Les fibres sont supposées être unidirectionnelles et la fraction volumique des fibres à l'intérieur de la mèche est mesurée à l'aide d'un traitement d'image. Les constantes élastiques récupérées par la suite sont utilisées pour l'homogénéisation en champs complets à l'échelle méso. Le schéma d'homogénéisation est présenté dans la figure 6.

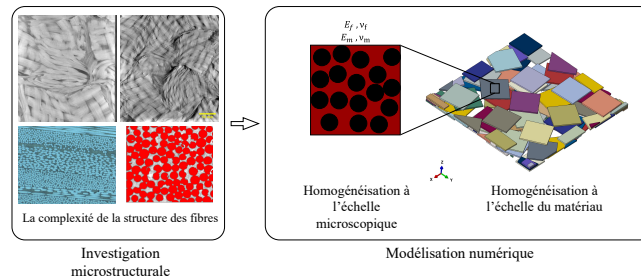


FIG. 6. – La stratégie de modélisation adoptée pour les composites thermoplastiques recyclés mécaniquement.

4.2.2. Résultats et validation expérimentale

Afin de comparer correctement les prédictions de la modélisation avec les données expérimentales de l'essai de traction, trois VERs ont été générés à l'aide d'un schéma de dépôt de mèches aléatoires. Une fraction volumique de mèches de 59% est obtenue pour les trois, ce qui correspond à une valeur de 79% pour la micro-homogénéisation, proche des valeurs mesurées expérimentalement. Pour les premières simulations, l'anisotropie observée sur le matériau RTPC-SQR n'a pas été reportée sur le modèle utilisant des mèches orientées de manière aléatoire. En effet, les valeurs des modules de Young pour les directions 1 et 2 sont proches l'une de l'autre comme le montre la figure 7, ce qui ne fut pas le cas pour les essais de traction. Ceci est une conséquence de l'orientation aléatoire attribuée aux mèches lors du processus de génération.

En outre, de nombreux travaux antérieurs ont montré que les propriétés mécaniques des matériaux composites sont étroitement liées à la fonction de distribution de l'orientation (ODF) [21, 22]. Par conséquent, afin de capturer l'anisotropie du RTPC-SQR, une ODF spécifique doit être imposée à la génération de la microstructure. Cette ODF est choisie sur la base des résultats des essais de traction expérimentaux qui suggèrent que plus de mèches devraient être orientées dans la direction 0° par rapport à 90° . Un processus de paramétrage du modèle permet d'obtenir une ODF de génération, représentée dans la figure 8a, qui reproduit la l'anisotropie du matériau comme le montre la figure 8b.

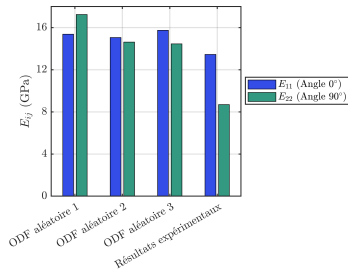


FIG. 7. – Comparaison des résultats expérimentaux et de simulation numérique pour une orientation de mèches aléatoire.

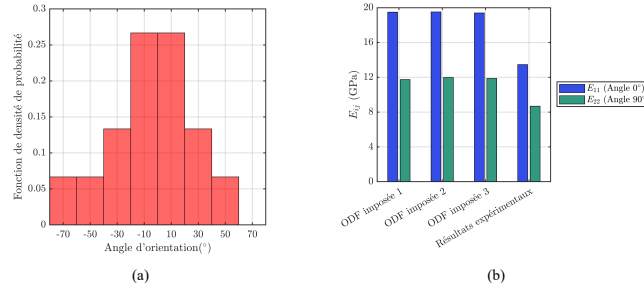


FIG. 8. – Comparaison des résultats expérimentaux et numériques en utilisant une ODF fixe pour générer les Volumes Élémentaires Représentatifs (VER).

La version du modèle avec la procédure décrite et les propriétés des matériaux du tableau 4 conduit à une surestimation de la réponse mécanique du matériau RTPC par rapport aux données expérimentales. Ce problème a été résolu par un processus d'identification basé sur les résultats expérimentaux. La nouvelle implémentation prend en compte un coefficient de correction qui tient compte de la complexité microstructurale des mèches et de la dégradation que les fragments subissent au cours du procédé. Après la calibration, les valeurs des modules de Young et de cisaillement récupérées après micro-homogénéisation sont réduites de 35%. Pour obtenir cette valeur, plusieurs calculs avec différents coefficients de réduction sont effectués et les erreurs quadratiques pour les modules élastiques sont calculées. Les résultats sont présentés dans la figure 9 et montrent que les valeurs d'erreur les plus faibles sont obtenues en utilisant une réduction de 35%. Les prédictions du modèle se rapprochent des valeurs expérimentales en utilisant ce coefficient.

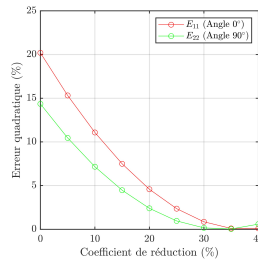


FIG. 9. – Comparaison de l'erreur quadratique pour les modules de Young à différents coefficients de réduction.

Après avoir pris en compte la dégradation des fibres par le biais du coefficient de correction, les modules de Young pour les VERs à orientation aléatoire se rapprochent des valeurs expérimentales, comme le montre la figure 10b, comparés aux résultats relatifs à une orientation aléatoire des mèches (figure 10a). En effet, on observe que le fait d'imposer une ODF de génération réduit considérablement l'écart entre les valeurs numériques et expérimentales. En effet, pour les mèches placées au hasard, l'erreur d'approximation moyenne pour E_1 est d'environ 24%, et pour E_2 d'environ 17%. En revanche, en utilisant l'ODF imposée pour la génération, l'erreur d'approximation pour E_1 se réduit à 2,8% et à 2,4% pour E_2 . Dans l'ensemble, on peut dire qu'il existe un bon accord entre les résultats expérimentaux et les résultats de la simulation pour la version finale du modèle.

5. Conclusions et perspectives

La caractérisation microstructurale des composites tissés thermoplastiques recyclés a révélé une structure de fibre exceptionnelle résultant de phénomènes complexes d'écoulement de matière pendant la mise en œuvre. L'investigation a utilisé des techniques destructives et non destructives, analysant la structure à deux niveaux : microscopique et mésoscopique. À l'échelle méso, les fibres ont été triées en deux architectures, avec des mèches UD observées sur les surfaces des échantillons et une architecture tissée au centre des plaques. Les données extraites de l'étude microstructurale ont été utilisées pour développer un modèle mécanique multi-échelle qui a capturé la réponse mécanique du matériau, y compris son comportement anisotrope observé lors d'essais de traction monotones. La dégradation de la matrice et des fibres causée par le processus de recyclage ont été pris en compte à l'aide d'un coefficient de correction, ce qui a réduit l'écart entre les résultats numériques et expérimentaux.

Les travaux futurs devraient se concentrer sur l'étude et la compréhension de l'effet du recyclage et du traitement sur la dégradation

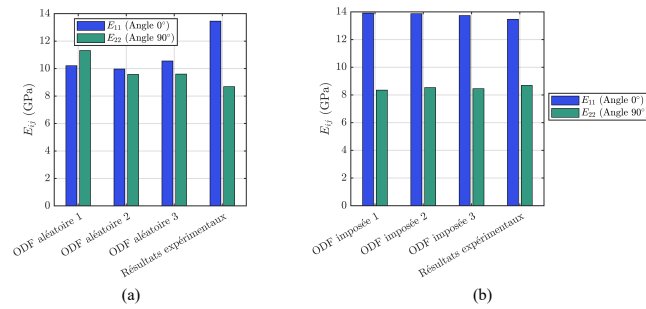


FIG. 10. – Comparaison des résultats expérimentaux et numériques en utilisant une ODF des mèches aléatoires (a) et une ODF imposée (b), en prenant en compte la dégradation des fibres.

des fibres et de la matrice. D'autre part, la réponse non linéaire du matériau sera analysée et modélisée via une approche par champs complets. Ceci pourrait être réalisé en incorporant les observations des mécanismes d'endommagement dans le modèle et en prenant en compte les natures élastoplastique et viscoplastique du matériau. Plusieurs modèles ont été développés par les auteurs, prenant en compte l'endommagement des mèches induit par la fissuration transversale et le pseudo-délamination, ainsi que l'endommagement ductile de la matrice thermoplastique et le décollement fibre/matrice [23, 24]. En outre, afin d'accélérer le développement de matériaux thermoplastiques recyclés, le modèle multi-échelle développé pourrait être exploité pour informer un modèle piloté par les données basé sur la PGD non intrusive. Cela pourrait fournir une prédiction de rigidité en temps réel pour les composites thermoplastiques recyclés, pour différents matériaux de fibre et de matrice ainsi que différents paramètres géométriques.

Références

- [1] P. Kiss, W. Stadlbauer, C. Burgstaller, H. Stadler, S. Fehring, F. Hauserer, V.-M. Archodoulaki « In-house recycling of carbon- and glass fibre-reinforced thermoplastic composite laminate waste into high-performance sheet materials », *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing* Vol. 139, pp. 106110, 2020, ISSN 1359-835X.
- [2] A. E. Krauklis, C. W. Karl, A. I. Gagani, J. K. Jørgensen « Composite material recycling technology—State-of-the-art and sustainable development for the 2020s », *Journal of Composites Science* Vol. 5, pp. 28, 2021, ISSN 2504-477X.
- [3] E. Asmatulu, J. Twomey, M. Overcash « Recycling of fiber-reinforced composites and direct structural composite recycling concept », *Journal of Composite Materials* Vol. 48, pp. 593–608, 2014, ISSN 0021-9983.
- [4] M. I. A. Rasheed « Compression molding of chopped woven thermoplastic composite flakes », .
- [5] D. D. Howell, S. Fukumoto « Compression molding of long chopped fiber thermoplastic composites », , pp. 13–16, 2014.
- [6] S. B. Visweswaraiyah, M. Selezneva, L. Lessard, P. Hubert « Mechanical characterisation and modelling of randomly oriented strand architecture and their hybrids—A general review », *Journal of Reinforced Plastics and Composites* Vol. 37, pp. 548–580, 2018, ISSN 0731-6844.
- [7] L. T. Harper, C. C. Qian, R. Luchoo, N. A. Warrior « 3D geometric modelling of discontinuous fibre composites using a force-directed algorithm », *Journal of Composite Materials* Vol. 51, pp. 2389–2406, 2017, ISSN 0021-9983.
- [8] H. Tang, G. Zhou, Z. Chen, L. Huang, K. Avery, Y. Li, H. Liu, H. Guo, H. Kang, D. Zeng « Fatigue behavior analysis and multi-scale modelling of chopped carbon fiber chip-reinforced composites under tension-tension loading condition », *Composite Structures* Vol. 215, pp. 85–97, 2019, ISSN 0263-8223.
- [9] M. Nachtane, F. Meraghni, G. Chatzigeorgiou, L. Harper, F. Pelascini « Multiscale viscoplastic modeling of recycled glass fiber-reinforced thermoplastic composites : Experimental and numerical investigations », *Composites Part B : Engineering* Vol. 242, pp. 110087, 2022.
- [10] Y. Wan, J. Takahashi « Tensile and compressive properties of chopped carbon fiber tapes reinforced thermoplastics with different fiber lengths and molding pressures », *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing* Vol. 87, pp. 271–281, 2016, ISSN 1359-835X.
- [11] Y. Pan, L. Iorga, A. A. Pelegri « Analysis of 3D random chopped fiber reinforced composites using FEM and random sequential adsorption », *Computational Materials Science* Vol. 43, pp. 450–461, 2008, ISSN 0927-0256.
- [12] P. R. K. Mohan, M. A. Kumar, P. M. Mohite « Representative volume element generation and its size determination for discontinuous composites made from chopped preregs », *Composite Structures* Vol. 252, pp. 112633, 2020, ISSN 0263-8223.
- [13] J.-C. Michel, H. Moulinec, P. Suquet « Effective properties of composite materials with periodic microstructure : a computational approach », *Computer methods in applied mechanics and engineering* Vol. 172, pp. 109–143, 1999, ISSN 0045-7825.
- [14] M. E. F. Idrissi, F. Praud, V. Champany, F. Chinesta, F. Meraghni « Multiparametric modeling of composite materials based on non-intrusive PGD informed by multiscale analyses : Application for real-time stiffness prediction of woven composites », *Composite Structures* Vol. 302, pp. 116228, 2022.
- [15] G. Chatzigeorgiou « Study of multilayered composites through periodic homogenization and Mori–Tanaka methods », *Mechanics of Materials* Vol. 164, pp. 104110, 2022, ISSN 0167-6636.
- [16] G. Chatzigeorgiou, F. Meraghni, N. Charalambakis, *Multiscale Modeling Approaches for Composites*, Elsevier, ISBN 0128233702, 2022.
- [17] Q. Chen, G. Chatzigeorgiou, F. Meraghni « Extended mean-field homogenization of unidirectional piezoelectric nanocomposites with generalized Gurtin–Murdoch interfaces », *Composite Structures* Vol. 307, pp. 116639, 2023, ISSN 0263-8223.
- [18] D. Anagnostou, G. Chatzigeorgiou, Y. Chemisky, F. Meraghni « Hierarchical micromechanical modeling of the viscoelastic behavior coupled to damage in SMC and SMC-hybrid composites », *Composites Part B : Engineering* Vol. 151, pp. 8–24, 2018, ISSN 1359-8368.
- [19] M. Barral, G. Chatzigeorgiou, F. Meraghni, R. Léon « Homogenization using modified Mori–Tanaka and TFA framework for elastoplastic-viscoelastic-viscoplastic composites : Theory and numerical validation », *International Journal of Plasticity* Vol. 127, pp. 102632, 2020, ISSN 0749-6419.
- [20] Q. Chen, G. Chatzigeorgiou, F. Meraghni « Extended mean-field homogenization of viscoelastic-viscoplastic polymer composites undergoing hybrid progressive degradation induced by interface debonding and matrix ductile damage », *International Journal of Solids and Structures* Vol. 210, pp. 1–17, 2021, ISSN 0020-7683.
- [21] M. Gupta, K. Wang « Fiber orientation and mechanical properties of short-fiber-reinforced injection-molded composites : Simulated and experimental results », *Polymer Composites* Vol. 14 n° 5, pp. 367–382, 1993.
- [22] M. Tarfaoui, S. Choukri, A. Nème « Effect of fibre orientation on mechanical properties of the laminated polymer composites subjected to out-of-plane high strain rate compressive loadings », *Composites Science and Technology* Vol. 68 n° 2, pp. 477–485, 2008.
- [23] F. Praud, G. Chatzigeorgiou, F. Meraghni « Fully integrated multi-scale modelling of damage and time-dependency in thermoplastic-based woven composites », *International Journal of Damage Mechanics* Vol. 30, pp. 163–195, 2021, ISSN 1056-7895.
- [24] Q. Chen, G. Chatzigeorgiou, G. Robert, F. Meraghni « Viscoelastic-viscoplastic homogenization of short glass-fiber reinforced polyamide composites (PA66/GF) with progressive interphase and matrix damage : New developments and experimental validation », *Mechanics of Materials* Vol. 164, pp. 104081, 2022, ISSN 0167-6636.