



HAL
open science

Porosités dans les stratifiés carbone/polymère : critère d'admissibilité et modélisation des propriétés mécaniques

Philippe Olivier, Philippe Marguerès, Benoit Mascaro, Francis Collombet

► To cite this version:

Philippe Olivier, Philippe Marguerès, Benoit Mascaro, Francis Collombet. Porosités dans les stratifiés carbone/polymère : critère d'admissibilité et modélisation des propriétés mécaniques. 15èmes Journées Nationales sur les Composites, Jun 2007, Marseille, France. p.73-80. hal-04496761

HAL Id: hal-04496761

<https://hal.science/hal-04496761>

Submitted on 8 Mar 2024

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.

**POROSITES DANS LES STRATIFIES CARBONE/POLYMERE : CRITERE
D'ADMISSIBILITE ET MODELISATION PROPRIETES MECANIQUES.**

**VOIDS IN CARBON/POLYMERIC LAMINATES: ACCEPTANCE CRITERIA
AND MECHANIC PROPERTIES MODELLING.**

Philippe Olivier*, Philippe Marguerès*,** Benoît Mascaro**,¹ Francis Collombet*

*Laboratoire de Génie Mécanique de Toulouse, Equipe PRO²COM
IUT Paul Sabatier – Dépt. GMP, B.P. 67701, 133C Av. de Rangueil – 31077 TOULOUSE CEDEX 04
e-mail : prenom.nom@iut-tlse3.fr

**Laboratoire PHASE, Université Paul Sabatier, UFR PCA
Bât. 3R1B2, 188 Rte. de Narbonne – 31068 TOULOUSE CEDEX 09

¹Dept. of Technology – University of Central Lancashire - PRESTON, PR1 2HE – U.K.
e-mail : bmascaro@uclan.ac.uk

RESUME

Les porosités ont fait l'objet de très nombreux travaux dans le domaine des matériaux composites (Rubin A.M., 94) (Shim, 97) (Campbell, 95). Au-delà des aspects de développement des porosités (Kardos, 86), de ceux de la maîtrise de leur taux en fonction des conditions de cuisson (Olivier, 95), on trouve un bon nombre de travaux portant sur l'influence des porosités sur les caractéristiques physiques (Choi, 01) et mécaniques (Almeida, 94) des stratifiés. Dans cet environnement bibliographique fourni, nous avons cherché à mettre en place un critère d'admissibilité des porosités par rapport à quelques caractéristiques mécaniques. Ce critère repose sur des mesures de la pente du coefficient d'atténuation d'ondes ultrasonores (Olivier, 06) pratiquées sur des UD 8 ou 16 plis et corrélées aux caractéristiques mécanique des stratifiés. L'étude est conduite sur deux composites dits de 2nd de 3^{ème} générations.

ABSTRACT

Voids in composite laminates have been extensively studied (Rubin, 94) (Shim, 97) (Campbell, 95). Beyond the topics of explaining void origins and growth (Kardos, 86), of optimizing the pressure curing path aiming to reduce void content (Olivier, 95), several research work has also been performed on the influence of voids upon physical (Choi, 01) and mechanical characteristics (Almeida, 94) of laminates. In consideration of this bibliographical background, it has been decide to focus our research work on the development of a criterion of voids acceptability with respect to laminates mechanical properties. This criterion is based on ultrasonic attenuation measurements performed on 8 or 16 plies U.D. laminates (Olivier, 06). The slope of the ultrasonic absorption coefficient has been interrelated with void contents and mechanical ultimate strengths. This study was performed on two composites materials so-called of 2nd and 3rd generation.

MOTS CLES : POROSITES / ULTRASONS / ATTENUATION / CRITERE ACCEPATATION
KEYWORDS: VOIDS / ULTRASONIC / ABSORPTION / ACCEPTANCE CRITERION

INTRODUCTION

Comme mentionné dans le résumé, les porosités dans les pièces stratifiées composites ont fait l'objet d'une abondante littérature. Son examen nous a permis de définir sur ce thème un axe de recherche peu abordé dans la littérature publique et présentant, à notre sens, un intérêt certain pour la réduction des coûts de qualification et de contrôle de qualité des structures composites aéronautiques. En effet, lors de la production d'une pièce de structure, un ensemble d'éprouvettes suiveuses sont simultanément fabriquées, puis soumises à différents essais physico-chimiques et mécaniques destructifs. Ces essais permettent de justifier de la qualité de la pièce de structure produite (voir par exemple Groves, 90). La démarche que nous proposons ici devrait permettre de réduire nombre d'essais du processus assurance qualité. Il s'agit en particulier des essais sur éprouvettes suiveuses pour les déterminations des taux de porosité par dissolution de résine et des contraintes à la rupture en cisaillement interlaminaire. Bien entendu, ceci s'entend après une phase d'étalonnage pouvant être mise en place lors des étapes de qualification et de certification.

Au-delà de cet aspect réduction des coûts, ce travail a pour objectif premier de proposer un critère cohérent de décision par rapport à l'acceptation des taux de porosité et en pratiquant de simples mesures d'atténuation ultrasonore et en corrélant ces dernières aux évolutions de différentes caractéristiques mécaniques.

MATERIAUX – FABRICATION – TAUX DE POROSITE

Les travaux menés au sein de notre équipe sur les porosités depuis 1995, nous permettent de disposer aujourd'hui d'une base de données sur trois matériaux composites différents. Il s'agit de stratifiés carbone / époxy pour les deux premiers et carbone / polymère pour le dernier. Les références commerciales des préimprégnés mis en œuvre sont : T2H-EH25 et T700GC-M21 (Hexcel Composites) et R922-1C12K (Ciba-Composites).

Toutes les productions ont été faites en autoclave sous vide en respectant les cycles de température recommandés par les producteurs des préimprégnés. Seuls les cycles de pression ont été modifiés comme expliqué dans la référence (Olivier, 95) afin d'obtenir des stratifiés avec divers taux de porosité (V_p % - fraction volumique de porosité) variant de 0 à 20%. Les stratifiés fabriqués sont de drapage [0°_8] pour le matériau T700GC-M21 ou [0°_{16}] pour les deux autres. Les taux de porosité (V_p %) ont été déterminés suivant deux méthodes : dissolution de résine (NF EN 2564A) avec une précision de $\pm 1\%$ et comptage optique sur analyse d'image M.E.B. fait avec ImageJ. Dans ce dernier cas, la seule norme existante (NF EN ISO 7822) se rapporte au composites renforcés au verre textile. Les images numériques des coupes micrographiques que nous utilisons pour l'étude des porosités comportent un nombre de pixels constant (440 064 pixels). Avec un tel nombre de points, en comptant les pixels se trouvant sur une porosité, on obtient par exemple (et conformément aux spécification de la norme NF EN ISO 7822), pour un taux de porosité de 5%, l'erreur relative sur $V_p(\%)$ est de 0,15%. La corrélation entre les deux méthodes de détermination des taux de porosité (comptage optique et dissolution) est exposée sur la figure 1 de la référence (Olivier, 06). La figure 1 du présent article montre, à titre d'exemple, les $V_p(\%)$ (comptage optique) pour les 3 matériaux en fonction de la pression autoclave appliquée au départ du cycle de polymérisation.

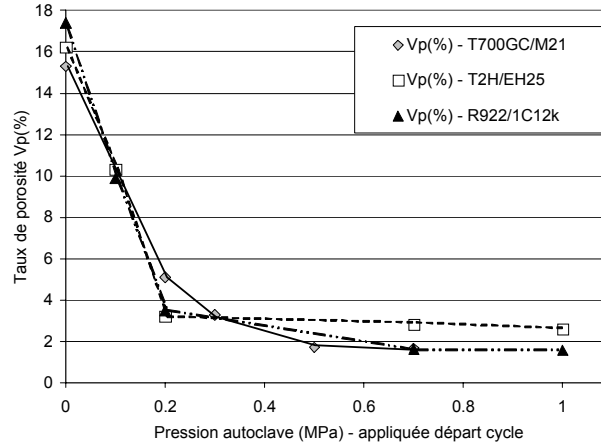


Figure 1 : Taux de porosité en fonction de la pression autoclave. $V_p(\%)$ déterminés par analyse d'image. *Void content depending on autoclave curing pressure. $V_p(\%)$ determined by image analysis.*

ATTENUATION ULTRASONORE ET CARACTERISTIQUES MECANIQUES

Atténuation des ondes ultrasonores en fonction de la porosité

Des mesures d'atténuation des ondes ultrasonores ont été menées (en parallèle d'essais mécaniques) sur les plaques $[0^\circ_8]$ pour le matériau T700GC-M21 ou $[0^\circ_{16}]$ pour le matériau T2H-EH25. Les mesures US sont faites en transmission en immersion avec deux sondes droites $\varnothing 13$ mm de fréquence 5 MHz. L'atténuation globale (en dB/mm) d'une plaque stratifiée est un paramètre certainement employé dans le milieu industriel (consécutivement et en complément d'un contrôle en mode écho) ou encore dans la littérature publique (Nair, 89) (Jeong, 95) (Costa, 01). Toutefois, cette atténuation globale dépend de la fréquence centrale et de la bande passante du spectre sonore émis. C'est pourquoi, dans nos travaux, nous avons déterminé l'atténuation en fonction de la fréquence, $\alpha(f)$ en dB/mm/MHz. Les mesures d'atténuation (figure 2) mettent bien en évidence une augmentation de la pente de l'atténuation $S(\alpha)$ (dB/mm/MHz) (1) allant avec l'augmentation du taux de porosité des stratifiés.

$$\alpha(f) = \frac{1}{e} 10 \times \log \frac{(T \times |S_0(f)|)^2}{|S_M(f)|^2} \quad (1)$$

avec: $S_0(f) = FFT(s_0(t))$; $S_M(f) = FFT(s_M(t))$; $s_0(t), s_M(t)$, signaux transmis dans l'eau et à travers le matériau (en dB); e , épaisseur du stratifié (en mm); T , coefficient de transmission aux interfaces (fonction des impédances acoustiques Z).

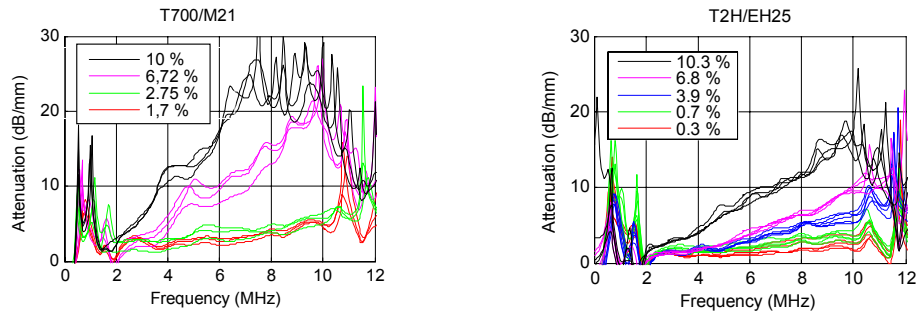


Figure 2. Evolution de l'atténuation en fonction de la fréquence pour divers taux de porosité sur des échantillons unidirectionnels de 2 mm d'épaisseur. *Changes in absorption as a function of frequency for various void contents for 2-mm-thick unidirectional composites.*

Les pentes d'atténuation $S(\alpha)$ peuvent être décrites en fonction des taux de porosité des stratifiés $[0^\circ_{16}]$ et $[0^\circ_8]$. Contrairement à ce qui est fait dans les références (Jeong, 95) (Mouritz, 00) (Costa, 01) (Kim, 05) (Liu, 06), nous n'utilisons pas de relation linéaire, mais de type puissance pour établir cette loi. Effectivement, autant le matériau T2H-EH25 répond à une relation linéaire lorsqu'on veut exprimer $S(\alpha)$ en fonction de $V_p(\%)$, autant ce type de relation ne peut plus être employée pour décrire les évolutions de $S(\alpha)$ en fonction de $V_p(\%)$ pour le matériau T700-M21. Toutefois, il existe une relation linéaire entre $\text{Log}_{10}[V_p\%]$ et $\text{Log}_{10}[S_\alpha]$ pour les deux matériaux utilisés ici (figure 3). Pour le matériau T2H EH25, la porosité dans le matériau peut donc être déterminée par : $V_{p\%} = 3,91.S_\alpha^{1,77}$ et pour le T700-M21 : $V_{p\%} = 2,9.S_\alpha^{0,67}$.

Force est de constater que chaque matériau composite possède sa propre pente d'atténuation $S(\alpha)$ et que les relations entre $S(\alpha)$ et $V_p(\%)$ sont distinctes. Les résultats de la littérature publique (Jeong, 95) (Mouritz, 00) (Costa, 01) (Kim, 05) (Liu, 06), ne font que confirmer cette remarque même s'ils reposent sur des analyses moins élaborées des signaux US.

Relations avec les caractéristiques mécaniques

Après fabrication, et détermination des épaisseurs, des $V_f(\%)$ et des $V_p(\%)$, des lots d'éprouvettes ont été soumis à des essais mécaniques tous conduits suivant les spécifications des normes N.F. ou E.N. en vigueur. Tous les résultats d'essais ne peuvent être présentés ici en huit pages... De fait, nous avons fait le choix de ne reporter sur la figure 4 que les évolutions de quelques contraintes à rupture normalisées par leur valeur pour un taux de porosité nul en fonction de $V_p(\%)$ et ce pour les deux matériaux. La figure 4 ne donne pas les évolutions des contraintes à rupture (en cisaillement interlaminaire en traction longitudinale et transversale) pour des taux de porosité $> 10,3\%$, car au-delà l'atténuation des signaux sonores (qui nous intéresse ici pour définir un critère) est trop forte et aucun signal convenable n'est reçu en contrôle par transmission.

En rapprochant à présent, les pentes d'atténuation $S(\alpha)$ (figure 3) des contraintes à rupture (figure 4), il est possible de proposer un critère d'acceptation des porosités par rapport à une caractéristique mécanique choisie (Olivier, 06). La figure 5 présente ce critère pour la contrainte à la rupture en cisaillement interlaminaire (noté ici $ILSS$) très sensible à la présence de porosités.

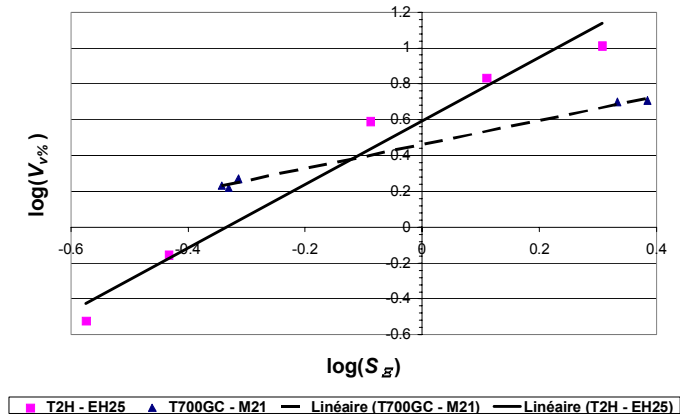


Figure 3 : Relation linéaire entre $\text{Log}_{10}(S_{\sigma})$ et $\text{Log}_{10}(V_{v\%})$. *Linear fit : $\text{Log}_{10}(S_{\sigma})$ vs. $\text{Log}_{10}(V_{v\%})$.*

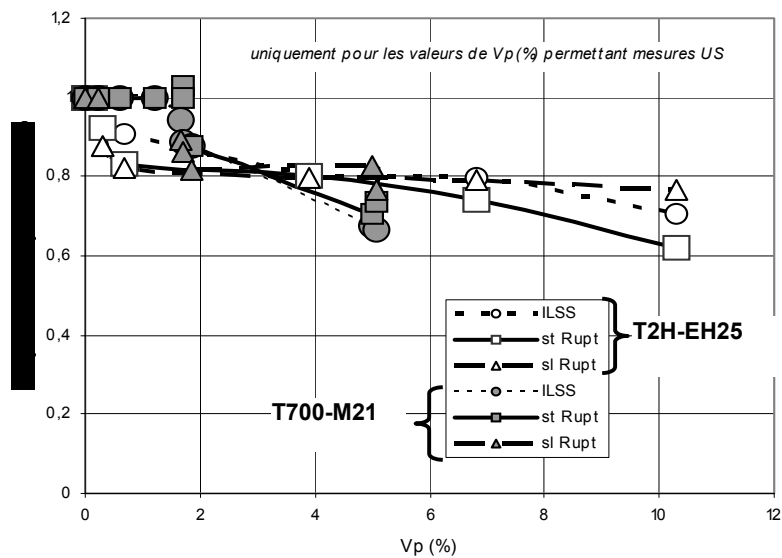


Figure 4 : Evolution de quelques contraintes à la rupture normalisées pour les deux matériaux en fonction de $V_p(\%)$. *Changes in some normalised mechanical ultimate strengths for both materials as a function of void content $V_p(\%)$.*

Dans un premier temps, uniquement pour les stratifiés poreux ($V_p > 0\%$), des relations sont établies par interpolation des valeurs expérimentales d'ILSS en fonction de $V_p(\%)$. Les valeurs d'ILSS pour les stratifiés exempts de porosité sont prises comme valeurs de référence (figure 5a – les valeurs de référence sont écrites en italique souligné sur les axes des ordonnées). On définit ainsi pour chacun des deux matériaux un seuil critique de porosité. Les valeurs de ces seuils apparaissent

en écriture blanche sur fond gris dans la figure 5. La même procédure est réitéré entre l'ILSS et la pente de l'atténuation $S(\alpha)$ (figure 5b) pour définir des valeurs critiques $S(\alpha)^c$.

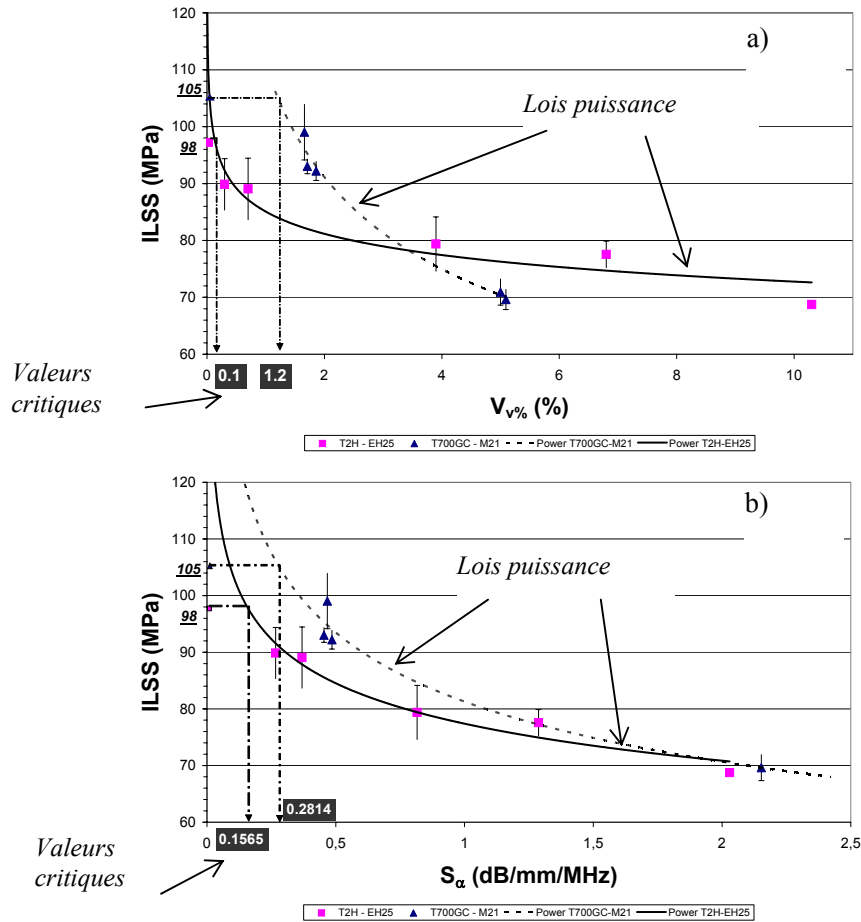


Figure 5 : **a)** ILSS en fonction du taux de porosité (noté V_p ou V_v (%)) ; **b)** ILSS en fonction de la pente d'atténuation $S(\alpha)$. **a)** ILSS versus void content ; **b)** ILSS versus slope of absorption $S(\alpha)$.

Ceci permet de proposer un critère d'acceptation des porosités, non plus par rapport à des valeurs de V_p (%) — valeurs qui doivent être mesurées au moyen de lourdes campagnes expérimentales (dissolution, analyse image) — mais bien par rapport à $S(\alpha)$, ce qui participe pleinement à la réduction des coûts en proposant justement de diminuer le nombre d'essais de dissolution ou de comptage optique.

Le tableau 1 donne les valeurs critiques c'est-à-dire les valeurs seuils déterminées suivant la même procédure pour d'autres caractéristiques mécaniques. La variation des caractéristiques mécaniques en fonction de V_p (%) ou de $S(\alpha)$ a été approchée par des lois puissance (cf. figure 5). Ces lois permettent donc, à partir de la seule mesure de $S(\alpha)$ d'accéder aux valeurs de

caractéristiques mécaniques une fois que la procédure a été étalonnée (disposer des relations entre $S(\alpha)$ et les caractéristiques mécaniques et des valeurs de référence de ces caractéristique prises pour des stratifiés exempts de porosités). Comme le montre le tableau 1, les valeurs seuils sont assez différentes suivant la propriété mécanique considérée et le matériau.

<i>Ppté.</i> <i>Méca.</i>	T2H-EH25-34%			M21/35%/268/T700GC		
	S_{α}^c (dB/mm/MHz)	V_p^c (%)	V_p^c (%) <i>Loi puissance</i>	S_{α}^c (dB/mm/MHz)	V_p^c (%)	V_p^c (%) <i>Loi puissance</i>
E_l	0,0000	0,00	0,00	0,0945	0,62	0,59
E_t	0,0589	0,02	0,03	0,4455	1,71	1,68
σ_{lu}	0,0175	0,00	0,00	0,0196	0,21	0,21
σ_{lu}	0,1611	0,12	0,15	0,5062	1,85	1,83
ILSS	0,1565	0,13	0,15	0,2814	1,21	1,24

Tableau 1 : Valeurs seuils critiques de $V_p(\%)$ et $S(\alpha)$ pour différentes caractéristiques mécaniques.
 $V_p(\%)$ and $S(\alpha)$ critical threshold values for various mechanical characteristics.

En ce qui la contrainte à la rupture en cisaillement interlaminaire, on peut bien sûr décrire son évolution (en fonction de $V_p(\%)$ ou de $S(\alpha)$) suivant une lois puissance en introduisant une valeur d'ILSS de référence (τ_0) pour $V_p = 0\%$. On peut également relier ses évolutions au taux de restitution d'énergie en mode II (G_{IIC}) en prenant la valeur de référence de celui-ci G_{IIC}^0 :

$$\tau = \tau_0 \text{ pour tous les stratifiés avec une pente d'atténuation } S(\alpha) < S(\alpha)^c$$

$$\tau = b \cdot G_{IIC}^0 \cdot S_{\alpha}^{-m} \text{ pour tous les stratifiés avec une pente d'atténuation } S(\alpha) > S(\alpha)^c$$

où b est une constante (mm^{-1}).

CONCLUSION

Nous avons montré la faisabilité de caractériser quelques propriétés mécaniques de composites à fibres de carbone / matrice polymère en corrélant les pentes d'atténuation ultrasonore ($S(\alpha)$) aux taux de porosité $V_p(\%)$. Pour les deux matériaux support de ces travaux, des lois puissance ont été définies et permettent de déterminer des seuils critiques $S(\alpha)^c$ ou encore $V_p^c(\%)$, seuils au-delà desquels on assiste à une diminution des caractéristiques, ce qui constitue à notre sens des critères d'acceptabilité des porosités. Néanmoins cette proposition est faite de manière discrète c'est-à-dire propriété par propriété. De plus, notre étude est limitée à des stratifiés U.D. de faible épaisseur. Il faudrait donc faire la démonstration sur des épaisseurs plus importantes et des drapages différents, mais aussi sur des stratifiés du matériau T700-M21 avec des $V_p(\%)$ plus faibles typiquement compris entre 0 et 1,7 %. Des travaux ont été entrepris sur des épaisseurs plus fortes de ce matériau (24 et 42 plis).

BIBLIOGRAPHIE

Almeida S.F.M., Nogueira-Neto Z.S., 1994. "Effects of void content on the strength of composite laminates". *Composite Structures*, v. 28, pp.139-148.

- Campbell F.C., Mallow A.R., Browning C.E., 1995. "Porosity in carbon fiber composites: an overview of causes", *Journal of Advanced Materials*, v. July, pp. 18-33.
- Choi H.S., Ahn K.J., Nam J.D., Cun H.J., 2001. "Hygroscopic aspects of epoxy/carbon fiber composite laminates in aircraft environments", *Composites Part A*, v. 32, pp. 709-720.
- Costa, M.L., De Almeida, S.F.M., et Al., 2001. "The influence of porosity on the interlaminar shear strength of carbon/epoxy and carbon/bismaleimide fabric laminates", *Composites Science & Tech.*, v. 61, no. 14, pp. 2101-2108.
- Growes P.W., Newton T.P., Higham D. "Quality Assurance" In : *Composite Materials in Aircraft Structures*, Edited by D.H. Hamilton, Longman Scientific and Technical, Harlow U.K., pp.184-188. ISBN 0-582-01712-2.
- Jeong H., Hsu D.K., 1995. "Experimental analysis of porosity induced ultrasonic attenuation and velocity change in carbon composites", *Ultrasonics*, v. 33, no 3, 1995, pp. 195-203.
- Kardos J.L., Dudukovic M.P, Dave R., 1986. "Void Growth and transport during Processing of Thermosetting-Matrix Composites", *Advances in polymer Science*, v. 80, pp. 101-123.
- Kim, N.H., Kim, H.S., 2005. "Micro-void toughening and its mechanism", *J. of Applied Polymer Science*, v. 98, pp.1290-1295.
- Liu, L., Zhang, B.M., et Al., 2006. "Effects of cure cycles on void content and mechanical properties of composite laminates", *Comp. Struct.*, v. 73, pp. 303-309.
- Mouritz, A.P., 2000. "Ultrasonic and interlaminar properties of highly porous composites", *J. of Comp. Mat.*, v. 34, no. 3, pp.218-239.
- Nair S.M., Hsu D.K., Rose J.H., 1989. "Porosity estimation using the frequency dependence of the ultrasonic attenuation", *J. of Non Destructive Evaluation*, v. 8, pp. 12-26.
- Olivier P., Cottu J.P., Ferret B., 1995. "Effects of cure cycle pressure and voids on some mechanical properties of carbon/epoxy laminates", *Composites*, v. 26, pp. 509-515.
- Olivier P., Marguerès P., Mascaro B. et Al., 2006. "Assessment of the effects of voids on some physical, mechanical and damage mechanics properties of carbon/polymeric composites", In : *Proceedings of ECCM12*, Edited by J. Lamon, Biarritz France, 31 August-3 September 2006, paper # 350.
- Rubin A.M., Jerina K.L., 1994. "Evaluation of porosity in composite aircraft structures", *Mechanics of Composite Materials*, v. 30, no. 6, pp. 587-600.
- Shim S.B., Seferis J.C., Hudson W. 1997. "Process induced void formation in a high performance structural composite system manufactured by autoclave lay-up processing", *Journal of Advanced Materials*, v. July, pp. 26-36.

REMERCIEMENTS

Une grande partie de ces travaux a été réalisée dans le cadre du PEA AMERICO financé par la DGA avec l'ONERA de Châtillon pour maître d'œuvre. Les auteurs tiennent à leur exprimer ici leurs remerciements. Nos remerciements vont aussi à EADS CCR pour le soutien des travaux de thèse de B. Mascaro et à Hexcel-Composites France pour la fourniture des matériaux T2H-EH25 en 1991 et T700-M21 en 2002.