



HAL
open science

Acceptability criterion for porosity in carbon/epoxy composites

Ph Marguerès, Ph Olivier, B Mascaro, F Collombet

► **To cite this version:**

Ph Marguerès, Ph Olivier, B Mascaro, F Collombet. Acceptability criterion for porosity in carbon/epoxy composites. 1er Congrès Méditerranéen sur Les Matériaux Composites, Béchar, Algérie, Dec 9-11 2006, Dec 2006, Béchar, Algeria. hal-04496812

HAL Id: hal-04496812

<https://hal.science/hal-04496812>

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.

Critère d'admissibilité des porosités dans des composites carbone/époxyde

Acceptability criterion for porosity in carbon/epoxy composites

Ph. Marguerès¹, Ph. Olivier¹, B. Mascaro², F. Collombet¹

¹ Laboratoire de Génie Mécanique de Toulouse, Equipe PRO²COM,
Dépt. GMP, IUT Paul Sabatier, 133C av. de Rangueil, BP 67701, F 31077 Toulouse
cedex 4

*philippe.margueres@iut-tlse3.fr, philippe.olivier@iut-tlse3.fr,
francis.collombet@iut-tlse3.fr*

² Laboratoire PHASE, Université Paul Sabatier, UFR PCA, Bât 3R1B2, 118 rte. de
Narbonne, F 31062 Toulouse cedex 4

benoit.mascaro@cict.fr

RÉSUMÉ. L'objectif de cette étude est la définition de critères d'admissibilité ou seuil de porosité en fonction des propriétés mécaniques pour des composites Carbone/Epoxy par méthode ultrasonore. Les résultats obtenus en traction uniaxiale et cisaillement interlaminaire sont présentés. Au-delà de la définition d'un critère, ce travail met en évidence la possibilité de définir les propriétés mécaniques initiales de composites Carbone/Epoxy -au sortir de la fabrication- par mesure ultrasonore du coefficient d'absorption.

ABSTRACT. The current work aims to define acceptability criteria or thresholds for porosity taking into account mechanical properties of carbon/epoxy composites using ultrasonics. Results obtained for uniaxial tensile loading and interlaminar shear are presented. More than the definition of a criterion, this work highlights the capability to characterise after curing mechanical properties by measuring ultrasonic absorption slope.

MOTS-CLÉS : Carbone/Epoxy, Porosité, Atténuation, Essais mécaniques, Lois de comportement, Critère d'admissibilité

KEYWORDS: Carbon/Epoxy, Porosity, Attenuation, Mechanical tests, Behaviour Laws, Acceptability Criterion

INTRODUCTION

Les propriétés mécaniques de stratifiés $[0^\circ]_8$ en fonction des porosités sont examinées. Une méthode simple de mesure de l'atténuation des signaux ultrasonores (CND par ultrasons) est mise en place. Nous montrons qu'on peut établir une relation entre l'atténuation des ultrasons et le taux de porosité. Ceci présente un intérêt industriel très fort à notre sens, puisqu'il permet de s'affranchir des mesures de taux de porosités et d'obtenir les taux de porosité par simple mesure ultrasonore. La pente d'atténuation ultrasonore est reliée aux différentes propriétés mécaniques par des lois permettant de définir des seuils au-delà desquels les propriétés chutent rapidement. Des critères d'acceptation peuvent donc en découler directement.

OBJECTIF

Nous cherchons à mettre en évidence le seuil de porosité qui entraîne une chute rapide des valeurs initiales des caractéristiques matériau en tractions uniaxiales longitudinale et transverse et cisaillement interlaminaire (ILSS). Différentes cuissons (variation de la pression autoclave) ont été réalisées sur des préimprégnés T2H-EH25-34% et M21/35%/268/T700GC afin de réaliser une variation conséquente du taux de porosité, mesuré par comptage sur clichés microscopiques. D'un point de vue industriel, les mesures de porosité ne peuvent se faire directement sur les matériaux cuits sans destruction. Il est donc proposé d'utiliser des mesures d'atténuation ultrasonore directement réalisables sur structure afin de représenter la porosité du matériau. La pente d'atténuation est utilisée ici comme témoin de la porosité interne. L'évolution des propriétés mécaniques sera donc donnée en fonction de la pente d'atténuation.

CUISSON ET POROSITE

Afin de réaliser une variation conséquente du taux de porosité, mesurée ici par comptage sur clichés microscopiques, différentes cuissons ont été proposés en faisant varier les paramètres de fabrication suivants: la pression, le moment d'application de la pression et le précompactage. Les cycles thermiques sont donnés dans le Tableau 1. Les échantillons sont unidirectionnels et ont une épaisseur d'environ 2 mm, constituée de 8 plis de 262 μm pour le T700/M21 et de 16 plis de 125 μm pour le T2H/EH25. Les Tableau 2 et Tableau 3 donnent la porosité obtenue en fonction de la variation des paramètres de fabrication.

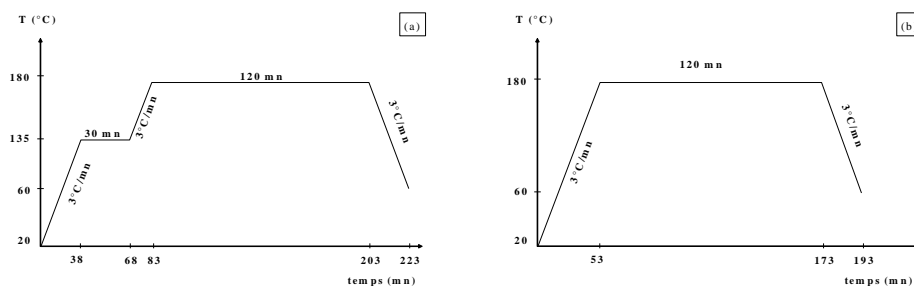


Tableau 1 Cycles de cuisson pour le : (a) T2H/EH25, (b) T700/M21
Cure cycles for: (a) T2H/EH25, (b) T700/M21

Fabrication	V _v % (%)
7 bars appliqués au bout de 65 minutes, sans précompactage	0,30 ± 0,15
7 bars appliqués au bout de 53 minutes, sans précompactage	0,70 ± 0,20
7 bars appliqués au bout de 78 minutes, sans précompactage	3,90 ± 0,50
7 bars appliqués au bout de 85 minutes, sans précompactage	6,80 ± 0,50
1 bar appliqué dès le départ, sans précompactage	10,30 ± 0,70

Tableau 2 **T2H/EH25**: Variation des paramètres de cuisson et porosités associées
T2H/EH25: Porosity obtained for specimens processed under different cure parameters

Fabrication	V _v % (%)
7 bars sans précompactage	1,66 ± 0,59
5 bars avec précompactage	1,71 ± 0,69
5 bars sans précompactage	1,86 ± 1,00
2 bars avec précompactage	5,00 ± 1,05
2 bars sans précompactage	5,09 ± 1,42
0 bar sans précompactage	15,33 ± 1,44
0 bar avec précompactage	15,74 ± 1,83

Tableau 3: **T700/M21**: Variation des paramètres de cuisson et porosités associées
T700M21: Porosity obtained for specimens processed under different cure parameters

Au regard du Tableau 3, il apparaît nettement que le non précompactage n'influence pas le taux de porosité intrinsèque au matériau T700/M21 soumis à une même pression.

PENTE D'ATTENUATION ULTRASONORE ET POROSITE

La quantité physique mesurable portée par l'onde ultrasonore qui est la plus sensiblement affectée par les porosités est l'atténuation. L'énergie incidente se disperse progressivement au cours de la propagation, à cause de l'atténuation intrinsèque du matériau, et à cause des diffusions sur les inclusions qui constituent les porosités. Les mesures d'atténuation ultrasonore sont réalisées en transmission, avec un transducteur plan de fréquence nominale 5 MHz, de diamètre 13 mm en émission, et un transducteur identique en réception. L'atténuation globale est parfois utilisée dans la littérature (Costa, 2001), cependant cette quantité dépend de la fréquence centrale et de la bande passante du spectre émis. Pour cette raison il est préférable d'utiliser l'atténuation en fonction de la fréquence, qui donne une information complète sur l'atténuation ultrasonore. L'influence de la porosité sur les courbes d'atténuation en fonction de la fréquence engendre principalement un changement de la pente de la courbe d'atténuation. Plus le taux de porosité augmente, plus la pente de l'atténuation augmente dans les plages de fréquences couramment utilisées. L'exploitation de la pente de l'atténuation est proposée par Jeong (Jeong, 1995) et Nair (Nair, 1989). En particulier, Jeong et Hsu (Jeong, 1995) montrent expérimentalement une corrélation entre la pente de l'atténuation et le taux de porosité.

Une mesure de l'énergie perdue en transmission sous forme d'atténuation [1] en fonction de la fréquence (dans le spectre de bande du transducteur émetteur) permet d'estimer le taux volumique de porosité. L'atténuation ultrasonore a été mesurée sur deux matériaux carbone/époxy différents: HexPly™ UD M21/35%/268/T700GC et T2H-EH25-34%, avec pour chacun de ces matériaux plusieurs taux de porosité différents, créés artificiellement en diminuant la pression de cuisson en autoclave.

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

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)

Bien que la mesure d'atténuation soit assez peu précise sur des échantillons de 2 mm d'épaisseur, nous observons sur la Figure 1 que l'augmentation du taux de porosité engendre une augmentation de la pente S_α (en $\text{dB} \cdot \text{mm}^{-1} \cdot \text{MHz}^{-1}$) de la courbe d'atténuation en fonction de la fréquence. Le rapport entre l'augmentation de la pente de l'atténuation et le taux de porosité est caractéristique de chaque matériau. Cela est lié en particulier à la distribution des tailles et des formes de porosité lors de l'augmentation du taux global. Cette évolution des distributions dépend de façon plus générale des conditions de formation et de circulation des porosités, qui sont notamment influencées par le drapage des fibres et le type de résine. Pour un matériau donné il existe un lien entre le taux global de porosité et la pente de l'atténuation. Ce lien existant entre porosité et atténuation peut alors constituer une étape intermédiaire pour obtenir une évaluation des caractéristiques mécaniques, en fonction de mesures ultrasonores.

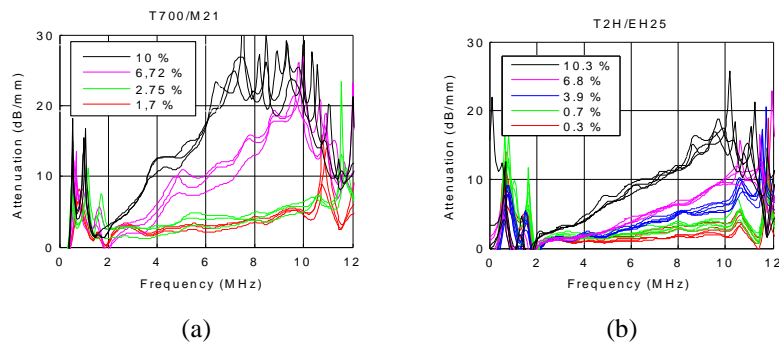


Figure 1 Evolution de l'atténuation en fonction du taux de porosité sur des échantillons unidirectionnels de 2 mm d'épaisseur.

Absorption variation vs.. porosity ratio for 2-mm-thick unidirectional composites: (a) T700/M21, (b) T2H/EH25.

RESULTATS

Les Tableau 4 et Tableau 5 donnent les résultats obtenus après essais mécaniques et mesures des taux de porosités ($V_{v\%}$) et des pentes d'atténuation (S_α en dB/mm/MHz). Les taux de porosité ont été mesurés sur les échantillons d'essais mécaniques par méthode de comptage après polissage et études micrographiques. Il donne également les valeurs seuils (notées *) de porosités et de pente d'atténuation obtenues par régression puissance sur les propriétés mécaniques comme expliqué ci-après.

Connaissant la relation liant pente d'atténuation et porosité, il est alors possible de déterminer le seuil de porosité admissible avant chute des propriétés étudiées. Afin de rendre compte d'une chute rapide des propriétés (valeurs référence pour 0% de porosité), la loi puissance a été posée comme modèle de loi de comportement pour l'ensemble des propriétés considérées en fonction de la pente d'atténuation ou du taux de porosité. La Figure 3 donne un exemple pour le cisaillement interlaminaire.

Contrairement à certains auteurs (Jeong H; Costa, M.L; Mouritz, A.P.; Liu, L.; Kim, N.H.) nous n'utilisons pas dans cette étude une régression linéaire mais puissance pour établir cette loi. En effet, il existe une relation linéaire entre $\text{Log}_{10}[V_{v\%}]$ et $\text{Log}_{10}[S_\alpha]$ pour les matériaux utilisés ici (Figure 2). Pour le matériau T2H EH25, la porosité dans le matériau est estimée par la relation suivante: $V_{v\%} = 3,91.S_\alpha^{1,77}$ et pour le T700-M21: $V_{v\%} = 2,9.S_\alpha^{0,67}$.

Nous précisons ici que la relation entre la pente d'atténuation et le taux de porosité, ainsi que les propriétés mécaniques, dépendent du matériau mais aussi du drapage (influence sur la population, tailles et forme des porosités). Les résultats sont donc valables ici pour le drapage unidirectionnel proposé.

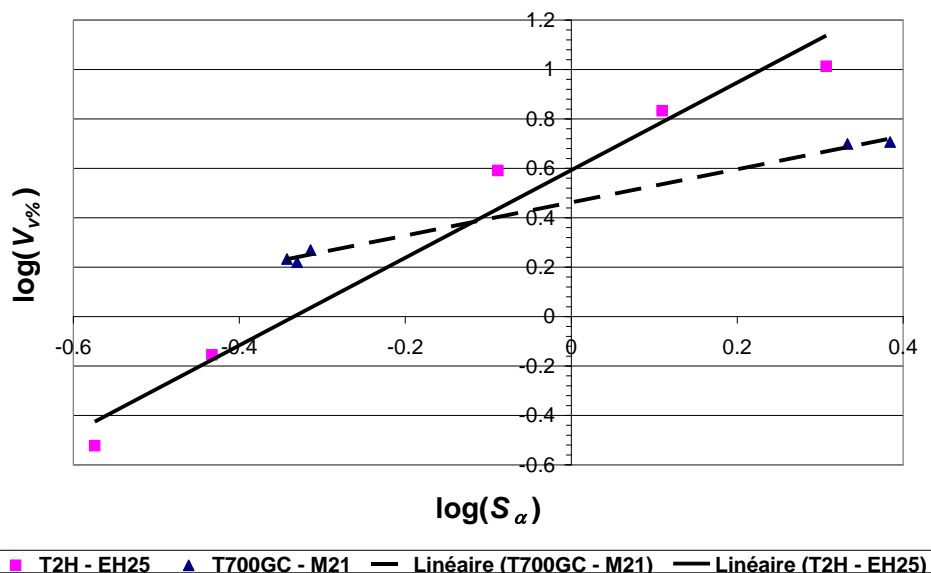


Figure 2 Relation linéaire entre $\log(S_\alpha)$ et $\log(V_{v\%})$.
 Linear fit: $\log(S_\alpha)$ vs. $\log(V_{v\%})$

A partir des Tableau 4 et Tableau 5, il apparaît nettement une sensibilité accrue à la porosité pour le matériau T2H EH25. En effet, pour des taux inférieurs à 0,13%, l'ensemble des propriétés étudiées chute alors que pour le T700 M21 elles commencent à chuter pour un taux allant de 0,21% à 1,85% selon les caractéristiques mesurées.

$V_v\%$ (%)	S_α (dB/mm/MHz)	$\sigma_{l\ Rupt}$ (MPa)	E_l (MPa)	$\sigma_{t\ Rupt}$ (MPa)	E_t (MPa)	ILSS (MPa)
0		2007 [*]	143165 [*]	66 [*]	9205 [*]	98 [*]
0,0000*	0,00*	2007	143165	66	9205	
0,0175*	0,00*	2007	S	66	9205	98
0,0589*	0,02*	S	S	66	9205	98
0,1611*	0,12*	S	S	66	S	98
0,1565*	0,13*	S	S	S	S	98
0,3	0,2665	1761	132650	61	8728	90
0,7	0,369	1654	127544	55	8423	89
3,9	0,8159	1603	128084	53	8314	79
6,8	1,2874	1589	131428	49	8160	78
10,3	2,0295	1543	126668	41	7934	69

Tableau 4 **T2H EH25**: Essais mécaniques et mesures de pentes d'atténuation et de taux de porosités; * Valeurs seuil obtenues par régression puissance; S : les propriétés mécaniques sont supposées être inférieures au seuil initial; ^{*} valeurs de référence
*Mechanical results and measurements of porosity and absorption slope; * Thresholds obtained using power laws; S: mechanical properties are assumed to be below the initial threshold; ^{*} reference values*

$V_v\%$ (%)	S_α (dB/mm/MHz)	$\sigma_{l\ Rupt}$ (MPa)	E_l (MPa)	$\sigma_{t\ Rupt}$ (MPa)	E_t (MPa)	ILSS (MPa)
0		2282 [*]	142000 [*]	65 [*]	8400 [*]	105 [*]
0,21*	0,0196*	2282	142000	65	8400	105
0,62*	0,0945*	S	142000	65	8400	105
1,21	0,2814	S	S	65	8400	105
1,66	0,4673	2039	135923	-	-	99
1,71	0,4545	1970	134925	67	7520	93
1,71*	0,4455*	S	S	65	8400	S
1,85*	0,5062*	S	S	S	8400	S
1,86	0,4851	1864	128216	57	7557	92
5	2,1525	1885	124988	46	6340	71
5,09	2,4228	1754	124522	48	6481	70

Tableau 5 **T700 M21**: Essais mécaniques et mesures de pentes d'atténuation et de taux de porosités; * Valeurs seuil obtenues par régression puissance; S : les propriétés mécaniques sont supposées être inférieures au seuil initial; ^{*} valeurs de référence
*Mechanical results and measurements of porosity and absorption slope; * Thresholds obtained using power laws; S: mechanical properties are assumed to be below the initial threshold; ^{*} reference values*

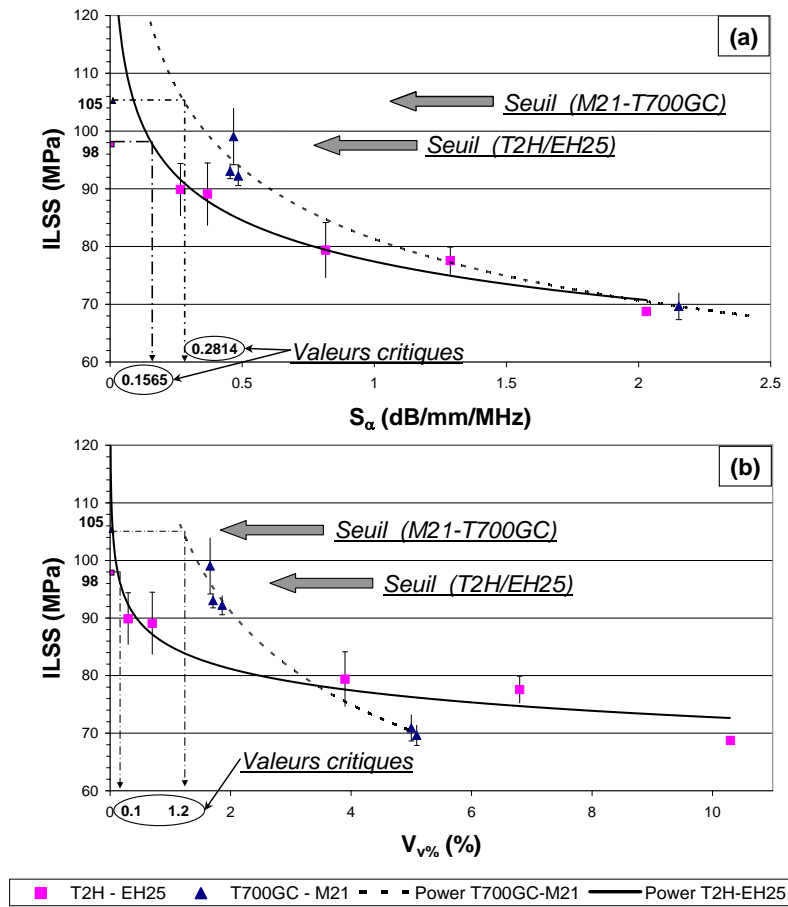


Figure 3 ILSS en fonction (a) de la pente d'atténuation S_α (b) du taux de porosité V_v %.

ILSS vs. (a) absorption slope S_α (b) porosity V_v %

Afin de proposer un critère d'acceptabilité, la variation des propriétés mécaniques est donc exprimée en fonction de la pente d'atténuation S_α et du taux de porosité V_v %. Une régression puissance, $y = a.x^n$, est utilisée pour donner une loi d'évolution des points expérimentaux. Il est important ici de préciser que les valeurs obtenues sur des éprouvettes sans porosité sont considérées comme valeurs de référence et ne sont pas utilisées pour la régression (dans les Tableau 4 et Tableau 5). Nous nous proposons en premier de présenter les résultats obtenus sur les résultats en cisaillement interlaminaire. Dans ce cas, nous introduisons le taux de restitution d'énergie G_{IC} pour obtenir une expression de la forme :

- $\tau = \tau_0$ pour des pentes d'atténuation ne dépassant pas la pente d'atténuation critique S_α^σ
- $\tau = b.G_{IC} S_\alpha^{-m}$, avec S_α pente d'atténuation en fréquence fonction de la porosité dans le matériau. Et avec b (en mm^{-1}) et m paramètres dépendant du matériau. Ceci pour $S_\alpha > S_\alpha^\sigma$.

Dans le cas présent, nous obtenons pour le T2H EH25 ($G_{IC} = 0,57$ N/mm):

- $\tau = \tau_0 = 98 \text{ MPa}$ pour des pentes d'atténuation ne dépassant pas la pente d'atténuation critique $S_\alpha^{cr} = 0,1565 \text{ dB/mm/MHz}$, soit pour un taux de porosité inférieur à 0,15%.
- $\tau(S_\alpha) = 135,8 \cdot G_{llc} S_\alpha^{-\frac{7}{55}}$ pour $S_\alpha > S_\alpha^{cr}$ (Cf. Figure 3.a).

Pour le T700-M21 ($G_{llc} = 1,21 \text{ N/mm}$):

- $\tau = \tau_0 = 105 \text{ MPa}$ pour des pentes d'atténuation ne dépassant pas la pente d'atténuation critique $S_\alpha^{cr} = 0,2814 \text{ dB/mm/MHz}$
- $\tau(S_\alpha) = 67,2 \cdot G_{llc} S_\alpha^{-\frac{1}{5}}$, pour $S_\alpha > S_\alpha^{cr}$, soit pour un taux de porosité inférieur à 1,24% (Cf. Figure 3.b).

Concernant les essais de traction, nous pouvons de même fournir les lois reliant les modules et les limites à traction en sens longitudinal et transverse aux mesures de pentes d'atténuation (Tableau 6). Les valeurs obtenues montrent de nouveau la grande sensibilité à la porosité du matériau T2H/EH25. Il apparaît également que dans le sens longitudinal, la tolérance à la porosité est globalement moins bonne que dans le sens transversal et ce pour les deux matériaux de l'étude.

Traction uniaxiale	Lois puissance retenues	S_α^{cr} (dB/mm/MHz)	$V_v\%$ (%)
T2H/EH25			
Longitudinale	$E_l(S_\alpha) \approx \frac{9}{10} \cdot E_{0,l} \cdot S_\alpha^{-\frac{1}{100}}$	$3 \cdot 10^{-5}$	$5 \cdot 10^{-8}$
	$\sigma_{l,r}(S_\alpha) \approx \frac{55}{69} \cdot \sigma_{0,l,r} \cdot S_\alpha^{-\frac{1}{18}}$	0,0175	0,003
Transverse	$E_t(S_\alpha) \approx \frac{8}{9} \cdot E_{0,t} \cdot S_\alpha^{-\frac{1}{25}}$	0,0589	0,2
	$\sigma_{t,r}(S_\alpha) \approx \frac{17}{23} \cdot \sigma_{0,t,r} \cdot S_\alpha^{-\frac{1}{6}}$	0,1611	0,12
T700/M21			
Longitudinale	$E_l(S_\alpha) \approx \frac{10}{11} \cdot E_{0,l} \cdot S_\alpha^{-\frac{1}{25}}$	0,0945	0,62
	$\sigma_l(S_\alpha) \approx \frac{24}{29} \cdot \sigma_{0,l} \cdot S_\alpha^{-\frac{4}{83}}$	0,0196	0,21
Transverse	$E_t(S_\alpha) \approx \frac{7}{8} \cdot E_{0,t} \cdot S_\alpha^{-\frac{1}{6}}$	0,4455	1,71
	$\sigma_{t,r}(S_\alpha) \approx \frac{56}{65} \cdot \sigma_{0,t,r} \cdot S_\alpha^{-\frac{7}{32}}$	0,5062	1,85

Tableau 6 Lois puissance et seuils obtenus pour les essais tractions longitudinale et transverse avec: $E_{0,l}$, $\sigma_{0,l,r}$, $E_{0,t}$, $\sigma_{0,t,r}$ valeurs de référence sans porosité
Power laws and thresholds obtained for longitudinal and transverse tensile loading tests with $E_{0,l}$, $\sigma_{0,l,r}$, $E_{0,t}$, $\sigma_{0,t,r}$ reference values for specimens without porosity

CONCLUSION

Cette étude montre la faisabilité de caractériser les propriétés mécaniques de matériaux composites Carbone/Epoxy par corrélation entre mesure de pentes d'atténuation et taux de porosité. Des lois puissance reliant porosités, pente d'atténuation et propriétés mécaniques seuil en traction uniaxiale (longitudinale et transverse) et en cisaillement interlaminaire ont donc été établies afin de pouvoir statuer sur un critère d'admissibilité du taux de porosité. Ce travail met en évidence la possibilité d'obtenir simplement par mesures non destructives (ultrasonores ici) des propriétés mécaniques dont la variation provient notamment de l'évolution de la porosité à coeur de ces matériaux issue en grande partie des conditions de fabrication.

Des analyses complémentaires sont en cours pour des essais en flexion. Cependant, afin de compléter et d'affiner cette première approche, il nous faut réaliser des éprouvettes avec une variation de gamme de porosité plus étendue entre 0 et 3%. De plus, une étude sur des drapages différents devra être menée pour établir si à taux de porosité égal nous obtenons des populations de porosité différentes et donc un, si c'est le cas, déterminer l'influence sur la pente de l'atténuation.

Afin de pouvoir industrialiser cette démarche, il nous faudra également réaliser des essais ultrasonores en échographie, même si cette dernière méthode risque d'être moins précise.

BIBLIOGRAPHIE

- Jeong H., Hsu D.K., « Experimental analysis of porosity induced ultrasonic attenuation and velocity change in carbon composites », *Ultrasonics*, Vol. 33, n° 3, 1995, p. 195-203.
- Hsu D.K., Jeong H., « Ultrasonic velocity change and dispersion due to porosity in composite laminates », *Review of Progress in Non Destructive Evaluation*, Eds Thomson, D.O. and Chimenti D.E.), Plenum Press, New York, USA, Vol. 8B, 1989, p. 1567-1573.
- Nair S.M., Hsu D.K., Rose J.H., « Porosity estimation using the frequency dependence of the ultrasonic attenuation », *Journal of Non Destructive Evaluation*, Vol. 8, 1989, p. 12-26.
- Costa, M.L., De Almeida, S.F.M., et Al., "The influence of porosity on the interlaminar shear strength of carbon/epoxy and carbon/bismaleimide fabric laminates", *Composites Science & Tech.*, 61(14) (2001) 2101-2108.
- Mouritz, A.P., "Ultrasonic and interlaminar properties of highly porous composites", *J. of Comp. Mat.*, 34(3) (2000) 218-239.
- Liu, L., Zhang, B.M., et Al., "Effects of cure cycles on void content and mechanical properties of composite laminates", *Comp. Struct.*, 73 (2006) 303-309.
- Kim, N.H., Kim, H.S., "Micro-void toughening and its mechanism", *J. of Applied Polymer Science*, 98 (2005) 1290-1295.