UNIVERSITE BRETAGNE SCIENCES LOIRE POUR L'INGENIEUR

UNIVERSITÉ DE NANTES

THÈSE DE DOCTORAT DE

L'UNIVERSITE DE NANTES
COMUE UNIVERSITÉ BRETAGNE LOIRE

ECOLE DOCTORALE N° 602
Sciences pour l'Ingénieur
Spécialité : Génie mécanique

Par :
Mohamed GASSOUMI

Caractérisations, défauts et contraintes internes lors du procédé de mise en forme des matériaux composites à matrice thermoplastique par thermoestampage.

Thèse présentée et soutenue à Saint Nazaire, le 12/12/2018
Unité de recherche : Institut de recherche en Génie Civil et Mécanique (GeM-UMR CNRS 6183)

Rapporteurs :

Samir ALLAOUI	Professeur, Université de Reims
Joël BREARD	Professeur, Université du Havre Normandie

Composition du Jury :

Président :	Xiaojing Gong	Professeur, Université Paul Sabatier
Examinateurs :	Pascal Casari	Professeur, Université de Nantes
	Pierre Dumont	Professeur, INSA Lyon
Dir. de thèse :	Fréderic Jacquemin	Professeur, Université de Nantes
Co-dir. de thèse :	Laurent Orgéas	Directeur de recherche, CNRS
Invité :		
	Tuan-Linh Nguyen	Ingénieur de recherche, IRT Jules Verne

Caractérisations, défauts et contraintes internes lors du procédé de mise en forme des matériaux composites à matrice thermoplastique par thermoestampage.

Résumé

Lors de leur mise en forme par thermo- estampage, les pré-imprégnés à matrice polymère thermoplastique et renfort fibreux tissé se déforment selon différents modes encore mal maîtrisés, dont les cisaillements plan et transverse, ce dernier traduisant la friction entre les plis tissés. Une fois formés, des contraintes résiduelles de fabrication sont également générées au cours du refroidissement des pré- imprégnés et altèrent leur stabilité dimensionnelle, tout comme les variations d'humidité relative. Dans ce travail, nous avons étudié ces deux aspects. Dans un premier temps, des essais de traction de biais ont été réalisés sur des pré-imprégnés de polyamide renforcés par des tissus de fibres de verre à hautes températures. L'analyse multi-échelle de la structure des échantillons déformés par tomographie à rayons X met en exergue des mécanismes de déformation des mèches de fibres dont certains ne sont pas pris en compte dans les modèles rhéologiques actuels.

En outre, nous avons mis au point un dispositif pour l'étude du cisaillement transverse et la friction inter-plis. Les résultats obtenus montrent et quantifient les influences de la contrainte normale, de la vitesse de déformation et de la température sur le coefficient de frottement inter-plis. Un modèle de frottement basé sur le nombre d'Hersey est ensuite identifié. Dans un deuxième temps, l'exploitation de la mesure de la courbure globale des échantillons après refroidissement a permis d'estimer, via la théorie modifiée des stratifiées, les contraintes résiduelles et leur évolution avec les conditions hygrothermiques ambiantes.

Mots clés : Thermoestampage, préimprégnés thermoplastiques, bias-extension, friction, contraintes résiduelles, tomographie à rayons X.

Characterizations, defects and residual stresses induced during thermostamping of woven-fabric reinforced thermoplastic prepregs.

Abstract

During their thermo-stamping, prepregs made of thermoplastic polymer matrices and woven fabrics are subjected to large deformation including in-plane and transverse shear, the last deformation mechanism being related to inter-ply friction. Once shaped, prepregs can still deform due to residual stresses induced by their cooling and/or hygrometric variations. In this work, we focused on these two aspects. Firstly, prepregs made of polyamide reinforced by layers of woven fabrics (glass fibre bundles) were subjected to bias extension at high temperatures. The fibrous structure deformed specimens was analysed with X-ray microtomography, allowing fiber bundles deformation mechanism to be emphasized.Some of them are not taken into account in current rheological model developed for prepregs.

In addition, using a dedicated apparatus, we performed transverse shear tests to analyse inter-ply friction within prepregs. Experimental results underline the influence of the normal stress, the shear strain rate and the temperature on the interplay friction coefficient. A friction model based on the Hersey number is then fitted. Secondly, we measure the curvatures of deformed prepregs was to estimate, via the modified laminated theory, residual stresses and their variation with temperature and relative humidity.

Keywords : Thermostamping, thermoplastic prepregs, bias-extension, friction, residual stresses, X ray tomography.

Table des matières

Introduction générale 6

Chapitre 1 : Les matériaux composites à matrice polymère thermoplastique renforcée par des fibres et leur mise en forme par thermoestampage 9

1.1. Matériaux composites à matrice polymère thermoplastique et renfort tissé 11

1.1.1. Polymères thermoplastiques pour le thermoestampage 12

(a) Comportement mécanique 13

(b) Matrices polyamide 6.6 (PA 6-6) 14

1.1.2. Renforts tissés 16

(a) Fibres de verre 16

(b) Tissage des fibres 17

1.1.3. Pré-imprégnés 19

1.2. Procédé de thermoestampage 21

1.2.1. Préambule 21

1.2.2. Mise en forme des pré-imprégnés par thermoestampage 22

1.2.3. Mécanismes de déformation principaux 25

(a) Cisaillement plan 25

(b) Tractions longitudinales 26

(c) Cisaillement transverse et glissements 26

(d) Consolidation et déconsolidation transverses 27

(e) Flexion hors plan 27

1.2.4. Défauts de mise en forme 27

(a) Déformations du renfort fibreux 27

(b) Porosité 28

(c) Ségrégation de matrice 29

1.2.5. Comportement mécanique des pré-imprégnés lors de leur mise en forme 30

(a) Essai de cisaillement plan 30

(b) Essais biaxiaux dans le sens des fils 35

(c) Cisaillement transverse – Friction interplis 36

(d) Essai de consolidation transverse 40

(e) Essais cantilever 42

1.2.6. Analyse des structures des pré-imprégnés par tomographie à rayons X 44

1.2.7. Lois de comportement des pré-imprégnés lors de leur thermoestampage 46

1.2.8. Modélisation de la friction pli-pli 48

1.3. Problématique des contraintes résiduelles/internes dans les pré-imprégnés 49

1.3.1. Origines des contraintes résiduelles 50

1.3.2. Conséquences des contraintes résiduelles 52

1.3.3. Caractérisation expérimentale 53

(a) Techniques destructives 53

(b) Techniques non destructives 54

1.3.4. Modélisation des contraintes résiduelles 54
(a) Théorie classique des stratifiés 55
(b) Méthodes numériques 55
1.4. Conclusion 58
Références 59
Chapitre 2 : Comportement thermomécanique et mésostructures induites par l'essai de bias-extension. 67
2.1. Introduction 68
2.2. Matériau et méthodes 68
2.3. Essai de bias-extension 70
2.3.1. Dispositif expérimental 71
2.3.2. Paramètres d'essais 72
2.4. Imagerie 3D par tomographie à rayons X 73
2.4.1. Moyen d'imagerie utilisé 73
2.4.2. Traitement d'images 74
(a) Filtrage 74
(b) Segmentation 75
2.4.3. Observations mésoscopiques 76
(a) Angle d'orientation 80
(b) Fraction volumique de mèches et épaisseur locales 82
2.4.4. Observations microscopiques 83
2.5. Résultats et discussions 86
2.5.1. Caractérisation du cisaillement plan par bias-extension test 86
(a) Comportement mécanique 86
(b) Effet de la température 88
(c) Relaxation 91
2.5.2. Mésostructures induites par le cisaillement plan 92
(a) Angle de cisaillement 92
(b) Fraction volumique de mèches et épaisseur locales 94
(c) Effet de la température 97
2.5.3. Micromécanismes de déformation des fibres 100
2.6. Conclusion 101
Références 103
Chapitre 3 : Étude des frictions inter-plis 105
3.1. Introduction 106
3.2. Matériaux et méthodes 106
3.2.1. Pré-imprégnés modèles 106
3.2.2. Dispositif de cisaillement transverse : la BCR3D 109
3.2.3. Mise au point et dépouillement 111
3.3. Résultats expérimentaux et discussion 114

3.3.1. Influence de la température ... 114
3.3.2. Influence de la vitesse de cisaillement ... 115
3.3.3. Influence de la contrainte normale ... 116
3.4. Conclusion ... 117
Références ... 118
Chapitre 4 : Étude des contraintes internes d'élaboration ... 119
4.1. Introduction ... 120
4.2. Propriétés thermomécaniques du composite ... 120
4.2.1. Modules élastiques ... 120
4.2.2. Coefficient de dilatation thermique ... 122
4.2.3. Module de compressibilité ... 124
4.2.4. Synthèse des propriétés thermomécaniques ... 125
4.3. Théorie non-linéaire des stratifiés ... 126
4.3.1. La théorie ... 126
4.3.2. Exemple d'étude ... 129
4.4. Courbures et contraintes résiduelles de fabrication ... 130
4.4.1. Mesures des courbures ... 130
(a) Constat industriel ... 132
(b) Cas d'étude ... 133
4.4.2. Comparaison expérience-simulation ... 136
4.5. Courbures et contraintes internes de service : effet de l'humidité ... 139
4.5.1. Préparation et conditionnement des éprouvettes ... 139
4.5.2. Mesures des courbures ... 142
4.6. Conclusion ... 143
Références ... 144
Conclusion générale – Perspectives ... 146

Introduction générale

Dans les industries des transports automobiles et aéronautiques, les gains massiques et économiques sont deux préoccupations majeures. Dans cette optique, les matériaux composites à renforts fibreux textiles et matrices polymères thermoplastiques, constituent une bonne voie de progrès pour fournir à des cadences de production acceptables des pièces de structure à la fois légères, rigides, résistantes et potentiellement recyclables.

Parmi les procédés de transformation existants, la mise en forme par thermo-estampage s'avère particulièrement intéressante. En effet, elle permet de produire des pièces à géométries complexes en des temps de cycle relativement courts à partir de semi-produits élaborés en amont, c'est-à-dire des pré-imprégnés. Cependant, comme toute technique de mise en forme, le thermo-estampage implique des modes et mécanismes de déformation complexes et multi-échelles des pré-imprégnés, qui induisent à leur tour des défauts de mise en forme dont la genèse est encore mal comprise, et encore moins maîtrisée. À l'heure actuelle, le fruit de la recherche sur ces mécanismes dans le cas de la mise en forme des renforts secs (c'est-à-dire sans matrice) par estampage, emboutissage ou bien encore compression a atteint une maturité telle qu'il possible de fournir à l'ingénieur des outils aboutis de simulation de ces procédés de mise en forme. Ce n'est pas le cas pour les renforts pré-imprégnés pour lesquels des progrès substantiels restent à accomplir.

C'est dans ce cadre que se positionnent les travaux présentés dans ce manuscrit, réalisés dans le cadre de projet COMMANDO_Stamp (COMposites MAufacturing Numerical Design and Optimization-Stamping) piloté par l'IRT Jules Verne avec la collaboration de plusieurs industriels et laboratoires académiques (Figure 1.1).



Figure 0. 1 Partenaires du projet COMMANDO_Stamp.

Dans son ensemble, le projet COMMANDO_Stamp a pour objectif d'augmenter la maturité industrielle du procédé du thermo-estampage des matériaux composites à matrice polymère thermoplastique et renforts textiles grâce au développement d'outils avancés de simulation. Ces outils doivent à terme intègrer des modèles de comportement multi-physiques des pré-imprégnés représentatifs du procédé.

C'est dans ce contexte que s'inscrit les travaux développés dans cette thèse : observer et comprendre les mécanismes à l'origine des défauts lors de la mise en forme par thermo-estampage des composites à matrice thermoplastique et renforts tissés afin de valider et alimenter les modèles développés par les autres partenaires du projet.

Dans ce contexte général, ce document s'articule en quatre chapitres :

Le **premier chapitre** bibliographique donne quelques généralités sur les matériaux composites à matrices polymères thermoplastiques et renforts textiles et leur mise en forme par thermo-estampage. Après avoir défini plus précisément ce procédé, les modes et mécanismes de déformation de la mise en forme sont alors introduits. Des illustrations avec exemples concrets des défauts induits par ces mécanismes sont donnés. Enfin, nous donnons quelques éléments pour expliquer la genèse des contraintes internes qui se développent dans ces matériaux en fin de mise en forme et qui peuvent conduire à des défauts géométriques macroscopiques.

Le **deuxième chapitre** se penche sur le comportement thermomécanique du pré-imprégné à l'état fondu selon un des modes de déformation préférentiels, c'est-à-dire le cisaillement plan. Des essais de traction hors-axe, type bias-extension, sont réalisés sur un matériau industriel (polyamide PA 6-6 renforcé fibres de verre tissées) à différentes températures dans la gamme celles utilisées lors de la mise en forme de ce matériau. Cette étude mécanique est complétée par des caractérisations fines et 3D de la structure des échantillons déformés, réalisée par microtomographie à rayons X à deux résolutions spatiales : celle de l'éprouvette et celle des mèches de fibres. L'exploitation des images montre que la déformation en cisaillement plan est accompagnée par des déformations hors plan (déconsolidation), par l'apparition de pores et par des déformations substantielles des mèches. L'orientation des mèches de fibres dans chaque pli et dans l'épaisseur dans les sens chaîne et trame a été extraite des images 3D.

Le **troisième chapitre** propose une nouvelle méthodologie expérimentale pour la caractérisation, en cisaillement transverse à l'état mou de la friction pli/pli, un autre mode de déformation important et caractéristique de la mise en forme par thermo-estampage. L'étude est réalisée via un dispositif expérimental original permettant un pilotage à la fois le contrôle de la cinématique de cisaillement simple et de la contrainte normale. L'objectif est de montrer l'influence de trois paramètres clés du procédé sur la friction pli/pli : la température du pré-imprégné, la contrainte normale qui lui est appliquée et la vitesse de cisaillement transverse. Pour

faciliter la procédure expérimentale (élaboration sur mesure de pré-imprégnés et caractérisation) nous avons réalisé l'étude avec un matériau composite modèle (paraffine à renfort fibres de verre tissées) équivalent au composite industriel (PA66 à renfort fibres de verre tissées) en termes de comportement rhéologique et de microstructure.

Le **quatrième chapitre** se concentre sur l'étude des contraintes internes induites lors de la fabrication du composite thermoplastique. Un modèle de prédiction de ces contraintes lors du refroidissement du composite est proposé. Il se base sur la théorie modifiée des stratifiés. Le modèle prend en considération l'évolution des propriétés thermomécaniques au cours du refroidissement et les intègre via une loi de comportement linéaire élastique dans l'estimation des contraintes résiduelles et des distorsions géométriques sous forme de courbures. Pour alimenter ce modèle, les propriétés thermomécaniques du stratifié tissé à fibres de verre et de la matrice PA 6-6 ont été caractérisées. D'un premier temps ce modèle a été utilisé pour prédire les contraintes internes d'origine thermique sur un stratifié quasi-unidirectionnel. Ensuite, le calcul numérique a été confronté à la caractérisation expérimentale. Pour cette dernière, le système de corrélation d'image VIC 3D a été utilisé pour mesurer les courbures induites par le refroidissement du stratifié tissé et équilibré. Outre les contraintes internes d'origine thermique, l'étude a été étendue pour caractériser aussi les contraintes d'origine hygroscopique sur des éprouvettes préalablement conditionnées dans un environnement contrôlé en humidité relative et température.

Chapitre 1 : Les matériaux composites à matrice polymère thermoplastique renforcée par des fibres et leur mise en forme par thermoestampage

Ce premier chapitre est destiné à dresser un état de l'art sur la mise en forme par thermoestampage des pré-imprégnés à matrice thermoplastique et renfort textile. Dans un premier temps, les concepts généraux sont introduits. Ensuite, il est question de présenter le procédé de mise en forme et les mécanismes de déformation qui l'accompagnent. Des exemples de défauts de mise en forme induits sont également présentés. Une revue des essais de caractérisation du comportement mécanique de ces composites dans ces procédés de mise en forme, des outils d'analyse de leurs microstructures et des modèles de comportement thermomécanique associés est proposée. Enfin, les origines et les approches permettant de modéliser les contraintes résiduelles en fin de mise en forme sont présentées.

Table des matières

1.1. MATERIAUX COMPOSITES A MATRICE POLYMERE THERMOPLASTIQUE ET RENFORT TISSE 11
1.1.1. Polymères thermoplastiques pour le thermoestampage 12
(a) Comportement mécanique 13
(b) Matrices polyamide 6.6 (PA 6-6) 14
1.1.2. Renforts tissés 16
(a) Fibres de verre 16
(b) Tissage des fibres 17
1.1.3. Pré-imprégnés 19
1.2. PROCEDE DE THERMOESTAMPAGE 21
1.2.1. Préambule 21
1.2.2. Mise en forme des pré-imprégnés par thermoestampage 22
1.2.3. Mécanismes de déformation principaux 25
(a) Cisaillement plan 25
(b) Tractions longitudinales 26
(c) Cisaillement transverse et glissements 26
(d) Consolidation et déconsolidation transverses 27
(e) Flexion hors plan 27
1.2.4. Défauts de mise en forme 27
(a) Déformations du renfort fibreux 27
(b) Porosité 28
(c) Ségrégation de matrice 29
1.2.5. Comportement mécanique des pré-imprégnés lors de leur mise en forme 30
(a) Essai de cisaillement plan 30

(b) Essais biaxiaux dans le sens des fils 35
(c) Cisaillement transverse – Friction interplis 36
(d) Essai de consolidation transverse 40
(e) Essais cantilever 42
1.2.6. Analyse des structures des pré-imprégnés par tomographie à rayons X 44
1.2.7. Lois de comportement des pré-imprégnés lors de leur thermoestampage 46
1.2.8. Modélisation de la friction pli-pli 48
1.3. PROBLEMATIQUE DES CONTRAINTES RESIDUELLES/INTERNES DANS LES PRE-IMPREGNES 49
1.3.1. Origines des contraintes résiduelles 50
1.3.2. Conséquences des contraintes résiduelles 52
1.3.3. Caractérisation expérimentale 53
(a) Techniques destructives 53
(b) Techniques non destructives 54
1.3.4. Modélisation des contraintes résiduelles 54
(a) Théorie classique des stratifiés 55
(b) Méthodes numériques 55
1.4. CONCLUSION 58
Références 59

1.1. Matériaux composites à matrice polymère thermoplastique et renfort tissé

Dans un contexte technico-économique très exigeant en termes de cadences de production, de performances des produits fabriqués et des règlementations environnementales très sévères, les matériaux de structure conventionnels métalliques laissent progressivement leur place aux matériaux composites à matrice organique ou céramique. Ces derniers sont obtenus par l'association d'une phase continue (la matrice) dont le rôle est de maintenir, protéger et transmettre les efforts extérieurs à l'agent de renforcement (le renfort). L'assemblage obtenu est un matériau possédant de très bonnes propriétés mécaniques spécifiques [1] (Figure 1.1a). Les composites sont largement utilisés pour des applications d'allègement de structures dans les secteurs aéronautiques et automobiles. La figure 1.1b montre que pour des propriétés mécaniques équivalentes à celles d'autres matériaux structuraux, le ratio « densité/coût » des composites est également compétitif.

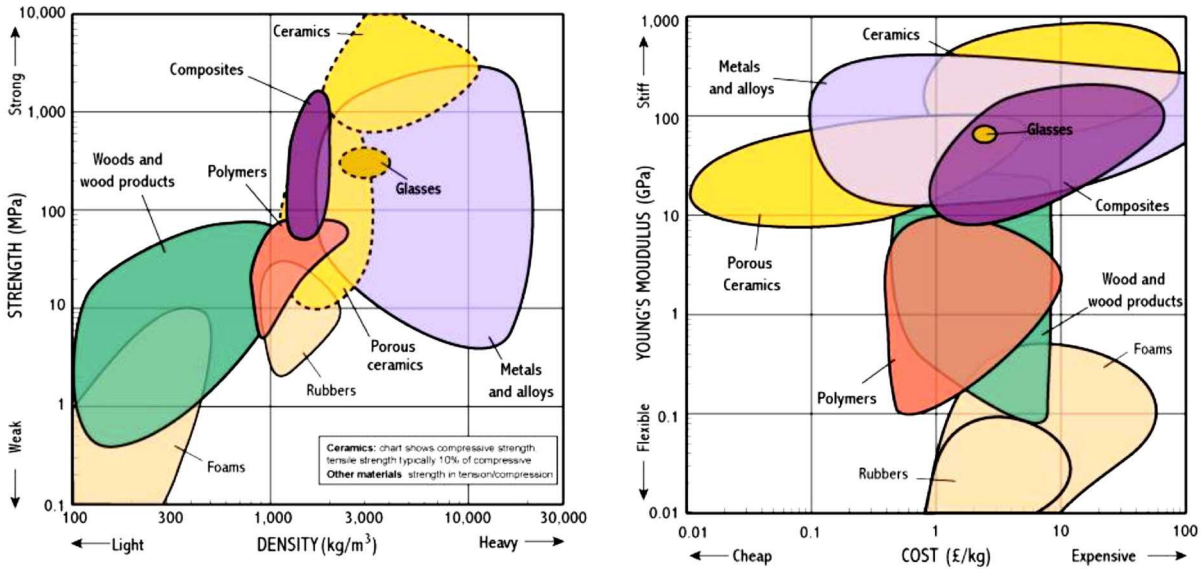


Figure 1.1 Diagrammes de mise en valeur des matériaux composites, (a) résistance mécanique en fonction de la densité, (b) module d'Young en fonction du coût [2].

La sélection du couple matrice-renfort est primordiale et dépend de plusieurs critères comme les propriétés thermomécaniques et chimiques des phases, l'adhésion à l'interface, le coût de revient et les conditions d'utilisation (température, humidité…).

Dans cette étude, on s'intéresse aux matériaux composites à matrice polymère thermoplastique dite technique (cf. ci-après) renforcée par des fibres de verre continues et tissées ainsi qu'à leur mise en forme par thermoestampage.

1.1.1. Polymères thermoplastiques pour le thermoestampage

Les polymères thermoplastiques sont souvent composés de molécules relativement longues, linéaires ou ramifiées liées entre elles par des liaisons secondaires (forces de Van der Waals ou dipolaire, liaisons de type hydrogène…). Leur appellation de thermoplastique est due au fait qu'ils peuvent passer réversiblement d'un état rigide à un état caoutchouteux et malléable par simple augmentation de la température.

Contrairement aux polymères thermodurcissables, les polymères thermoplastiques présentent généralement un certain nombre d'avantages :

- Stockage « illimité » sous forme de semi-produits, à température ambiante,
- Cycle de transformation court,
- Meilleure tenue à l'impact et à la fatigue.

Les procédés de mise en œuvre des matériaux composites utilisant ces polymères à haute cadence comme le thermoformage nécessitent le développement de matrices polymères thermoplastiques spécifiques pour l'obtention de meilleures propriétés finales et de processabilité. Sur le marché, on rencontre communément trois grands groupes de matrices thermoplastiques [3] :

- Les polymères de grande diffusion comme le polypropylène,
- Les polymères techniques comme les polyamides, les polyesters thermoplastiques, les polyéthylméthacrylates, les polyacétates,
- Les polymères à haute performance (applications aéronautiques) comme le PEEK, le PPS, le PEI et le PES.

D'un point de vue structural, les thermoplastiques sont classés en deux familles : les semi-cristallins et les amorphes.

- Les polymères amorphes sont dotés d'une structure désordonnée. Leur retrait est réduit, ce qui leur confère une bonne stabilité dimensionnelle[1]. Nous citons comme exemples l'ABS, le PMMA et le PC.
- Les polymères semi-cristallins sont caractérisés par des zones où la structure est ordonnée (cristallites). Ils présentent un taux de retrait élevé au cours de cristallisation ce qui constitue un défaut pour la stabilité dimensionnelle. Dans cette catégorie, nous trouvons le PEEK, les polyamides (matériau de l'étude), le polypropylène.

[1] La stabilité dimensionnelle caractérise l'aptitude des polymères à conserver leurs dimensions sous des conditions environnementales variables (température, humidité). Un polymère stable du point de vue dimensionnel présente un faible taux de retrait volumique.

(a) Comportement mécanique

D'une manière générale, le comportement mécanique des polymères thermoplastiques est élasto-viscoplastique. Leur tenseur des contraintes $\boldsymbol{\sigma}$ dépend de plusieurs variables comme la déformation $\boldsymbol{\varepsilon}$, la vitesse de déformation $\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}$, le temps t ou bien encore la température T :

$$\boldsymbol{\sigma} = f(\boldsymbol{\varepsilon}, \dot{\boldsymbol{\varepsilon}}, T, t) \qquad (1.1)$$

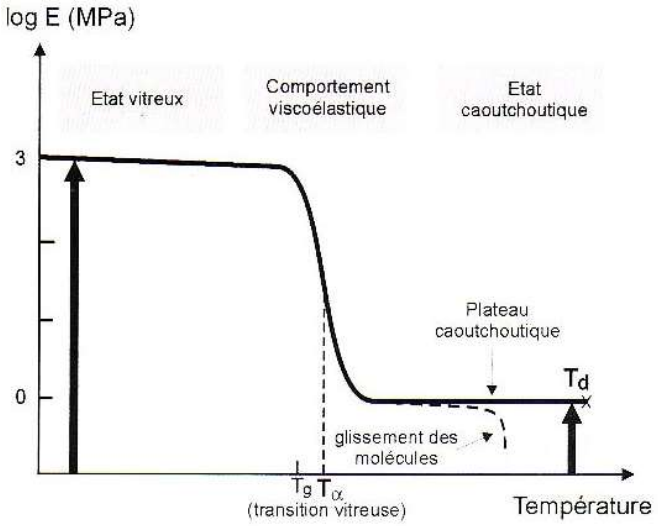
– ***Dépendance à la température***

La mobilité des chaînes moléculaires est directement liée à la température qui, en augmentant, facilite leur mobilité. La Figure 1.2a met en évidence deux états. Un premier est appelé état vitreux (hors équilibre), caractérisé par des modules tangents thermo-dépendants élevés. À ce stade, la cohésion des chaînes moléculaires est forte et le mouvement de celles-ci est quasi-impossible. La température de transition vitreuse Tg correspond à une température où les chaînes moléculaires sont suffisamment mobiles pour changer de conformation globale. Elle est associée à une chute brutale du module tangent du polymère sur un intervalle de 5 à 10°C. Au-dessus de la température Tg, le polymère est dans un état caoutchoutique (équilibre métastable) et ses propriétés mécaniques chutent de manière importante. En accroissant encore sa température, sa viscosité devient suffisamment faible pour qu'il puisse s'écouler et être mis en forme la matrice. T_d est la température de dégradation à partir de laquelle les liaisons intramoléculaires commencent à se rompre sous l'effet de la température.

La Figure 1.2b propose une comparaison entre la viscosité de diverses résines thermoplastiques et celle d'une résine thermodurcissable de type époxy. Nous constatons dans cet exemple que la viscosité des matrices thermoplastiques dépasse de quelques décades celle de la résine thermodurcissable époxy. Par conséquent, l'imprégnation de renforts fibreux par de telles résines thermoplastiques sera délicate, surtout si leur perméabilité est faible. Cette situation où la viscosité des résines thermoplastiques est supérieure à celle de résines thermodurcissables est souvent rencontrée. Pour contourner ce problème éventuel lié à l'utilisation de résines thermoplastiques, plusieurs solutions sont possibles comme par exemple réduire la viscosité des résines thermoplastiques en augmentant leur température et/ou en modifiant leur structure macromoléculaire par ajout d'un solvant. De plus, afin d'éviter de réaliser cette délicate phase d'imprégnation des renforts fibreux par les résines thermoplastiques lors de la fabrication des pièces composites, celle-ci sera déportée en amont au cours du procédé. Le processus actuel consiste ainsi à élaborer en amont des renforts fibreux pré-imprégnés par les résines thermoplastiques. Ensuite, ces pré-imprégnés ou semi-produits sont mis en forme pour l'obtention des pièces composites. Dans le cadre de cette étude, nous étudierons ainsi la mise

en forme au moyen du procédé de thermoestampage de renforts fibreux pré-imprégnés par une résine thermoplastique polyamide.

(a)



(b)

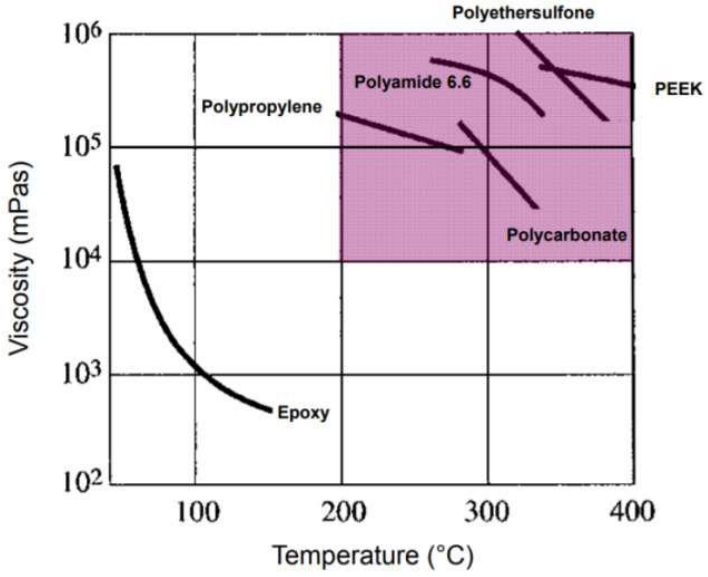


Figure 1.2 Thermodépendance des propriétés de la matrice (a) courbe typique d'évolution du module tangent E' en fonction de la température [4], (b) comparaison de la viscosité entre une résine époxy et plusieurs résines thermoplastiques [5].

(b) Matrices polyamide 6.6 (PA 6-6)

Le PA 6-6 est un polymère thermoplastique semi-cristallin qui appartient à la famille des polyamides aliphatiques largement utilisés dans des applications automobiles. Il est obtenu par la réaction de polycondensation de diamines et de diacides (Figure 1.3). La phase cristalline est due à la formation de liaisons de type hydrogène entre le groupe N-H et le doublet non-liant du groupe C=O [6].

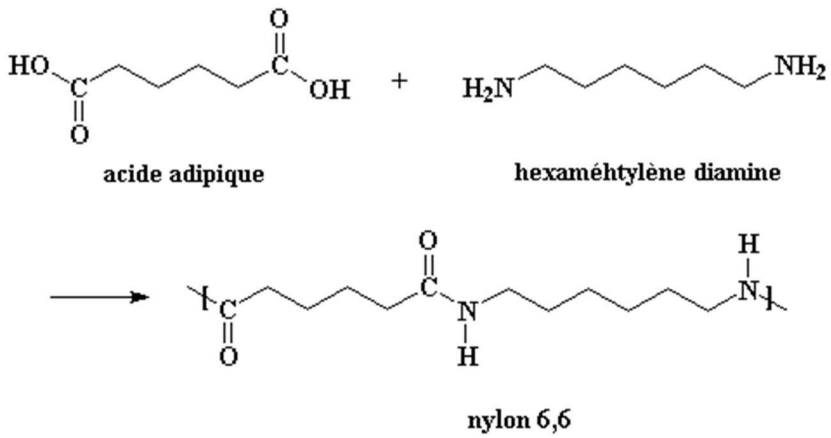


Figure 1.3 Réaction de synthèse du PA 6-6.

La figure 1.4 situe la viscosité et la température de mise en forme du PA 6-6 HF (hautes fluidité) vis-à-vis à d'autres résines thermoplastiques et thermodurcissables. Par rapport aux autres polymères techniques, une telle matrice possède une viscosité relativement faible ce qui est très avantageux en termes de rapidité de transformation et d'imprégnation du renfort. En outre, la température de mise en forme est plutôt basse ce qui implique des coûts de mise en œuvre relativement bas. Ces deux propriétés et d'autres que nous présentons par la suite, font du PA 6-6 l'une des matrices polymères les plus utilisées par les équipementiers automobiles pour la fabrication de pièces structurelles.

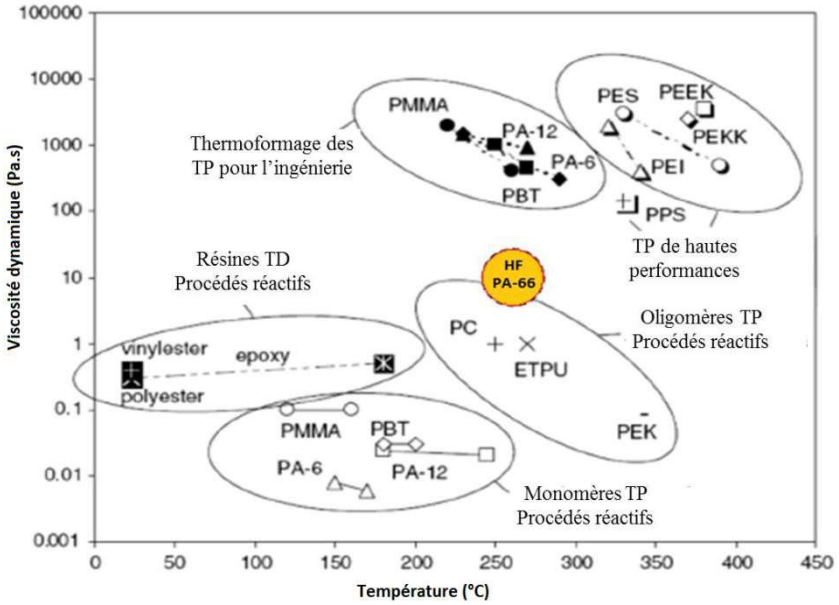


Figure 1.4 Viscosité dynamique de différents polymères en fonction de la température de mise en forme du composite [7].

À l'état solide, le PA 6-6 possède de bonnes propriétés mécaniques et physico-chimiques telles que :

- Résistance au frottement (autolubrifiant),
- Températures de fusion et de cristallisation élevées,
- Résistance aux hydrocarbures et aux solvants (alcalin, solutions organiques…).

Cependant, le PA 6-6 est sensible à :

- La reprise en eau : en raison de la fonction hydrophile amide, le PA 6-6 est hautement sensible à l'eau (jusqu'à 10 % de reprise en eau pour une humidité relative d'environ 100%). L'eau joue le rôle d'un plastifiant, ce qui se traduit par un gonflement, une chute de la température de transition vitreuse et des propriétés mécaniques [8] ;
- L'oxydation thermique : exposé longtemps à hautes températures, le PA 6-6 se dégrade et perd ses propriétés mécaniques.

1.1.2. Renforts tissés

(a) Fibres de verre

L'ASTM définit le verre comme un matériau inorganique, non cristallin produit par fusion et qui se solidifie sans cristalliser. Composée essentiellement de silice (SiO_2) et d'additifs tels que l'oxyde de sodium (CaO) et l'oxyde d'aluminium (Al_2O_3), la fibre de verre est apparue au cours des années 1930 aux États-Unis. Selon la composition chimique et les domaines d'application, le verre existe sous différents types dont principalement le verre E et le verre C (Tableau 1.1) .Pour son faible coût et ses excellentes propriétés mécaniques et thermiques, la fibre de verre E est celle qui est la plus utilisée dans l'industrie comme renfort, largement devant les fibres de carbone et d'aramide.

Tableau 1.1 Propriétés mécaniques et thermiques de la fibre de verre E comparées aux fibres de carbone et de lin [9].

	Densité	**Module d'Young**	**Allongement à la rupture**
	ρ	E	A_r
	10^3 kg.m^{-3}	GPa	%
Verre E	2.54	73	4.8
Carbone HR	1.75	230	1.5
Aramide	1.45	70-130	1-2
Lin	1.54	12-85	1-4

(b) Tissage des fibres

L'utilisation de renforts tissés se justifie par un bon compromis entre les propriétés mécaniques de ces derniers et leur capacité à épouser la géométrie complexe des pièces à produire. Un tissu est un entrecroisement de mèches de fibres continues orientées suivant la direction de la longueur (la chaîne) et de mèches perpendiculaires disposées en largeur (la trame). Cet entrecroisement est réalisé grâce à un métier à tisser (Figure 1.5). Le tissage consiste en une succession d'étapes [10] :

- Les fils de chaîne initialement enroulés sur une ensouple sont séparés en deux nappes (supérieure et inférieure). L'angle entre ces nappes s'appelle la foule.
- L'insertion de la trame entre les deux nappes. Selon la qualité et la complexité du tissu final, on distingue cinq techniques d'insertion : la navette, les lances, les projectiles, le jet d'air et le jet d'eau.
- Tassement du fil de trame par le peigne du métier à tisser.

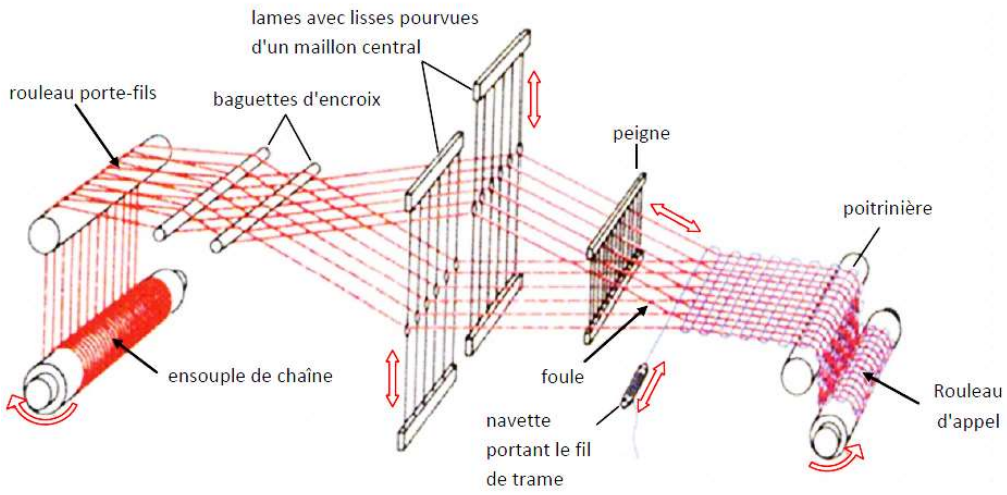


Figure 1.5 Schéma de principe du tissage textile [10].

Selon l'épaisseur du tissu, on distingue les tissages 2D (surfaciques), 2D½ (interlocks) et 3D (tridimensionnels). Le mode d'entrecroisement des mèches est appelé armure. Pour les tissages 2D, qui sont étudiés au cours de cette thèse, il existe trois armures fondamentales (voir Figure 1.6) :

- **Toile ou taffetas (plain weave) :** armure de produits textiles tissés pour lesquels chaque fil de chaîne passe alternativement au-dessus et au-dessous de chaque fil de trame et réciproquement.

- **Sergé (twill weave) :** désigne un type d'armure pour laquelle chaque fil de chaîne flotte au-dessus de plusieurs fils de trame. C'est l'armure la plus dense. Les sergés sont très déformables, possèdent un comportement similaire dans le sens chaîne et le sens trame (contrairement à l'armure satin) et présentent une densité de fils plus élevée que l'armure satin.
- **Satin (satin weave) :** un tissu est dit « satin de n » lorsqu'il est constitué de fils de chaîne flottant au-dessus de (n-1) fils de trame (n est appelé rapport d'armure).Les tissus à armure satin sont beaucoup plus déformables qu'une toile ou taffetas. Les tissus de satin de 8, très déformables sont les plus couramment utilisés, notamment pour les formes complexes.

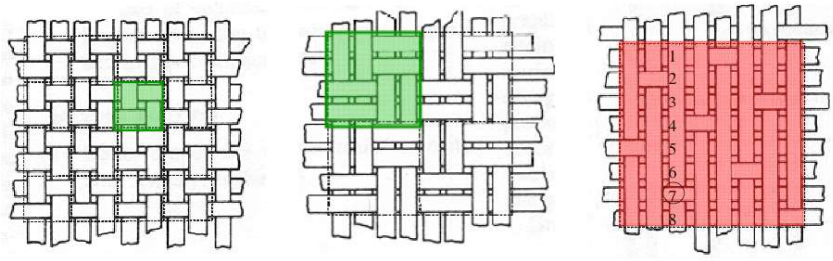


Figure 1.6 Quelques armures basiques de tissage 2D, de gauche à droite : toile, sergé 2-2 et satin de 8.

La combinaison de ces trois familles d'armures avec la multiplicité de géométries et de matériaux disponibles pour fabriquer la mèche permet d'obtenir une grande diversité de renforts tissés. Lorsque la mèche contient le même nombre de filaments dans les deux directions chaîne et trame, le tissu est dit équilibré.

Pour certaines applications avancées, les renforts tissés sont préférés pour les avantages suivants :

- Meilleure résistance au délaminage,
- Tolérance à l'endommagement grâce au tissage des fibres,
- Épaisseur régulière grâce au maintien latéral des fibres,
- Propriétés mécaniques dans le sens transverse,
- Drapabilité.

Généralement, un tissu est caractérisé par les paramètres suivants :

- Son armure : le mode de croisement des mèches de chaîne et de trame,
- Ses mèches : titrage ou masse linéique, le diamètre, le nombre de fibres et le matériau,
- Sa densité de tissage (mèches/cm^2) : nombre de mèches par centimètre carré. Plus le tissage est dense plus il y a de mèches et donc plus le tissu est « lourd »,
- Son grammage ou masse surfacique,

- L'ensimage : traitement chimique des fils permettant d'optimiser l'adhérence des renforts et facilitant le tissage,
- Son embuvage qui caractérise l'ondulation des mèches. Il est donné par la relation données sur la Figure 1.7.

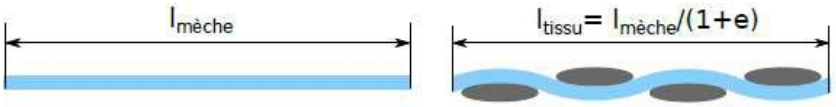


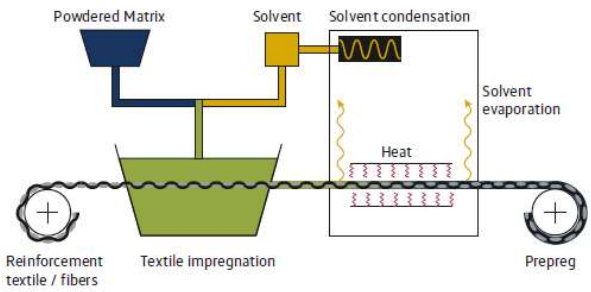
Figure 1.7 Embuvage d'une mèche.

1.1.3. Pré-imprégnés

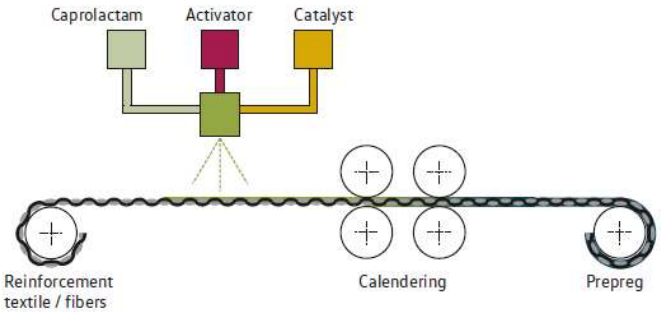
L'une des difficultés majeures de la mise en forme des matériaux composites est l'imprégnation du renfort. Ce problème est d'autant plus important lorsque la matrice présente une forte viscosité, comme c'est en général le cas pour les polymères thermoplastiques. Dans un tel cas, l'imprégnation n'est en général pas complète ce qui aboutit à une variation locale plus ou moins grande du taux de fibres, l'apparition de zones sèches et la création de micro et méso-porosités (intra et inter-mèches) [6,7]. Pour pallier ce problème et assurer une bonne imprégnation du renfort, une solution consiste à maintenir une pression forte lors de la phase de consolidation. Cette étape est coûteuse à la fois en termes de temps et d'investissement technologique. Industriellement, la phase d'imprégnation peut être réalisée en amont de la phase de fabrication de la pièce composite à proprement dit par le biais de l'utilisation dans les procédés de mise en forme de matériaux pré-imprégnés ou prepregs, c'est-à-dire de produits semi-finis qui peuvent combiner un renfort continu (UD, tissé, tricoté) à une matrice polymère. Il existe quatre procédés de fabrication des pré-imprégnés (Figure 1.8a-d) :

- **Imprégnation au solvant (Solvent imprégnation)** : le polymère est dilué dans un solvant pour diminuer sa viscosité et faciliter le mouillage et l'imprégnation du renfort. Après le passage du renfort dans le bain de solvant, il passe à travers des rouleaux de calandrage qui contrôlent la qualité d'imprégnation. Le matériau imprégné passe ensuite dans un four où le solvant est chassé et récupéré.
- **Calandrage (Melt impregnation)** : un dépôt de résine soigneusement contrôlé est déposé sur une nappe de renforts secs. L'ensemble est ensuite pris en sandwich entre deux rouleaux afin de contrôler l'épaisseur et le taux volumique du renfort.
- **Imprégnation par voie sèche (Powder impregnation)** : la matrice préalablement broyée est déposée sur le renfort sec. La matrice est distribuée sur un côté de tissu puis thermiquement fondue et le renfort fibreux est imprégné.
- **Mélangeage (Commingling)** : le préimpregné est obtenu par un mélangeage mécanique du renfort fibreux et de la matrice.

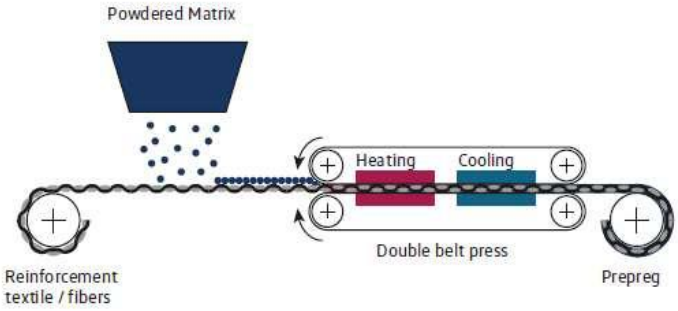
(a)



(b)



(c)



(d)

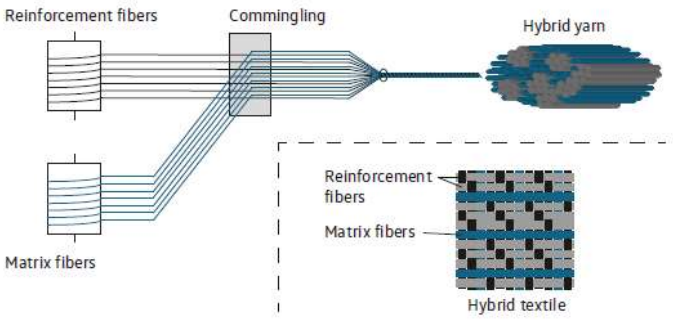


Figure 1.8 Différentes techniques de préconsolidation des pré-imprégnés. (a) Imprégnation au solvant, (b) calandrage, (c) imprégnation par projection de poudre, (d) imprégnation par mélangeage [11].

1.2.Procédé de thermoestampage

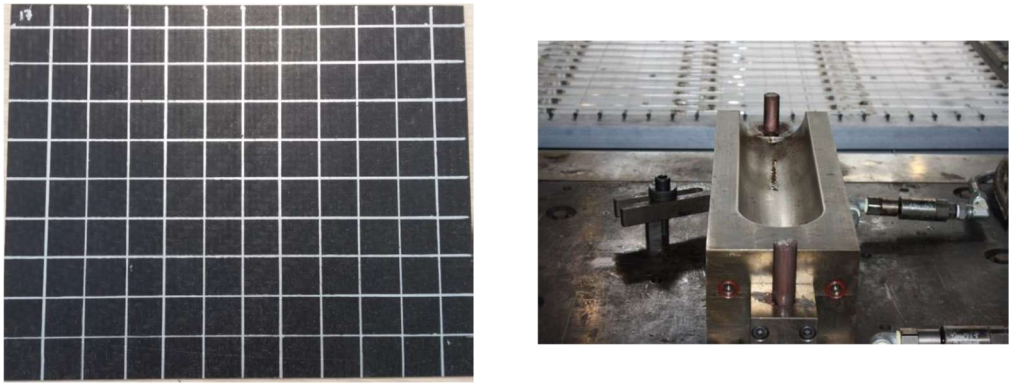
1.2.1. Préambule

Dans cette section, il sera question de proposer une revue de la littérature du procédé de thermoestampage des composites à matrice polymère thermoplastique et à renforts textiles. Une attention particulière sera accordée aux mécanismes de déformation et aux défauts induits qui apparaissent lors de la mise en forme de pièces en goulotte hémisphérique avec extrémité bombée dans des conditions identiques à celles de l'industrie [113]. En faisant varier un jeu de paramètres (Tableau 1.2) du procédé (pression de fermeture, vitesse de fermeture, température du pré-imprégné et température du moule), certaines modes de déformation et défauts sont observés.

La figure 1.9 montre le flan ($250 \times 200\ mm^2$) utilisé pour fabriquer les pièces. Il s'agit d'un matériau à base de PA 6-6 sous forme d'une plaque préconsolidée comprenant 4 plis de sergé 2-2 en empilement croisé [0°/90°/0°/90°]. Un quadrillage a été utilisé pour étudier la déformation du pré-imprégné, les phénomènes de glissement et mesurer l'angle de cisaillement des tissus. Sa taille est équivalente à 3 fois celle du motif périodique du sergé 2-2. Le moule de dimension $450 \times 170\ mm^2$ est usiné en acier.

Tableau 1.2 Facteurs étudiés et intervalle de variation.

Facteurs	Niveaux	
Pression de fermeture (bar)	10	30
Vitesse de fermeture (mm/s)	5	15
Température de chauffe (°C)	270	300
Température de moule (°C)	100	160



(a) (b)

Figure 1.9 (a) Flan marqué d'une grille, (b) moule utilisé.

1.2.2. Mise en forme des pré-imprégnés par thermoestampage

Il existe une multitude de procédés de mise en forme des matériaux composites dont le choix dépend de critères tels que la cadence, le coût, la complexité géométrique de la pièce à produire, les caractéristiques mécaniques finales, le type de renfort et la nature de la matrice. La figure 1.10 donne une comparaison entre différentes techniques de mise en forme des composites en termes de temps de cycle, type de renfort et complexité des pièces produites.

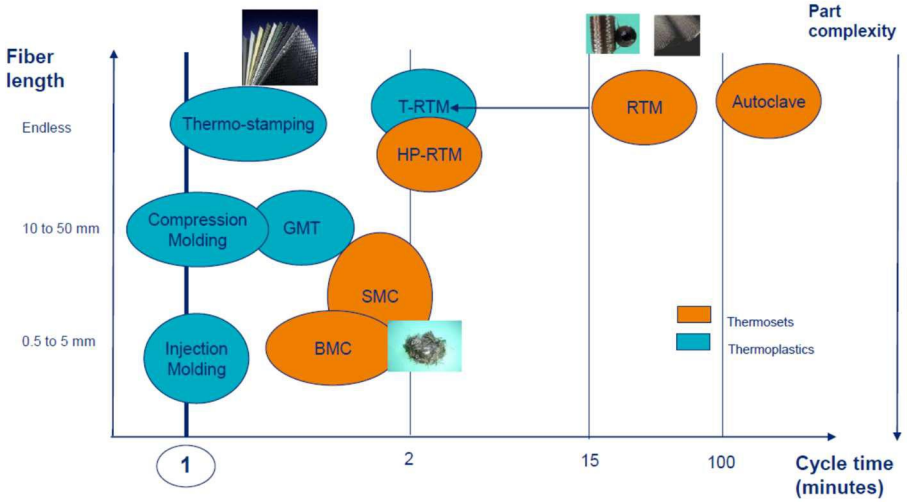


Figure 1.10 Comparaison entre procédés de mise en forme des matériaux composites.

À l'origine, Le procédé de thermoestampage (Figure 1.11) est une adaptation d'autres procédés de mise en œuvre des métaux (emboutissage, estampage) et des moyens technologiques associés. Dédié principalement à la transformation des semi-produits sous forme de plaques pré-imprégnées préconsolidées de matrices polymères thermoplastiques ou thermodrucissables et renforts continus, le thermo-estampage assure un compromis entre des caractéristiques mécaniques moyennes et des cadences de production élevées [12], [13]. Ce procédé est utilisé principalement pour les applications automobiles et aéronautiques, pour la fabrication des pièces structurelles et non structurelles (poutres de parechocs, faces avant, dossiers de sièges, carters…). Il comporte généralement quatre phases :

- **Chauffage** : le composite sous forme de pré-imprégnés préconsolidés ou de plaques est chauffé (entre 1 et 2 minutes) au-dessus de la température de fusion de la matrice pour le rendre suffisamment malléable et épouser la forme du moule. Les principales sources de préchauffage sont les lampes infrarouges (IR), les fours à convection et les presses à plateaux chauffants. Cette étape doit être réalisée avec précaution car le chauffage déclenche une réaction chimique entre les chaînes moléculaires du PA et les adjuvants.

- Cette réaction est exothermique et peut provoquer une augmentation rapide de la température de la matrice, ce qui constitue un véritable risque de dégradation thermique.
- **Transport** : une fois chauffé, le composite est transporté sous la presse. Afin d'éviter un refroidissement et surtout une chute de la température au-dessous de la température de cristallisation, le transport doit être le plus rapide possible. Pour assurer cette condition, des systèmes automatisés comme des robots et des convoyeurs sont souvent utilisés. Lors de cette phase, il y a généralement une diminution de 10 à 15% de la température qui est compensée par le surchauffage du matériau lors de la première étape.
- **Formage/consolidation** : le composite est déformé dans un moule ayant la forme de l'empreinte de la pièce finale. Le processus consiste à rapprocher le poinçon du pré-imprégné à l'état fondu à une vitesse suffisamment élevée pour minimiser la perte de température. Ensuite, la pression de fermeture de moule est appliquée progressivement. À partir d'un certain seuil, la pression est maintenue constante pour une courte durée pour fermer les pores, chasser les substances volatiles et assurer une bonne cohésion entre les différents plis. Le niveau de pression et sa durée d'application dépendent de la viscosité de la matrice, du mode de chauffage et de la géométrie de la pièce finale.
- **Refroidissement** : cette dernière étape consiste à refroidir la pièce au-dessous de la température de cristallisation de la matrice jusqu'à une température dite de solidification, température à laquelle la pièce peut être retirée du moule sans déformation ni adhésion. La vitesse de refroidissement est généralement réglée en fonction de la nature de la matrice et du matériau de moule. Une vitesse trop élevée peut être à l'origine de gradients thermiques qui favorisent le développement de contraintes internes.

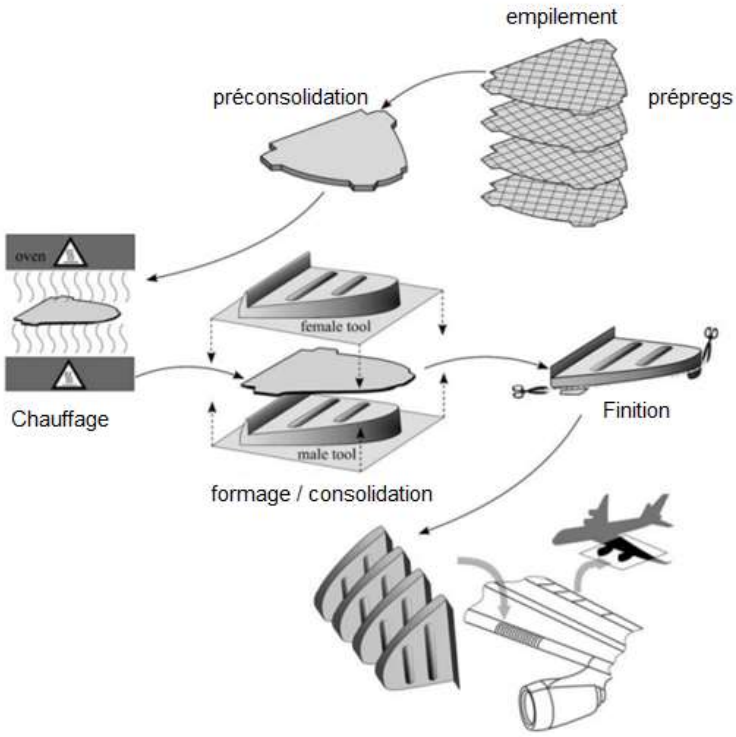


Figure 1.11 Principales étapes de la mise en forme par thermoestampage [14].

Selon le choix du cycle thermique de mise en forme, on distingue deux types de procédés [15] :

- **Procédé isotherme** : le pré-imprégné et le moule sont chauffés au-dessus de la température de fusion de la matrice. Ce niveau de température est maintenu constant lors de la mise en forme et la consolidation. Le résultat est un produit avec un faible niveau de porosité et de bonnes propriétés mécaniques. Ce procédé est souvent utilisé dans le thermoestampage des pièces aéronautiques. Le cycle total de mise en forme est fonction de la durée de la montée en température du moule.
- **Procédé non isotherme** : le pré-imprégné est chauffé séparément et ensuite transporté sous le moule. Il voit sa température diminuer. La pression est appliquée jusqu'à ce que la température de cristallisation soit dépassée. Ce procédé ne nécessite pas une régulation de la température du moule ce qui réduit le temps de préchauffage et refroidissement du moule. Ainsi le temps de cycle diminue considérablement. Par ailleurs, l'étape de mise en forme/consolidation est conditionnée par le niveau de température : la température doit être supérieure à la température de cristallisation. Pour cette raison, ce procédé est utilisé dans le cas de matériaux composites à faible taux volumique de fibres et d'une géométrie de pièce finale à complexité réduite, ce qui réduit le niveau de la durée d'application de la pression de consolidation. Ce procédé intéresse

les équipementiers automobiles où une forte cadence de production est cherchée et un taux minimum de porosité reste acceptable.

1.2.3. Mécanismes de déformation principaux

Comme dans la plupart des procédés de mise en forme, divers mécanismes de déformation interviennent lors du thermoestampage des pièces composites à différentes échelles (Figure 1.12) :

- Macroscopique : l'échelle de la pièce finale (de l'ordre du centimètre au mètre),
- Mésoscopique : l'échelle de la mèche constituant le renfort (de l'ordre du millimètre),
- Microscopique : l'échelle de la fibre constituant la mèche (de l'ordre du micromètre).

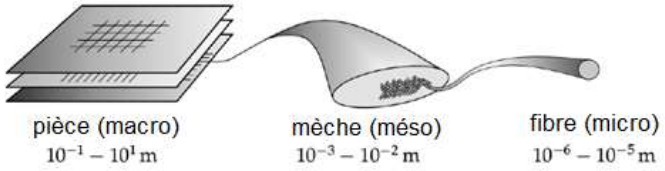


Figure 1.12 Exemple de hiérarchie multi-échelles des renforts fibreux utilisés dans les matériaux composites [16].

(a) Cisaillement plan

Ce mécanisme est induit par la forte rigidité en tension des fibres et la faible rigidité en cisaillement des tissus. Il est considéré comme le principal mode de déformation lors la mise en forme des pré-imprégnés textiles [17], [18]. C'est grâce à ce mode qu'il est possible de fabriquer des formes tridimensionnelles dites à géométrie non développable. La Figure 1.13 met très clairement en relief ce cisaillement plan dans certaines zones des pièces moulées avec parfois un cisaillement prononcé où l'angle de cisaillement, complémentaire de l'angle formé entre le réseau chaîne et trame, augmente fortement.

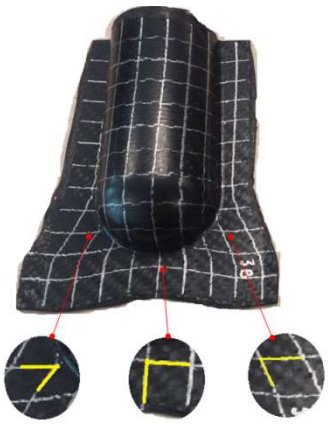


Figure 1.13 Variations locales de l'angle de cisaillement dans préimpregné [0°/90°/0°/90°].

(b) Tractions longitudinales

Moins important en termes de changement de forme que le précédent, le mode de tractions longitudinales des pré-imprégnés dans le sens des mèches de trame ou de chaîne (uniaxial, équibiaxial ou plus généralement biaxial) est très présent dans le procédé de thermoestampage (Figure 1.14). Il conduit généralement au « désembuvage » des mèches (de 1 à 3 %) et induit une rigidification générale des pré-imprégnés.

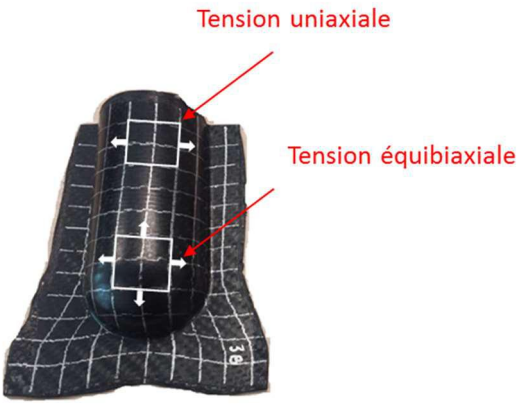


Figure 1.14 Comportement en traction longitudinale du pré-imprégné [0°/90°/0°/90°].

(c) Cisaillement transverse et glissements

La nature des pré-imprégnés multiplis implique des mécanismes de frottement et de glissement aux interfaces communes des plis ou à l'interface pli/outil. Lors de l'étape de formage le composite est soumis à un effort de pression afin d'épouser la forme du moule, mais des glissements au niveau de la surface métallique du moule sont possibles. D'autre part, le composite est un empilement de plusieurs couches avec des orientations différentes, il peut avoir un mouvement relatif des couches adjacentes les unes par rapport aux autres (Figure 1.15). Hallander et al. [19] et Califford et al. [26] ont montré que ces mécanismes contribuent à l'apparition des défauts de plissement.



Figure 1.15 Glissement aux interfaces pli/pli.

(d) Consolidation et déconsolidation transverses

Au cours du chauffage des pré-imprégnés, le polymère se ramollit et relâche son action sur le tissu qui se détend et se déconsolide (Figure 1.6). Cela entraine la formation de pores dont certains peuvent disparaître au cours de la compression par le biais de mécanismes de consolidation.



Figure 1.16 Déconsolidation dans le bord d'une pièce thermoestampée.

(e) Flexion hors plan

Une mèche est fabriquée à partir d'un nombre fini de fibres de faible diamètre (5 à 7 µm pour le carbone, 10-20 µm pour l'aramide, 5-25 µm pour le verre). Compte tenu de la faible section et des glissements qui peuvent avoir lieu entre les fibres, la rigidité en flexion des mèches et par conséquent celle du tissu sont généralement très faibles. Ce mode déformation joue un rôle important sur la formation des plis hors plan [20][19].

1.2.4. Défauts de mise en forme

La non-maîtrise du procédé du thermoestampage peut entraîner l'apparition de plusieurs défauts. Ces derniers sont de natures multi-échelles et dépendent de l'interaction entre mécanismes de déformation des tissus, des paramètres du procédé et de la rhéologie de la matrice.

(a) Déformations du renfort fibreux

Lors de la mise en forme du composite, de fortes interactions multiphysiques et mécaniques apparaissent au niveau des fibres qui constituent les mèches, au niveau des mèches et la matrice, voire même au niveau des interfaces matériau/outil. Les conséquences de ces interactions sont multiples. À l'échelle macroscopique, les défauts les plus récurrents sont le plissement (Figure 1.17) et le glissement des mèches (Figure 1.18).

Les éventuelles causes à l'origine du plissement peuvent être classées en deux catégories. En premier lieu, des causes physiques comme la distribution non uniforme de la pression lors de l'étape de consolidation, une température non homogène dans le matériau ou encore

distribution de résine non uniforme surtout entre les plis. En second lieu, des causes liées à la cinématique du réseau fibreux. Lors du drapage, généralement un couplage de trois comportements mécaniques, c'est-à-dire le cisaillement dans le plan, la flexion hors plan et la traction, sont mis en jeu [21]. Ainsi, par exemple afin d'épouser la forme du moule (souvent une géométrie non développable), un mouvement de rotation des mèches autour de leurs points de croisement est observé jusqu'à ce qu'elles entrent en contact latéral et que tout déplacement relatif soit bloqué. À ce stade, le plissement se développe.

Quant au glissement des mèches, décrit également comme une perte de cohésion entre mèches, il est attribué principalement à deux causes : d'une part à l'architecture fibreuse qui définit le degré de cohésion des mèches [22] et d'autre part aux tensions appliquées sur les mèches lors de la mise en forme [23].



Figure 1.17 Défauts de plissements observés lors de la mise en forme par thermoestampage à l'interface poinçon-pièce (droite) et moule-pièce (gauche).



Figure 1.18 Glissements du réseau de mèches observés dans un pré-imprégné thermoestampé.

(b) Porosité

Le taux de porosités, leurs formes et distributions influencent les performances mécaniques de la pièce finale. En étudiant l'effet des porosités sur les propriétés mécaniques d'un composite multiplis carbon/époxy, Ghiorse [24] a montré qu'une augmentation de 2% du taux de porosité

peut impliquer une chute d'environ 20% des résistances en cisaillement interlaminaire et flexion.

La figure 1.19 montre la localisation de pores en surface d'un composite pré-imprégné thermoestampé. On y voit deux coupes avec et sans pores de surface.

Les origines de la porosité sont classées en deux catégories :

- Causes mécaniques telles que l'emprisonnement de poches d'air lors de la fabrication de la matrice et l'imprégnation du renfort. Cette dernière est gouvernée par la vitesse d'écoulement de la résine, la pression imposée et la viscosité. Les éventuels glissements entre nappes, la pliure ou encore le chevauchement des mèches lors du drapage sont aussi d'autres mécanismes à l'origine des pores.
- Présence de produits volatils au sein du matériau : une quantité résiduelle de ces produits à l'issue de la phase de formage dissoute dans la résine peut être à l'origine de la création de pores. Des analyses thermogravimétriques ou en spectroscopie de masse peuvent permettent de quantifier cette présence [25], [26].

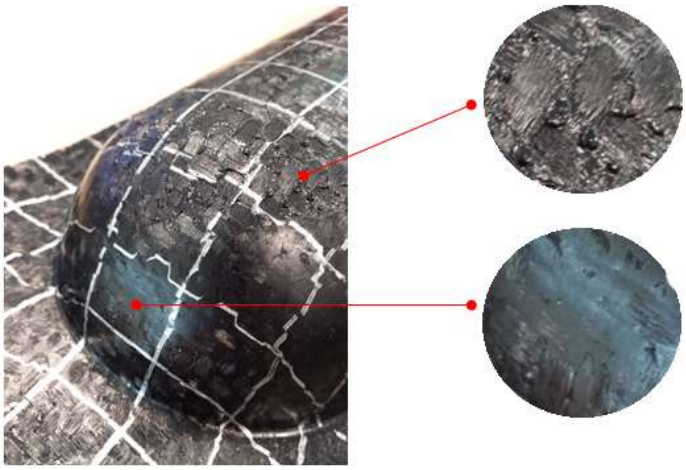


Figure 1.19 Présence de pores à la surface.

(c) Ségrégation de matrice

La ségrégation ou encore la séparation fibres-matrice induit une redistribution spatiale des fibres et/ou de la matrice lors de la mise en forme [27]. Comme l'illustre la figure 1.20 obtenue lors de la compression d'un GMT [41], ce phénomène se traduit par des zones plus ou moins riches en fibres. Ce problème est lié à un « mouvement biphasique » par opposition au « mouvement monophasique », c'est-à-dire un mouvement d'ensemble de fibres et de la matrice lors du thermoformage [27]. Cette séparation fibres-matrice peut avoir lieu dans le cas d'un choix non optimal des paramètres du procédé tels que la température de moule et le temps de maintien sous pression (vitesse de fermeture de moule).

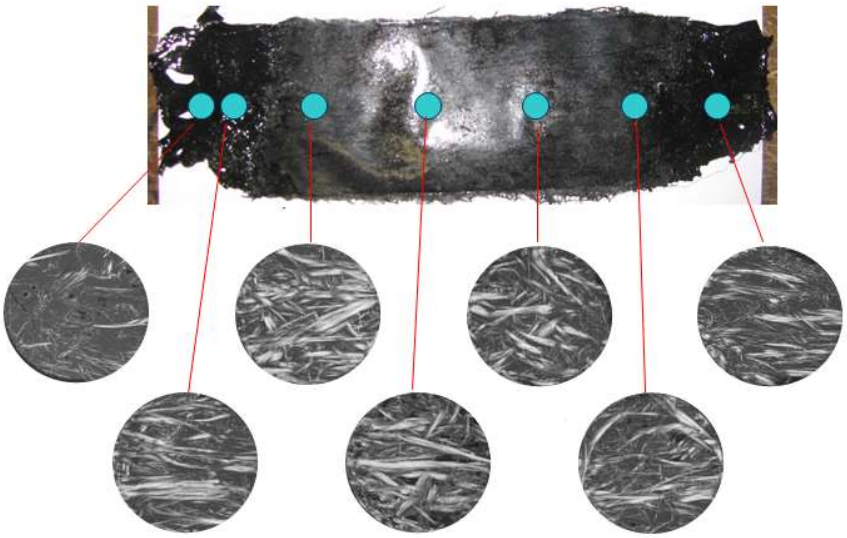


Figure 1.20 Ségrégation de la matrice lors de la compression d'un thermoplastique renforcé par un mat de verre [28].

1.2.5. Comportement mécanique des pré-imprégnés lors de leur mise en forme

Dans cette partie, nous nous intéressons aux essais mécaniques permettant de caractériser les mécanismes de déformation présentés précédemment.

(a) Essai de cisaillement plan

Le cisaillement plan est le mode de déformation prédominant pendant la mise en forme des renforts tissés. Cependant, aucune méthode standardisée n'a été proposée pour le caractériser. Par conséquent, les résultats présentés dans la littérature, majoritairement pour des renforts secs, sont sujets à une grande variabilité. Les tests les plus utilisés sont le « picture frame » et le « bias-extension test ».

i. Picture frame

Ce test permet de contraindre à l'échantillon un cisaillement pur et uniforme [23], [29], [30]. Il consiste à disposer une éprouvette en croix dans un cadre métallique articulé dans ses 4 coins (Figure 1.21). L'ensemble est monté sur une machine de traction. Un déplacement *d* est imposé sur deux coins opposés permettant ainsi un cisaillement sur toute l'éprouvette. L'angle de cisaillement est donné par simple relation géométrique en fonction du déplacement d et de la côte L_C :

$$\gamma = \frac{\pi}{2} - 2cos^{-1}\left(\frac{1}{\sqrt{2}} + \frac{d}{L_C}\right) \quad (1.2)$$

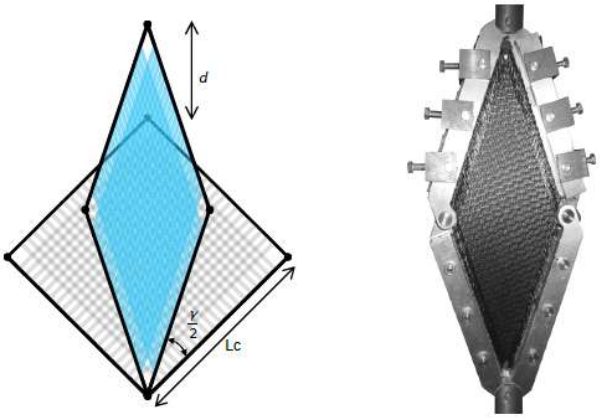


Figure 1.21 Picture frame et cinématique de l'éprouvette [44].

Les principales difficultés de cet essai sont :

- Les mèches sens chaîne et trame doivent être impérativement alignées par rapport aux côtés du cadre. Dans le cas contraire, le désalignement provoque des déformations longitudinales importantes dans les mèches, c'est-à-dire des tensions importantes. Celles-ci couplées à la faible rigidité en cisaillement du tissu influencent grandement l'effort de cisaillement mesuré.
- Selon le modèle théorique, les mèches pivotent librement autour de leurs points de fixation au niveau des bords du cadre. Dans la pratique, une telle cinématique n'est pas tout à fait respectée, et il peut y avoir des flambements locaux de la mèche entraînant des déformations subversives.
- Lors du montage de l'éprouvette dans le cadre, les mèches sont soumises à une légère tension dont l'amplitude pèse sur l'interaction du réseau fibreux. Ainsi, les efforts de cisaillement seront donc plus importants sur une éprouvette plus tendue et vice versa.

Pour résoudre ces difficultés techniques, deux pistes d'amélioration sont proposées. Premièrement, par la modification de la géométrie de l'éprouvette en ne fixant dans le cadre que les extrémités des côtés de l'éprouvette ce qui revient à minimiser le nombre de nombre de mèches contraintes [31]. En second lieu, l'amélioration des dispositifs existants par la révision de la forme du cadre en jouant à la fois sur sa cinématique et son design [32].

ii. Bias-extension test

Introduit pour la première fois par Spivak en 1968 [33] comme une technique pour caractériser le comportement en cisaillement plan d'un renfort tissé, le bias-extension est l'équivalent d'un essai de traction où les directions chaîne et trame sont orientées à ±45° par rapport à l'axe de la sollicitation. Il est réalisé généralement sur des éprouvettes rectangulaires dont sa longueur utile est au moins deux fois plus importante que sa largeur afin de garantir le développement

d'une zone centrale uniformément cisaillée [34], [35]. Contrairement au picture frame, dans le cas de l'essai bias-extension, les mèches sont dépourvues de toute tension parasite puisqu'elles ont toujours une extrémité libre. Il est donc beaucoup moins sensible et plus simple à mettre en œuvre tant du point de vue de la préparation de l'éprouvette que de la conduite de l'essai en lui-même.

Le comportement en cisaillement intraplis fait intervenir plusieurs sources de non-linéarités telles que le frottement inter-mèches, le réarrangement des fibres, l'éventuelle compaction des mèches et finalement les traitements physico-chimiques que subissent les renforts comme l'ensimage textile[2]. C'est ce qui explique un comportement mécanique du renfort assez raide au départ avant de s'amortir. Enfin, le cisaillement intraplis dépend de plusieurs facteurs comme la vitesse de déformation, la géométrie des mèches et la température.

Il est à noter que pour dépouiller les résultats de la caractérisation par bias-extension, trois fortes hypothèses sont formulées [36] :

- **Hypothèse 1 :** les mèches sont inextensibles,
- **Hypothèse 2 :** la mise en forme est faite sans glissement en translation entre chaîne et trame. Elles ne peuvent que pivoter au tour de leur point de croisement,
- **Hypothèse 3 :** la rigidité en flexion des mèches est négligeable.

Comme le montre la figure 1.22, la cinématique du cisaillement induite permet de distinguer trois zones [33,34] :

- C : Une zone centrale purement cisaillée avec un réseau fibreux libre à ses deux extrémités.
- B : 4 zones latérales demi-cisaillées, avec un réseau fibreux libre d'un côté et encastré de l'autre.
- A : 2 zones non cisaillées, maintenues dans les mors.

[2] L'ensimage textile est un traitement de surface appliqué aux filaments à la sortie de la filière. Il consiste à déposer un agent de liaison assurant la cohésion des filaments entre eux, diminuant l'abrasion et facilitant le tissage et évitant la formation de charges électrostatiques.

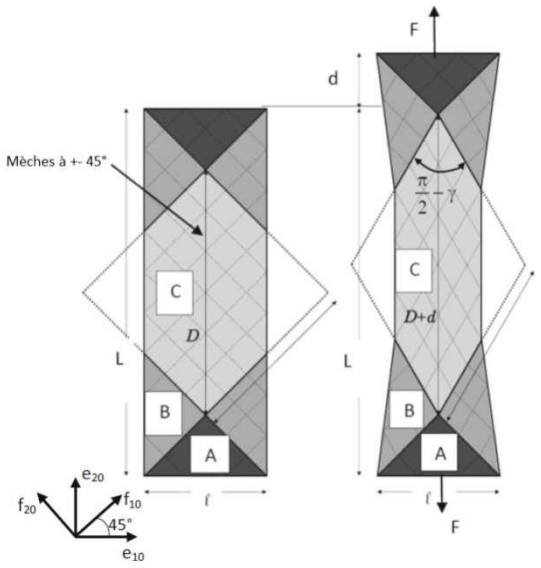


Figure 1.22 Bias-extension test. Paramétrage de l'éprouvette avant et après caractérisation.

En se basant sur les hypothèses précédentes et la géométrie déformée de l'éprouvette, une expression analytique de l'angle de cisaillement γ dans la zone centrale en fonction des dimensions de l'échantillon et du déplacement δ peut être donnée sous la forme [31] :

$$\gamma = \frac{\pi}{2} - 2.cos^{-1}\left(\frac{1}{\sqrt{2}} + \frac{\delta}{\sqrt{2}(L_0 - l_0)}\right) \quad (1.3)$$

D'un point de vue comportement macromécanique, le cisaillement intraplis peut être décrit en se référant à la figure 1.23 :

- À faible angle de cisaillement, les mèches pivotent librement autour de leur point de croisement dans un mouvement de corps rigide et le renfort tissé se comporte comme un système à quatre barres (stade 1). À ce stade, seuls les efforts de frottement s'opposent aux efforts de cisaillement.
- La force de cisaillement augmente progressivement et les mèches adjacentes se rapprochent et rentrent en contact latéral. La compression transverse s'additionne aux efforts de frottement pour s'opposer à l'effort de cisaillement (stade 2).
- Les mèches atteignent leur limite de compaction et la force augmente brusquement (stade 3). L'angle de cisaillement correspondant est appelé communément « angle de blocage ». Il n'y a plus de mouvement relatif entre mèches. La rigidité en cisaillement continue à augmenter. Cette situation favorise l'apparition des défauts de plissement.

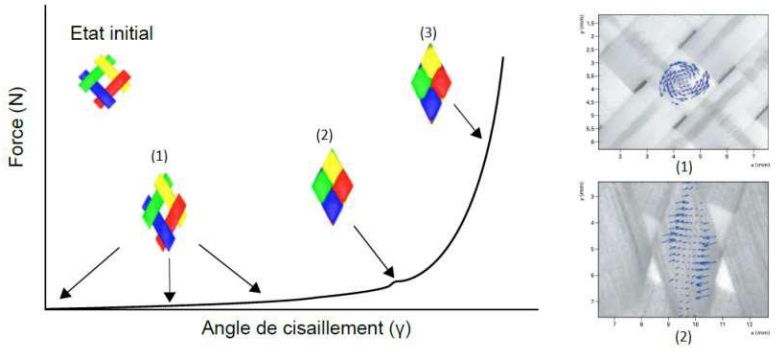


Figure 1.23 Mécanisme de déformation en cisaillement de fibres lors de la mise en forme d'un tissu sec [39].

Néanmoins, des essais réalisés par Boisse et al. [36] et Cao et al. [32] montrent que cette cinématique à trois zones n'est pas toujours valide. En fait, contrairement à ce que prévoient les modèles existants, l'angle de cisaillement ne varie pas brusquement entre les différentes zones, mais plutôt progressivement mettant en évidence des zones de transition. De même, il a été démontré qu'à partir d'un certain niveau de déformation, la formule analytique surestime largement la vraie valeur de l'angle de cisaillement et qu'il y a éventuellement un glissement entre les fils chaîne et trame. Ces observations sont en contradiction avec les hypothèses cinématiques établies ci-dessus. De plus, l'expression analytique a été formulée pour des renforts secs, ensuite appliquée pour les pré-imprégnés sans pour autant mettre en avant le rôle de la viscosité thermodépendante de la matrice. D'autre part, aucune précédente étude n'a complété la caractérisation du comportement thermomécanique du pré-imprégné par l'analyse de l'évolution des mésostructres induites par le bias-extension. Enfin, l'expression proposée est plutôt une mesure plane de l'angle de cisaillement, autrement dit aucune information relative à la variation de cet angle dans l'épaisseur n'est donnée.

La figure 1.24 montre un essai de bias-extension réalisé sur un composite pré-imprégné de PA 6-6 renforcé par un satin de 8 de fibres de verre [18]. La caractérisation est réalisée pour différentes températures dans la gamme de mise en forme du matériau et à des déplacements incrémentaux. Le résultat montre des effets de relaxation importants à chaque arrêt intermédiaire de l'essai, ce qui met en évidence le comportement viscoélastique prononcé des pré-imprégnés. Nous constatons que l'effort de cisaillement plan diminue lorsque la température augmente. L'étude citée a servi à formuler un modèle de comportement visco-hyperélastique du pré-imprégné. Cependant, les mécanismes de déformation se produisant à l'échelle des mèches, notamment le long de l'épaisseur des pré-imprégnés, n'ont pas été analysés, ce qui peut constituer des limitations au modèle développé.

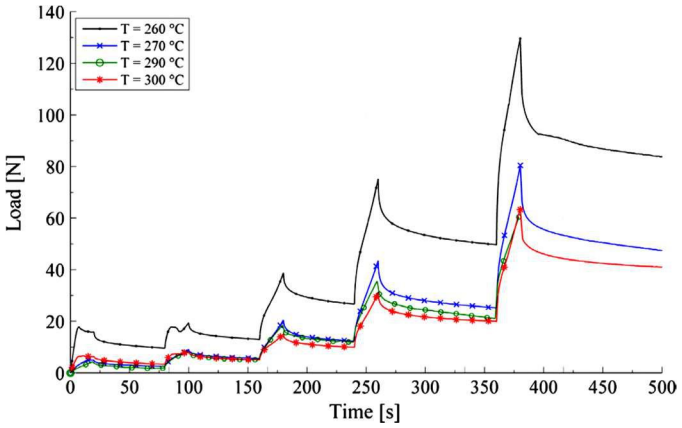
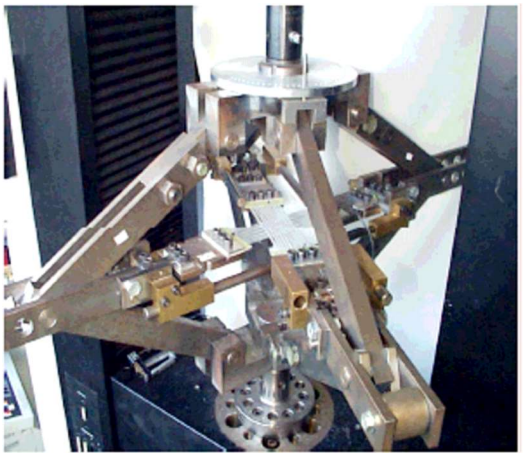


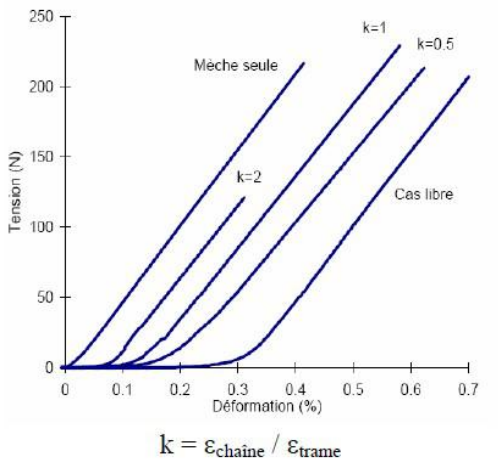
Figure 1.24 Courbe effort/temps obtenue par des essais de bias-extension réalisés sur une pré-imprégné fibres de verre tissées/PA 6-6 ,à différentes températures et déplacement contrôlé [18].

(b) Essais biaxiaux dans le sens des fils

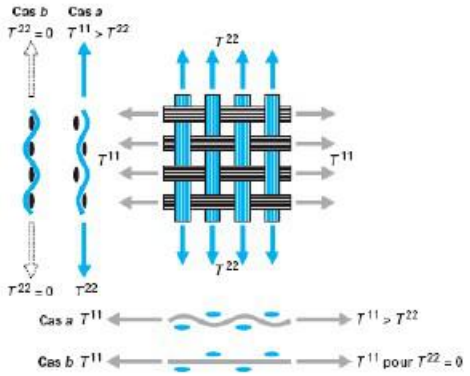
Dans le cas des tissés secs, des essais de traction le long des chaînes et trames mettent en évidence un comportement biaxial non linéaire, caractérisé par une rigidification progressive, puis linéaire caractéristique du comportement de la mèche (Figure 1.25b). La non-linéarité s'explique d'une part par l'embuvage initial de la mèche. Son effet est bien présenté dans la figure 1.25c. Sous sollicitation en traction, l'ondulation des mèches (chaîne ou trame) se réduit et celles-ci se redressent. La non-linéarité correspond d'autre part à la compression transversale des mèches lors de l'étirement en traction. En effet, les mèches et les fibres qui les constituent rentrent en contact latéral au fur et à mesure et s'écrasent principalement au niveau des points de croisement entre les réseaux. Cette compression implique des non-linéarités micro et mésoscopiques et induit des changements de section des mèches.



(a)



(b)



(c)

Figure 1.25 Comportement non linéaire du tissé en traction biaxiale. (a) Dispositif de traction biaxiale sur une éprouvette en croix. (b) Comparaison entre le comportement du tissé et de la mèche pour différents rapports k de biaxialité défini ici comme le rapport entre déformations dans le sens chaîne sur le sens tram. (c) Influence de l'embuvage sur les tensions chaîne et trame [50].

(c) Cisaillement transverse – Friction interplis

Murtagh et Mallon [40] ont étudié les effets de plusieurs paramètres sur le comportement en cisaillement transverse de pré-imprégnés thermoplastiques multiplis. Les auteurs montrent que le coefficient de friction est largement dépendant de la température et de la vitesse relative de glissement. Ce constat est expliqué par le développement d'un film de lubrification entre les surfaces adjacentes des plis. Sous ces conditions, des ponts adhésifs se forment entre les plis en interaction augmentant ainsi que l'aire réelle de contact. Ceci limite le déplacement relatif des plis et par conséquent l'effort de friction. Cette étude a également montré que l'augmentation de l'effort normal implique une diminution du coefficient de friction. Chow [41] a proposé une explication à la dépendance de la friction aux paramètres précédents en s'appuyant sur la courbe de Stribeck (Figure 1.28). Cette dernière présente la variation du coefficient de friction vis-à-vis à la variable de Hersey $H = \frac{\eta v}{P}$, où η est la viscosité dynamique, v la vitesse de cisaillement et P la pression normale de contact. Selon le type d'interaction entre la surface de la portée et la surface antagoniste, on identifie trois régimes de lubrification :

- Régime limite : le contact est sans lubrifiant liquide. On parle de frottement de type Coulomb.
- Régime mixte ou élasto-hydrodynamique : un film mince de lubrifiant remplit les cavités de surface sans pour autant engendrer une pression hydrodynamique capable d'assurer la portance de la charge qui tend à mettre les deux surfaces en contact.

- Régime purement hydrodynamique : un film de lubrifiant continu est établi entre les deux surfaces permettant le développement d'une force hydrodynamique suffisante pour éviter le contact entre les deux surfaces.

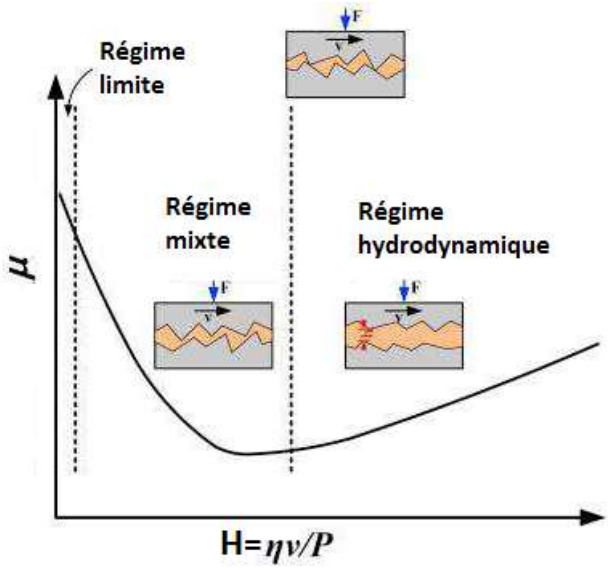


Figure 1.26 Courbe type de Stribeck montrant la variation du coefficient de friction en fonction de la viscosité, la vitesse de glissement et l'effort normal [42].

L'étude de la physique des frictions pli-pli et pli-outil a mené au développement de plusieurs dispositifs expérimentaux dont la plupart reposent sur le principe de fonctionnement du test « pull-out ». Proposé pour la première fois par Sherrer et Friedrich [43], cet essai, dont le schéma de principe est donné figure 1.29, consiste à disposer une éprouvette entre deux plateaux chauffés et à appliquer une force normale de contact F_N. Ensuite, l'éprouvette est soumise à une force de traction F_R introduisant ainsi un glissement V par rapport aux plateaux.

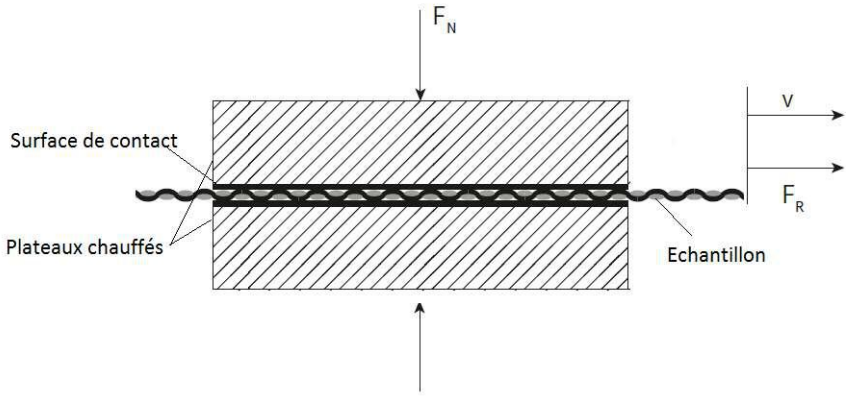
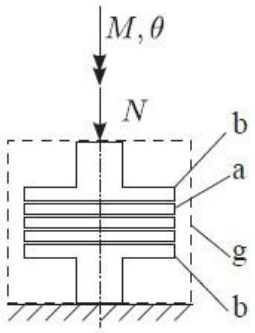


Figure 1.27 Schéma du principe du fonctionnement du test 'Pull-out'.

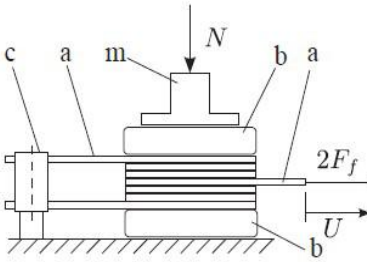
La figure 1.30 propose un bilan des dispositifs expérimentaux inspirés du test pull-out permettant la mesure des interactions de friction entre deux surfaces selon la norme ASTM D1894. L'ensemble de ces dispositifs permettent des caractérisations à sec (frottement de Coulomb) et en régime lubrifié (hydrodynamique). Nous constatons que la plupart des dispositifs existants hormis le système proposé par Groves (Figure 1.30a) génère le cisaillement par déplacement de l'échantillon par rapport aux deux plateaux qui restent fixes. De ce fait, le point d'application de l'effort normal centré sur le plateau supérieur n'est plus situé au centre géométrique de la zone active de cisaillement. Il se développe alors un moment de rotation. Une conséquence directe est une distribution non uniforme de la pression dans l'éprouvette. De plus, la cinématique de ces dispositifs ne permet que des essais de friction avec pilotage en effort normal, autrement dit il n'est pas possible de contrôler l'épaisseur des éprouvettes et de suivre l'évolution de l'effort normal.

Dans le cadre d'un benchmark international[20], une comparaison entre ces différents dispositifs expérimentaux a été réalisée. Il a été conclu que pour :

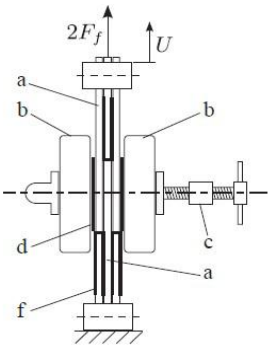
- Les renforts secs : une bonne reproductibilité est obtenue, avec des variations de coefficient de friction très faibles,
- Les préimprégnés : les tendances d'évolution du coefficient de friction en fonction du déplacement en cisaillement ne sont pas identiques. Certains résultats présentent de larges barres d'erreur ce qui signifie une mauvaise répétabilité. Cette variabilité peut être due aux choix des conditions expérimentales ainsi qu'aux hétérogénéités de température et de l'effort normal dans l'éprouvette.



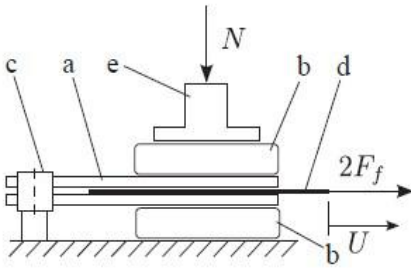
Groves, matériau : UD de carbone/PEEK et Verre/PEEK [44]



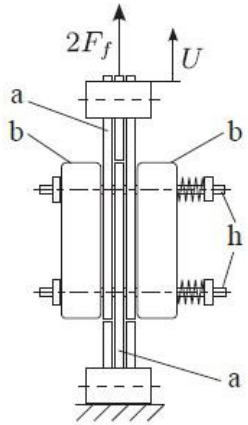
Scherrer et al., matériau : UD de carbone/PP [43]



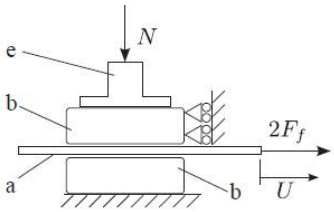
Morris and Sun, matériau : UD AS4/PEEK[45]



Murtagh et al., matériau : UD de AS4/PEEK [46]



Lebrun, matériau : sergée 2-2 Verre/PP [47]



Gorczyca-Cole et al., matériau : sergée 2-2 verre/PP [48]

Légende :

a : Echantillon b : Plateau chauffé c : Mors d : Tôle d'acier

e : Presse f : Film amovible g : Enceinte thermique h : Ressorts

Figure 1.28 Différents dispositifs expérimentaux utilisés pour la caractérisation de la friction [14].

Des résultats typiques d'essais de glissement pli/pli menés sur des pré-imprégnés thermoplastiques en utilisant différents dispositifs expérimentaux sont donnés figure 1.31 [14]. Les courbes représentent le coefficient de friction (calculé à partir de la force de cisaillement et de la surface de contact) en fonction de la longueur de cisaillement. Ces essais montrent des résultats tributaires de l'appareillage utilisé. Chacune des courbes présente une pente initiale

plus ou moins prononcée qui traduit les premiers glissements entre les mèches, le coefficient de frottement augmente progressivement sur quelques centimètres. Ensuite, sa valeur décroît et un palier de stabilité est défini. Deux valeurs de coefficients de friction sont généralement calculées : une moyenne sur les valeurs maximales et une autre relative au palier de stabilité. Il faut quand même noter la dispersion importante sur cette mesure qui induit une variabilité importante sur l'estimation du coefficient de friction.

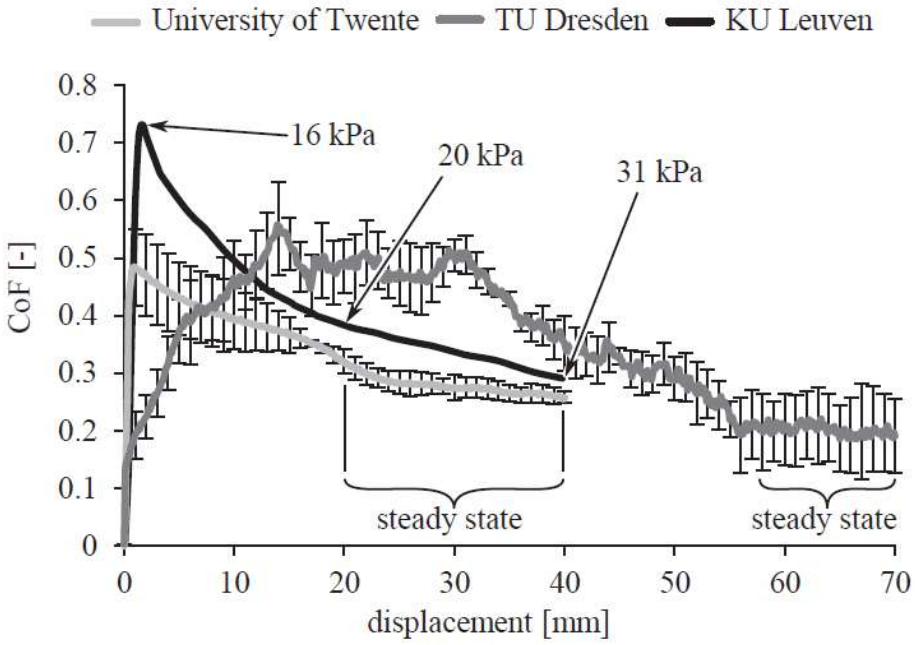


Figure 1.29 Variation du coefficient de friction pli/pli en fonction de la longueur de cisaillement obtenue par différents outils de caractérisation expérimentaux [14].

(d) Essai de consolidation transverse

L'étude des mécanismes de consolidation/déconsolidation des composites à renforts tissés est réalisée via des essais de compaction sous presse. Les effets de certains paramètres comme la contrainte de compression, la température, le temps et la vitesse de déformation sont généralement évalués. La figure 1.32 montre un exemple de courbes obtenues par des essais de compression d'un tissu de fibres de verre sec à différentes contraintes de compression. Nous remarquons qu'au début de l'essai la raideur du renfort est très faible, ensuite elle augmente progressivement et atteint son maximum lorsque la densité de fibres devient importante. Deux détails doivent être pris avec précaution lors de la réalisation de ces essais :

- Le frottement entre le tissu et l'outil s'ajoute à l'effort normal de compression ce qui influence le comportement du renfort,
- Le réarrangement des fibres lors de la compression induit des phénomènes de relaxation qui dépendent de la vitesse de sollicitation.

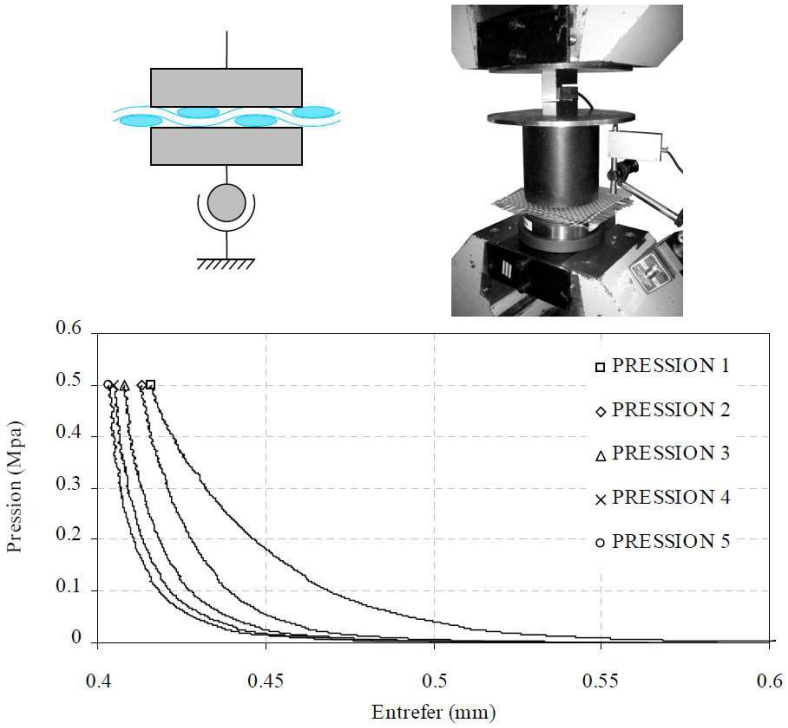


Figure 1.30 Dispositif d'écrasement et courbes d'écrasements successifs d'un taffetas de fibres de verre.

L'analyse microstructurale des renforts sollicités en compression montre l'existence de trois modes de compression (Figure 1.33) [49], [50] :

- Les réseaux fibreux s'imbriquent entre eux par glissement durant l'essai. Les mouvements relatifs des couches les unes par rapport aux autres permettent aux zones de croisement des fils de s'imbriquer dans les dépressions des couches adjacentes et ainsi de réduire l'épaisseur de la préforme. Ce phénomène d'imbrication est fonction de l'architecture du milieu fibreux.
- Les mèches se déforment par diminution de l'amplitude de leur d'ondulation induisant une réduction de l'épaisseur des plis pris séparément.
- Les mèches sont comprimées et déformées individuellement. La compression entraîne une modification de la configuration initiale des mèches vers des ellipsoïdes de plus en plus aplaties.

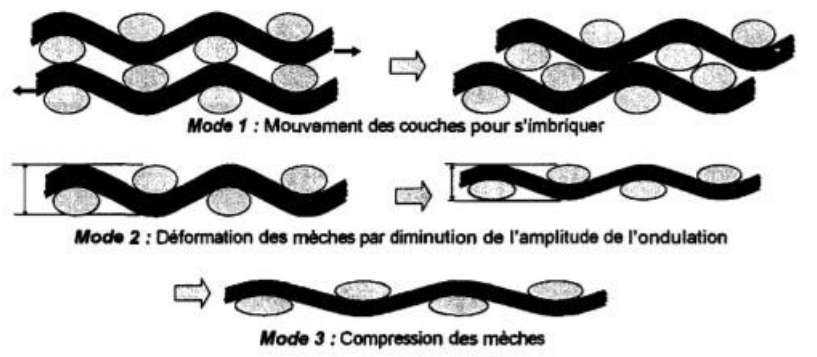


Figure 1.31 Modes de déformation associés à la compression des renforts [49].

D'après les travaux de Gutowski et al. [51] et Lekakou et al. [52], lorsque le réseau fibreux est soumis à une sollicitation de compaction perpendiculaire à son plan, les mèches encaissent une partie de la pression appliquée sous la forme d'une énergie élastique. Cette énergie stockée est d'autant plus importante pour des renforts tissés car elle s'additionne à celle due à l'embuvage. Une fois fluide, la matrice des pré-imprégnés se trouve incapable de conserver cette énergie qui sera relâchée. Wood et Bader [53], [54] ont étudié le rôle de l'expansion des bulles d'air résiduelles dans un polymère fondu comme éventuelle cause de gonflement du matériau. Enfin, Xiao [55] a montré que la répartition non uniforme de la température crée des contraintes internes supplémentaires d'origine thermique. Celles-ci impliquent des dilatations différées qui favorisent la déconsolidation.

(e) Essais cantilever

La majorité des dispositifs expérimentaux utilisés pour caractériser le comportement en flexion des mèches sont basés sur la travaux de Peirce [56] et son test de type cantilever. Ce test a été proposé pour la première fois par Peirce [56], [57] en 1930, ensuite étendus par Grosberg et Swani [18]. Son objectif est d'étudier le comportement en flexion des étoffes textiles. Il consiste à pousser le tissu sur un plateau horizontal jusqu'à ce que son extrémité vienne, sous son propre poids, toucher un plan incliné d'un angle[3] θ (Figure 1.26). Une expression empirique de la rigidité en flexion macroscopique G est donnée sous la forme ci-dessous :

$$\frac{G}{q} = \frac{L^3 cos(^{\theta}/_2)}{8\, tan\, \theta} \qquad (1.4)$$

q est la masse par unité de surface.

[3] Généralement l'angle d'inclinaison θ est choisi égal à 41.5° pour simplifier le calcul du module de rigidité en flexion.

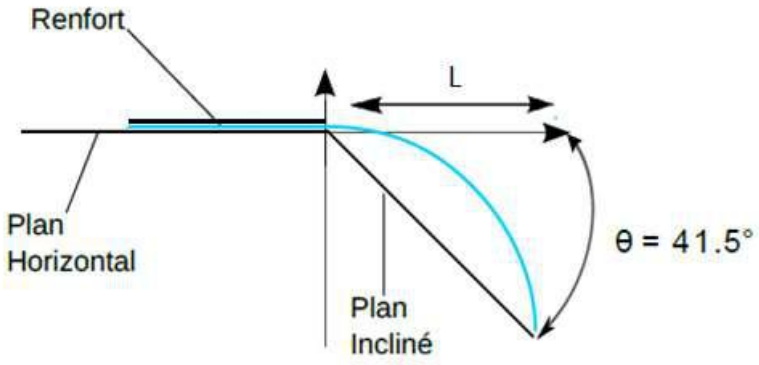
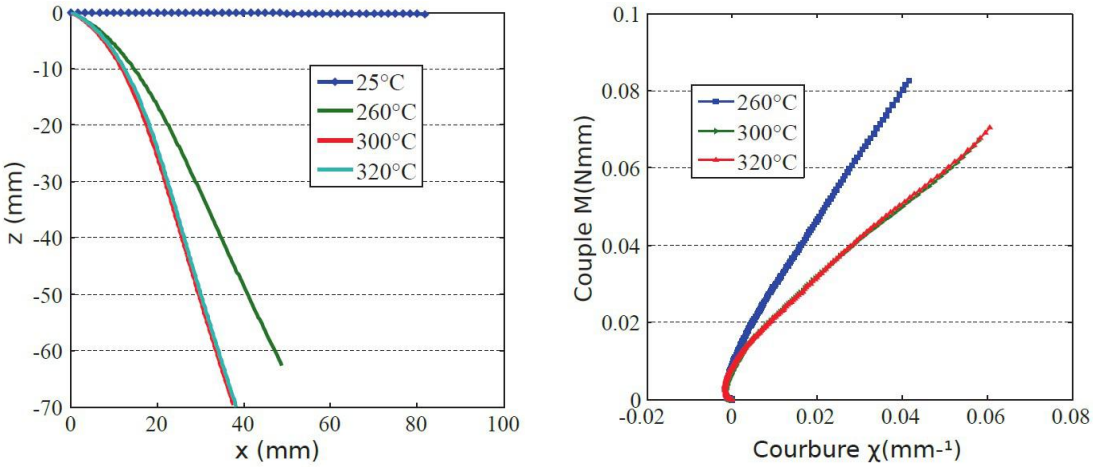


Figure 1.32 Principe de l'essai cantilever [58].

Cet essai donne des résultats plutôt satisfaisants pour les tissus secs [59], [60]. Cependant, dans le cas des pré-imprégnés thermoplastiques, une difficulté réside dans le fait qu'il est délicat de contrôler les conditions thermiques de caractérisation pour mettre en évidence l'effet de la température, et par voie de conséquence de la viscosité de la matrice. Liang et al. [61] et Guzman [62] ont placé un dispositif cantilever dans une enceinte thermique, ce qui leur a permis d'étudier le comportement en flexion à hautes températures. Un exemple de résultats est donné dans la figure 1.27. Nous constatons que la déformation en flexion augmente avec la température et que l'écart entre les courbes diminue en augmentant la température du matériau (Figure 1.27a). L'évolution correspondante du moment fléchissant en fonction de la courbure est donné sur la Figure 1.27b.



(a) (b)

Figure 1.33 Résultats d'un essai de flexion pour un pré-imprégné satin de 8 fibres de verre/PA 6-6, (a) déformée, (b) moment en fonction de la courbure [62].

1.2.6. Analyse des structures des pré-imprégnés par tomographie à rayons X

L'analyse des structures repose communément sur des observations issues de la microscopie optique ou électronique. Cependant, ces outils fournissent une analyse bidimensionnelle et nécessitent une approche destructive pour obtenir une information à cœur du matériau. La tomographie à rayons X est une technique d'observation non destructive qui permet une visualisation tridimensionnelle de la structure interne d'un objet dense ou poreux [63]–[65].

Un tomographe est composé d'un générateur à rayons X, d'un plateau rotatif sur lequel est placée la pièce à contrôler et d'un détecteur. Ce dernier est relié à une électronique d'acquisition et à un PC équipé d'un logiciel de reconstruction et de visualisation en 3D (Figure 1.34). Le faisceau de rayons X émis traverse l'échantillon à observer. Suivant la densité des phases qui compose le matériau et leurs propriétés d'absorption, le faisceau transmis présente différentes intensités. Les variations de contraste obtenues sur le détecteur fournissent ainsi une radiographie en 2D de la pièce. À partir d'une multitude de vues en 2D réalisées à différents angles de l'échantillon par rapport aux rayons X, et via des algorithmes de reconstruction (rétro-projection filtrée…) une image 3D de la pièce est obtenue. Les logiciels de visualisation permettent par la suite de « voyager » dans l'échantillon, contrôler toutes sortes d'éléments, détecter les défauts et d'acquérir un maximum d'informations non visibles à l'œil nu (porosités, variation de densité, perméabilité, fissures non débouchantes…). Les dimensions de l'objet contrôlé et la taille de l'échantillonnage 3D sont conditionnés par la résolution du système d'imagerie. Elle est de l'ordre de quelques micromètres et peut descendre jusqu'à des valeurs inférieures à 1 µm. Enfin par définition, on appelle voxel le volume élémentaire autour de chaque point reconstruit (extension du pixel en 3D).

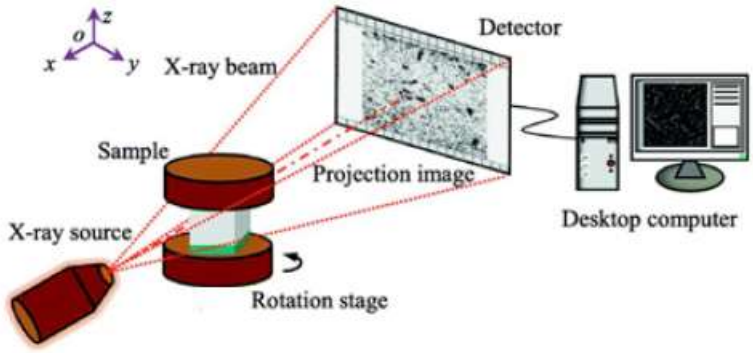


Figure 1.34 Schéma de principe d'un tomographe à rayons X [66].

Le principe physique de la transmission des rayons X repose sur la loi de Beer-Lambert qui pour un faisceau incident d'énergie E donne le nombre de photons transmis N_1 en fonction du nombre

de photons incidents N_0. Le rapport entre ces deux nombres dépend du coefficient d'atténuation μ le long du trajet S (Equation 1.5).

$$\frac{N_1(E)}{N_0(E)} = \exp\left[-\int_S \mu(s)ds\right] \quad (1.5)$$

Généralement, les matériaux contrôlés sont non homogènes ce qui implique un coefficient d'atténuation qui peut varier localement d'où l'utilisation de $\mu(s)$. C'est cette différence de μ qui est à l'origine des contrastes observés sur la radiographie d'absorption à rayons X.

Parmi les champs d'application de la tomographie à rayons X, on trouve le suivi ex situ ou in situ de l'évolution des méso et microstructures des matériaux composites [67]–[69].

Badel et al. [67], [70] a utilisé la microtomographie à rayons X pour analyser les micromécanismes de déformation observés dans un tissu sec cisaillé ou étiré et a montré que les mèches lors du cisaillement du tissu ou de la traction sont soumises à de multiples sollicitations : traction, compression, cisaillement, flexion. Ces sollicitations aboutissent à une densification plus ou moins prononcée des mèches accompagnée par un changement de forme des sections de celles-ci (Figure 1.35). Ces déformations mésoscopiques peuvent trouver leurs explications à l'échelle microscopique, c'est-à-dire à l'échelle des fibres où différents micromécanismes de déformation sont observés : flexion, torsion, cisaillement, consolidation.

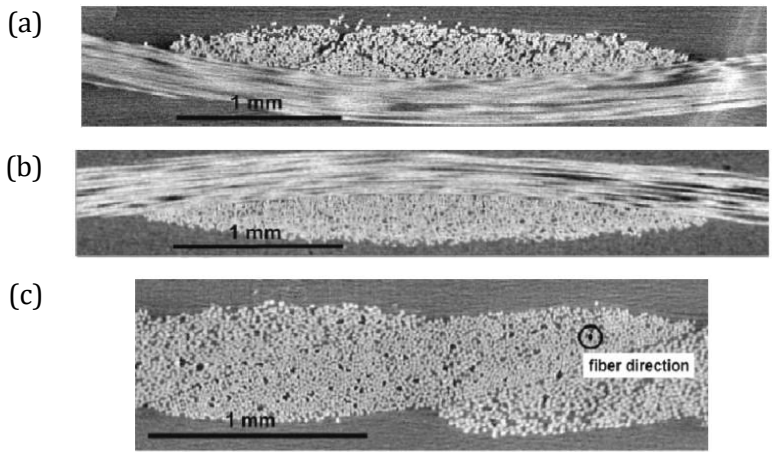


Figure 1.35 Visualisation par microtomographie RX des micromécanismes de déformation de la mèche (a) Section à l'état non déformé, (b) sollicitation en traction (c) sollicitation en cisaillement avec un angle de 46° [67].

1.2.7. Lois de comportement des pré-imprégnés lors de leur thermoestampage

La modélisation des comportements des préimprégnés tissés lors de la mise en forme constitue une problématique qui demeure encore un axe de recherche en plein développement. En fait, dans un contexte économique à forte concurrence, ces modèles, implantés dans des logiciels de simulation numérique de la mise en forme, assurent un gain important de temps et des coûts associés aux développements de nouveaux produits (matière première, prototypage, outillages…). Ces modèles trouvent leur pleine justification, tant pour la prédiction des éventuels défauts que pour l'estimation des caractéristiques mécaniques de la pièce finale. Connaissant les propriétés des constituants initiaux de préforme, les moyens et paramètres de production, ils sont susceptibles de prédire :

- L'apparition des défauts et en particulier les plissements,
- La réorientation des mèches pendant et après la mise en forme,
- La tenue mécanique de la pièce finale,
- La rupture des mèches due aux grandes tensions appliquées par le serre-flanc lors du maintien du préforme.

Afin de prédire les différents éléments ci-dessus et par conséquence la faisabilité de la pièce, deux approches macroscopiques sont généralement utilisées [71] :

- Approche géométrique basée sur la cinématique du renfort,
- Approches mécaniques par éléments finis.

La première approche est utilisée principalement pour la simulation du drapage. Sa rapidité et simplicité de mise en place font d'elle une première approche de modélisation du préformage [72], [73]. Dans le cadre de cette approche, il est fait usage de plusieurs algorithmes comme l'algorithme de mosaïque, l'algorithme de filet… [71]. Comme le montre la figure 1.36, les mèches sont considérées comme des barres articulées dans leurs points de croisement. L'algorithme de filet calcule la position du nœud C, intersection de deux géodisques de la surface à draper issues de A et B. Dans le cas des renforts tissés, cet outil peut être considéré comme une solution préliminaire, permettant la détermination du degré de complexité du formage de la pièce.

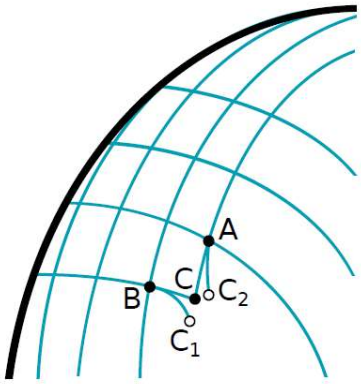


Figure 1.36 Algorithme de Filet- Détermination de la position du point C connaissant celles de ces voisins A et B.

En ce qui concerne la deuxième approche, il existe aujourd'hui des codes éléments finis pour simuler le drapage de renforts textiles et de pré-imprégnés. Parmi ces derniers, on peut citer le logiciel Plasfib développé à l'INSA de Lyon. Celui-ci offre notamment la possibilité de simuler différentes conditions pour la mise en forme, de prédire certains défauts (plissements) et de considérer des géométries plus ou moins complexes. Il s'appuie sur des éléments finis spécifiques de coques et permet de réaliser des calculs sur plusieurs plis et de considérer notamment des lois de comportement visco-hyper-élastiques. D'autres logiciels tel que PamForm, développé par ESI Group, permettent une analyse des préformes et d'intégrer des lois de comportement des milieux fibreux. Il faut noter que ces logiciels sont encore en voie de développements notamment afin d'intégrer les différents couplages thermomécaniques mis en jeu au cours du procédé de thermoestampage.

Parmi les modèles de comportement récemment développés pour décrire le comportement des tissus secs [71] et des pré-imprégnés [62], nous trouvons des lois de type visco-hyperélastique phénoménologiques fondées sur des observations expérimentales. La figure 1.37 montre le résultat de la simulation de l'essai de bias-extension avec ce type d'approche.

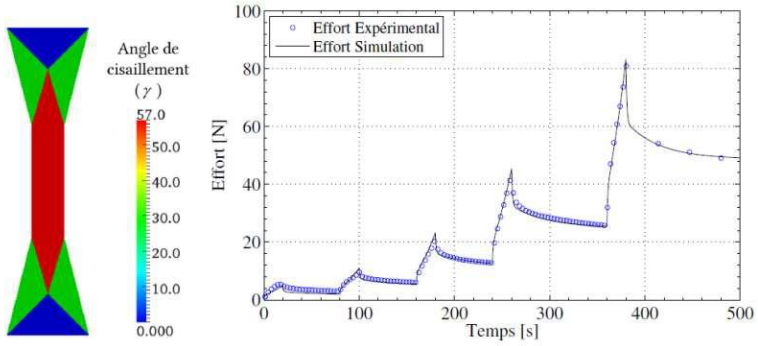


Figure 1.37 Simulation numérique du bias-extension test à T=270°C [62].

1.2.8. Modélisation de la friction pli-pli

La modélisation de friction pli-pli dans les préimprégnés est rendue difficile en raison des phénomènes multiphysiques intervenant lors de la mise en forme et de la dépendance aux multiples paramètres du procédé. Dans la plupart des cas, les auteurs considèrent que la friction est associée à un comportement visqueux et qu'une fine couche de résine jouant le rôle d'un lubrifiant est formée entre les plis. Dans cette partie, nous nous intéressons aux modèles de frottement les plus remarquables pour les pré-imprégnés tissés.

Wilks [74], [75] a utilisé un dispositif expérimental inspiré du test « pull-out » (Figure 1-25d). Il a mis en évidence l'effet de la viscosité η de la résine, de la vitesse de cisaillement du « film » lubrifiant $\dot{\gamma}$ et de la pression normale de contact P sur la contrainte de cisaillement du film τ. Un modèle phénoménologique est alors proposé dans l'équation (1.6). On y voit bien la contribution de deux composantes, une relative au frottement de Coulomb et l'autre au frottement hydrodynamique. Ce modèle a été modifié par Clifford et al. [76] pour prendre en compte la surface effective de contact entre les plis $\emptyset$.

$$\tau = \eta\dot{\gamma} + \mu\, P \tag{1.6}$$

$$\tau = \eta\dot{\gamma} + \emptyset\, \mu\, P \tag{1.7}$$

Chow [41] a démontré que lors de la transition entre frottement de Coulomb et frottement hydrodynamique, le coefficient de friction peut suivre une relation semblable à une courbe de Stribeck. En s'inspirant de ces travaux, Gorczyca et al.[48] ont proposé un modèle semi-analytique pour donner l'expression du coefficient de frottement effectif. L'avantage de ce modèle est la prise en considération du nombre d'Hersey qui représente la dépendance de la friction à la viscosité η, la vitesse de glissement v et la charge normale P .

$$H = \frac{\eta\, v}{P} \tag{1.8}$$

En exprimant la viscosité sous la forme d'une loi de puissance :

$$\eta = m\dot{\gamma}^{(n-1)} \tag{1.9}$$

Sachant que la vitesse de cisaillement du film polymère peut être exprimée en fonction de la vitesse de glissement et l'épaisseur du film h :

$$\dot{\gamma} = \frac{v}{h} \tag{1.10}$$

Le nombre d'Hersey devient :

$$He = m(\frac{v}{h})^{n-1}\frac{v}{P} \tag{1.11}$$

En s'appuyant sur les travaux de Chow [41] et Gelinck et Schipper [77], le coefficient de frottement effectif, qui fait apparaître une composante de frottement de Coulomb et de lubrification hydrodynamique, est :

$$\mu_{eff} = \frac{\mu_c P_c + \eta \dot{\gamma} A_r}{P_T} \tag{1. 12}$$

avec :

μ_c : le coefficient de frottement de Coulomb,

P_c : la composante de l'effort normal liée au frottement de Coulomb,

P_T : l'effort normal total,

A_r : surface effective de contact entre les fibres,

Après remplacement et développement des équations précédentes, le coefficient de frottement effectif s'exprime sous la forme de la relation linéaire suivante :

$$\mu_{eff} = a\,\mu_c + H\frac{A_r}{h} \tag{1. 13}$$

1.3. Problématique des contraintes résiduelles/internes dans les pré-imprégnés

Les variations locales avec la température des propriétés thermomécaniques telles que le module de Young de la matrice, la conductivité thermique et le degré de cristallisation lors de la mise en forme des composites impliquent généralement le développement de contraintes internes, à différentes échelles (Figure 1.40). La nature viscoélastique de la matrice peut faciliter le relâchement d'une partie de ces contraintes, mais une partie subsiste et c'est ce qu'on appelle contraintes résiduelles [78]. Ces contraintes résiduelles jouent plutôt un rôle néfaste sur la pièce finale en contribuant à sa distorsion, en favorisant la fissuration de la matrice et le délaminage inter-pli, et par conséquent sa durabilité [79], [80]. La connaissance de leurs sources et le développement de modèles prédictifs sont nécessaires afin d'optimiser les paramètres de mise en forme et garantir la production de pièces saines.

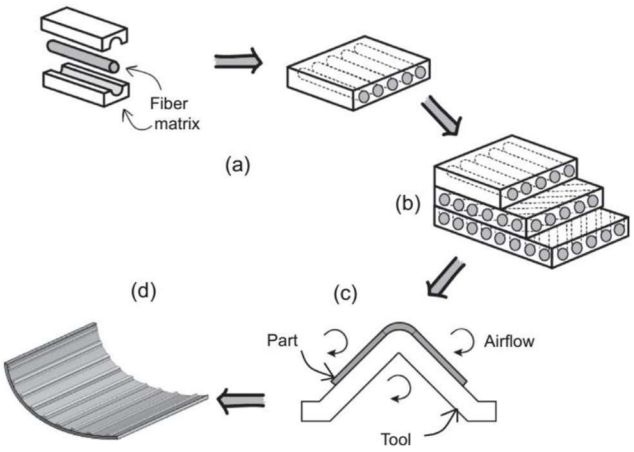


Figure 1.38 Différents échelles d'apparition des contraintes résiduelles [81].

1.3.1. Origines des contraintes résiduelles

Les sources à l'origine du développement des contraintes résiduelles pendant ou après la mise en forme des matériaux composites peuvent êtres, le plus souvent, scindées en deux grandes familles :

- Sources dues aux hétérogénéités matérielles,
- Sources dues aux paramètres du procédé et conditions environnementales.

Wisnom et al. [82] et Beukers et al. [80] ont proposé une classification détaillée de ces sources. En se référant à la nature multi-échelle des matériaux composites, ces origines, qu'elles soient intrinsèques ou extrinsèques, apparaissent à trois niveaux : microscopique, mésoscopique et macroscopique.

Hétérogénéités matérielles :

- À l'échelle microscopique, la fibre et la matrice qui l'enrobe sont de natures différentes et par conséquent ont deux comportements thermomécaniques différents. Dans le cas des thermoplastiques, la mise en forme est effectuée à hautes températures suivie par une consolidation du produit fabriqué par refroidissement jusqu'à la température ambiante. Cette variation de température implique des distributions de dilatations thermiques pour les deux constituants. Des contraintes microscopiques sont alors générées. La figure 1.41 montre que le refroidissement induit des contraintes résiduelles compressives radiales et longitudinales dans la fibre, et de traction dans la matrice [80], [83], [84].

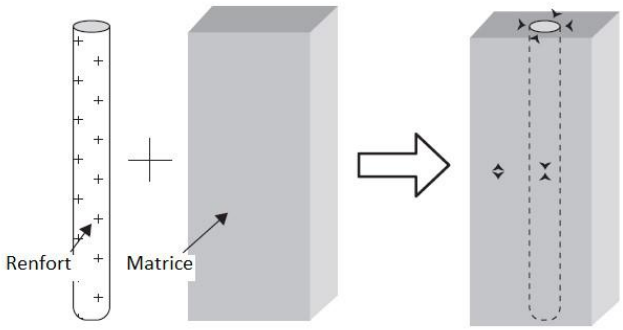


Figure 1.39 Développement des contraintes résiduelles suite aux déformations contrariées du renfort et de la matrice [80].

- À l'échelle mésoscopique, avec des séquences d'empilement et des épaisseurs de plis variables, les coefficients de dilatation thermique sont hétérogènes. Qui plus est, lors du refroidissement, un gradient de température non uniforme dans l'épaisseur de chaque pli peut exister. Tous ces facteurs aboutissent à une anisotropie thermomécanique des plis. Il en résulte des déformations contrariées des plis solidaires, impliquant ainsi des contraintes internes dans le composite. La figure 1.42 montre un stratifié [0/90] où le pli à 90° provoque une contrainte de compression dans le pli à 0° :

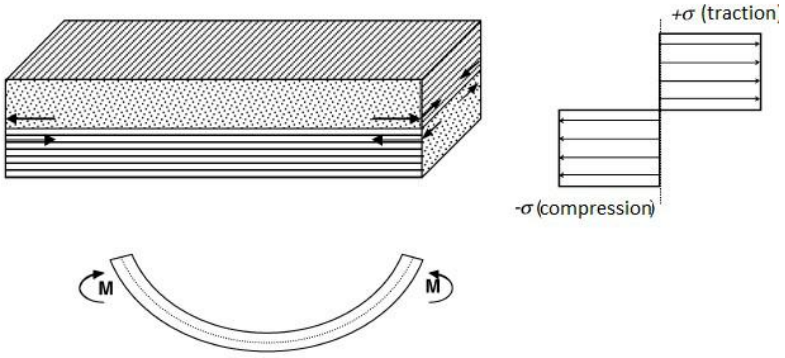


Figure 1.40 Développement de contraintes résiduelles à l'échelle des plis dans un composite non équilibré [80].

- À l'échelle macroscopique, le laminé peut être soumis à des conditions de température, d'humidité ou encore à une vitesse de refroidissement non uniforme dans son épaisseur. Par exemple, la vitesse de refroidissement peut être plus rapide en surface qu'au cœur du composite : les plis à la surface se solidifient plus rapidement et imposent des contraintes à ceux du centre. Ceci se traduit par une distribution parabolique des contraintes résiduelles dans le composite.

Paramètres du procédé (température, humidité)

Les contraintes internes sont générées dès qu'il y a des propriétés mécaniques et thermiques hétérogènes. Ainsi, sous l'effet de conditions variables de température et d'humidité, des dilatations apparaissent provoquant le développement de contraintes internes.

1.3.2. Conséquences des contraintes résiduelles

Le développement des contraintes résiduelles dans le composite entraîne l'apparition de plusieurs défauts qui d'une part peuvent altérer la qualité du produit fabriqué et d'autre part peuvent réduire ses performances mécaniques. Dans ce qui suit, sont présentées brièvement les principales conséquences des contraintes résiduelles sur la microstructure des matériaux composites.

- ***Ondulation des fibres***

  Le développement des ondulations des fibres dans les matériaux composites a fait l'objet de plusieurs études [31, 35–38]. Lors du refroidissement, qui est accompagné généralement par des variations locales de la température, les fibres subissent une compression longitudinale qu'elles transmettent à la matrice. Lorsque celle-ci est incapable de supporter ces déformations transverses, les fibres sont soumises à une importante flexion, ce qui provoque leur ondulation (Figure 1.43a). Hsiao et Daniel [35–37] ont étudié les effets des ondulations fibreuses sur les performances mécaniques des pièces composites. Leurs travaux montrent que sous l'effet de tels mécanismes, les propriétés élastiques, en particulier le module de Young, ainsi que la rigidité à la compression chutent de manière importante.

- ***Microfissuration***

  Les contraintes résiduelles s'additionnent aux contraintes de service et peuvent dans certains cas, où leurs amplitudes dépassent la limite élastique de la matrice ou de celle de la résistance de l'interface fibre-matrice, jouer un rôle déterminant dans l'amorçage et l'initiation des microfissurations (Figure 1.43b), que ça soit dans le plan longitudinal ou transversal par rapport à la direction des fibres [88], [89]. Ces mécanismes d'endommagement (microfissuration, délaminage…) contribuent à la dégradation des pièces et accélèrent leur défaillance.

- ***Retour d'angle (« spring-in »)***

  Ce défaut est observé principalement dans les structures courbées lorsqu'elles sont confinées dans le moule. La distribution hétérogène de la température dans l'épaisseur implique des contractions hors plan plus importantes que dans le plan. Par conséquence, une distorsion

géométrique se développe lors du refroidissement. La figure 1.43c est une illustration de ce phénomène où l'angle de la pièce diminue. Pour limiter ce défaut, Huang et al., ont recommandé l'optimisation de la forme du moule afin d'assurer la compensation d'éventuelles distorsions dans la géométrie finale [90].

- ***Instabilité dimensionnelle***

L'instabilité dimensionnelle est une conséquence visible des contraintes résiduelles. Dans ce cadre, la courbure de composites stratifiés asymétriques (Figure 1.43d) peut passer par un point de bifurcation et croître au cours du refroidissement.

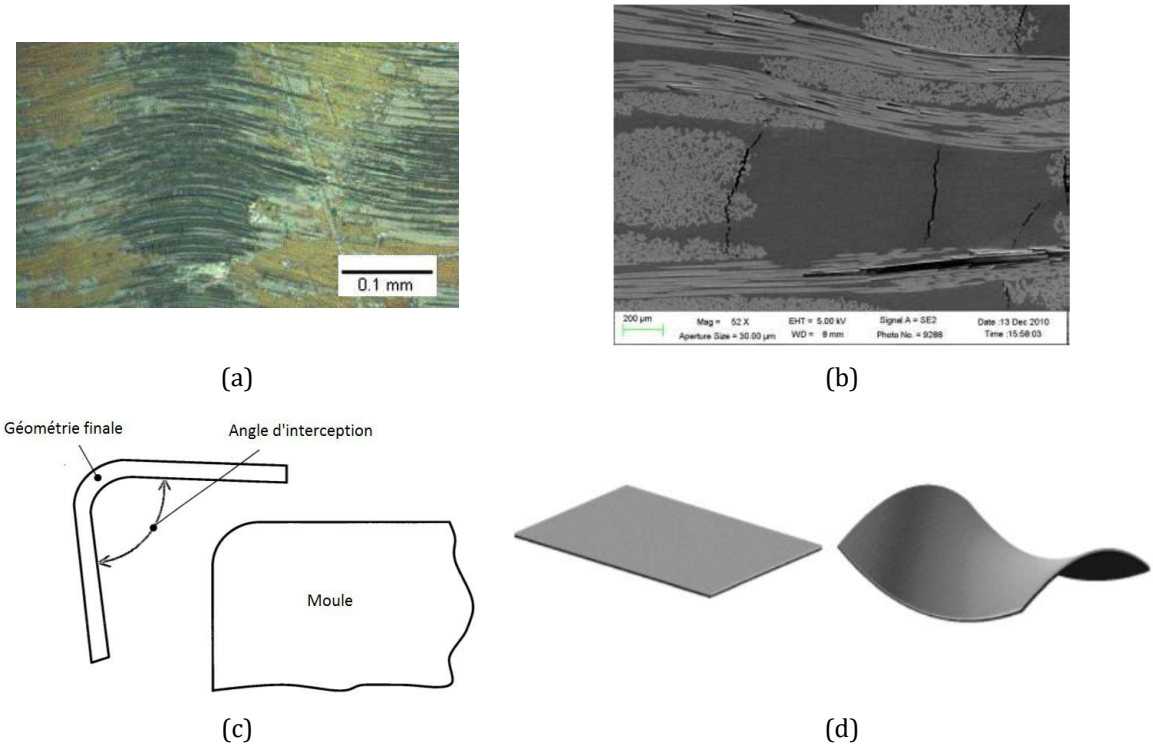


Figure 1.41 Quelques conséquences des contraintes résiduelles (a) Micrographie d'ondulation des fibres dans un composite à matrice thermoplastique [91]. (b) Amorçage des microfissures transversales dans un composite PA 6-6/GF (Source Solvay). (c) Illustration du phénomène « Spring-in ». (d) Apparition de courbure en « selle de cheval » dans un stratifié asymétrique [92].

1.3.3. Caractérisation expérimentale

Les méthodes expérimentales pour caractériser la présence des contraintes résiduelles sont classées en deux catégories : les techniques destructives et les techniques non-destructives.

(a) Techniques destructives

Qu'elles soient complètement ou semi-destructives, ces techniques exploitent la relaxation des contraintes résiduelles pour donner une estimation de leurs intensités et distributions. Leur principe repose sur l'enlèvement de matière et la mesure des déformations engendrées par la relaxation des contraintes. Eijpe et al. [93] ont utilisé la technique de suppression des plis qui

consiste à enlever progressivement les couches et mesurer la courbure de la partie restante en s'appuyant sur la théorie classique des stratifiés (CLT). Ils ont pu ainsi tracer l'évolution des contraints résiduelles dans l'épaisseur. Les mesures obtenues par cette technique présentent des incertitudes dues à la difficulté de contrôler l'épaisseur de suppression du pli par usinage. Par ailleurs, ce dernier peut lui-même conduire à l'endommagement du stratifié et perturber les mesures. Une autre technique possible est la méthode du trou qui consiste à percer un trou dans le stratifié ce qui crée une perturbation dans le matériau et le pousse à retrouver un nouvel état d'équilibre interne des contraintes. La déformation induite autour du trou peut être mesurée au moyen de jauges de déformation collées à la surface de l'échantillon ou via une méthode optique (interférométrie de moiré, interférométrie de speckle par exemple) [91], [94]. Cette technique est notamment sensible à la qualité du collage de la jauge et à l'apparition de fissures lors du perçage du trou. De plus, cette technique suppose une distribution uniforme dans l'épaisseur des contraintes résiduelles ce qui est généralement faux. Pour ce faire, une nouvelle méthode dite du 'trou incrémental' a été développée. Elle repose sur le même principe avec pour différence que le perçage du trou est réalisé incrément par incrément.

(b) Techniques non destructives

L'avantage de ces techniques est que, sans détérioration du composite, l'exploitation de la déformation globale permet de remonter aux contraintes résiduelles. Cowley et al. [95] ont estimé l'évolution des contraintes résiduelles en fonction du temps et de la température par mesure de la courbure globale (déformation hors-plan) lors du refroidissement d'un stratifié asymétrique. La détermination de l'état de contraintes à partir des mesures de courbures est basé sur l'utilisation de la théorie classique des stratifiés. Néanmoins, cette technique ne tient compte que des déformations hors plan et ne renseigne pas sur leur distribution dans l'épaisseur du composite. D'autres techniques sont disponibles telles que la photoélasticimétrie qui permet une détermination de l'état des contraintes par simple étude de la biréfringence ou des méthodes basées sur la diffraction des rayons X. En général, cette technique requiert d'insérer des charges métalliques dans le matériau composite. En faisant l'hypothèse que l'adhérence entre le métal et la matrice est parfaite alors les contraintes sont transmises du composite aux charges métalliques qui, elles, diffractent. Les composites thermoplastiques présentant une proportion cristalline suffisamment importante ne nécessitent pas forcément cet ajout de phases diffractant les rayons X.

1.3.4. Modélisation des contraintes résiduelles

Contrairement aux matériaux composites à matrice thermodurcissable, les contraintes résiduelles induites par la mise en forme des matériaux composites à matrice thermoplastique

sont peu étudiées et modélisées. Nous proposons dans ce qui suit une présentation de deux approches de modélisation.

(a) Théorie classique des stratifiés

La théorie classique des stratifiés (CLT : Classical Laminate Theory) est l'un des modèles les plus couramment utilisés pour la prédiction des contraintes résiduelles dans les matériaux composites. Elle repose sur plusieurs hypothèses simplificatrices [86–88] :

- Le stratifié est assimilé à une plaque mince, formée d'un empilement de plis solidaires,
- L'épaisseur du stratifié est petite comparée à ses autres dimensions,
- Les dimensions de la plaque sont considérées infinies dans les deux directions du plan x et y : les effets de bord sont négligés,
- Les déformations sont petites,
- Les lois de comportement sont celles de l'élasticité linéaire,
- Les normales au plan de la plaque avant déformation restent normales au plan après déformation,
- Les efforts appliqués ne résultent que de résultantes et de moments appliqués dans le plan de la plaque (hypothèse des contraintes planes),
- L'épaisseur du composite est constante au cours du temps,
- Les interfaces fibres-matrice sont parfaites.

En tenant compte de ces hypothèses, la théorie des stratifiés [9] permet de prédire (i) les déformations résiduelles, (ii) les contraintes associées et (iii) la courbure sous diverses conditions de chargements mécaniques et hygrothermiques [99]. Cependant, malgré la simplicité de son application, la théorie classique des stratifiés présente plusieurs limitations :

- Les déformations hors plan ne sont pas prises en compte.
- Le retrait dû à la cristallisation est négligé vu que la CTL suppose que les stratifiés sont dans un état libre de toute contrainte pendant le refroidissement.
- La CTL se montre inefficace pour l'estimation des contraintes résiduelles dans le cas des stratifiés asymétriques.
- Par ailleurs, Weitsman [100] a montré en utilisant un modèle thermo-viscoélastique linéaire basé sur la théorie classique des stratifiés que la CTL surestimait les contraintes résiduelles de plus que 20% .

(b) Méthodes numériques

Le calcul de ces contraintes résiduelles s'avère très délicat en raison des phénomènes physico-chimiques intervenant lors du refroidissement du composite à matrice polymère thermoplastique. Ces phénomènes couplés nécessitent de résoudre un problème multiphysique

mettant en jeu les équations interdépendantes de la chaleur, de cinétique de cristallisation et de comportement mécanique [101]–[104]. Dans ce qui suit, nous présentons brièvement comment ces phénomènes peuvent être modélisés.

- **Modélisation du comportement thermochimique**

La connaissance de l'évolution de la température dans le composite est cruciale pour prédire les contraintes résiduelles. En effet, cette information résulte de facteurs sources tels que le gradient de température dans l'épaisseur et la vitesse de refroidissement.

Si l'épaisseur du matériau est faible devant ses dimensions planes, l'évolution de la température dans l'épaisseur est régie par l'équation de la chaleur [105] :

$$\frac{\partial}{\partial t}[\rho(T)C_P(T)T] = \frac{\partial}{\partial z}\left[K(T)\frac{\partial T}{\partial z}\right] + U \qquad (1.14)$$

où $\rho(T)$ représente la masse volumique, $C_P(T)$ la chaleur spécifique, $K(T)$ la conductivité thermique et U un terme d'exothermie qui traduit la cinétique de cristallisation. Il est donné par l'équation (1.15).

$$U = \rho\, H_f \frac{\partial \alpha}{\partial t} \qquad (1.15)$$

où H_f est l'enthalpie totale de la réaction et α le degré de cristallisation, compris entre 0 et 1. Il existe plusieurs modèles prédictifs de l'évolution du degré de cristallisation comme le modèle de Schneider [106] et Houdain et Chenot [107]. Mais le modèle le plus communément utilisé est celui d'Avrami [103] et ceux qui en découlent.

- **Modélisation du comportement mécanique**

Il existe un grand nombre de modèles de comportement mécanique pour le calcul des contraintes internes induites dans les matériaux composites [105], [108]. La modélisation des contraintes internes repose en général sur l'écriture des équations classiques pour décrire le comportement à l'échelle du pli. Ensuite, le calcul est ramené à l'échelle du stratifié via la TCL.

Les premiers travaux de modélisations des contraintes résiduelles [109], [110] reposent sur l'écriture d'une loi de comportement thermoélastique linéaire qui relie le tenseur des contraintes $\boldsymbol{\sigma}$ aux tenseurs des déformations ($\boldsymbol{\varepsilon}$: déformation élastique, $\boldsymbol{\varepsilon_T}$: déformation thermique associée au retrait thermique et $\boldsymbol{\varepsilon_C}$: déformation chimique associée au retrait de cristallisation) et la matrice de rigidité $\boldsymbol{C}$ du pli. Ce modèle présente un inconvénient majeur : il ne tient pas au compte du phénomène de relaxation des contraintes.

$$\boldsymbol{\sigma} = \boldsymbol{C} : (\boldsymbol{\varepsilon} - \boldsymbol{\varepsilon_T} - \boldsymbol{\varepsilon_C}) \quad (1.16)$$

Le modèle thermo-viscoélastique linéaire constitue une amélioration du modèle précédent. Il permet la prise en considération du phénomène de relaxation des contraintes et considère par ailleurs que les modules élastiques dépendent de la température. L'équation (1.17) donne l'expression du tenseur de contrainte à chaque instant t [108].

$$\boldsymbol{\sigma}(t) = \int_0^t \boldsymbol{C}(T, t, \beta, \tau) \frac{\partial}{\partial \tau}(\boldsymbol{\varepsilon}(\tau) - \boldsymbol{\varepsilon_T}(\tau) - \boldsymbol{\varepsilon_C}(\tau))d\tau \quad (1.17)$$

Nawab et al. [111] et récemment Peron et al. [112] ont utilisé une forme incrémentale de la loi de comportement élastique linéaire (1.18) qui permet de tenir compte de l'évolution des propriétés du pli en fonction de la température et du degré de cristallisation.

$$\Delta\boldsymbol{\sigma} = \mathbf{C}\,(\Delta\boldsymbol{\varepsilon} - \Delta\boldsymbol{\varepsilon}_{\mathbf{T}} - \Delta\boldsymbol{\varepsilon}_{\mathbf{C}}) = \mathrm{C}(\Delta\boldsymbol{\varepsilon} - \boldsymbol{\alpha}\Delta\mathbf{T} - \beta\Delta\mathrm{c}) \quad (1.18)$$

Cette approche combinée avec la théorie modifiée des stratifiés permet par exemple de modéliser le développement de contraintes résiduelles dans un composite UD asymétrique. Dans cette approche, les propriétés élastiques équivalentes du composite sont calculées à chaque pas de temps ainsi que les déformations et déplacements correspondants. La figure 1.42 montre le résultat de cette modélisation pour l'évolution des courbures d'un composite stratifié refroidi de 180°C à 20°C à une vitesse de 3°C/min. Ce modèle prévoit notamment que les courbures du stratifié commencent à être visibles qu'au moment de la cristallisation du matériau polymère thermoplastique constituant la matrice du stratifié. Il est ainsi possible de définir une température « libre de contrainte » (stress free température T_{sf}) au-dessus de laquelle les contraintes résiduelles peuvent être négligées dans le composite.

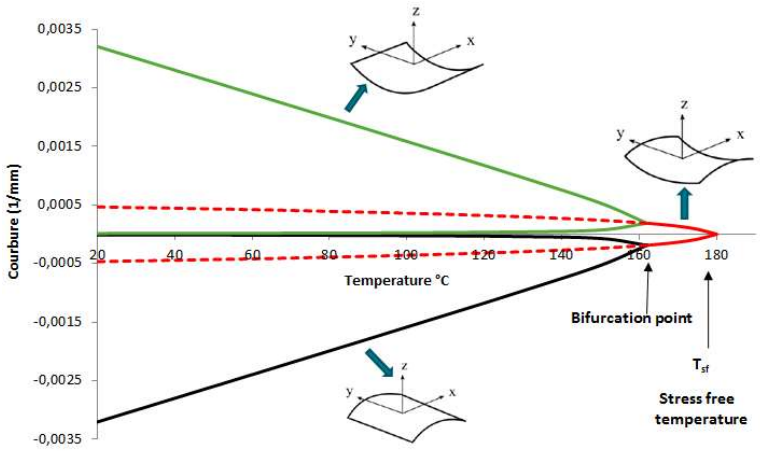


Figure 1.42 Évolution des courbures d'un stratifié [0/90] au cours du refroidissement [111].

1.4.Conclusion

Cette étude bibliographique nous a permis de présenter les matériaux composites à matrice polymère thermoplastique renforcée par des fibres continues. L'utilisation de ceux-ci est en plein essor, quel que soit le domaine d'application. Parmi les procédés de mise en forme, le thermoestampage permet la fabrication de pièces à géométrie complexe, non développable, avec des cadences de production élevées et un temps de cycle court. Ce procédé de mise en forme induit des mécanismes de déformation complexes à échelle du tissu pré-imprégné, des mèches qui le constituent et des fibres qui constituent la mèche. Ces mécanismes peuvent aussi résulter en de nombreux défauts de mise forme comme, par exemple, des plissements. La phase de refroidissement peut aussi résulter en divers mécanismes de déformation qu'il faut contrôler pour assurer la production de pièces de qualité.

Dans les chapitres suivants, nous présentons les travaux que nous avons réalisés afin d'approfondir la compréhension des phénomènes de déformation de composite à matrice polymère thermoplastique lors de sa mise en forme par thermoestampage ainsi que ceux induits lors de son refroidissement.

Nous présentons ainsi les résultats d'une première étude dont l'objectif est de mettre en évidence les mécanismes de déformation se produisant aux échelles du motif élémentaire et des mèches d'un pré-imprégné à matrice thermoplastique. Le matériau étudié comporte une matrice de type polyamide PA 6-6 renforcée par 4 plis de sergé 2-2 en empilement croisé [0°/90°/0°/90°]. Ce matériau est initialement préconsolidé. L'influence de la température de transformation sur ces mécanismes été plus particulièrement étudiée. L'analyse des caractéristiques morphologiques est basée sur l'analyse d'images 3D acquises par microtomographie à rayons X.

Références

[1] F. Chinesta, La Vie intime des matériaux composites. Publibook, 2011.

[2] M. F. Ashby, Éd., « Front Matter », in Materials Selection in Mechanical Design (Fourth Edition), Fourth Edition., Oxford: Butterworth-Heinemann, 2011, p. i‑ii.

[3] B. Esmaeillou, « Approche cinétique du comportement en fatigue du Polyamide 66 renforcé par 30% de fibres de verre », Arts et Métiers ParisTech, 2011.

[4] P. Combette et I. Ernoult, « Physique des polymeres-Tome 2: Propriétés », Collect. Enseign. Sci. Hermann Éditeurs, 2006.

[5] G. Ziegmann, « Processing of fibre composites -a comparison of the rmoplastics and thermosets », in verbundwerk, Wiesbaden, 1991.

[6] A. Malpot, « Etude du comportement en fatigue d'un composite à matrice polyamide renforcé d'un tissu de fibres de verre pour application automobile », ISAE-ENSMA, 2017.

[7] K. van Rijswijk et H. E. N. Bersee, « Reactive processing of textile fiber-reinforced thermoplastic composites – An overview », Compos. Part Appl. Sci. Manuf., vol. 38, nº 3, p. 666‑681, 2007.

[8] T. Cédric, « Etude des mécanismes d'endommagement des composites fibres de carbone/ matrice polyamide : application à la réalisation de réservoirs de stockage de gaz sous haute pression de type IV », École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2011.

[9] J. M. Berthelot et J. M. Cole, Composite Materials: Mechanical Behavior and Structural Analysis. Springer New York, 1998.

[10] M. Dalel, « Contribution à l'étude de la saturation des tissus simples et multicouches », Université de Haute Alsace, 2012.

[11] S. Ropers, Bending Behavior of Thermoplastic Composite Sheets. Springer, 2017.

[12] J. Manson, « Processing of thermoplastic-based advanced composites », Carl Hanser Verl. Adv. Thermoplast. Compos. Charact. Process. 1993, p. 273‑301, 1993.

[13] A. . Pickett, « Industrial Press Forming of Continuous Fibre Reinforced. Thermoplastic Sheets and the Development of Numerical. Simulation Tools », Galway, 1994.

[14] U. Sachs et al., « Characterization of the dynamic friction of woven fabrics: Experimental methods and benchmark results », Compos. Part Appl. Sci. Manuf., vol. 67, nº Supplement C, p. 289‑298, 2014.

[15] R. Brooks, « Forming technology for thermoplastic composites », Compos. Form. Technol., p. 256, 2014.

[16] B. Cornelissen, M. B. de Rooij, B. Rietman, et R. Akkerman, « Frictional behavior of carbon fiber tows: a contact mechanics model of tow–tow friction », Text. Res. J., vol. 84, nº 14, p. 1476‑1488, 2014.

[17] A. C. Long et M. J. Clifford, « 1 - Composite forming mechanisms and materials characterisation », in Composites Forming Technologies, A. C. Long, Éd. Woodhead Publishing, 2007, p. 1‑21.

[18] E. Guzman-Maldonado, N. Hamila, P. Boisse, et J. Bikard, « Thermomechanical analysis, modelling and simulation of the forming of pre-impregnated thermoplastics composites », Compos. Part Appl. Sci. Manuf., vol. 78, p. 211‑222, 2015.

[19] N. Hamila, « Simulation de la mise en forme des renforts composites mono et multi plis », 2007.

[20] U. Sachs, « Friction and bending in thermoplastic composites forming processes », 2014.

[21] P. Boisse, N. Hamila, E. Vidal-Sallé, et F. Dumont, « Simulation of wrinkling during textile composite reinforcement forming. Influence of tensile, in-plane shear and bending stiffnesses », Compos. Sci. Technol., vol. 71, nº 5, p. 683‑692, 2011.

[22] J. Sargent et al., « Benchmark Study of Finite Element Models for Simulating the Thermostamping of Woven-Fabric Reinforced Composites », Int. J. Mater. Form., vol. 3, nº 1, p. 683‑686, avr. 2010.

[23] A. Prodromou et J. Chen, « On the relationship between shear angle and wrinkling of textile composite preforms », Compos. Part Appl. Sci. Manuf., vol. 28, nº 5, p. 491‑503, 1997.

[24] S. Ghiorse, « Effect of void content on the mechanical properties of carbon/epoxy laminates », SAMPE Q., vol. 24, p. 54‑59, 1993.

[25] L. Grunenfelder et S. Nutt, « Void formation in composite prepregs–Effect of dissolved moisture », Compos. Sci. Technol., vol. 70, nº 16, p. 2304‑2309, 2010.

[26] S. Agius, K. Magniez, et B. Fox, « Cure behaviour and void development within rapidly cured out-of-autoclave composites », Compos. Part B Eng., vol. 47, p. 230‑237, 2013.

[27] P. Dumont, « Étude des phénomènes de redistribution lors de la mise en forme de matériaux multi-constituants. Application à la compression des composites à fibres courtes », JOSEPH FOURIER, 2003.

[28] L. Orgéas, P. J. J. Dumont, V. Michaud, et D. Favier, « Separation of the polymer matrix and the fibrous reinforcement during compression moulding of Glass Mat Thermoplastics (GMT) », Int. J. Mater. Form., vol. 1, nº 1, p. 929–932, avr. 2008.

[29] U. Mohammed, C. Lekakou, L. Dong, et M. Bader, « Shear deformation and micromechanics of woven fabrics », Compos. Part Appl. Sci. Manuf., vol. 31, nº 4, p. 299‑308, 2000.

[30] M. Nguyen, I. Herszberg, et R. Paton, « The shear properties of woven carbon fabric », Compos. Struct., vol. 47, nº 1, p. 767‑779, 1999.

[31] G. Lebrun, M. N. Bureau, et J. Denault, « Evaluation of bias-extension and picture-frame test methods for the measurement of intraply shear properties of PP/glass commingled fabrics », Compos. Struct., vol. 61, nº 4, p. 341‑352, 2003.

[32] J. Cao et al., « Characterization of mechanical behavior of woven fabrics: experimental methods and benchmark results », Compos. Part Appl. Sci. Manuf., vol. 39, nº 6, p. 1037‑1053, 2008.

[33] S. Spivak et L. Treloar, « The behavior of fabrics in shear: Part III: The relation between bias extension and simple shear », Text. Res. J., vol. 38, nº 9, p. 963‑971, 1968.

[34] K. Potter, « Bias extension measurements on cross-plied unidirectional prepreg », Compos. Part Appl. Sci. Manuf., vol. 33, nº 1, p. 63‑73, 2002.

[35] J. Wang, J. Page, et R. Paton, « Experimental investigation of the draping properties of reinforcement fabrics », Compos. Sci. Technol., vol. 58, nº 2, p. 229‑237, 1998.

[36] P. Boisse, N. Hamila, E. Guzman-Maldonado, A. Madeo, G. Hivet, et F. Dell'Isola, « The bias-extension test for the analysis of in-plane shear properties of textile composite reinforcements and prepregs: a review », Int. J. Mater. Form., p. 20-pages, 2016.

[37] F. Härtel et P. Harrison, « Evaluation of normalisation methods for uniaxial bias extension tests on engineering fabrics », Compos. Part Appl. Sci. Manuf., vol. 67, p. 61‑69, 2014.

[38] R. P. Mohan, H. Alshahrani, et M. Hojjati, « Investigation of intra-ply shear behavior of out-of-autoclave carbon/epoxy prepreg », J. Compos. Mater., vol. 50, nº 30, p. 4251‑4268, 2016.

[39] H. Alshahrani, R. Mohan, et M. Hojjati, « Experimental investigation of in-plane shear deformation of out-of-autoclave prepreg », Int. J. Compos. Mater., vol. 5, nº 4, p. 81‑87, 2015.

[40] A. M. Murtagh et P. J. Mallon, « Chapter 5 Characterisation of shearing and frictional behaviour during sheet forming », in Composite Sheet Forming, vol. 11, D. Bhattacharyya, Éd. Elsevier, 1997, p. 163‑216.

[41] S. Chow, « Frictional interaction between blank holder and fabric in stamping of woven thermoplastic composites. », 2002.

[42] J.-M. Lee, B.-M. Kim, C.-J. Lee, et D.-C. Ko, « A characterisation of tool-ply friction behaviors in thermoplastic composite », Procedia Eng., vol. 207, p. 90‑94, 2017.

[43] R. Scherer et K. Friedrich, « Inter- and intraply-slip flow processes during thermoforming of cf/pp-laminates », Compos. Manuf., vol. 2, nº 2, p. 92‑96, 1991.

[44] D. J. Groves, « A characterization of shear flow in continuous fibre thermoplastic laminates », Composites, vol. 20, nº 1, p. 28‑32, 1989.

[45] S. R. Morris et C. T. Sun, « An investigation of interply slip behaviour in AS4/PEEK at forming temperatures », Compos. Manuf., vol. 5, nº 4, p. 217‑224, 1994.

[46] A. M. Murtagh, J. J. Lennon, et P. J. Mallon, « Surface friction effects related to pressforming of continuous fibre thermoplastic composites », Compos. Manuf., vol. 6, nº 3, p. 169‑175, 1995.

[47] G. Lebrun, M. N. Bureau, et J. Denault, « Thermoforming-Stamping of Continuous Glass Fiber/Polypropylene Composites: Interlaminar and Tool–Laminate Shear Properties », J. Thermoplast. Compos. Mater., vol. 17, nº 2, p. 137‑165, mars 2004.

[48] J. L. Gorczyca-Cole, J. A. Sherwood, et J. Chen, « A friction model for thermostamping commingled glass–polypropylene woven fabrics », Compos. Part Appl. Sci. Manuf., vol. 38, nº 2, p. 393‑406, 2007.

[49] R. Saunders, C. Lekakou, et M. Bader, « Compression and microstructure of fibre plain woven cloths in the processing of polymer composites », Compos. Part Appl. Sci. Manuf., vol. 29, nº 4, p. 443‑454, 1998.

[50] R. Saunders, C. Lekakou, et M. Bader, « Compression in the processing of polymer composites 1. A mechanical and microstructural study for different glass fabrics and resins », Compos. Sci. Technol., vol. 59, nº 7, p. 983‑993, 1999.

[51] T. G. Gutowski, « Resin flow/fiber deformation model for composites », SAMPE QUnited States, vol. 16, nº 4, 1985.

[52] C. Lekakou, M. Johari, et M. Bader, « Compressibility and flow permeability of two-dimensional woven reinforcements in the processing of composites », Polym. Compos., vol. 17, nº 5, p. 666‑672, 1996.

[53] J. R. Wood et M. G. Bader, « Void control for polymer-matrix composites (1): theoretical and experimental methods for determining the growth and collapse of gas bubbles », Compos. Manuf., vol. 5, nº 3, p. 139‑147, 1994.

[54] J. R. Wood et M. G. Bader, « Void control for polymer-matrix composites (2): experimental evaluation of a diffusion model for the growth and collapse of gas bubbles », Compos. Manuf., vol. 5, nº 3, p. 149‑158, 1994.

[55] X. Xiao, « A model for the deconsolidation phenomenon in induction heating of thermoplastic resin composites », présenté à Ninth international conference on composite materials (ICCM9). Spain1993, 1993, p. 243‑250.

[56] F. T. I. F. T. Peirce B.Sc. F. Inst. P., « 26—THE “HANDLE” OF CLOTH AS A MEASURABLE QUANTITY », J. Text. Inst. Trans., vol. 21, nº 9, p. T377‑T416, 1930.

[57] M. Wei, « The Theory of the Cantilever Stiffness Test », J. Text. Inst., vol. 80, nº 1, p. 98‑106, 1989.

[58] J. Hu, « 7 - Fabric complex deformation analysis and simulation », in Structure and Mechanics of Woven Fabrics, J. Hu, Éd. Woodhead Publishing, 2004, p. 187‑209.

[59] L. M. Dangora, C. J. Mitchell, et J. A. Sherwood, « Predictive model for the detection of out-of-plane defects formed during textile-composite manufacture », Compos. Part Appl. Sci. Manuf., vol. 78, p. 102‑112, 2015.

[60] E. De Bilbao, D. Soulat, G. Hivet, et A. Gasser, « Experimental study of bending behaviour of reinforcements », Exp. Mech., vol. 50, n° 3, p. 333‑351, 2010.

[61] B. Liang, N. Hamila, M. Peillon, et P. Boisse, « Analysis of thermoplastic prepreg bending stiffness during manufacturing and of its influence on wrinkling simulations », Compos. Part Appl. Sci. Manuf., vol. 67, p. 111‑122, 2014.

[62] E. Guzman-Maldonado, « Modélisation et simulation de la mise en forme des matériaux composites pré-imprégnés à matrice thermoplastique et à fibres continues », 2016.

[63] L. Salvo et al., « X-ray micro-tomography an attractive characterisation technique in materials science », Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At., vol. 200, p. 273‑286, 2003.

[64] P. Cloetens et al., « Observation of microstructure and damage in materials by phase sensitive radiography and tomography », J. Appl. Phys., vol. 81, n° 9, p. 5878‑5886, 1997.

[65] J. Baruchel, J.-Y. Buffiere, et E. Maire, « X-ray tomography in material science », 2000.

[66] B. Wang, B. Pan, et G. Lubineau, « Morphological evolution and internal strain mapping of pomelo peel using X-ray computed tomography and digital volume correlation », Mater. Des., vol. 137, p. 305‑315, 2018.

[67] P. Badel, E. Vidal-Sallé, E. Maire, et P. Boisse, « Simulation and tomography analysis of textile composite reinforcement deformation at the mesoscopic scale », Compos. Sci. Technol., vol. 68, n° 12, p. 2433‑2440, 2008.

[68] T. Laurencin et al., « 3D real-time and in situ characterisation of fibre kinematics in dilute non-Newtonian fibre suspensions during confined and lubricated compression flow », Compos. Sci. Technol., vol. 134, p. 258‑266, 2016.

[69] S. C. Garcea, Y. Wang, et P. J. Withers, « X-ray computed tomography of polymer composites », Compos. Sci. Technol., vol. 156, p. 305‑319, 2018.

[70] P. Badel, « Analyse mésoscopique du comportement mécanique des renforts tissés de composites utilisant la tomographie aux rayons X », 2008.

[71] Y. Aimene, « Approche hyper-élastique pour la simulation des renforts fibreux en grandes transformations », Dép. Mécanique Lyon INSA Lyon, 2007.

[72] H. Borouchaki et A. Cherouat, « Drapage géométrique des composites », Comptes Rendus Mécanique, vol. 331, n° 6, p. 437‑442, 2003.

[73] B. Yang, T. Jin, F. Bi, et J. Li, « A Geometry Information Based Fishnet Algorithm for Woven Fabric Draping in Liquid Composite Molding », Mater. Sci., vol. 20, nº 4, p. 513‑521.

[74] C. Wilks, C. Rudd, A. Long, et C. Johnson, « Tool/Ply Friction and Consolidation during Processing of Glass/Thermoplastic Composites », présenté à 6th International Conference on Automated Composites, 1999.

[75] C. Wilks, « Characterization of the Tool/Ply interface during forming », Nottm. Univ. Nottm., 1999.

[76] M. Clifford, A. Long, et P. De Luca, « Forming of engineered prepregs and reinforced thermoplastics », présenté à Second Global Symposium on Innovations in Materials Processing and Manufacturing: Sheet Materials, 2001, p. 303‑316.

[77] E. R. M. Gelinck et D. J. Schipper, « Calculation of Stribeck curves for line contacts », Tribol. Int., vol. 33, nº 3, p. 175‑181, 2000.

[78] W. D. Callister et D. G. Rethwisch, Materials science and engineering, vol. 5. John Wiley & Sons NY, 2011.

[79] J.-P. Favre, « Residual thermal stresses in fibre reinforced composite materials- A review », J. Mech. Behav. Mater., vol. 1, nº 1, p. 37‑53, 1988.

[80] P. P. Parlevliet, H. E. Bersee, et A. Beukers, « Residual stresses in thermoplastic composites—A study of the literature—Part I: Formation of residual stresses », Compos. Part Appl. Sci. Manuf., vol. 37, nº 11, p. 1847‑1857, 2006.

[81] N. Zobeiry et A. Poursartip, « 3 - The origins of residual stress and its evaluation in composite materials », in Structural Integrity and Durability of Advanced Composites, P. W. R. Beaumont, C. Soutis, et A. Hodzic, Éd. Woodhead Publishing, 2015, p. 43‑72.

[82] M. R. Wisnom, M. Gigliotti, N. Ersoy, M. Campbell, et K. D. Potter, « Mechanisms generating residual stresses and distortion during manufacture of polymer–matrix composite structures », Compos. Part Appl. Sci. Manuf., vol. 37, nº 4, p. 522‑529, 2006.

[83] J. A. Nairn et P. Zoller, « Matrix solidification and the resulting residual thermal stresses in composites », J. Mater. Sci., vol. 20, nº 1, p. 355–367, janv. 1985.

[84] J. A. Barnes et G. E. Byerly, « The formation of residual stresses in laminated thermoplastic composites », Compos. Sci. Technol., vol. 51, nº 4, p. 479‑494, 1994.

[85] H. M. Hsiao et I. M. Daniel, « Effect of fiber waviness on stiffness and strength reduction of unidirectional composites under compressive loading », Compos. Sci. Technol., vol. 56, nº 5, p. 581‑593, 1996.

[86] H. M. Hsiao et I. M. Daniel, « Nonlinear Elastic Behavior of Unidirectional Composites With Fiber Waviness Under Compressive Loading », J. Eng. Mater. Technol., vol. 118, nº 4, p. 561‑570, oct. 1996.

[87] H. M. Hsiao et I. M. Daniel, « Elastic properties of composites with fiber waviness », Compos. Part Appl. Sci. Manuf., vol. 27, nº 10, p. 931‑941, 1996.

[88] L. L. Warnet, R. Akkerman, et P. E. Reed, « The Effect of Residual Stress on Transverse Cracking in Cross-Ply Carbon-Polyetherimide Laminates Under Bending », vol. 32, B. R. K. Blackman, A. Pavan, et J. G. Williams, Éd. Elsevier, 2003, p. 465‑476.

[89] J. F. Timmerman, B. S. Hayes, et J. C. Seferis, « Cure temperature effects on cryogenic microcracking of polymeric composite materials », Polym. Compos., vol. 24, nº 1, p. 132–139, 2003.

[90] C. K. Huang et S. Y. Yang, « Warping in advanced composite tools with varying angles and radii », Compos. Part Appl. Sci. Manuf., vol. 28, nº 9, p. 891‑893, 1997.

[91] P. P. Parlevliet, H. E. N. Bersee, et A. Beukers, « Residual stresses in thermoplastic composites – a study of the literature. Part III: Effects of thermal residual stresses », Compos. Part Appl. Sci. Manuf., vol. 38, nº 6, p. 1581‑1596, 2007.

[92] J. M. Svanberg, « Predictions of manufacturing induced shape distortions: high performance thermoset composites », 2002.

[93] M. P. I. M. Eijpe et P. C. Powell, « Residual stress evaluation in composites using a modified layer removal method », Compos. Struct., vol. 37, nº 3, p. 335‑342, 1997.

[94] K. Shankar, H. Xie, R. Wei, A. Asundi, et C. G. Boay, « A study on residual stresses in polymer composites using moiré interferometry », Adv. Compos. Mater., vol. 13, nº 3‑4, p. 237‑253, 2004.

[95] K. D. Cowley et P. W. R. Beaumont, « The measurement and prediction of residual stresses in carbon-fibre/polymer composites », Compos. Sci. Technol., vol. 57, nº 11, p. 1445‑1455, 1997.

[96] D. G. Myers, « Method for measurement of residual stress and coefficient of thermal expansion of laminated composites », 2004.

[97] M. M. Shokrieh et S. M. Kamali, « Theoretical and Experimental Studies on Residual Stresses in Laminated Polymer Composites », J. Compos. Mater., vol. 39, nº 24, p. 2213‑2225, 2005.

[98] M. Schlecht, K. Schulte, et M. W. Hyer, « Advanced calculation of the room-temperature shapes of thin unsymmetric composite laminates », Compos. Struct., vol. 32, nº 1, p. 627‑633, 1995.

[99] P. Ifju, D. Myers, et W. Schulz, « Residual stress and thermal expansion of graphite epoxy laminates subjected to cryogenic temperatures », Compos. Sci. Technol., vol. 66, nº 14, p. 2449‑2455, 2006.

[100] Y. Weitsman, « Residual Thermal Stresses Due to Cool-Down of Epoxy-Resin Composites », J. Appl. Mech., vol. 46, nº 3, p. 563‑567, sept. 1979.

[101] M. G. Nejhad, J. Gillespie, et R. Cope, « Prediction of process-induced stresses for in-situ thermoplastic filament winding of cylinders », in Computer Aided Design in Composite Material Technology III, Springer, 1992, p. 225‑253.

[102] A. Durin, N. Boyard, J. Bailleul, N. Billon, J. Chenot, et J. Haudin, « Semianalytical models to predict the crystallization kinetics of thermoplastic fibrous composites », J. Appl. Polym. Sci., vol. 134, nº 8, 2017.

[103] M. Avrami, « Kinetics of phase change. I General theory », J. Chem. Phys., vol. 7, nº 12, p. 1103‑1112, 1939.

[104] F. Jacquemin, « Modélisation et simulation des contraintes internes dans les structures tubulaires composites épaisses », 2000.

[105] T. Chapman, J. Gillespie Jr, R. Pipes, J.-A. Manson, et J. Seferis, « Prediction of process-induced residual stresses in thermoplastic composites », J. Compos. Mater., vol. 24, nº 6, p. 616‑643, 1990.

[106] J. Berger, A. Köppl, et W. Schneider, « Non-isothermal crystallization. Crystallization of polymers. System of rate equations », Intern Polym Process., vol. 2, p. 151‑154, 1988.

[107] J.-M. Haudin et J.-L. Chenot, « Numerical and Physical Modeling of Polymer Crystallization: Part I: Theoretical and Numerical Analysis », Int. Polym. Process., vol. 19, nº 3, p. 267‑274, 2004.

[108] N. Zobeiry et al., « Multiscale characterization and representation of composite materials during processing », Phil Trans R Soc A, vol. 374, nº 2071, p. 20150278, 2016.

[109] B. Harper et Y. Weitsman, « Residual thermal stresses in an unsymmetrical cross-ply graphite/epoxy laminate », présenté à 22nd Structures, Structural Dynamics and Materials Conference, 1981, p. 580.

[110] R. Stango et S. Wang, « Process-induced residual thermal stresses in advanced fiber-reinforced composite laminates », J. Eng. Ind., vol. 106, nº 1, p. 48‑54, 1984.

[111] Y. Nawab, F. Jaquemin, P. Casari, N. Boyard, et V. Sobotka, « Evolution of chemical and thermal curvatures in thermoset-laminated composite plates during the fabrication process », J. Compos. Mater., vol. 47, nº 3, p. 327‑339, 2013.

[112] M. Péron, F. Jacquemin, P. Casari, G. Orange, J.-L. Bailleul, et N. Boyard, « Thermo-mechanical characterization of a thermoplastic composite and prediction of the residual stresses and lamina curvature during cooling », présenté à AIP Conference Proceedings, 2017, vol. 1896, p. 030015.

[113] V. Porcher, “Rapport de la campagne d’essais de thermoestampage”, Rapport interne du projet Commando_Stamp, IRT Jules Verne, GeM, 3SR, Nantes, Septembre 2015.

Chapitre 2 : Comportement thermomécanique et mésostructures induites par l'essai de bias-extension.

Ce chapitre est dédié à la caractérisation mécanique du comportement en cisaillement plan d'un pré-imprégné à matrice thermoplastique et renfort tissé dans un état proche de la température de transformation lors du procédé de thermo-estampage. L'étude mécanique est complétée par une analyse fine en tomographie de la morphologie des éprouvettes déformées à plusieurs échelles d'observation.

Table des matières

2.1. INTRODUCTION 68
2.2. MATERIAU ET METHODES 68
2.3. ESSAI DE BIAS-EXTENSION 70
2.3.1. Dispositif expérimental 71
2.3.2. Paramètres d'essais 72
2.4. IMAGERIE 3D PAR TOMOGRAPHIE A RAYONS X 73
2.4.1. Moyen d'imagerie utilisé 73
2.4.2. Traitement d'images 74
(a) Filtrage 74
(b) Segmentation 75
2.4.3. Observations mésoscopiques 76
(a) Angle d'orientation 80
(b) Fraction volumique de mèches et épaisseur locales 82
2.4.4. Observations microscopiques 83
2.5. RESULTATS ET DISCUSSIONS 86
2.5.1. Caractérisation du cisaillement plan par bias-extension test 86
(a) Comportement mécanique 86
(b) Effet de la température 88
(c) Relaxation 91
2.5.2. Mésostructures induites par le cisaillement plan 92
(a) Angle de cisaillement 92
(b) Fraction volumique de mèches et épaisseur locales 94
(c) Effet de la température 97
2.5.3. Micromécanismes de déformation des fibres 100
2.6. CONCLUSION 101

Références 103

2.1.Introduction

La littérature a mis en exergue l'effet de la température et par voie de conséquence l'importance de la viscosité de la matrice sur le comportement en cisaillement plan d'un stratifié. Cet effet procure un comportement dépendant du temps. En premier lieu, l'essai de traction-cisaillement à chaud ou « bias-test » est conduit à différentes températures et niveaux de sollicitation. En second lieu, la structure interne des éprouvettes fait l'objet d'observations tomographiques afin de mieux cerner les mécanismes physiques responsables de la réponse mécanique aux échelles des fibres et des plis. Dans la discussion, on montre que le comportement thermomécanique du pré-imprégné en cisaillement plan est en lien avec l'architecture fibreuse et la distribution de matrice au sein du matériau.

2.2. Matériau et méthodes

Le matériau utilisé dans cette étude est un composite stratifié préconsolidé obtenu à partir d'une résine thermoplastique (PA 6-6) et d'un renfort tissé équilibré de fibres de verre. Quatre plis composent l'empilement selon la séquence [0°/90°/0°/90°]. Quelques propriétés sont données dans le tableau 2.1.

	Matrice	**Renfort**	**Pré-imprégné**
Type	PA 6-6	Verre E	-
Masse volumique ($g.cm^{-3}$)	1.14	2.7	1.87
Température de fusion (°C)	262	-	262
Titre (dtex)	-	12000	-
Masse surfacique ($g.m^{-2}$)	-	650	930
Volume de fibres (%)	-	-	50
Épaisseur (mm)	-	-	2±0.2

Tableau 2.1 Quelques propriétés du pré-imprégné étudié (fiche technique Solvay : Annexe 1).

Une première campagne de caractérisation expérimentale du matériau d'étude a été conduite à l'aide d'essais ATD, ATG et de mesure de viscosité du PA 6-6. Les résultats sont donnés dans la figure 2.1.

À partir de l'analyse Thermique Différentielle (ATD), différentes propriétés du matériau sont déterminées. La courbe 2.1a présente les flux de chaleur enregistrés lors du chauffage et refroidissement à une vitesse de 10°C/min. La température de transition vitreuse est observée à environ 70°C, le pic de température de cristallisation froide est d'environ 230°C et le pic de fusion est observé aux alentours de 262°C. Deux pics de fusion dus à la présence de deux familles de

cristaux sont observables. Selon [1], [2], l'origine physique de ces deux familles pourrait être *(i)* la croissance de deux populations cristallines différentes au cours de la cristallisation isotherme, *(ii)* un phénomène de réorganisation au cours de l'étape de chauffage, c'est-à-dire que des lamelles cristallines se développent au cours de la cristallisation isotherme et lorsque la température augmente celles-ci sont fondues et recristallisent pour induire un pic de fusion plus élevé.

L'ATG (analyse thermogravimétrique) a été largement utilisée pour élucider les mécanismes de dégradation des polymères [3]. Nous utilisons ici cette technique pour suivre l'oxydation thermique du matériau afin de déterminer sa température de dégradation. Des échantillons étuvés à sec[1] sont chauffés jusqu'à 800°C à une vitesse de 10°C/min, sous atmosphère contrôlée. Le thermogramme ATG qui représente la perte de la masse subie par le matériau au cours du chauffage est donné dans la figure 2.1b. On observe une première chute de masse à environ 320°C. Partant des échantillons initialement à sec, c'est-à-dire dépourvus d'eau, on estime que cette température correspond au début de la dégradation. Au-delà de celle-ci, le polymère et, par conséquent, le pré-imprégné perd ses caractéristiques mécaniques de manière irréversible.

Les résultats de la caractérisation du comportement rhéologique de la matrice PA 6-6 à l'état fondu sont donnés dans la figure 2.1c. La viscosité dynamique ne dépend pas de la vitesse de cisaillement et reste pratiquement constante. Le PA 6-6 à l'état fondu peut ainsi être assimilé à un fluide newtonien. La viscosité dépend cependant de la température. À une augmentation de la température de 270°C à 300°C correspond une diminution de la viscosité de 40 Pa.s. La figure 2.1d représente la viscosité (la moyenne pour chaque température), tracée sur une échelle logarithmique, en fonction de la température et semble pouvoir être représentée par une droite. Nous en déduisons que la dépendance de la viscosité à la température peut être modélisée par une loi d'Arrhenius (Équation 2.1).

$$\eta = \mathrm{A} e^{B\left(\frac{1}{T}-\frac{1}{T_0}\right)} \tag{2.1}$$

T_0 est la température de référence égale à 280°C. Le facteur pré-exponentiel A (ou facteur de fréquence) est égal à 42.7 Pa.s et B=2827 K.

[1] Le matériau est étuvé selon un protocole 'RH0' recommandé par Solvay : 5 jours à 90°C sous vide.

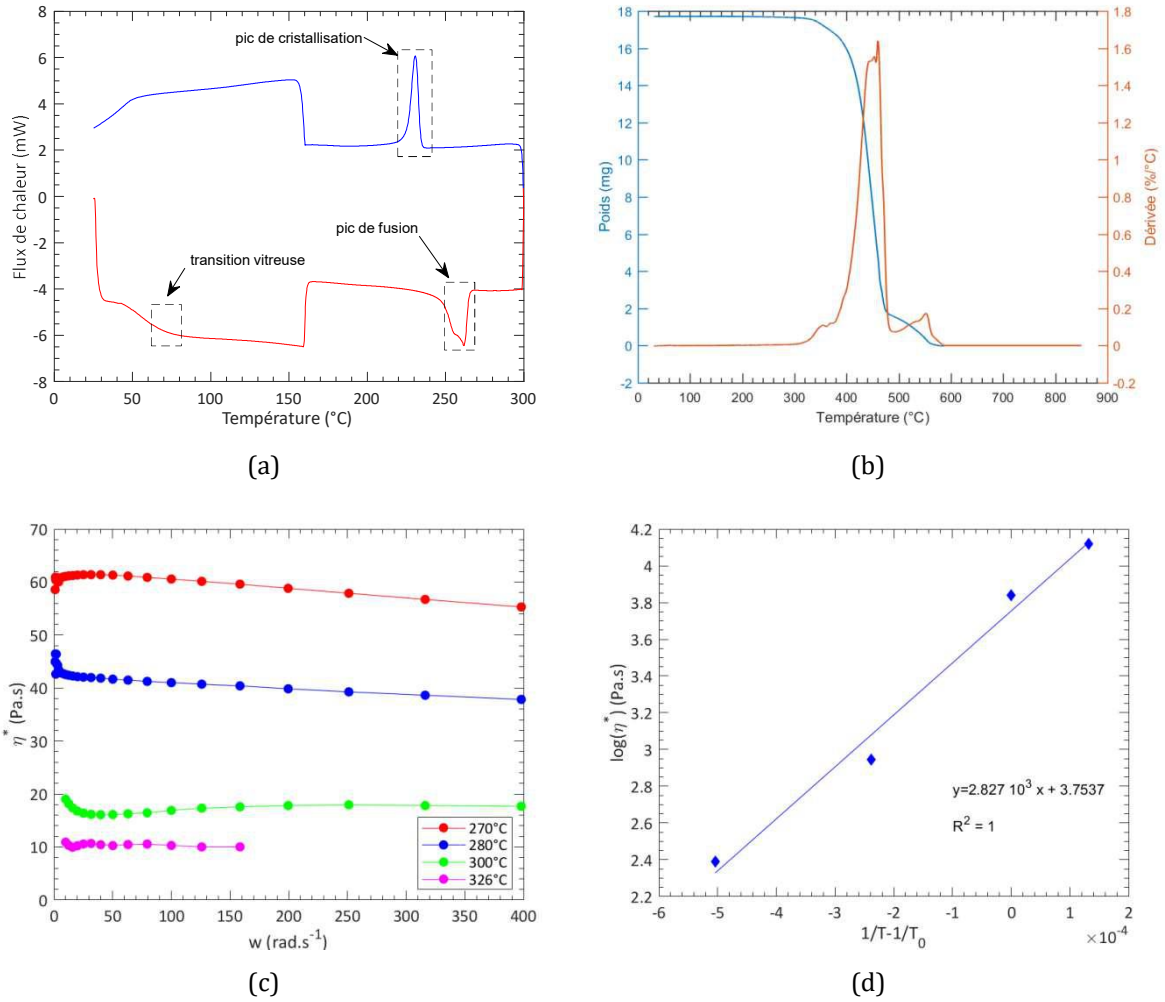


Figure 2.1 Caractérisation du matériau d'étude, (a) courbe de DSC effectué sur le stratifié préconsolidé à une vitesse de 10°C/min, (b) analyse thermogravimétrique, (c) viscosité dynamique en fonction de la température, (d) loi d'Arrhenius : dépendance de la viscosité à la température.

2.3.Essai de bias-extension

Déjà décrit dans le chapitre bibliographique (chapitre 1, 1.2.5.a), l'essai de bias-extension est choisi pour notre caractérisation thermomécanique, car il constitue une base nécessaire à l'alimentation des outils de simulation numérique du thermo-estampage et il est relativement facile à mettre en œuvre.

L'étude du comportement en cisaillement plan pendant la mise en forme du pré-imprégné est réalisée au-dessus de la température de fusion de la matrice. Dans ce qui suit nous décrivons le dispositif expérimental utilisé ainsi que les conditions de l'essai. Celui-ci sera utilisé pour tester des éprouvettes à géométrie rectangulaire disposant d'une surface utile de 210×70 mm^2 , soit un rapport longueur sur largeur supérieur à 2 afin d'assurer le développement d'une zone centrale uniformément cisaillée [11]. Les éprouvettes sont découpées dans une plaque préconsolidée d'épaisseur 2 mm à 45° de la direction des renforts tissés.

2.3.1. Dispositif expérimental

L'ensemble nécessaire à la réalisation des essais de traction hors-axe sur pré-imprégné à chaud est présenté à la figure 2.2. Sur la base d'une machine universelle de traction électromécanique, une éprouvette est sollicitée en traction et chauffée dans une enceinte régulée.

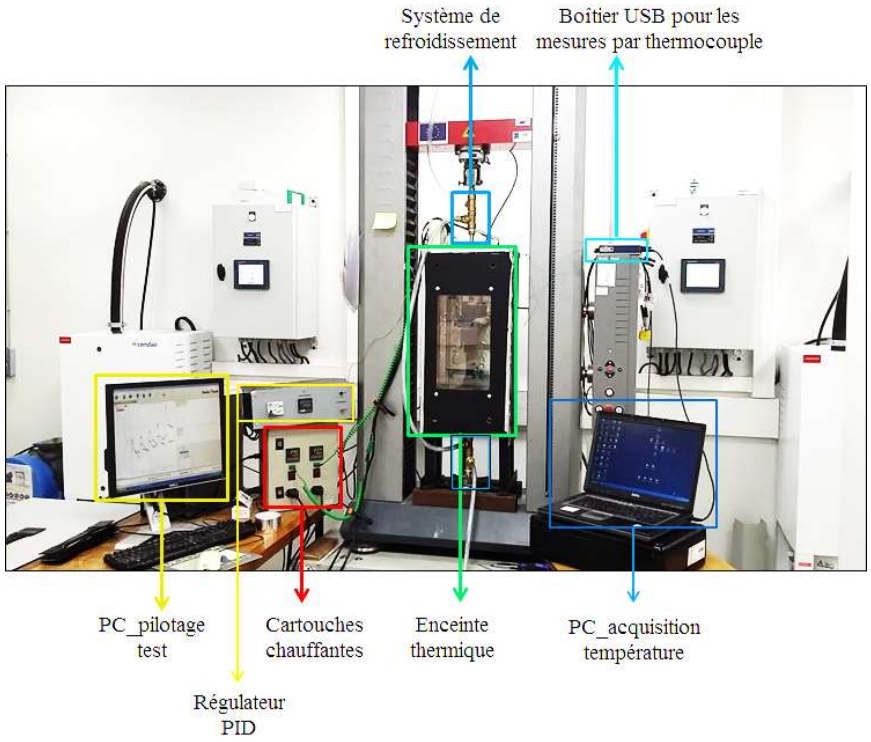


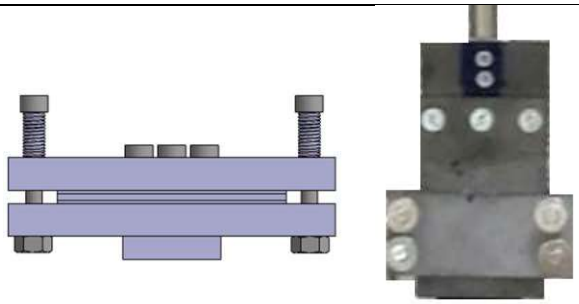
Figure 2.2 Dispositif expérimental de bias-extensions sur un pré-imprégné.

Le chauffage par convection est suffisamment rapide pour limiter l'oxydation thermique du matériau et assurer un temps de chauffe voisin de celui rencontré dans la littérature [4]. La température des échantillons est contrôlée par quatre thermocouples répartis (voir figure 2.4a).

Par ailleurs, à l'état fondu, la matrice joue le rôle d'un lubrifiant qui facilite le glissement de l'éprouvette. Ce problème est résolu en portant une attention particulière à la conception des mors de fixation des éprouvettes à la machine. Ceux-ci doivent assurer trois fonctions :

- Un serrage en continu car au cours de l'essai l'épaisseur de l'éprouvette varie,
- Un non-glissement de l'éprouvette pour assurer une mesure juste de son élongation,
- Une faible inertie thermique afin de limiter d'éventuels gradients de température au niveau de la zone du maintien de l'éprouvette.

Pour remplir ces conditions, des mors sont fabriqués à partir de tôles d'acier rendues rugueuses par sablage. La force de serrage de l'éprouvette dans les mors aux températures élevées est assurée par des ressorts précontraints.

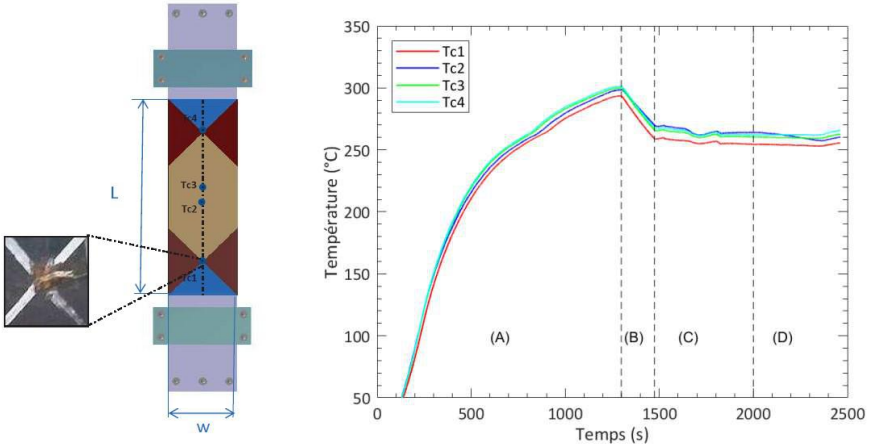


(a) (b)

Figure 2.3 Détails des mors (a) CAO des mors, (b) Mors d'auto-serrage.

2.3.2. Paramètres d'essais

Un cycle thermique représentatif des conditions industrielles de chauffage a été imposé à toutes les éprouvettes testées (Figure 2.4b). Les éprouvettes sont d'abord préchauffées au-dessus de la température de fusion de la matrice (A). La température est abaissée pour se rapprocher de la température du test (B). Cette étape correspond au transport de la pièce dans le cycle industriel et durant laquelle on assiste à une chute de température d'environ 30 à 40°C. L'étape d'après consiste à homogénéiser la température des échantillons (C). Finalement, l'essai est lancé (D). L'homogénéité en température des éprouvettes est assurée par convection forcée d'air chaud et contrôlée par quatre thermocouples de type K fixés le long de leur zone utile (Figure 2.4a). Les thermocouples sont insérés dans des trous de faible diamètre ($\emptyset = 1mm$). Des écarts de $\pm$ 4 °C au maximum par rapport à la température de consigne sont obtenus.



(a) (b)

Figure 2.4 Cycle thermique imposé, (a) Les thermocouples fixés le long de la zone utile de l'éprouvette (Tc1, Tc2 et Tc4 sur la face avant de l'éprouvette et Tc3 sur sa face arrière), (b) Évolution de la température.

En suivant cette procédure, une série d'essais a été réalisée avec des températures dans la gamme de mise en forme des pré-imprégné thermoplastiques : 260,270, 280, 290 et 300°C.

Afin de caractériser la dépendance au temps de leur comportement, les éprouvettes ont été soumises à des rampes de déplacement par paliers de 10 mm effectuées à une vitesse constante de 30 $\mathrm{mm.\,min^{-1}}$, séparées de paliers horizontaux de 60 s, soit un déplacement total des cinq paliers égal à 50 mm. Ce déplacement correspond à un angle de cisaillement théorique d'environ 57°.

L'ensemble de ces conditions procure une réponse typique du matériau comme sur la figure suivante.

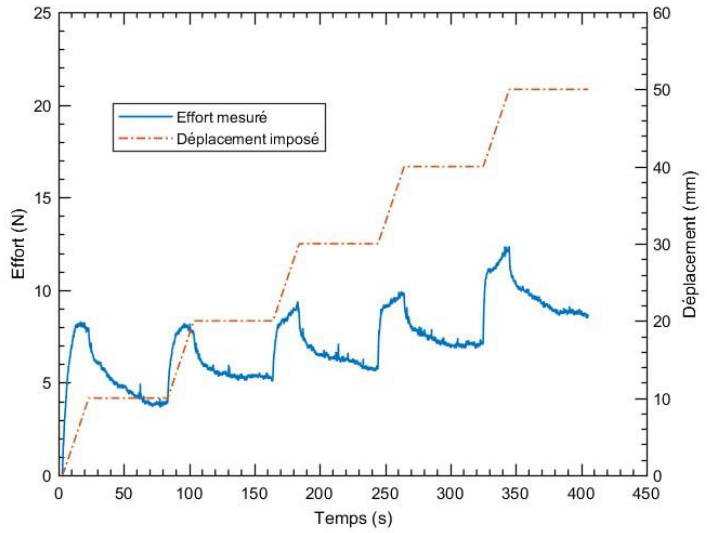


Figure 2.5 Déplacement imposé au cours des essais de bias extension et la réponse du matériau à 280°C.

2.4.Imagerie 3D par tomographie à rayons X

Comme expliqué dans la bibliographie au paragraphe (1.2.6), nous avons besoin de caractériser plus finement la morphologie du matériau à toutes les étapes de sa transformation. Dans cette partie, on présente le moyen expérimental utilisé et les outils d'analyse d'image développés permettant une caractérisation ex situ par tomographie à rayons X sur des éprouvettes testées en bias-extension. Les observations sont réalisées à deux résolutions spatiales :

- Basse résolution pour étudier l'évolution locale de la mésostructure (échelle du pli),
- Haute résolution pour identifier et caractériser des modes et des micromécanismes de déformation (échelle de la mèche).

2.4.1. Moyen d'imagerie utilisé

Le tomographe du laboratoire 3SR (RX Solutions) a été utilisé (Figure 2.6). Il s'agit d'un tomographe d'absorption des rayons X. Ces derniers sont produits dans un tube à vide à partir d'électrons accélérés projetés sur une cible. Le tomographe est constitué de :

- Une source de rayons X polychromatique et conique. C'est grâce à cette dernière caractéristique qu'il est possible d'obtenir une large gamme de résolutions en plaçant l'échantillon à différentes distances entre la source et le détecteur. Des résolutions spatiales allant de quelques microns à des dizaines de microns sont alors possibles. Les résolutions sont exprimées en voxel (un volume dont l'arête a la taille d'un pixel). La résolution choisie pour un scan est généralement un compromis entre les dimensions de l'échantillon et la taille de la plus petite information recherchée (porosité, diamètre fibres…). Pour le pré-imprégné PA 6-6 renforcé fibres de verre tissées, le faisceau est réglé à des valeurs proches de 100 keV et 300 µA sans filtre additionnel.
- Un détecteur bidimensionnel de dimensions 2048 × 2048 pixel .
- Un plateau tournant sur lequel on fixe l'échantillon. Le pas de rotation est déterminé en fonction du nombre de projections requises pour construire le volume 3D.

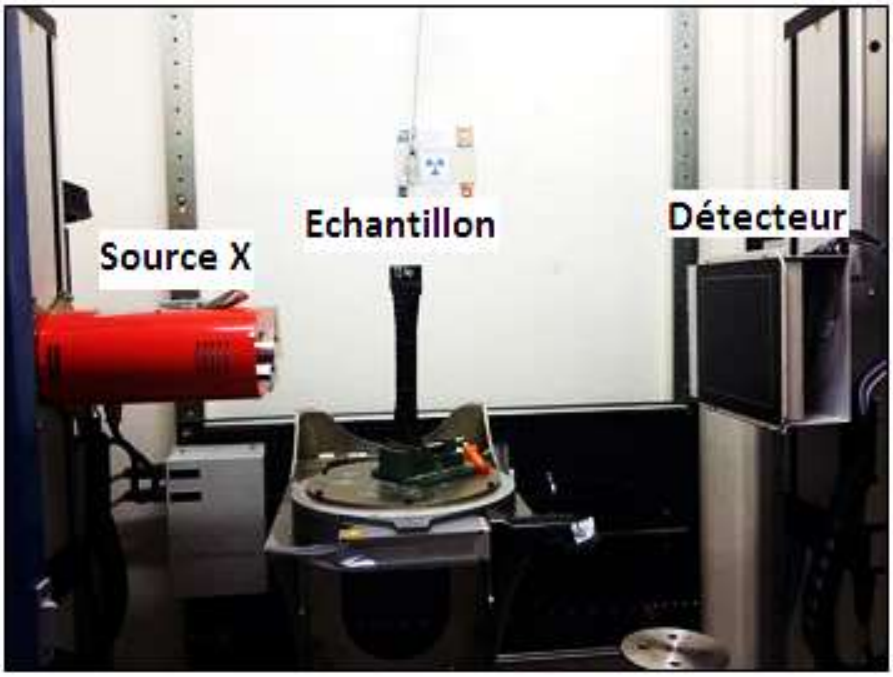


Figure 2.6 Présentation du tomographe utilisé (laboratoire 3SR).

2.4.2. Traitement d'images

L'analyse tomographique procure des images 3D brutes codées en niveaux gris sur chaque voxel. Leur exploitation nécessite un premier traitement numérique réalisé avec le logiciel ImageJ. Deux opérations sont réalisées :

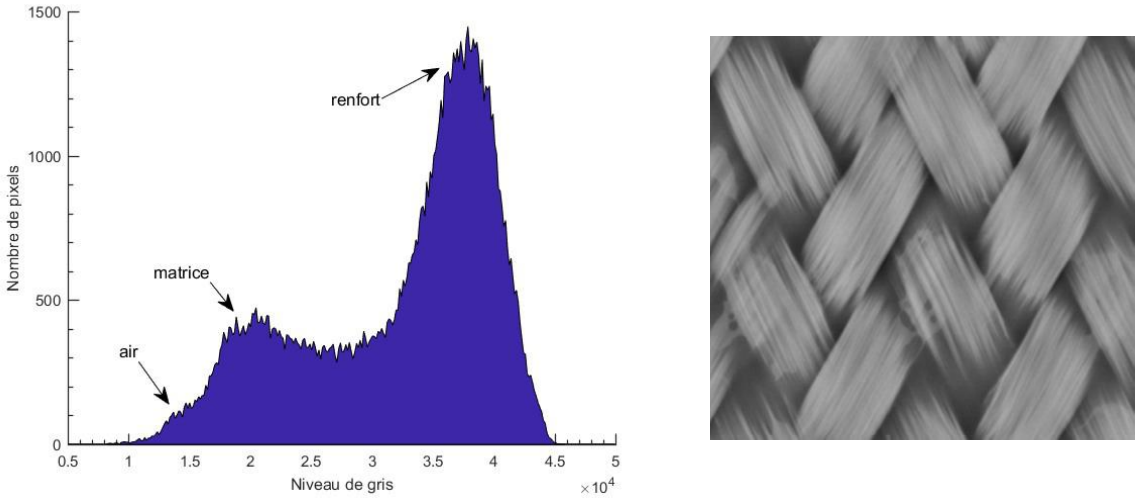
(a) **Filtrage**

Cette opération élimine les 'bruits' introduits lors du scan tomographique. Elle permet d'augmenter le ratio signal/bruit ce qui revient à rehausser le contraste. Le filtrage doit

évidemment préserver l'intégrité des contours des objets, les zones de transition entre régions homogènes et bien-sûr tout détail significatif de l'image peu importe sa taille. Dans cette étude, deux filtres ont retenu notre attention par la qualité de l'image obtenue : un filtre moyen et un filtre médian qui sont appliqués successivement.

(b) **Segmentation**

Cette opération consiste à séparer les différentes phases contenues dans les images 3D des éprouvettes déformées. Il existe une multitude de techniques de segmentation quand il s'agit de séparer deux phases [5], [6], comme dans le cas des composites à renforts secs. Cependant, pour les pré-imprégnés de notre étude, il est beaucoup plus délicat de séparer les trois phases (matrice, pores, fibres). Sur un relevé du nombre de pixels codés en fonction de leur niveau de gris (Figure 2.7a), on ne distingue pas nettement les trois phases recherchées et c'est pourquoi le traitement par segmentation est nécessaire.

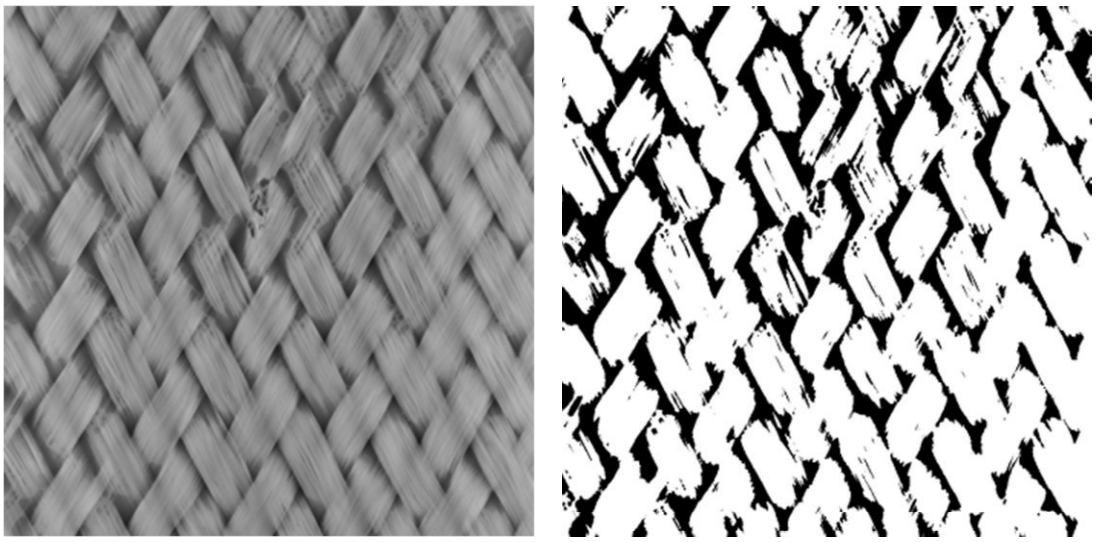


(a) (b)

Figure 2.7 Un composite pré-imprégné PA 6-6 renforcé fibres de verre tissées, (a) Histogramme des niveaux de gris montrant les trois phases, (b) Image en niveau de gris codée sur 16 bits.

Une technique de segmentation en deux classes, comme le seuillage, basé uniquement sur la valeur de niveau de gris est bien adaptée à notre cas. C'est alors la valeur 'seuil' optimale qu'il faut fixer afin de bien séparer les pixels contenus dans l'image en deux catégories (matrice+pores, fibres) tout en minimisant la variance intra-classes. Dans notre cas, la méthode d'Otsu donne un bon résultat. Grace à cette méthode, on a pu définir d'un seuil de niveau de gris au-delà duquel tous les voxels seront blancs (fibres), les autres devenant noirs (matrice+pores) : on parle de binarisation (Figure 2.8).

Il est trivial que la segmentation est d'une importance cruciale sur la quantification de la fraction volumique des fibres, la taille des pores, la géométrie des objets et leur connectivité.



(a) (b)

Figure 2.8 Opération de segmentation par la méthode d'Otsu, (a) Image en niveaux de gris, (b) Image binarisée, les pixels blancs correspondent à la phase fibreuse et les pixels noirs correspondent à la matrice et aux pores.

2.4.3. Observations mésoscopiques

L'objectif fixé par ces observations est de pouvoir étudier l'évolution des mésostructures induites par la sollicitation en traction hors axes (bias-extension) d'un pré-imprégné à matrice thermoplastique et renfort fibres tissées. Les mésostructures en question sont les plis tissés et les mèches qui les constituent. Une résolution spatiale de 47 µm est bien adaptée à ces observations.

En fait, à cette échelle, deux contraintes d'observation sont particulièrement respectées :

- D'une part, caractériser finement les géométries déformées conformément à la cinématique de l'essai de bias-extension. Cette dernière amène le développement de trois zones de cisaillement dans l'échantillon : une zone centrale uniformément cisaillée, 4 zones latérales demi-cisaillées et 2 zones non déformées aux extrémités.
- D'autre part, les dimensions des échantillons doivent être bien adaptées aux dimensions du détecteur et à l'encombrement du tomographe.

Afin de pouvoir mener une analyse mésoscopique pertinente tout en respectant les deux contraintes introduites précédemment, trois zones d'intérêt représentatives de la cinématique de l'essai de bias-extension sont découpées dans des éprouvettes déformées (Figure 2.9). Elles sont scannées avec une taille de voxels de $47 \times 47 \times 47$ µm^3 et 1984 projections radiographiques. Chaque image 3D est subdivisée en petites cellules de la taille d'une cellule représentative de tissu, dont les dimensions dans le plan principal des plaques sont approximativement de 8×8 mm^2.

Sur chaque cellule, l'orientation locale des mèches de fibres, leur fraction volumique ainsi que la variation locale de l'épaisseur des échantillons ont été analysées.

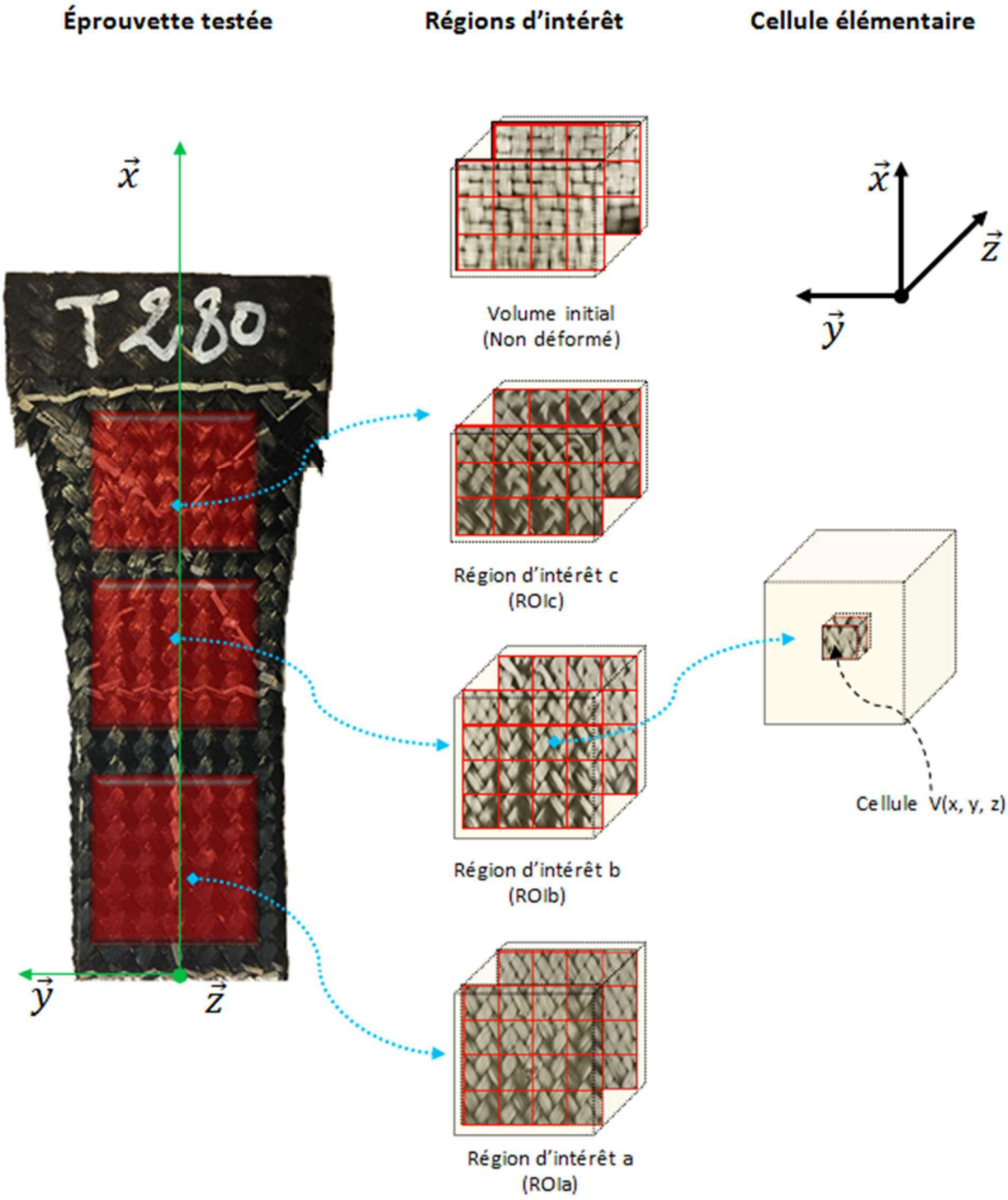


Figure 2.9 Demi-vue d'une éprouvette déformée en bias-extension à une température de 280°C. Gauche : position des zones scannées (en rouge). Milieu : discrétisation des images 3D en cellule élémentaires de dimensions planes 200 × 200 pixels. Droite : cellule élémentaire de coordonnées (x,y,z) (x et y les coordonnées dans le plan du composite et z position dans l'épaisseur).

Quelques exemples d'images 3D scannées à une résolution de 47 µm sont donnés dans la figure 2.10. Les images du pré-imprégné confirment la complexité du réseau fibreux avec des plis très denses où les mèches adjacentes présentent d'importantes zones de contact. Ces mèches ont des géométries non triviales caractérisées par exemple par des formes de section très différentes selon la position dans le composite. Ces sections sont plutôt elliptiques dans la configuration initiale non déformée (2.10a) ou encore plus ou moins aplaties dans les configurations déformées (2.10b-d). D'autre part, on remarque que l'épaisseur n'est pas homogène tout au long de l'éprouvette. Comme on peut le voir dans la figure 2.10b, la caractérisation par bias-extension a induit une augmentation importante de l'épaisseur correspondant à la déconsolidation du matériau. Comparée à l'état initial, l'épaisseur a pratiquement triplé. Ce dernier constat démontre qu'un cisaillement plan induit une forte évolution de l'architecture fibreuse dans le plan et dans l'épaisseur. Enfin, ces observations mésoscopiques complétées par des observations plus fines à l'échelle microscopique sont susceptibles de fournir des éclaircissements originaux sur le comportement du pré-imprégné lors de sa mise en forme.

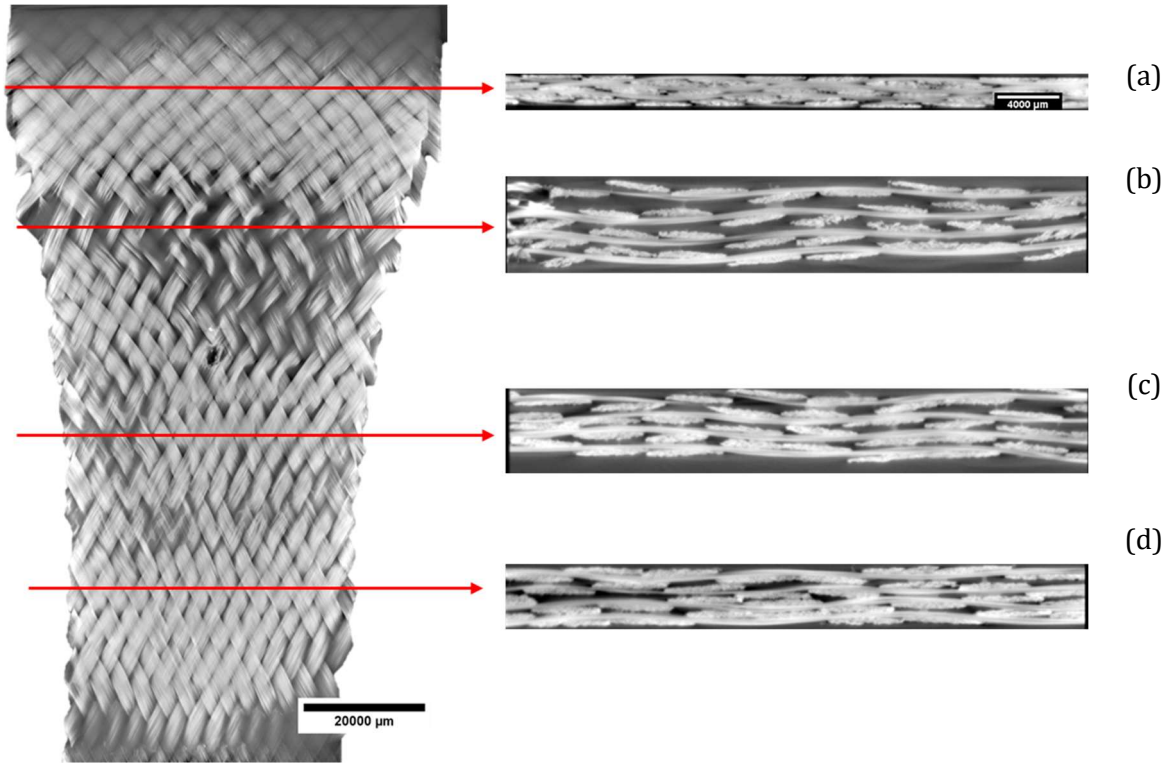


Figure 2.10 Exemples de trois coupes d'un pré-imprégné reconstruites par tomographie dans le plan des chaînes à différentes hauteurs de l'éprouvette déformée en bias-extension (À gauche résolution 72 µm et à droite 47µm).

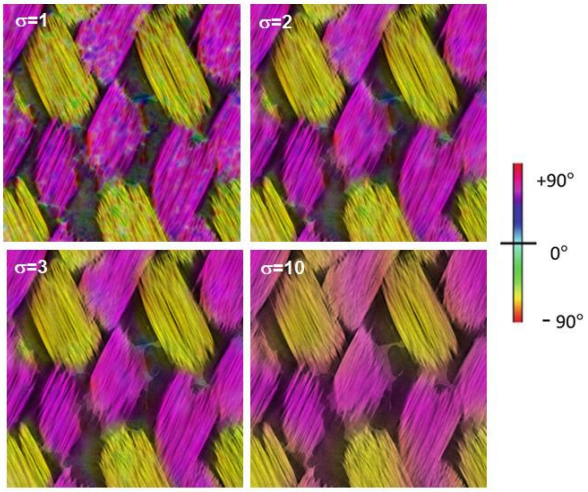
(a) **Angle d'orientation**

C'est le premier descripteur utilisé pour caractériser l'évolution de l'architecture fibreuse. Sa caractérisation nécessite la mesure de deux paramètres à savoir la direction principale et l'intensité d'orientation. Plusieurs stratégies ou techniques d'analyse sont envisageables, comme l'individualisation des mèches qui consiste à repérer leurs extrémités et à utiliser la position de ces dernières pour leurs attribuer un angle et un vecteur d'orientation. Dans notre cas, cette technique s'avère trop chronophage, car le réseau fibreux tissé est un milieu périodique, enchevêtré avec des contacts inter et intra-mèches complexes. La méthode des gradients du niveau de gris constitue une alternative intéressante. Comme il a été illustré dans la figure 2.7a, les zones des niveaux de gris caractérisent les différents constituants du composite. Le calcul de la matrice de covariance du champ local de gradient du niveau de gris permet la détermination de ce qu'on appelle le « tenseur de structure ». Ce dernier est évalué pour chaque pixel de l'image d'entrée en calculant les dérivées spatiales continues en tout pixel de coordonnées x et y en utilisant une fonction d'interpolation. L'exploitation de celui-ci permet ainsi la mesure de l'orientation locale prédominante. Cette analyse est rendue possible via le plugin OrientationJ implémenté dans le logiciel freeware imageJ [7]. L'utilisation de ce plugin a nécessité à travail préalable de réglage de trois paramètres :

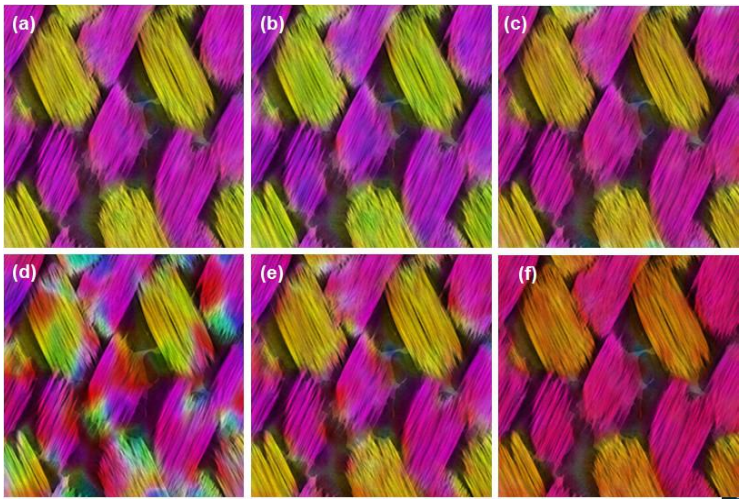
- Fonction poids gaussienne (sigma) : Spécifie l'aire d'intérêt. Les pixels près du pixel considéré ont un effet ou un "poids" plus important que ceux qui sont situés plus loin.
- Fonction d'interpolation : Définit la forme de passage entre deux pixels voisins. Six choix sont possibles (Cubic spline Gradient, Finite Difference Gradient, Fourier Gradient, Riesz Filters, Gaussian Gradient et Finite Difference gradient).
- Seuil de cohérence et d'énergie : L'énergie est la trace de la matrice de structure. Les pixels avec la plus haute valeur d'énergie correspondent aux structures les moins isotropes et les plus orientées. La cohérence est une fonction mathématique qui varie entre 0 (structure isotrope) et 1 (structure très orientée).

Dans la figure 2.11, nous représentons les résultats de l'étude comparative montrant l'influence des paramètres ci-dessus sur la carte d'orientation. Dans un premier temps, plusieurs valeurs de sigma sont testées. Le choix de la bonne valeur est visuel en comparant les cartes d'orientation (figure 2.11a). Pour $\sigma=1$ et $\sigma=2$, on constate qu'il y a plusieurs couleurs sur la même mèche. L'aire d'intérêt est un peu petite pour représenter l'orientation de la mèche. Pour $\sigma=10$, la carte d'orientation est plutôt floue et des couleurs sans signification physique apparaissent. Pour $\sigma=3$, les mèches sont bien distinctes et les couleurs sont nettement plus unies. C'est la valeur que nous avons retenue pour la suite de l'étude. L'influence du choix de la fonction d'interpolation est donnée dans la figure 2.11b. Encore une fois, l'étude visuelle montre que la fonction Cubic Spline apparaît comme la plus adaptée. Les autres fonctions donnent des résultats plutôt flous, avec des constituants du composite difficiles à distinguer. Les cartes d'orientation présentées sur la figure

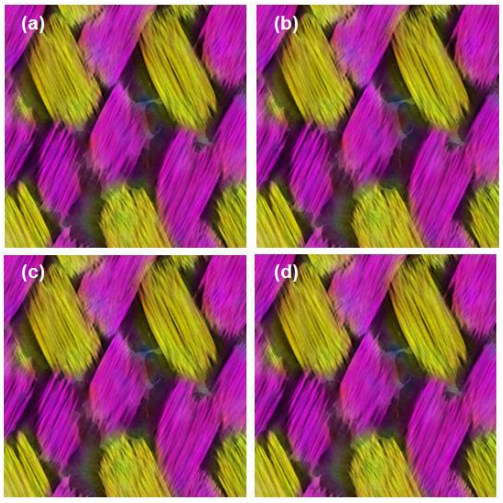
2.11c montrent que les paramètres d'énergie et de cohérence n'ont pas d'effet sur la mesure des orientations de mèches.



(a) : Influence de sigma sur les cartes d'orientation.



(b) : Influence de la fonction d'interpolation sur les cartes d'orientation, (a) Cubic Spline Gradient, (b) Finite Difference Gradient, (c) Fourier Gradient, (d) Riesz Filters, (e) Gaussian Gradient, (f)Finite Difference Hessian.



(c) : Influence de la cohérence 'C' et l'énergie 'E' sur les cartes d'orientation, (a) C=0; E=0 (b) C=0;E=80 (d) C=80; E=0, (d) C=80 ; E=80.

Figure 2.11 Choix des paramètres adéquats pour l'analyse de l'orientation des mèches via le plugin OrientationJ, (a) l'aire d'analyse, (b) la fonction d'interpolation, (c) l'énergie et la cohérence.

Pour conclure, à l'issue de cette étude comparative, les paramètres les plus adéquats pour l'analyse des images sont recensés dans le tableau 2.2.

	Paramètres retenus
Valeur de sigma (pixel)	3
Fonction d'interpolation	Cubic Spline
Min.Coherence (%)	80
Min.Energie (%)	0
Hue	Orientation
Saturation	Coherency
Brightness	Original Image

Tableau 2.2 Paramètres retenus pour l'utilisation du plugin OrientationJ Distribution. Pour la signification des paramètres Hue, Saturation et Brightness le lecteur peut se référer à l'article [8].

Une fois ces paramètres fixés, nous disposons des cartes d'orientation locale θ des mèches dans le plan des éprouvettes tomographiées. Après un ajustement de la courbe de distribution d'orientation/ angle avec une distribution gaussienne, nous pouvons remonter à l'angle de cisaillement local γ calculé comme suit (en supposant raisonnablement qu'initialement les fils de chaîne et trame étaient perpendiculaires, i.e. $\theta_0 = \frac{\pi}{2}$:

$$\gamma = \theta_0 - \theta \tag{2.2}$$

(b) **Fraction volumique de mèches et épaisseur locales**

Après avoir segmenté les images 3D comme décrit précédemment, et de fait, séparé la phase fibreuse (pixels blancs) de celle contenant pores et matrice (pixels noirs), deux cartes dans le plan principal des plaques pré-imprégnées ont été construites : (i) carte d'épaisseur et (ii) carte de la fraction volumique de mèches. Comme il est illustré dans la figure 2.12a, chacune des tranches 2D (plan XY) a été subdivisée en plusieurs cellules à dimensions égales dites fenêtres d'analyse. Les dimensions planes de celles-ci sont 1×1 pixel, ce qui permet une estimation locale des deux descripteurs ci-dessus en chaque voxel du plan principal des éprouvettes déformées en bias-extension.

Pour la mesure de l'épaisseur locale, les positions du premier et dernier pixel blanc sont déterminées pour chaque fenêtre d'analyse selon l'axe Z, c'est-à-dire dans l'épaisseur de l'éprouvette (Figure 2.12b). Ainsi l'épaisseur locale « t » est alors la différence en ces deux positions en nombre de voxels. Connaissant la taille d'un voxel (ici 47µm), cette différence est convertie en micromètres. Cette mesure locale permet ensuite de calculer l'épaisseur moyenne $\langle t \rangle$ sur une fenêtre de 200 x 200 pixels (voir figure 2.12b). Ensuite une moyenne sur toute une zone de l'éprouvette des épaisseurs <t> est calculée dans l'état initial afin d'adimensionnaliser ce descripteur. Selon la même logique, la fraction volumique de mèches φ est calculée localement.

Elle correspond au rapport entre le nombre de pixels appartenant à la phase fibreuse ($N_{mèches}$) et le nombre total de pixels (mèches + pores + matrice) ($N_{(pores+matrice)} + N_{mèche}$) compris entre les deux limites.

$$\emptyset = \frac{N_{mèches}}{N_{(pores+matrice)} + N_{mèches}} \tag{2.3}$$

Cette mesure a été aussi normalisée par rapport à la fraction volumique moyenne initiale $\langle \emptyset_0 \rangle$.

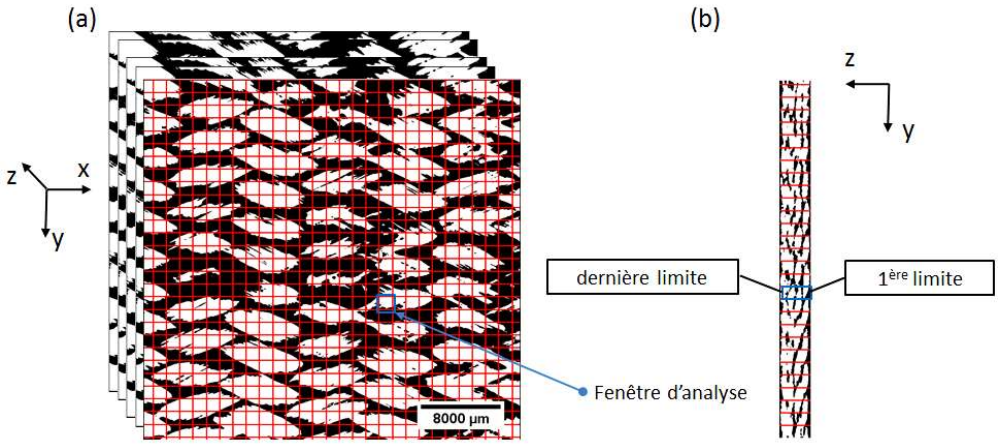


Figure 2.12 Principe de mesure locale de la fraction volumique de mèche et de l'épaisseur sur une image 3D binarisée obtenue par reconstruction microtomographique. Les pixels blancs correspondent à la phase fibreuse et ceux en noirs correspondent à la matrice et l'air. (a) Subdivision de chaque slice dans le plan (XY) en fenêtre d'analyse de dimensions planes 1 × 1 pixels (en rouge). (b) Définition de la première et la dernière limite d'analyse selon la direction Z.

2.4.4. Observations microscopiques

D'après les images tomographiques précédentes, le renfort fibreux est complexe, fortement enchevêtré et relativement bien ordonné. Dans ce contexte, il est très difficile d'extraire facilement et automatiquement des mèches dans le but d'étudier leurs mécanismes de déformation en lien avec la cinématique mésostructurelle [9], [10]. On procède par une extraction manuelle de certaines mèches représentatives sens chaîne et sens trame depuis chacune des zones d'intérêt présentées ci-dessus (figure 2.13). Une première sélection est réalisée grâce à la carte d'orientation des images 3D en niveaux de gris, où la chaîne et la trame ont été identifiées par leurs directions. Enfin, on retient une mèche donnée en effaçant les mèches voisines manuellement.

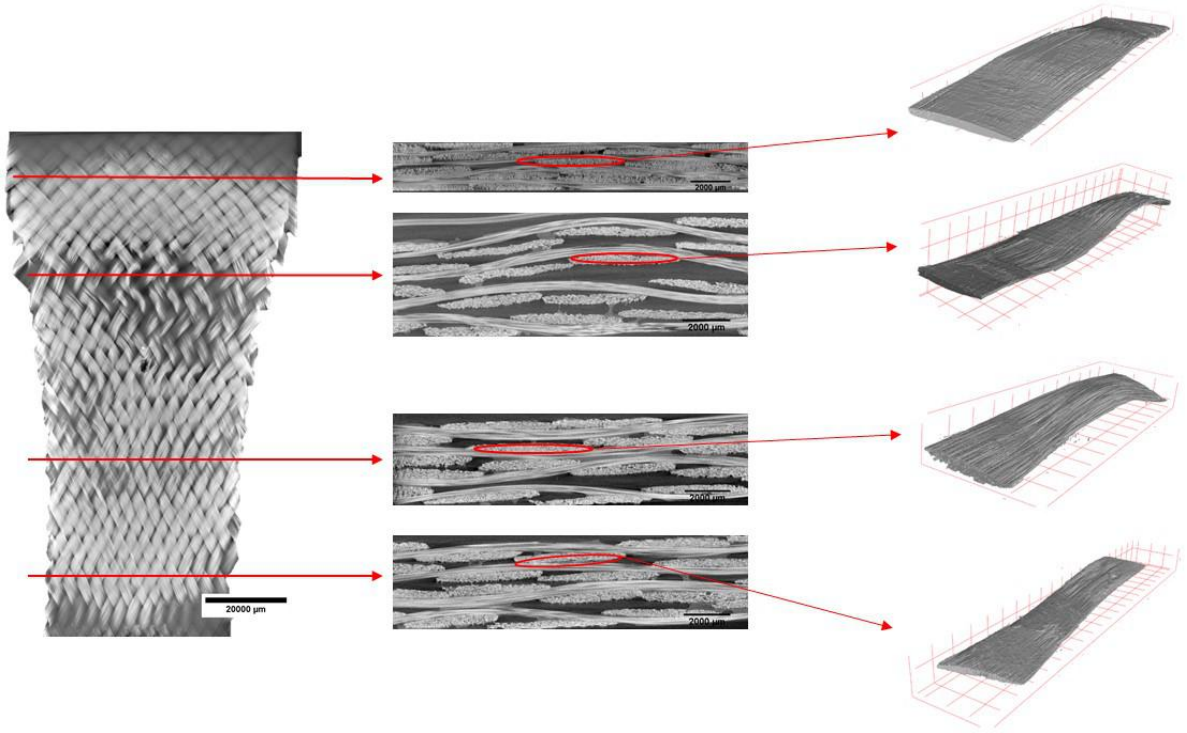


Figure 2.13 Les trois échelles caractéristiques du composite, de gauche à droite : macrostructure, mésostructure et microstructure.

En accédant à la morphologie d'une mèche, on peut envisager de définir et de caractériser des descripteurs de microstructure pertinents : section droite, courbure, torsion…

Pour caractériser la géométrie et la cinématique des mèches obtenues, deux caractéristiques sont d'abord déterminées : la section droite et la ligne moyenne. Cette dernière est obtenue grâce au calcul des coordonnées du centre de surface des sections de la mèche via la fonction 'regionprops' dans Matlab. Sur cette base, on effectue un lissage par une courbe paramétrique linéaire de coordonnées $x_i(s_k)$ le long de l'abscisse curviligne s_k pour chaque mèche i. Afin d'obtenir une représentation raisonnable d'une ligne caractéristique de la trajectoire d'une mèche, on procède à un sous-échantillonnage régulier en un nombre points N_p. Ces points sont d'abord utilisés pour calculer la longueur l_i de la mèche i.

$$l_i = \sum_{k=2}^{N_p} \| x_i(s_{k-1}) - x_i(s_k) \| \tag{2.4}$$

La longueur de la mèche est déterminée à la figure 2.14 en fonction de différentes valeurs d'espacement Δs. Dans notre étude, on choisit arbitrairement $\Delta s = 200\ vx$ dans la suite de nos analyses. Ce choix aura une importance dans l'estimation de la courbure des mèches.

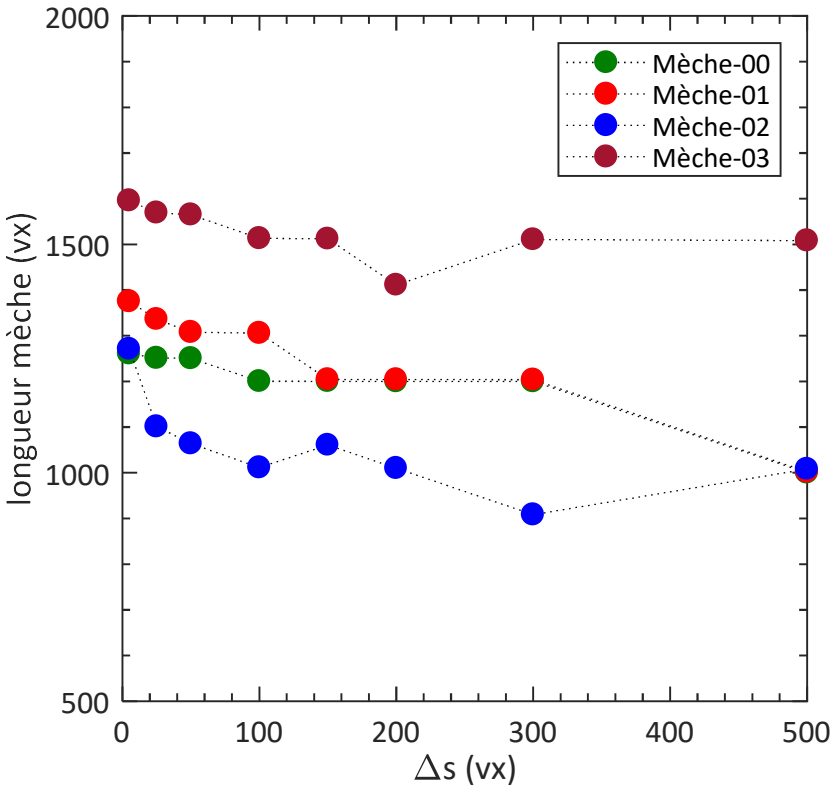


Figure 2.14 Choix de l'espacement qui minimise l'erreur de calcul de la courbure (unités en voxels = 11µm).

Chaque ligne moyenne a été associée à un repère de Frenet $[\boldsymbol{t}_i(s_k), \boldsymbol{n}_i(s_k), \boldsymbol{b}_i(s_k)]$ calculé par différences finies le long de l'abscisse curviligne (figure 2.15). Les vecteurs tangents, normaux et binormaux sont définis pour chaque mèche i par les équations suivantes :

$$\boldsymbol{t}_i(s_k) = \frac{\boldsymbol{x}_i(s_{k+1}) - \boldsymbol{x}_i(s_{k-1})}{s_{k+1} - s_{k-1}} \quad ; 2 \leq k \leq N_p \tag{2.5}$$

$$\boldsymbol{n}_i(s_k) = \frac{1}{\kappa_i(s_k)} \frac{\boldsymbol{x}_i(s_{k+1}) - 2\boldsymbol{x}_i(s_k) + \boldsymbol{x}_i(s_{k-1})}{\left(\frac{s_{k+1} - s_{k-1}}{2}\right)^2} \quad ; 2 \leq k \leq N_p - 1 \tag{2.6}$$

$$\boldsymbol{b}_i(s_k) = \boldsymbol{t}_i(s_k) \times \boldsymbol{n}_i(s_k) \quad ; 2 \leq k \leq N_p - 1 \tag{2.7}$$

La courbure des fibres κ est estimée à partir de l'expression :

$$\kappa_i(s_k) = \left\| \frac{\boldsymbol{x}_i(s_{k+1}) - 2\boldsymbol{x}_i(s_k) + \boldsymbol{x}_i(s_{k-1})}{\left(\frac{s_{k+1} - s_{k-1}}{2}\right)^2} \right\| \quad ; 2 \leq k \leq N_p - 1 \tag{2.8}$$

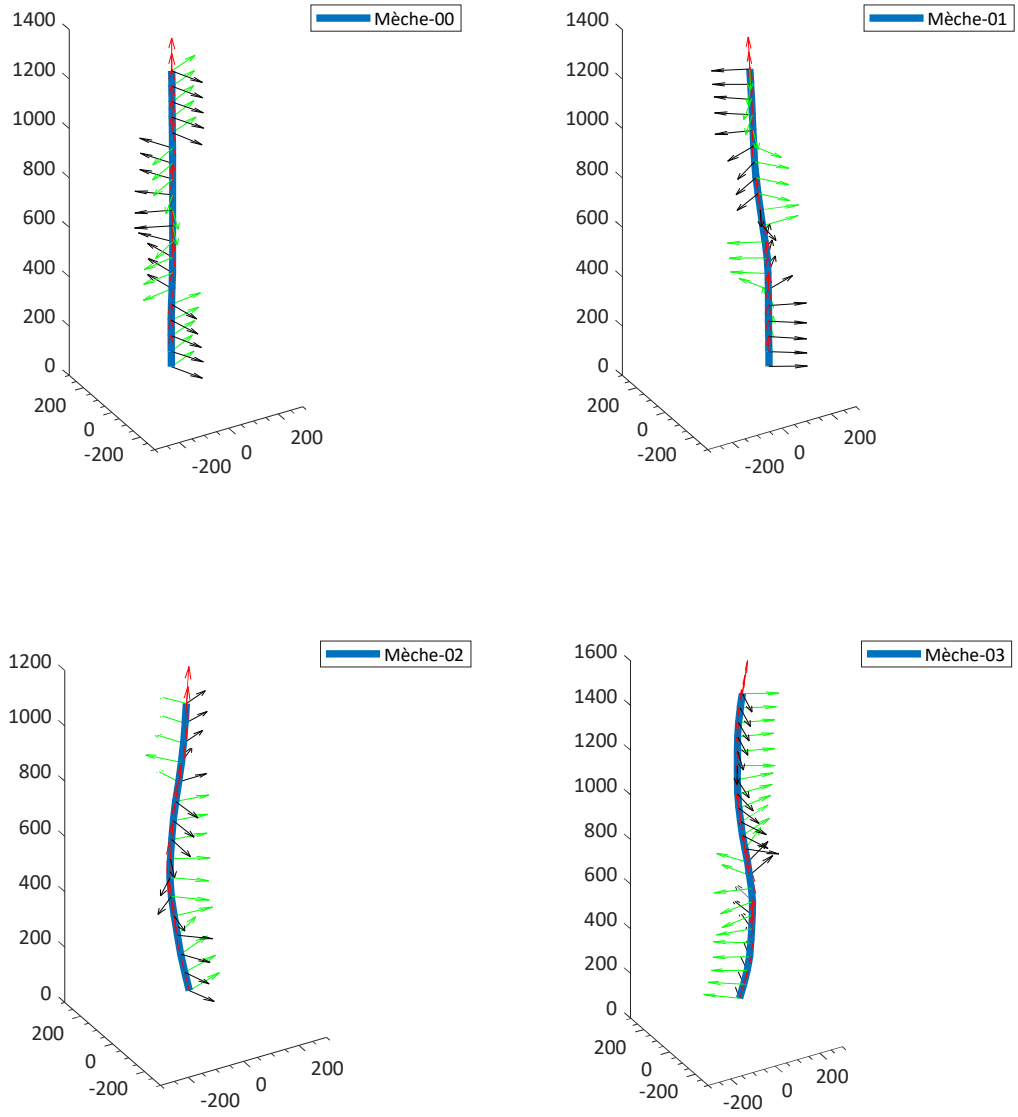


Figure 2.15 Ligne moyenne et repère de Frenet théorique, pour les mèches extraites, (a) à la configuration initiale (non déformée), (b) de ROIa, (c) de ROIb et (d) de ROIc.

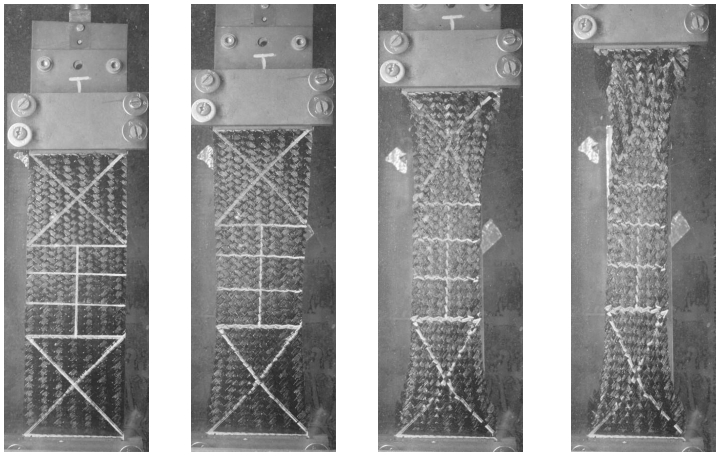
2.5.Résultats et discussions

2.5.1. Caractérisation du cisaillement plan par bias-extension test

(a) Comportement mécanique

L'évolution de la géométrie de l'éprouvette lors d'un essai de bias-extension à une température de 280°C est donnée dans la figure 2.16. Les lignes de référence tracées sur l'éprouvette montrent que le dispositif expérimental, et plus précisément les mors conçus, est bien adapté à cette

caractérisation. Aucun glissement n'est observé au niveau des mors. Les résultats montrent que la géométrie des éprouvettes est bien adaptée à nos besoins [12].



d=10mm d=20mm d=30mm d=40 mm

Figure 2.16 Évolution de la géométrie de l'éprouvette lors de l'essai de bias-extension.

Un exemple de courbe donnant l'évolution de l'effort de traction en fonction du temps pour la température de 280°C est représentée dans la figure 2.17. La force augmente progressivement au cours des rampes de déplacement, l'augmentation étant plus marquée à fort déplacement. À faibles déplacements, les mèches pivotent les unes par rapport aux autres et les efforts de cisaillement sont relativement faibles car seules les forces de frottement entre mèches s'opposent à ce mouvement. Ensuite, les mèches entrent en contact latéral progressivement, une compression transverse s'ajoute aux efforts de frottement et l'effort de cisaillement augmente graduellement. D'autre part, lors de la phase de chargement, la montée en force à chaque étape de déplacement imposé peut être décomposée en deux parties :

- Une montée rapide qui traduit une raideur apparente plutôt forte. À ce stade, dans la matrice, il est possible que des mouvements relatifs des segments de chaînes et des crystallites lamellaires aboutissent à des réarrangements de ceux-ci sans détruire les liaisons chimiques existantes. Ce mouvement thermiquement activé disparaît au bout d'un certain temps 'seuil d'élasticité' [13].
- Une montée progressive qui correspond à une raideur apparente plus faible. Elle est caractérisée par un plateau similaire à un plateau 'd'écrouissage'. Il semblerait qu'à partir d'un certain niveau de déformation locale, la matrice contribue moins à la reprise des contraintes et joue plutôt un rôle de lubrifiant entre les mèches

À chaque palier de déplacement, le niveau d'effort augmente légèrement. Ce phénomène peut être en lien avec la ré-orientation des mèches qui procure au matériau une meilleure capacité de reprise des contraintes.

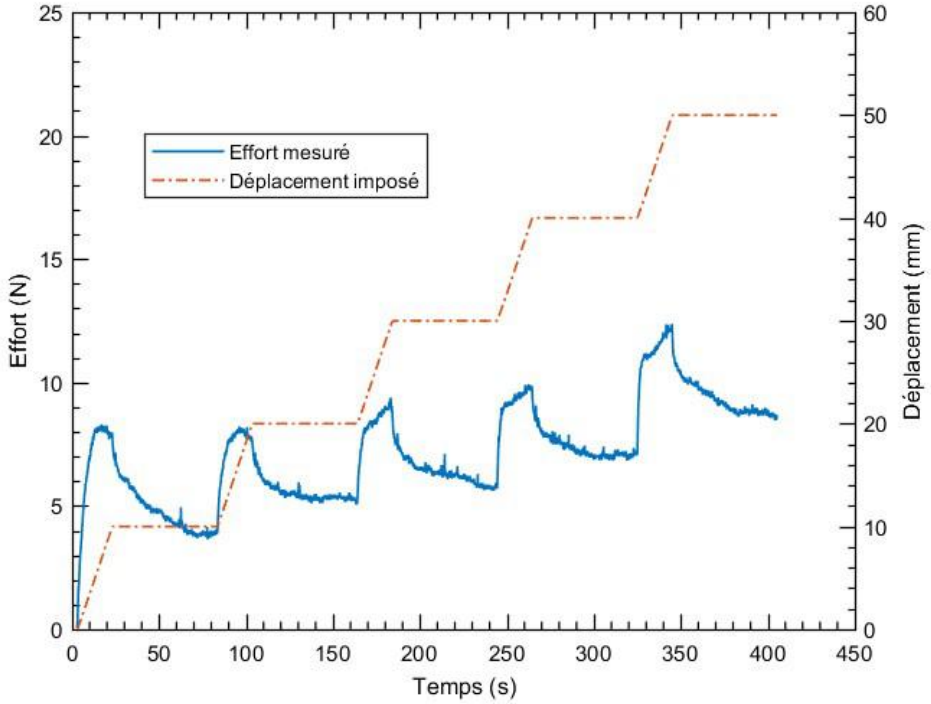


Figure 2.17 Courbe effort/temps d'un essai bias-extension à 280°C, avec déplacement imposé des mors.

(b) Effet de la température

Dans le cas du cisaillement plan, l'influence de la température a souvent été négligée dans la littérature [14]. Dans la majorité des cas, ce sont des composites à renforts secs qui sont étudiés. Plusieurs travaux [15]–[17] considèrent que dans la gamme de températures de mise en forme des composites, l'agent de renforcement (verre, carbone…) est très peu sensible à la température. Dans le cas des pré-imprégnés, la prise en considération de la dépendance à la température, dans les codes de calcul, est régie par de simples schémas d'interpolation des paramètres matériau à partir d'états de référence [12].

La température est pourtant un paramètre clef dans la mise en forme par thermoestampage des pré-imprégnés thermoplastiques. En effet, la réponse en température de l'essai est donnée dans les figures 2.18 et 2.19. Le résultat montre un comportement thermo-dépendant : la force de traction décroît sensiblement quand la température croît. Au début du chapitre, la figure 2.1 donnait déjà l'effet de la température sur la viscosité de la matrice seule. Ainsi on retrouve un effet très similaire de la température sur le stratifié. La viscosité thermo-dépendante de la matrice modifie l'effet lubrifiant au niveau des plis et des mèches adjacents, ce qui explique des niveaux de force plus bas à température plus élevée.

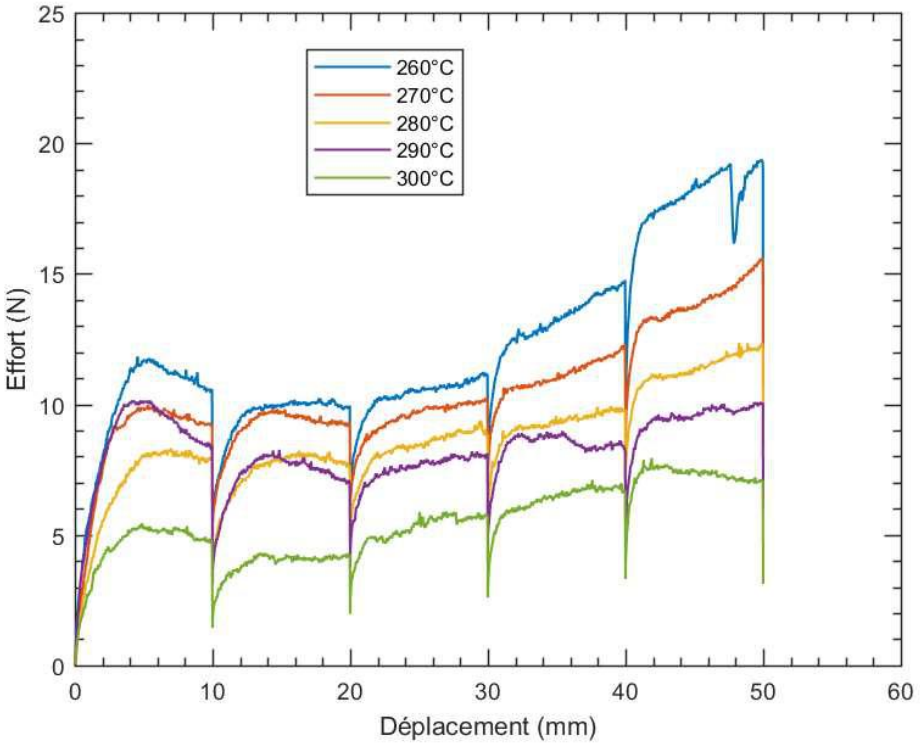


Figure 2.18 courbes effort/déplacement pour différentes températures

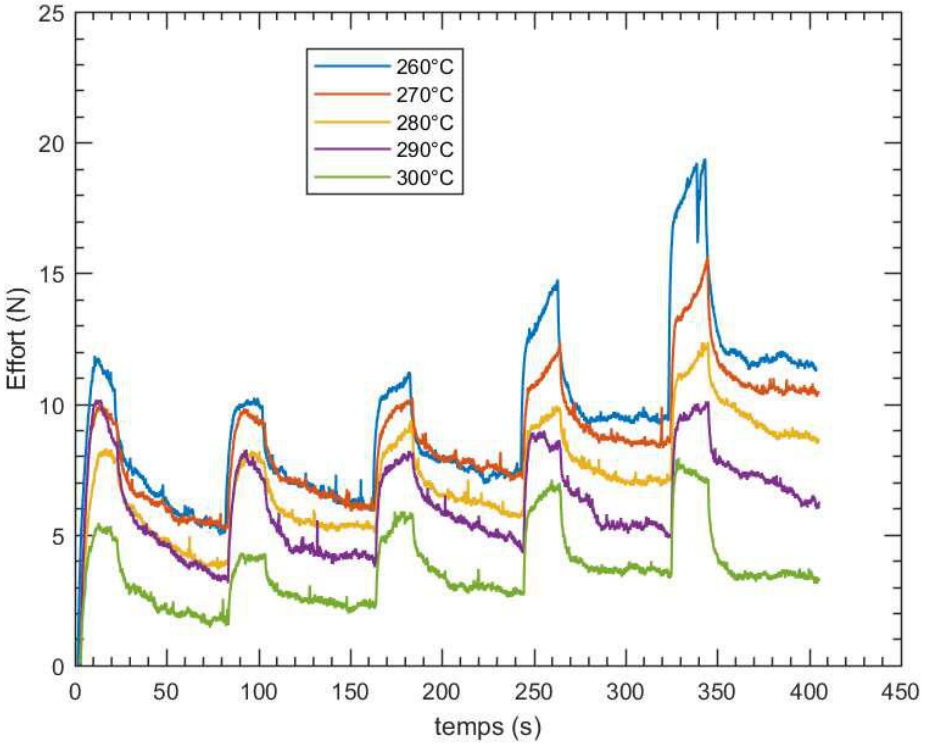


Figure 2.19 Courbes effort/temps pour différentes températures.

À partir de la courbe effort/déplacement présentée ci-dessus, nous avons déterminé les niveaux de forces correspondant à des déplacements de 5, 15, 25, 35 et 45 mm, pour chaque température. Ensuite, nous avons tracé l'évolution du logarithme de la force en fonction de $(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0})$, avec $T_0 =$ 280°C (Figure 2.20). Le résultat montre que, comme la viscosité de la matrice, l'effort de cisaillement plan est thermo-dépendant et peut être approximé par une loi de type Arrhenius sous la forme :

$$F = A\, e^{B(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0})} \tag{2.9}$$

Une synthèse des coefficients A et B est donnée dans le tableau 2.3, avec également la norme des résidus qui donne un aperçu sur la qualité de l'approximation des données expérimentales. Plus la température de référence T_0 choisie pour l'identification est élevée, meilleure est l'approximation par une loi d'Arrhenius. De telles tendances pourraient être attribuées à la viscosité de la matrice fondue, qui est plus faible à haute température. D'après les travaux d'Advani [18], le renfort joue le rôle d'une 'barrière physique' qui s'oppose à l'écoulement de la matrice et, par voie de conséquence, des interaction entre fibres et matrice peuvent avoir lieu. Nous rappelons que pour le PA 6-6, les valeurs sont respectivement A= 42.70 Pa.s et B= 2827 °C. A est un paramètre de translation d'échelle qui n'a pas de signification physique. Concernant B, on constate que la valeur identifiée dans nos essais est significativement plus faible, traduisant ainsi la présence de l'ensemble renfort et matrice. La loi d'Arrhenius s'applique d'autant mieux à mesure que la température est élevée.

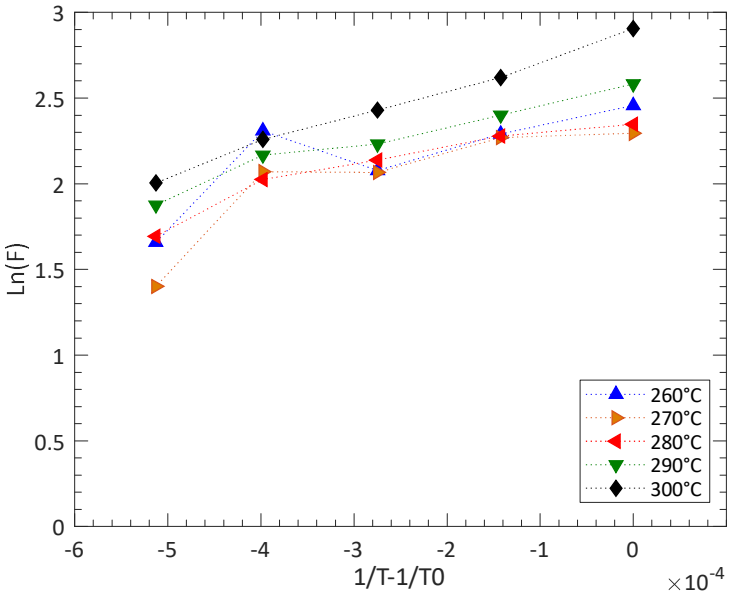


Figure 2.20 Évolution de l'effort de cisaillement plan en fonction de la température.

Température (°C)	A (N)	B (°K)	Norme des résidus
260	11,96	1217	0,377
270	11,29	1518,5	0,382
280	11,20	1202,1	0,165
290	13,35	1280,2	0,105
300	18,04	1689	0,056

Tableau 2.3 Synthèse des paramètres d'approximation des données expérimentales par une loi de type Arrhenius.

(c) Relaxation

Le comportement thermo-dépendant des pré-imprégnés à matrice thermoplastique est lié à des réarrangements moléculaires sous sollicitations thermiques et mécaniques. Dans la littérature, les relations contraintes/déformation observées montrent des comportements viscoélastiques, viscoplastiques ou visco-élastoplastiques tous marqués par d'importants phénomènes de relaxation [19],[20]. Ici, pour caractériser la relaxation du préimprégné, la méthode que nous proposons consiste dans un premier temps à isoler la courbe de décharge (palier de maintien en déplacement). Ensuite, la décharge est subdivisée en deux parties : une relaxation rapide (chute de la force) et une relaxation lente (plateau de force). La relaxation est caractérisée par l'intersection des deux courbes d'interpolation correspondant à ces deux types de relaxation (Figure 2.21).

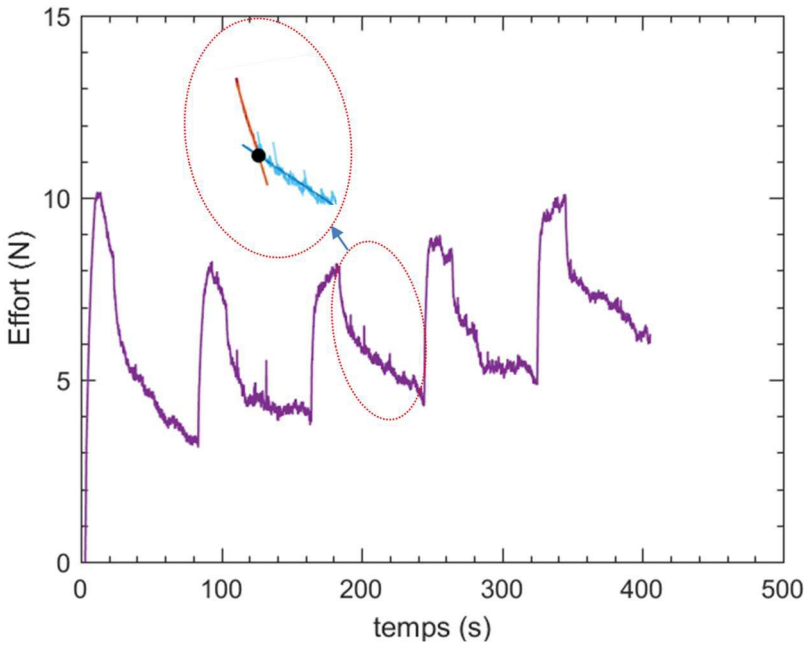


Figure 2.21 Principe de détermination du temps caractéristique de relaxation.

Ce temps caractéristique de relaxation et la décharge associée sont identifiés à partir de la courbe 2.18. Le rapport décharge/temps caractéristique est tracé en fonction du déplacement imposé pour chaque température sur la figure 2.22 ci-dessous.

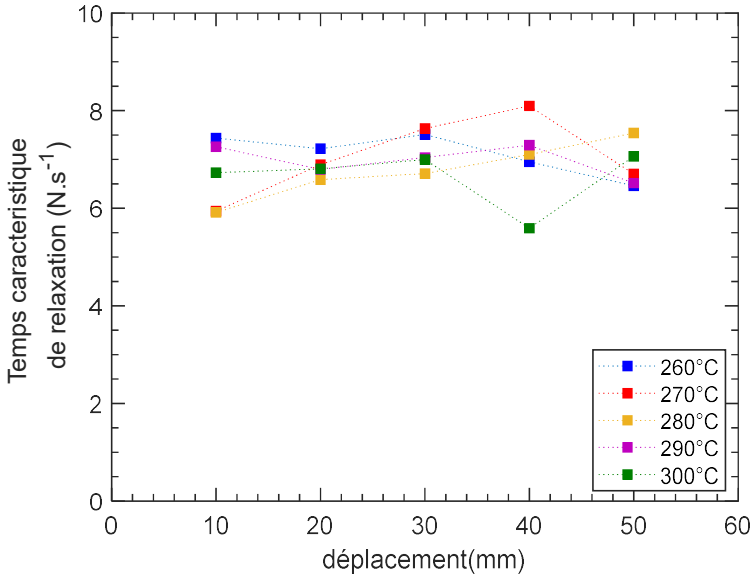
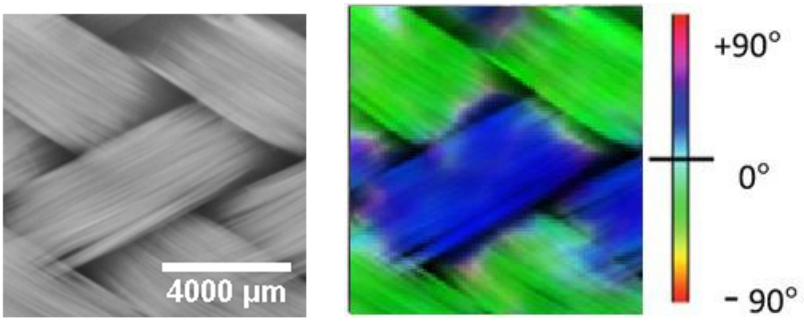


Figure 2.22 Temps caractéristique de relaxation (a) évolution en fonction de la température et (b) en fonction du niveau de déformation.

2.5.2. Mésostructures induites par le cisaillement plan

(a) Angle de cisaillement

Les micrographies illustrées sur les figures 2.23a-b correspondent à une image d'une cellule élémentaire extraite d'une éprouvette déformée à 280°C, avant et après analyse de l'angle de cisaillement localement. Elles montrent que les fils de chaîne et trame ont deux directions d'orientation privilégiées bien distinctes.



(a) (b)

Figure 2.23 Bias-extension test à 280°C, (a) coupe horizontale d'une cellule de base en niveaux de gris (b) montrant les orientations des fils de chaîne et trame.

L'évolution typique de l'angle de cisaillement moyen dans des cellules élémentaires calculée pour chacune des trois régions d'intérêt mentionnées ci-dessus est présentée dans la figure 2.24. La barre d'erreur fournit des informations sur la fluctuation de l'angle de cisaillement à travers l'épaisseur (direction z). Avec une variation maximale de 2 ° par rapport à la valeur moyenne en ROIa (respectivement 4 ° en ROIb et 5 ° en ROIc), on peut en conclure que l'angle de cisaillement est sensiblement le même pour toutes les couches du pré-imprégné qui subissent la même déformation globale de cisaillement. Ainsi, pour une caractérisation rapide de l'angle de cisaillement d'un composite multicouche, on peut se limiter à une seule mesure dans le plan de l'échantillon. De plus, il a été constaté que l'angle de cisaillement est uniforme dans la zone centrale de l'échantillon, contrairement à ROIb et ROIc.

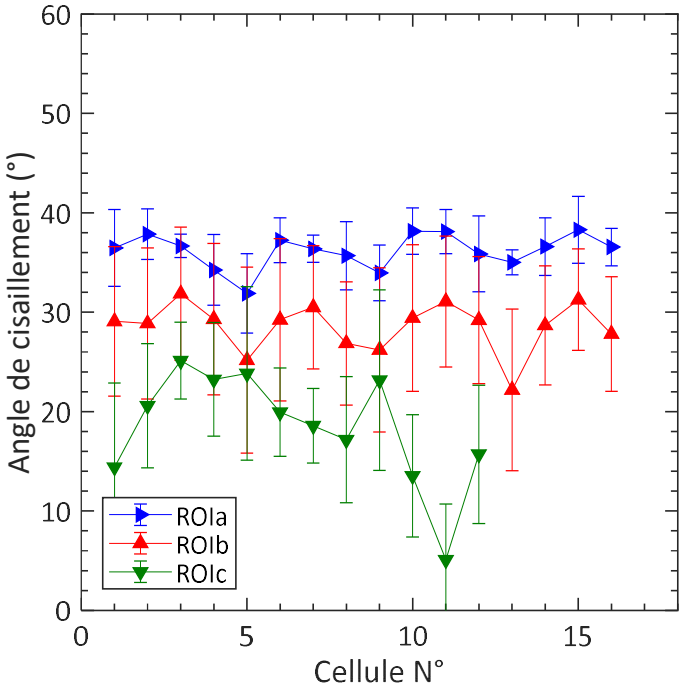
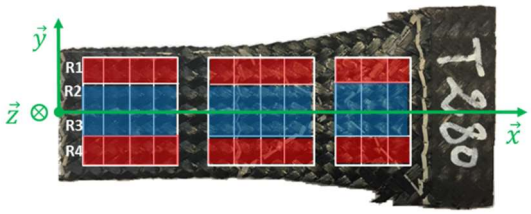


Figure 2.24 Angle de cisaillement mesuré dans trois régions d'intérêt d'une éprouvette testée à 280°C.

La figure 2.25b montre l'évolution de l'angle de cisaillement sur la longueur de l'échantillon, à la fois au centre de l'échantillon (valeurs moyennes des cellules des deux lignes au milieu, bleu) et à proximité de ses faces latérales (valeurs moyennes dans les cellules des colonnes latérales rouges). Il est à noter que l'angle de cisaillement a diminué à l'approche des mors. Enfin, au milieu de l'échantillon, l'angle de cisaillement mesuré est bien inférieur à celui prédit par la formule analytique (Equation 1.3) (figure 2.25c). Cet écart entre l'angle de cisaillement mesuré et estimé a été signalé dans des travaux antérieurs [4], [21], [22]. Harrison [22], [23] a suggéré que cette variabilité pouvait résulter de différentes origines telles que la préparation de l'échantillon, le pré-cisaillement de l'échantillon, la méthode utilisée pour analyser les résultats et l'apparition de plissements. Dans notre travail, l'angle de cisaillement a été mesuré automatiquement, ce qui

signifie que l'impact de l'erreur humaine est limité. En d'autres termes, on peut suggérer que cette grande variabilité pourrait résulter de la contribution des mécanismes de déformation méso et microscopiques. Le test de bias-extension implique une compétition entre différents modes de déformation multi-échelles, tels que le cisaillement plan, la déformation hors plan et la flexion des mèches.

(a)



(b)

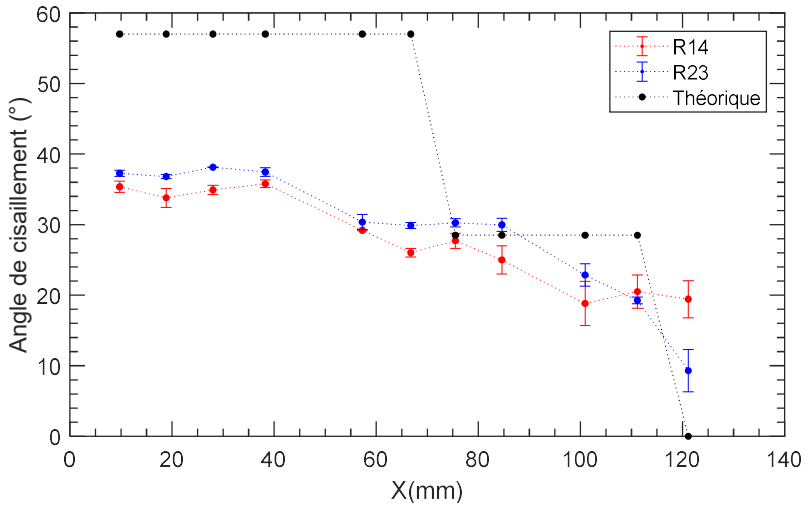


Figure 2.25 a) Éprouvette testée en bias-extension à 280°C, (b) Évolution de l'angle de cisaillement γ au long de l'éprouvette (R14 dénote les moyennes prises correspond à celles selon les deux colonnes latérales, couleur rouge et R23 sur les cellules élémentaires selon les deux colonnes centrales, couleur bleue) mesuré et comparaison avec l'angle calculé par la formule analytique.

(b) Fraction volumique de mèches et épaisseur locales

La figure 2.26 montre les cartes de fraction volumique de mèches et d'épaisseur dans les trois zones analysées de l'éprouvette déformée à 280°C. Ce graphe illustre de fortes hétérogénéités de mésostructures observées le long de l'éprouvette cisaillée. Ils montrent cependant que dans la zone centrale de l'éprouvette, la fraction volumique de mèches et l'épaisseur sont pratiquement constants. En dehors de cette zone, le taux de mèches est plus faible que dans la zone centrale et l'épaisseur plus grande. Cette tendance est confirmée par l'évolution des descripteurs

normalisés taux de mèches ⟨Ø⟩ et épaisseur ⟨t⟩ selon l'axe longitudinal de l'éprouvette (figure 2.27).

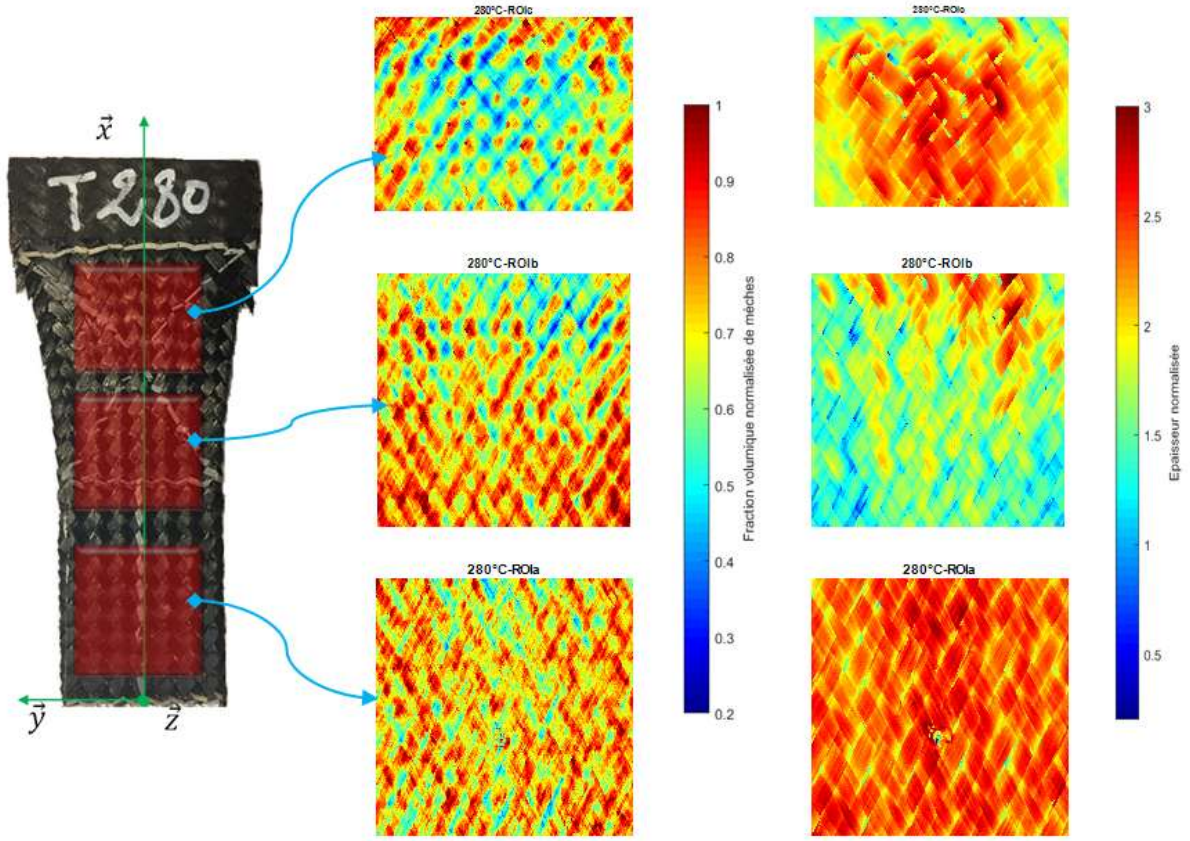
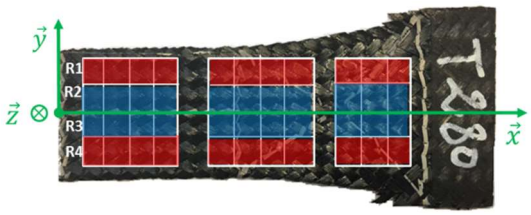
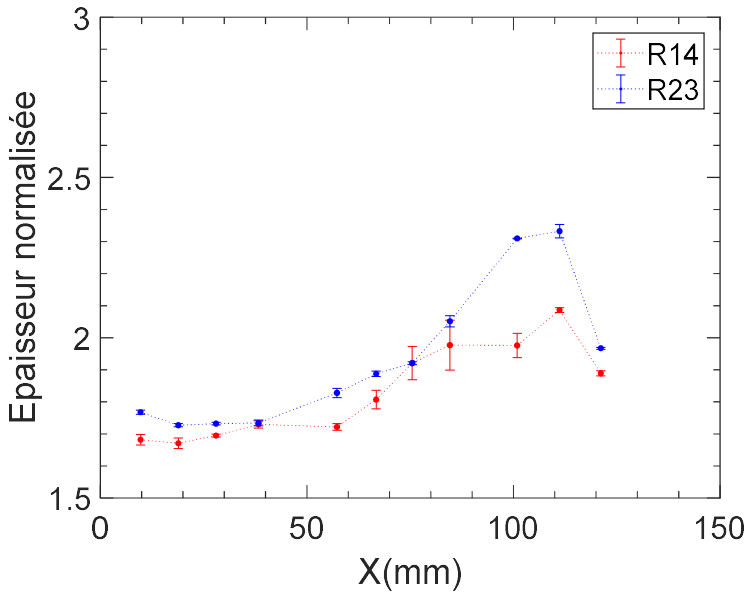


Figure 2.26 Bias-extension test à 280°C. Cartes 2D du taux volumique de mèches et d'épaisseur locale moyennée par rapport aux valeurs initiales et calculées pour les trois régions d'intérêt ROIa, ROIb et ROIc découpées depuis l'éprouvette conformément à la cinématique de l'essai de bias extension.

(a)



(b)



(c)

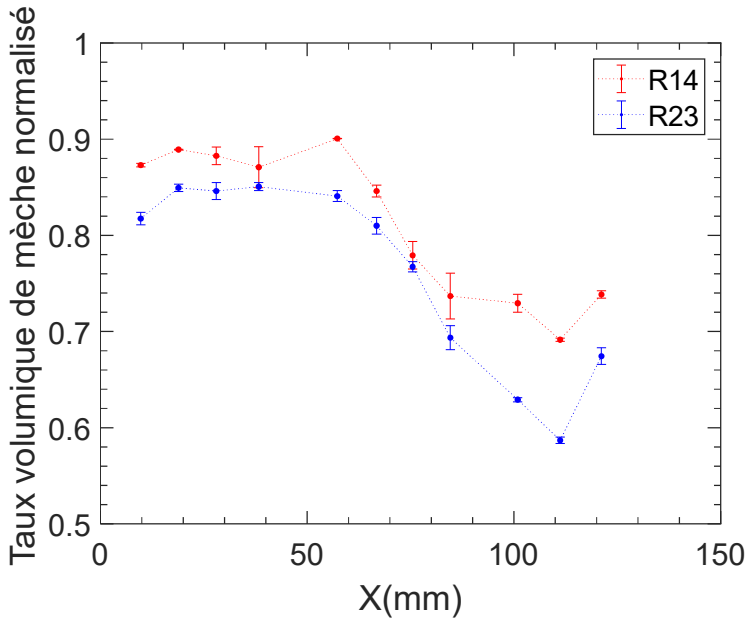


Figure 2.27 a)Éprouvette testée en bias-extension à 280°C, (b) variation d'épaisseur moyennée par cellule élémentaire et le long de l'éprouvette, (c) variation du taux volumique de mèches normalisé moyenné par cellule élémentaire et le long de l'éprouvette.

À partir de cette figure, nous déduisons :

- La diminution progressive de la fraction volumique de mèche le long de l'axe x. Dans la zone centrale où les angles de cisaillement sont les plus élevés et presque uniformes, la fraction volumique de mèches a diminué d'environ 10% dans les bords et de 15% au centre de l'échantillon. Dans les ROIb et ROIc où l'angle de cisaillement est inférieur, la fraction volumique de mèches diminue plus rapidement jusqu'à atteindre 30% au niveau des bords (respectivement 40% dans la partie centrale).
- Quelle que soit la zone considérée, la fraction volumique de mèches est bien plus faible que sa valeur initiale. Ceci montre qu'au cours de l'essai de bias-extension, des pores ont été induits dans l'éprouvette qui en était initialement quasi-exempte. Cette déconsolidation substantielle du réseau fibreux s'accompagne naturellement d'une très forte augmentation de l'épaisseur de l'éprouvette, entre 50 et 100% selon la zone considérée.
- La fraction volumique de mèches est directement associée à la teneur en porosité, puisqu'aucun écoulement de résine n'a été observé au cours de la campagne d'essais.
- Plus l'angle de cisaillement est élevé, plus la fraction volumique de mèches est faible et, par suite, plus la teneur en pores est élevée. L'angle entre la chaîne et la trame pourrait piloter les mécanismes d'écoulement, tels que la création, la perte et la coalescence des pores.
- L'épaisseur normalisée augmente significativement le long de l'échantillon. Localement, l'augmentation de l'épaisseur a varié entre 50 % et 250 %. L'augmentation la plus significative étant obtenue à l'approche des mors (ROIc).
- Enfin, les graphes montrent que la déconsolidation est très marquée près des mors. L'hétérogénéité du champ de contraintes dans cette région procure naturellement des tensions de mèches qui accentuent la décohésion du stratifié.

(c) Effet de la température

Nous avons reporté sur la figure 2.28 l'évolution des trois descripteurs mésostructuraux précédents en fonction de la température des essais. Les tendances générales observées lors de l'essai à 280°C se confirment qualitativement pour les autres températures. Cependant, quelques différences ont été observées pour les températures d'essai les plus basses 260 et 270°C, montrant une nouvelle fois le rôle important de la matrice et de sa viscoélasticité thermo-dépendante sur la réponse mécanique des pré-imprégnés.

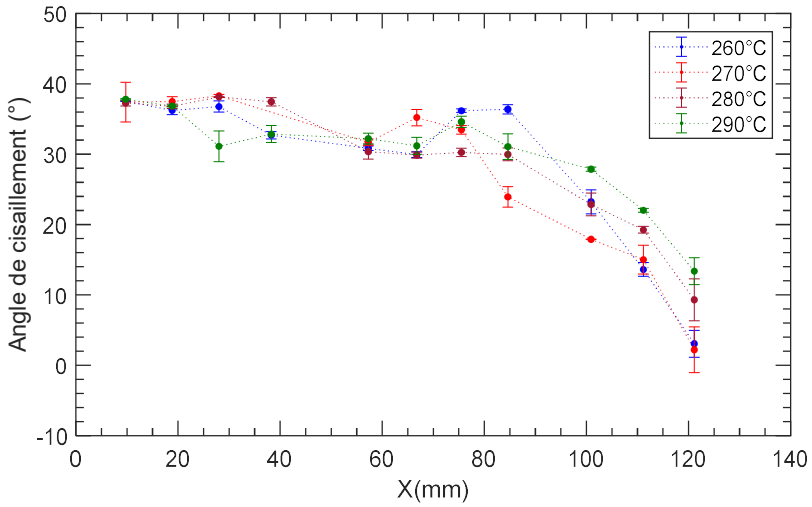
Dans la zone centrale, la température n'a pas d'effet notable sur l'évolution de l'angle de cisaillement ou de l'épaisseur.

Par contre, l'effet de la température est nettement plus marqué dans les zones proches des extrémités de l'éprouvette de bias-test. Dans ces zones, étrangement l'épaisseur, augmente d'autant plus que la température est faible.

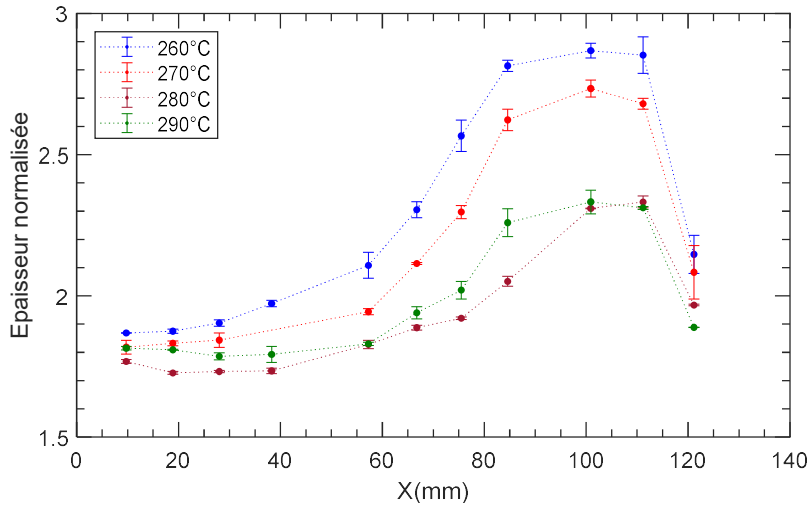
Il faut noter que lorsqu'un déplacement de 10 mm est imposé, quelle que soit la température, c'est la déformation des zones près des bords qui subit les plus grandes distorsions. On le constate bien avec la mesure de l'angle de cisaillement pour une température de 270°C avec une abscisse X=100 mm qui est inférieur aux angles des autres températures de l'ordre de 6 à 8°.

Avec cet essai, il faut alors veiller à ne pas porter de conclusions hâtives sur le comportement en cisaillement plan car la réponse brute de l'essai est sensible aux effets de bords.

(a)



(b)



(c)

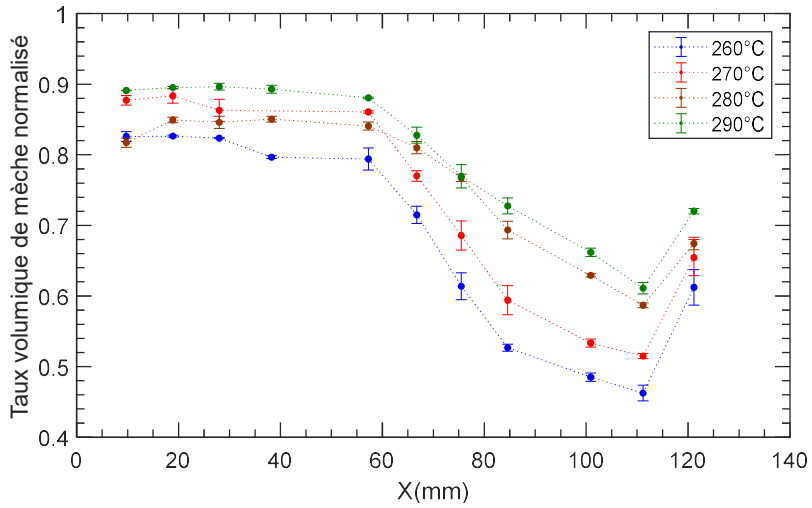


Figure 2.28 Évolution de l'angle de cisaillement (a), de la fraction de mèche (b) et de l'épaisseur (c) le long des éprouvettes déformées à différentes températures

2.5.3. Micromécanismes de déformation des fibres

La figure 2.29 montre les courbures mesurées κ le long de l'abscisse curviligne des différentes mèches extraites. À partir de ces graphes, on peut constater que lorsque le pas de discrétisation Δs est faible, les courbures sont très bruitées et non représentatives de la mèche. Par contre lorsque Δs est très élevé, les oscillations de la courbure diminuent considérablement avec des valeurs moyenne de κ sous estimées. Ces tracés confrontés aux résultats de la figure 2.16 (ligne moyennes dans le repère de Frenet) montrent qu'une valeur d'espacement $\Delta s = 200$ vx pourra être choisie pour la mesure des courbures.

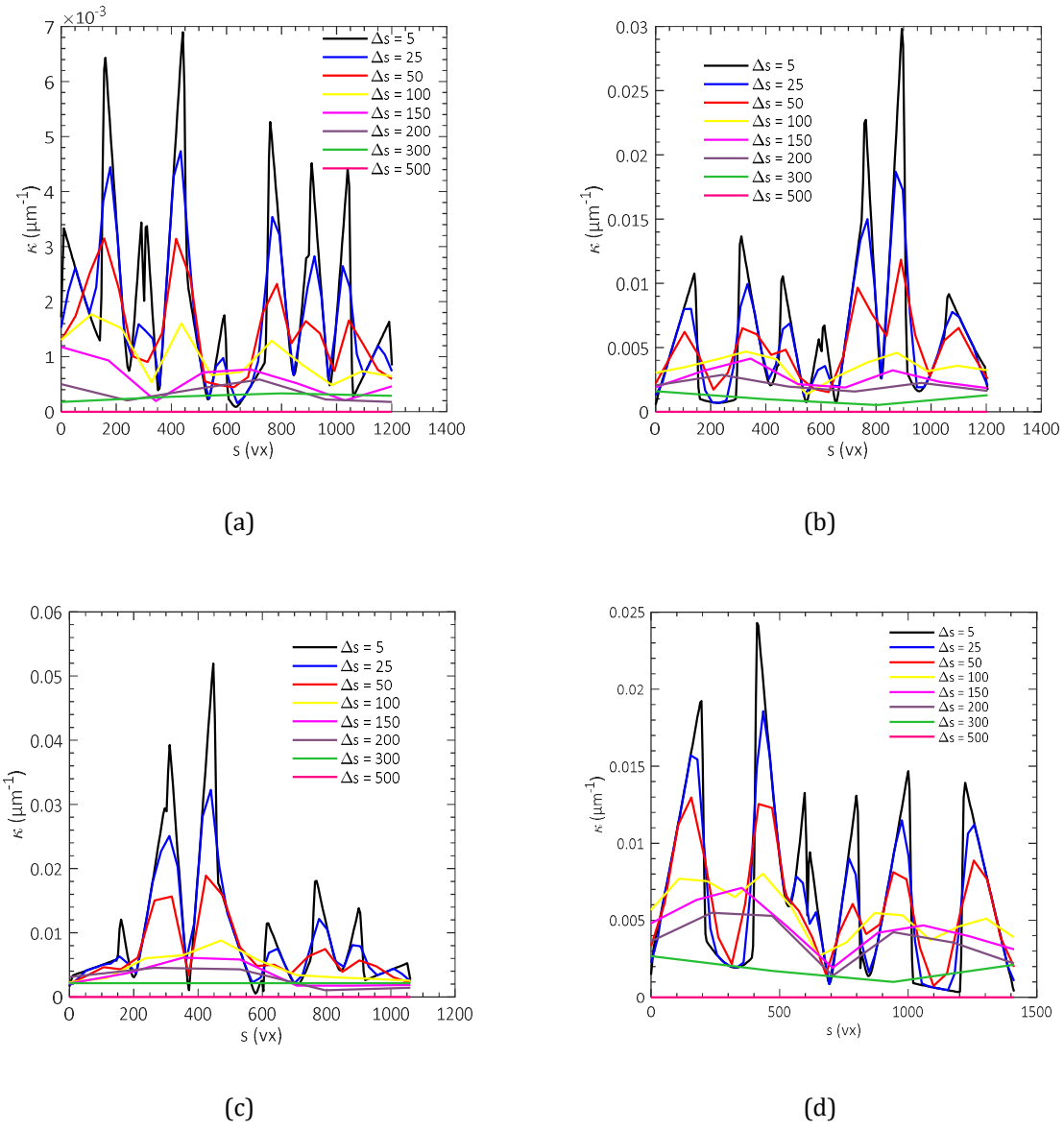


Figure 2.29 Courbure κ (μm^{-1}) vs abscisse curviligne s (vx) pour les 4 mèches (a) à la configuration initiale (non déformée), (b) de ROIa, (c) de ROIb et (d) de ROIc.

La figure 2.30 propose une comparaison entre les courbures des différentes mèches pour un pas de discrétisation $\Delta s = 200$ vx. Ce résultat est en bonne conformité avec les résultats de caractérisation de la mésostructure. Selon ces derniers, la déformation de cisaillement induit un important phénomène de déconsolidation (augmentation de l'épaisseur du stratifié) dans la zone la moins cisaillée de l'éprouvette (ROIc). Cette importante déformation hors plan est alors due principalement à la mise en tension de certaines mèches qui en obligent d'autres à se courber de manière importante.

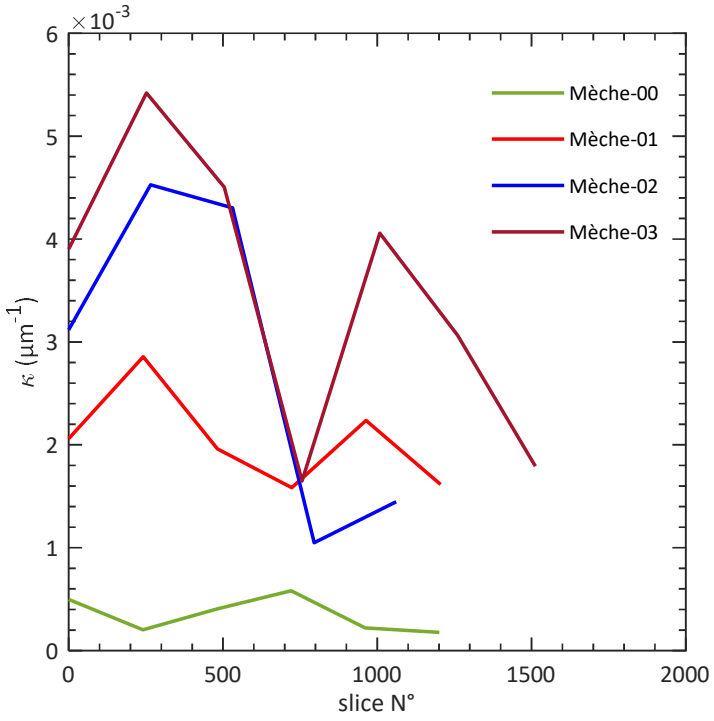


Figure 2.30 Synthèse des courbures mesurées des mèches extraites conformément à la cinématique de l'essai de bias-extension, Mèche-00 (état initial), Mèche-01 (ROIa), Mèche-02 (ROIb) et Mèche-03 (ROIc).

2.6.Conclusion

Nous avons présenté une caractérisation thermomécanique du comportement en cisaillement plan d'un stratifié à matrice thermoplastique et à renforts de fibres continues. Des essais de bias-extension réalisés dans des conditions en accord avec le procédé industriel ont permis de mettre en exergue les rôles de la matrice et de la température sur le comportement mécanique. Il a été montré que la température contribue fortement au comportement en cisaillement plan.

La caractérisation thermomécanique est complétée par des essais ex situ par tomographie à rayons X. Grâce aux observations rendues possibles par cet outil, trois descripteurs de la mésostructure (angle de cisaillement, taux volumique de mèches et épaisseur) ont été établis et analysés. Ils ont mis en évidence la complexité et l'importance des évolutions mésostructurales induites par le cisaillement plan. Afin de mieux comprendre ces changements, des observations

plus fines ont permis d'identifier des micromécanismes de déformation complexes à l'échelle des mèches.

Les résultats pourront servir de base à la formulation d'un modèle de comportement pour la mise en forme des pré-imprégnés thermoplastiques à renforts fibres continues. De plus, la méthodologie de caractérisation de l'architecture fibreuse à deux échelles pourra servir à mieux comprendre les mécanismes mis en jeux lors de la transformation des pré-imprégnés sur des pièces industrielles.

Références

[1] X. Tardif *et al.*, « Experimental study of crystallization of PolyEtherEtherKetone (PEEK) over a large temperature range using a nano-calorimeter », *Polym. Test.*, vol. 36, p. 10‑19, 2014.

[2] M. Liu, Q. Zhao, Y. Wang, C. Zhang, Z. Mo, et S. Cao, « Melting behaviors, isothermal and non-isothermal crystallization kinetics of nylon 1212 », *Polymer*, vol. 44, nº 8, p. 2537‑2545, 2003.

[3] C. A. Wilkie, « TGA/FTIR: an extremely useful technique for studying polymer degradation », *Polym. Degrad. Stab.*, vol. 66, nº 3, p. 301‑306, 1999.

[4] P. Boisse, N. Hamila, E. Guzman-Maldonado, A. Madeo, G. Hivet, et F. Dell'Isola, « The bias-extension test for the analysis of in-plane shear properties of textile composite reinforcements and prepregs: a review », *Int. J. Mater. Form.*, p. 20-pages, 2016.

[5] N. Otsu, « A Threshold Selection Method from Gray-Level Histograms », *IEEE Trans. Syst. Man Cybern.*, vol. 9, nº 1, p. 62‑66, janv. 1979.

[6] M. J. Emerson, K. M. Jespersen, P. S. Jørgensen, R. Larsen, et A. B. Dahl, « Dictionary based segmentation in volumes », présenté à Scandinavian Conference on Image Analysis, 2015, p. 504‑515.

[7] M. Krause, J. M. Hausherr, B. Burgeth, C. Herrmann, et W. Krenkel, « Determination of the fibre orientation in composites using the structure tensor and local X-ray transform », *J. Mater. Sci.*, vol. 45, nº 4, p. 888, nov. 2009.

[8] Z. Püspöki, M. Storath, D. Sage, et M. Unser, « Transforms and Operators for Directional Bioimage Analysis: A Survey », in *Focus on Bio-Image Informatics*, W. H. De Vos, S. Munck, et J.-P. Timmermans, Éd. Cham: Springer International Publishing, 2016, p. 69‑93.

[9] T.-H. Le, P. J. J. Dumont, L. Orgéas, D. Favier, L. Salvo, et E. Boller, « X-ray phase contrast microtomography for the analysis of the fibrous microstructure of SMC composites », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 39, nº 1, p. 91‑103, 2008.

[10] S. R. du Roscoat, M. Decain, X. Thibault, C. Geindreau, et J.-F. Bloch, « Estimation of microstructural properties from synchrotron X-ray microtomography and determination of the REV in paper materials », *Acta Mater.*, vol. 55, nº 8, p. 2841‑2850, 2007.

[11] K. Potter, « Bias extension measurements on cross-plied unidirectional prepreg », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 33, nº 1, p. 63‑73, 2002.

[12] E. Guzman-Maldonado, N. Hamila, P. Boisse, et J. Bikard, « Thermomechanical analysis, modelling and simulation of the forming of pre-impregnated thermoplastics composites », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 78, p. 211‑222, 2015.

[13] J. Lemaitre, J.-L. Chaboche, A. Benallal, et R. Desmorat, *Mécanique des matériaux solides-3eme édition*. Dunod, 2009.

[14] M. Machado, L. Murenu, M. Fischlschweiger, et Z. Major, « Analysis of the thermomechanical shear behaviour of woven-reinforced thermoplastic-matrix composites during forming », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 86, p. 39‑48, 2016.

[15] P. Xue, X. Peng, et J. Cao, « A non-orthogonal constitutive model for characterizing woven composites », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 34, nº 2, p. 183‑193, 2003.

[16] U. Mohammed, C. Lekakou, et M. G. Bader, « Experimental studies and analysis of the draping of woven fabrics », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 31, nº 12, p. 1409‑1420, 2000.

[17] G. Hivet, E. Vidal-Sallé, et P. Boisse, « Analysis of the stress components during the forming of a textile composite reinforcement », présenté à Key Engineering Materials, 2013, vol. 554, p. 492‑500.

[18] S. G. Advani, T. S. creasy, et S. F. Shuler, « Chapter 8 Rheology of long fiber-reinforced composites in sheetforming », in *Composite Sheet Forming*, vol. 11, D. Bhattacharyya, Éd. Elsevier, 1997, p. 323‑369.

[19] S. Bickerton, M. J. Buntain, et A. A. Somashekar, « The viscoelastic compression behavior of liquid composite molding preforms », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 34, nº 5, p. 431‑444, 2003.

[20] E. Guzman-Maldonado, « Modélisation et simulation de la mise en forme des matériaux composites pré-imprégnés à matrice thermoplastique et à fibres continues », 2016.

[21] J. Cao *et al.*, « Characterization of mechanical behavior of woven fabrics: experimental methods and benchmark results », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 39, nº 6, p. 1037‑1053, 2008.

[22] J. Alsayednoor, F. Lennard, W. R. Yu, et P. Harrison, « Influence of specimen pre-shear and wrinkling on the accuracy of uniaxial bias extension test results », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 101, p. 81‑97, 2017.

[23] P. Harrison, E. Taylor, et J. Alsayednoor, « Improving the accuracy of the uniaxial bias extension test on engineering fabrics using a simple wrinkle mitigation technique », *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 108, p. 53‑61, 2018.

Chapitre 3 : Étude des frictions inter-plis

Dans ce chapitre, les cisaillement inter-plis et les frottements qu'ils engendrent sont caractérisés à l'aide d'essais de cisaillement transverse. Pour cela, un dispositif de cisaillement initialement dédié aux roches et bétons a été adapté. Des essais de cisaillement ont été ensuite réalisés sur des préimprégnés modèles élaborés en amont « à façon », avec des propriétés rhéologiques et des microstructures proches de celles des matériaux industriels. Les résultats expérimentaux ainsi obtenus mettent en valeur les rôles clés de la température, de la vitesse de glissement et de l'effort normal sur le coefficient de frottement inter-plis ainsi identifié.

Table des matières

3.1. INTRODUCTION 106
3.2. MATERIAUX ET METHODES 106
3.2.1. Pré-imprégnés modèles 106
3.2.2. Dispositif de cisaillement transverse : la BCR3D 109
3.2.3. Mise au point et dépouillement 111
3.3. RESULTATS EXPERIMENTAUX ET DISCUSSION 114
3.3.1. Influence de la température 114
3.3.2. Influence de la vitesse de cisaillement 115
3.3.3. Influence de la contrainte normale 116
3.4. CONCLUSION 117
Références 118

3.1.Introduction

Nous avons montré au premier chapitre que lors de leur thermo-estampage, les pré-imprégnés à matrices polymères thermoplastiques et à renforts tissés peuvent très souvent être soumis à des sollicitations mécaniques de type cisaillement transverse. Ce type de chargement induit des glissements, le plus souvent néfastes, entre les différents plis qui constituent ces matériaux. Il convient ainsi de bien les caractériser afin de pouvoir les anticiper, voire les éviter dans les phases de mise au point des procédés, par exemple en utilisant la simulation numérique.

La revue bibliographique du premier chapitre a montré que plusieurs auteurs se sont déjà penchés sur le problème. Différents dispositifs expérimentaux plus ou moins performants ont été mis au point ou utilisés pour cela [1]–[7] et des lois de frottements ont pu être identifiées pour certains matériaux. Dans la mesure où elle se prête parfaitement bien à cet exercice, nous proposons ici d'adapter et d'utiliser une machine de cisaillement initialement conçue pour la mécanique des joints rocheux . En outre, pour mieux contrôler les microstructures des matériaux à cisailler, ainsi que les viscosités de leur matrice, nous avons mis au point et élaboré des pré-imprégnés modèles qui imitent les systèmes industriels peu modulables de notre étude. Ce travail nous a ensuite permis de réaliser une campagne d'essais de cisaillement transverse sur ces systèmes pour identifier des lois d'évolution de frottements inter-plis.

3.2.Matériaux et méthodes

3.2.1. Pré-imprégnés modèles

Les motivations pour travailler sur des systèmes modèles sont multiples. D'une part, les températures de mise en forme des thermoplastiques industriels sont très élevées, ce qui rend les essais peu pratiques ne serait-ce que pour des questions de manipulation. D'autre part, il est difficile de bien observer leur microstructure sans avoir recours à des techniques de type tomographie à rayons X, dans la mesure où leur matrice polymère est opaque. Enfin, il n'est pas aisé de se procurer ce genre de matériaux avec des architectures particulières comme celles des bi-plis requis pour les tests de cisaillement transverse en question. Ainsi, c'est en partant de ce constat que nous avons élaboré des pré-imprégnés modèles, en mettant au point une méthodologie (Annexe 2) partiellement similaire à celles mises en œuvre par Vassal [8] puis Guiraud *et al.* [9] dans le cas des SMC modèles.

Les renforts tissés de fibres de verre utilisés pour cela sont exactement les mêmes que ceux des renforts industriels, c'est-à-dire des sergés 2×2 de mèches de filaments de verre E de 10 µm de diamètre. La matrice polymère est quant à elle un gel de paraffine transparent, utilisée à la base pour faire des bougies artisanales. Sa forte transparence nous permet de bien contrôler la qualité du processus d'imprégnation. Cette dernière est grandement facilitée lorsque le gel est porté aux

alentours de 110°C, où sa viscosité décroît fortement vers quelques Pa s. En outre, une fois refroidi à l'ambiante, le gel redevient solide ce qui permet de figer les microstructures des échantillons ainsi fabriqués. Enfin, entre la température ambiante et celle d'imprégnation, le gel se ramollit progressivement et il est possible d'ajuster, avec la température de chauffe, sa viscosité de sorte à ce qu'elle soit identique à celle des matrices polymères industrielles à hautes températures et in situ. Pour cela, nous avons caractérisé la viscosité du gel de paraffine et du PA 6-6 (polymère industriel) à différentes températures et ce en rhéométrie cône-plan usuelle.

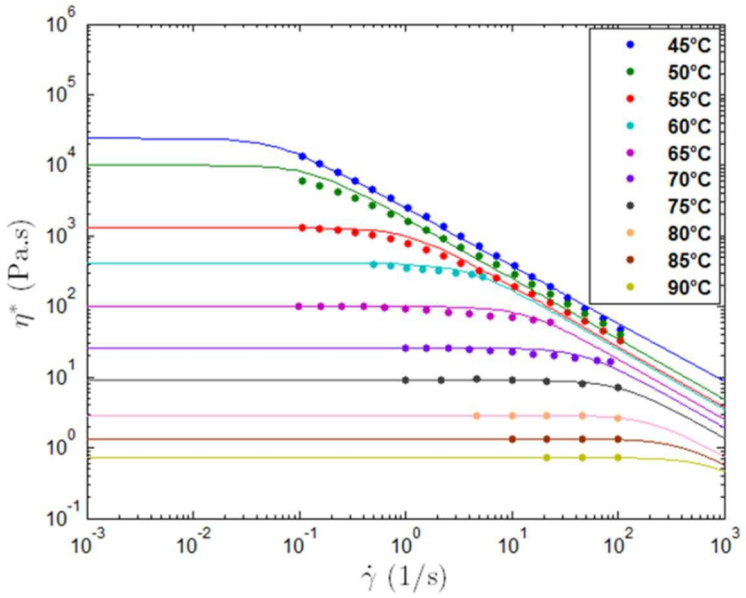


Figure 3.1 Évolution de la viscosité en cisaillement du gel de paraffine en fonction du taux de cisaillement et pour différentes températures.

Le PA 6-6 montre une viscosité en cisaillement newtonienne, c'est-à-dire constante quel que soit le taux de cisaillement. Cette viscosité décroît avec la température selon une loi d'Arrhenius :

$$\eta = \eta_{0PA} e^{B_{PA}\left(\frac{1}{T}-\frac{1}{T_0}\right)} \tag{3.1}$$

où η_{0P} est la viscosité en cisaillement à la température de référence $T_0 = 280°C$, et où la constante $B_{PA} = 2827\ K^{-1}$.

Le gel montre quant à lui une viscosité non-Newtonienne rhéofluidifiante, qui suit une loi de Carreau :

$$\eta = \eta_{gel}\left(1 - \left(\frac{\dot{\gamma}}{\dot{\gamma}_0}\right)^a\right)^{(n-1)/a} \tag{3.2}$$

où $a \approx 2$, $n \approx 0.16$ et où la viscosité η_{gel} est aussi une fonction d'Arrhenius de la température similaire à (3.1) :

$$\eta_{gel} = \eta_{0gel} e^{B_{gel}\left(\frac{1}{T}-\frac{1}{T_0}\right)} \tag{3.3}$$

où $B_{gel} = 1083\ K^{-1}$ et $T_0 = 60°C$. Cependant, comme le montre la figure 3.1, sur une très grande plage de vitesses de déformation (faibles vitesses de cisaillement), représentatives de celles que nous aurons en cisaillement transverse, son comportement est newtonien. Ainsi, avec cette hypothèse, et en se servant des lois d'Arrhenius qui caractérisent les viscosités de ces deux polymères, il est alors possible de trouver une température du gel, raisonnable, telle que sa viscosité soit égale à celle du PA 6-6 à des températures élevées correspondant à sa mise en forme (entre 280 et 310°C). Ceci est illustré sur la Figure 3.2. Par exemple, réaliser un essai de cisaillement transverse avec le gel à 70°C est équivalent à réaliser ce même essai sur le PA 6-6 mais à 290°C.

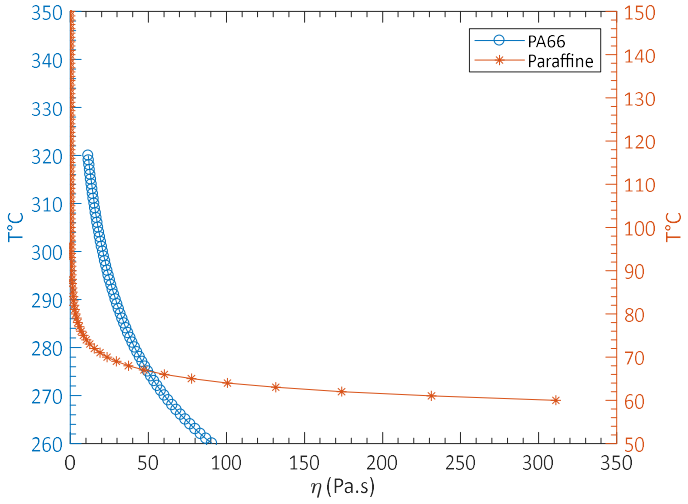
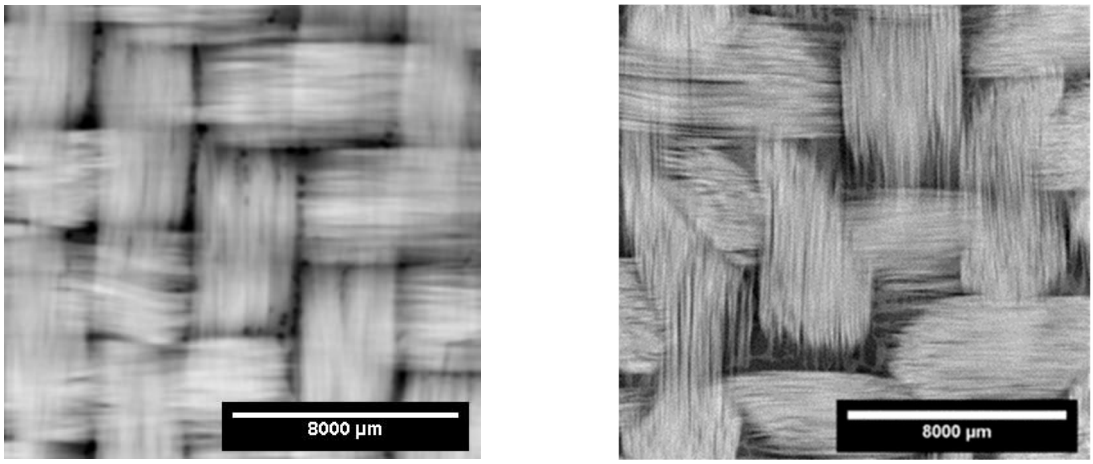


Figure 3.2 Correspondance en température entre les viscosités du PA 6-6 et du gel de paraffine.

La fabrication des échantillons prismatiques (d'épaisseur ≈ 2 mm et à surface carrée de côté $w \approx$ 80 mm) se fait dans un moule conçu à cet effet. Deux plis textiles sont d'abord découpés aux dimensions du moule, chauffé à 110°C à l'aide de cartouches résistives chauffantes. Une quantité prescrite (en excès vis-à-vis du taux de fibres visé) de gel solide est alors utilisée pour ensemencer

le moule avec parcimonie, entre les parois du moule et les plis, et entre chaque pli de manière à ce que l'imprégnation soit saturante et optimale. Le temps de fonte du gel dure quelques minutes, au-delà desquelles la partie supérieure du moule est refermée et comprimée de sorte à consolider l'ensemble gel+plis jusqu'à une épaisseur définie au préalable par des cales étalons, soit proche de la moitié des pré-imprégnés de quatre plis industriels. L'ensemble est alors refroidi à température ambiante et les plaques de pré-imprégné modèle sont démoulées. En suivant cette méthode, une série d'échantillons a été produite. Comme le montre la figure 3.3, leur microstructure fibreuse est très proche de celle des systèmes industriels, à la différence près que les matériaux modèles ne contiennent que deux plis.



(a) (b)

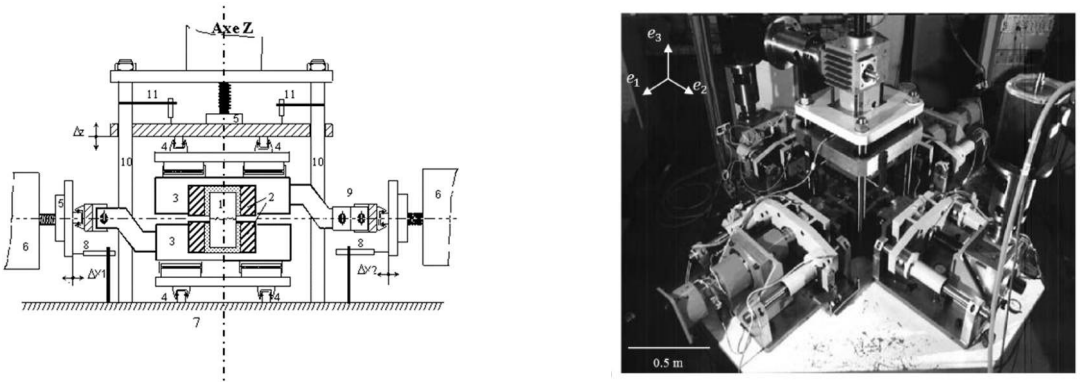
Figure 3.3 Vue en coupe tomographique horizontale de (a) composite industriel PA 6-6 à renfort fibres de verre tissées et (b) la structure du pré-imprégné modèle élaboré dans ce travail.

3.2.2. Dispositif de cisaillement transverse : la BCR3D

Les échantillons ainsi élaborés ont ensuite été cisaillés à l'aide d'une machine de cisaillement bi-axée, c'est-à-dire capable de réaliser des cisaillements sur éprouvette selon deux directions, avec régulation de la déformation ou de la contrainte normale à la direction de cisaillement. Cette machine appelée BCR3D a initialement été développée pour cisailler les joints rocheux [10], [11]. Elle a récemment été utilisée par Ferré Sentis [12] pour cisailler à température ambiante des pré-imprégnés thermodurcissables de type Sheet Moulding Compounds.

Cette machine présente deux avantages principaux pour une bonne conduite des essais de cisaillement transverse :

- Un effort normal centré sur l'éprouvette, et ceci pour toute la durée de l'essai.
- Une minimisation des rotations relatives dues aux déplacements des boîtes de cisaillement.

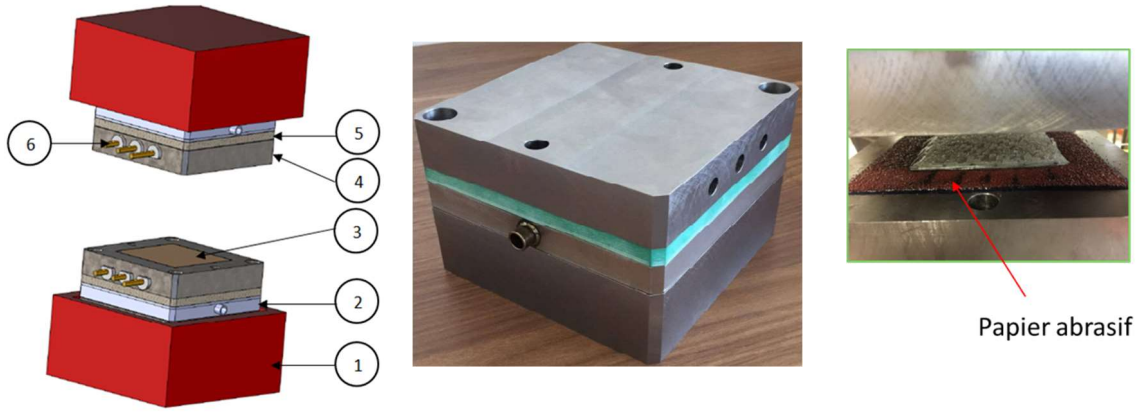


(a) (b)

Figure 3.4 Schéma de principe (a) et photographie vue de dessus (b) de la machine de cisaillement bi-axée BCR3D.

Le schéma de principe et une vue de la machine BCR3D sont représentés sur la figure 3.4. Typiquement, un échantillon ① est placé dans des boîtes de cisaillement ②. Ces boîtes sont alors guidées dans leur logement ③ entraîné symétriquement par rapport à un axe de compression (axe z), à l'aide des vérins électriques ⑥. Une deuxième chaîne cinématique orthogonale à celle-ci permet également de cisailler les échantillons dans une direction perpendiculaire. Les efforts maximaux qui peuvent être transmis le long de ces trois directions sont de 100 kN. Les vérins peuvent se déplacer à une vitesse maximale de 0.5 mm s^{-1}. Ainsi, par rapport à d'autres dispositifs de cisaillement, les avantages de la BCR3D sont (*i*) de pouvoir appliquer une contrainte ou une déformation normale de manière centrée sur la zone cisaillée, *(ii)* de réaliser des cinématiques de cisaillement avec un minimum de rotation et, de fait, un minimum de moments parasites, *(iii)* la capacité de cisailler des échantillons de grandes tailles et donc de limiter les effets de bords.

Pour réaliser des essais de cisaillement transverse avec les systèmes modèles présentés dans le paragraphe précédent, nous avons conçu une nouvelle boîte de cisaillement, sur la base de celle mise au point par Ferré Sentis[12], mais avec pour objectif supplémentaire de chauffer les échantillons jusque 100°C. La vue d'ensemble et une photographie de la nouvelle boîte de cisaillement sont données sur la figure 3.5. Dans ce dispositif, l'échantillon pré-imprégné ③ est positionné sur deux supports ④ chauffés par des crayons résistifs chauffants ⑥ de 400W (trois par support) assurant le maintien et l'homogénéité de la température de l'échantillon. Ce chauffage n'altère pas le reste de la BCR3D grâce aux plaques isolantes ⑤ et aux deux boîtes à eau ②.



(a) (b) (c)

Figure 3.5 Vue d'ensemble (à gauche), photographie vue de dessus (seule une moitié) de la nouvelle boîte de cisaillement chauffante (au centre), et zoom sur un pré-imprégné cisaillé et positionné sur son papier abrasif pour qu'il y adhère.

3.2.3. Mise au point et dépouillement

La mise en place des essais de cisaillement a demandé la mise au point d'un protocole d'essais rigoureux dont nous résumons les points principaux ci-dessous (figure 3.6).

- Pour assurer le non-glissement des échantillons au cours des essais, nous avons opté pour des substrats de papier abrasif à forte rugosité, collés sur les boîtes. En mettant des marques sur les substrats ainsi que sur les échantillons, nous avons pu vérifier et valider cette solution, comme le montre la figure 3.5c.
- Le déroulement d'un essai suit alors la séquence résumée sur la figure 3.6 : dépose de l'échantillon sur la boîte inférieure, application de l'effort normal, montée en température (environ 15 min sont nécessaires pour atteindre la consigne), réalisation des essais à effort normal constant, température constante, et vitesse de déplacement des deux moteurs horizontaux symétrique et constante.
- Durant cette séquence, différents signaux sont enregistrés (*cf 3.6)*: température des boîtes, de l'échantillon, force normale F_n et forces horizontales de cisaillement F_{x1} et F_{x2}, déplacements de cisaillement d_{x1} et d_{x2}. En supposant que les échantillons se déforment par glissement localisé à l'interface entre les deux plis qui renforcent le pré-imprégné (vérifié visuellement), la contrainte normale et la contrainte de cisaillement à l'interface peuvent s'écrire :

$$\sigma_n = |F_n|/w(w - |d_{x1}| - |d_{x2}|) \tag{3.4}$$

$$\tau = (|F_{x1}| + |F_{x2}|)/2w(w - |d_{x1}| - |d_{x2}|) \tag{3.5}$$

à partir desquelles on peut déduire un coefficient de frottement inter-plis local CoF :

$$CoF = \tau/\sigma_n = (|F_{x1}| + |F_{x2}|)/2|F_n| \tag{3.6}$$

Par la suite, nous reporterons les valeurs moyennes CoF_{mean} et maximales CoF_{max} de ce coefficient de frottement, toutes deux déduites des courbes expérimentales.

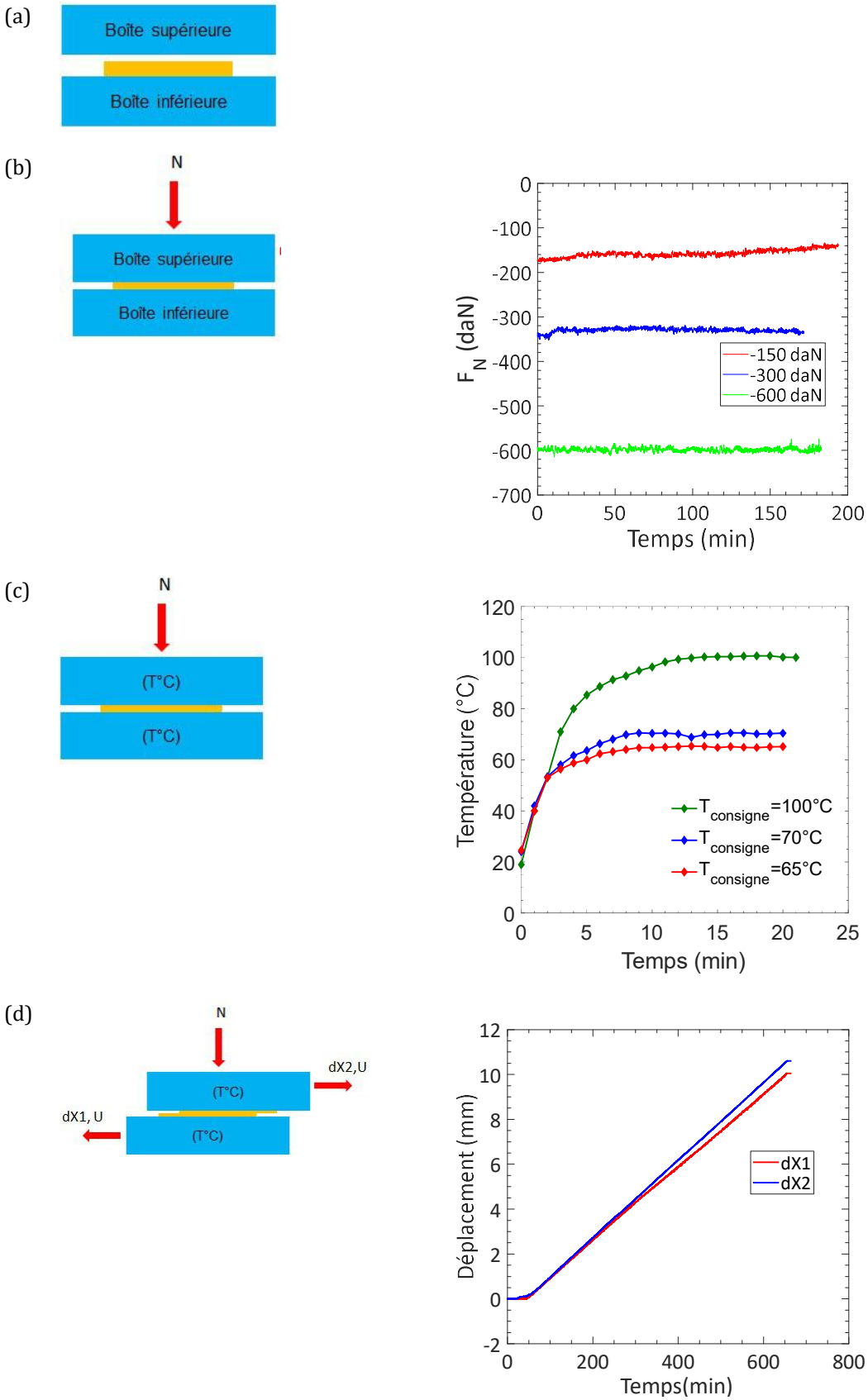


Figure 3.6 Schéma décrivant séquentiellement les étapes de l'essai de cisaillement avec quelques-unes des données enregistrées : force normale de compression (b), température du thermocouple de consigne (c), déplacements des vérins horizontaux (d).

3.3.Résultats expérimentaux et discussion

Ainsi, avec le protocole décrit ci-dessus, nous avons élaboré plusieurs échantillons avec lesquels nous avons fait des essais de cisaillement en faisant varier les paramètres suivants :

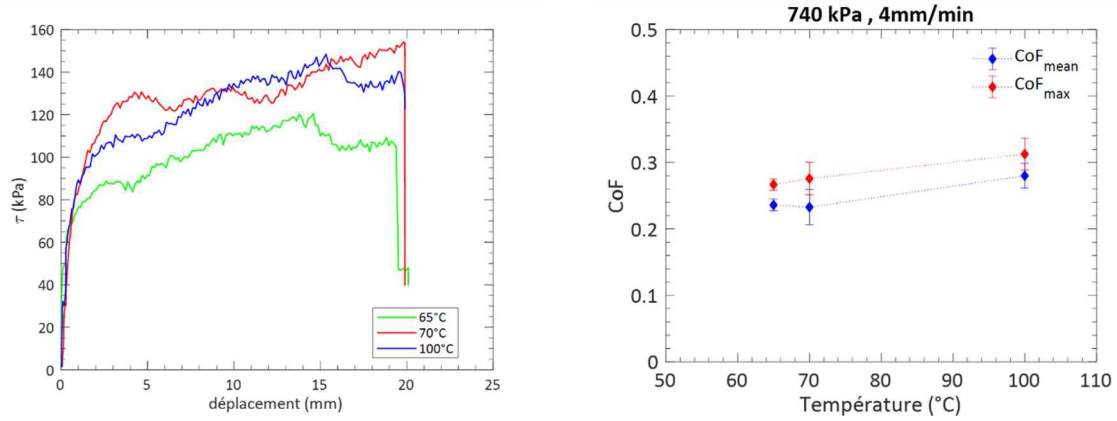
- Effort normal représentatif entre 150 et 600 daN, soit des contraintes normales nominales σ_{n0} entre 185 et 740 kPa. Ces contraintes correspondent en effet à des états de contraintes normales qui peuvent être observées dans le procédé : pré-imprégnés peu contraints normalement et donc plutôt de forme neutre ou déconsolidés, ou, à l'inverse, très contraints et (très) consolidés.
- Température : 65, 70 et 100°C qui correspondent à des températures de 280, 290 et 305°C, elles aussi représentatives du procédé de thermo-estampage sur formulation industrielle de PA 6-6.
- Vitesse de cisaillement v : 0.5, 4 et 10 mm min^{-1}

Les paragraphes suivants donnent les tendances principales issues de cette campagne.

3.3.1. Influence de la température

La figure 3.7 donne l'évolution de la contrainte de cisaillement interfaciale τ en fonction du déplacement de cisaillement $|d_{x1}| + |d_{x2}|$ pour les différentes températures étudiées, une contrainte normale $\sigma_{n0} = 740$ kPa, et pour une vitesse de cisaillement $v = 4$ mm min^{-1}. Cette figure donne tout d'abord l'allure typique des courbes que nous avons systématiquement obtenues. Dès les premiers mouvements relatifs des boîtes de cisaillement, la contrainte de cisaillement interfaciale augmente très rapidement pour atteindre un seuil où le glissement devient probant. De là, la contrainte de cisaillement augmente très légèrement avec le déplacement de cisaillement. Cet écrouissage est vraisemblablement dû à la légère augmentation de la contrainte normale σ_n au cours de l'essai (*cf.* équation 3.4).

Cette figure montre également que la température de l'essai, tout du moins dans la gamme envisagée, n'a que peu d'effets sur la réponse mécanique, et plus particulièrement sur les coefficients de frottement CoF_{mean} et CoF_{max} : une légère augmentation de ces derniers avec la température est décelable (par exemple $CoF_{mean} \propto T^{0.43}$). Confronté aux travaux de Sachs *et al.* [7], réalisés dans le cadre d'un benchmark international où il était question de caractériser le frottement acier/prepreg, les coefficients de frottement sont des fonctions décroissantes de la température. Vraisemblablement, dans notre cas, une part de la matrice pourrait avoir été expulsée en augmentant la température, du fait de l'assez forte contrainte normale, ce qui aurait eu pour conséquence d'augmenter les interactions entre plis. Des résultats similaires aux nôtres ont été obtenus par Lebrun *et al.* [5] à plus haute contrainte normale que Sachs *et al*.

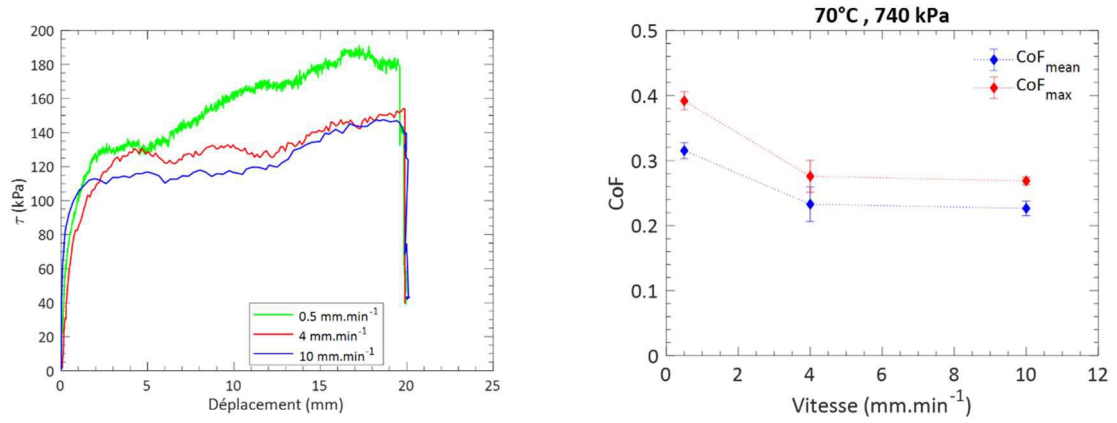


(a) (b)

Figure 3.7 (a) Courbes contrainte de cisaillement τ en fonction du déplacement de cisaillement enregistrées lors d'essais de cisaillement transverse réalisés à trois températures, avec une contrainte normal initiale σ_{n0} de 740 kPa, et une vitesse de cisaillement v de 4 mm min^{-1}. (b) Évolution des coefficients de frottements moyens et maxi correspondants.

3.3.2. Influence de la vitesse de cisaillement

La figure 3.8 donne quant à elle l'évolution de la contrainte de cisaillement τ en fonction du déplacement de cisaillement $|d_{x1}| + |d_{x2}|$ pour les trois vitesses envisagées, pour une contrainte normale nominale $\sigma_{n0} = 740$ kPa, et pour une température d'essais de 70°C. Depuis ce graphe, il est difficile de dégager une tendance claire. Cependant, il semble que dans la gamme testée, plus la vitesse de cisaillement est élevée, plus les contraintes de cisaillement, et donc les coefficients de frottement associés, diminuent (par exemple $CoF_{mean} \propto v^{-0.12}$). Une nouvelle fois, il est intéressant de noter que pour de plus grandes vitesses de cisaillement, Sachs *et al.* [7] ont noté une tendance opposée, c'est-à-dire une augmentation notable de la contrainte de cisaillement avec la vitesse. Là encore, la contrainte normale (forte dans notre cas) pourrait avoir joué un rôle tendant à diminuer le coefficient de frottement.

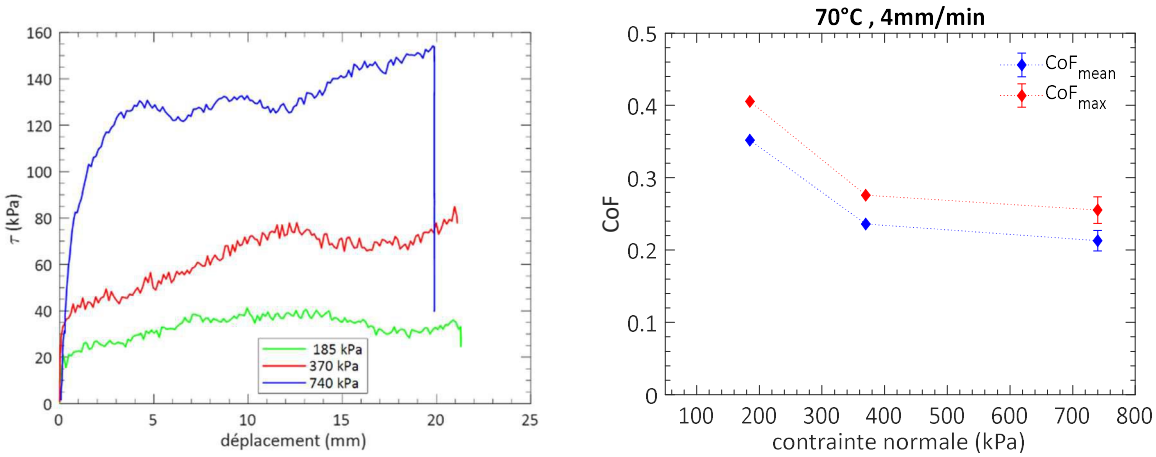


(a) (b)

Figure 3.8 (a) Courbes contrainte de cisaillement τ en fonction du déplacement de cisaillement enregistrées lors d'essais de cisaillement transverse réalisés à trois vitesses de cisaillement v, avec une contrainte normale initiale σ_{n0} de 740 kPa et une température de 70°C. (b) Évolution des coefficients de frottements moyens et maxi correspondants.

3.3.3. Influence de la contrainte normale

La figure 3.9 donne finalement l'évolution de la contrainte de cisaillement interfaciale τ en fonction du déplacement de cisaillement $|d_{x1}| + |d_{x2}|$ pour les différentes valeurs de contrainte nominale σ_{n0} testées, pour une vitesse de cisaillement $v = 4$ mm min^{-1} et pour une température d'essais de 70°C. Cette figure met clairement en exergue les forts effets de la contrainte normale. Plus σ_{n0} est élevée, plus la contrainte de cisaillement requise pour le glissement inter-plis est élevée. Ceci étant, cette augmentation n'est pas proportionnelle comme elle le serait dans le cas d'un frottement de Coulomb usuel. Le deuxième graphe de cette figure montre en effet que les coefficients de frottement mesurés ne sont pas constants et ont tendance à diminuer fortement avec la contrainte normale. Ces diminutions suivent des lois puissance en phase avec les travaux de la littérature [5,7], par exemple $CoF_{mean} \propto \sigma_{n0}^{-0.35}$. Elles peuvent être attribuées à la forte déformabilité des renforts fibreux sous l'effet de σ_n. En effet, la contrainte normale de compression σ_n pourrait consolider mais aussi aplanir les surfaces des renforts, ce qui aurait pour conséquence de diminuer les interactions entre plis.



(a) (b)

Figure 3.9 (a) Courbes contrainte de cisaillement τ en fonction du déplacement de cisaillement enregistrées lors d'essais de cisaillement transverse réalisés à trois contraintes normales nominales σ_{n0}, avec une vitesse v de 4 mm min^{-1}, et une température de 70°C. (b) Évolution des coefficients de frottements moyens et maxi correspondants.

3.4.Conclusion

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés au comportement en cisaillement transverse des pré-imprégnés à matrice thermoplastique. C'est un de leur mode d'écoulement privilégié, alors qu'il reste encore relativement peu étudié dans la littérature, vraisemblablement parce que c'est un essai techniquement difficile à mettre en œuvre.

Pour y parvenir, nous avons d'abord fait le choix stratégique de travailler sur des matériaux modèles, et de fait, *(i)* de baisser le niveau d'exigence technologique du dispositif de cisaillement et *(ii)* de rendre plus aisé le déroulement des essais et leur instrumentation. Nous avons ainsi mis au point un matériau au renfort fibreux identique à la formulation industrielle, avec une matrice polymère thermoplastique dont la rhéologie peut être mise en correspondance de celle du polymère thermoplastique industriel, par un choix approprié de sa température. Nous avons également utilisé un dispositif initialement dédié à l'étude du cisaillement des interfaces (joints rocheux à l'origine) que nous avons adapté au cas des pré-imprégnés portés à chaud pour le thermo-estampage.

Ce travail nous a ainsi permis de caractériser les mécanismes de glissement inter-plis par une première campagne d'essais qu'il conviendrait naturellement de compléter. D'ores et déjà, les conclusions suivantes peuvent être formulées.

- Pour les architectures fibreuses étudiées, il semble que les effets de température et de vitesse soient notables, mais contraires à certaines données reportées dans la littérature. Dans les deux cas, ces tendances contradictoires peuvent s'expliquer par un couplage complexe de ces effets avec ceux de la contrainte normale et ceux de l'architecture fibreuse elle-même. Des essais complémentaires devraient pouvoir spécifier davantage ces couplages.
- Nous avons également observé une forte dépendance de la contrainte de cisaillement avec la contrainte normale appliquée. Nous avons montré que le coefficient de frottement était une fonction décroissante, signe de la déformation et de l'aplanissement des plis en contact.
- Nous avons proposé des lois d'évolution des coefficients de frottement, valables dans les plages testées et directement implantables dans les logiciels de simulation du thermo-estampage.

Références

[1] D. J. Groves, "A characterization of shear flow in continuous fibre thermoplastic laminates," *Composites*, vol. 20, no. 1, pp. 28–32, 1989.

[2] R. Scherer and K. Friedrich, "Inter- and intraply-slip flow processes during thermoforming of cf/pp-laminates," *Compos. Manuf.*, vol. 2, no. 2, pp. 92–96, 1991.

[3] S. R. Morris and C. T. Sun, "An investigation of interply slip behaviour in AS4/PEEK at forming temperatures," *Compos. Manuf.*, vol. 5, no. 4, pp. 217–224, 1994.

[4] A. M. Murtagh, J. J. Lennon, and P. J. Mallon, "Surface friction effects related to pressforming of continuous fibre thermoplastic composites," *Compos. Manuf.*, vol. 6, no. 3, pp. 169–175, 1995.

[5] G. Lebrun, M. N. Bureau, and J. Denault, "Thermoforming-Stamping of Continuous Glass Fiber/Polypropylene Composites : Interlaminar and Tool–Laminate Shear Properties," *J. Thermoplast. Compos. Mater.*, vol. 17, no. 2, pp. 137–165, Mar. 2004.

[6] J. L. Gorczyca-Cole, J. A. Sherwood, and J. Chen, "A friction model for thermostamping commingled glass–polypropylene woven fabrics," *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 38, no. 2, pp. 393–406, 2007.

[7] U. Sachs *et al.*, "Characterization of the dynamic friction of woven fabrics: Experimental methods and benchmark results," *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 67, no. Supplement C, pp. 289–298, 2014.

[8] J. Vassal, "Contribution à la modélisation des propriétés physiques et rhéologiques des milieux fibreux application à la mise en forme et aux propriétés thermiques des matériaux composites à fibres courtes," 2007.

[9] O. Guiraud, L. Orgéas, P. Dumont, and S. Rolland du Roscoat, "Microstructure and deformation micromechanisms of concentrated fiber bundle suspensions: An analysis combining x-ray microtomography and pull-out tests," *J. Rheol.*, vol. 56, no. 3, pp. 593–623, 2012.

[10] J. Hans and M. Boulon, "A new device for investigating the hydro-mechanical properties of rock joints," *Int. J. Numer. Anal. Methods Geomech.*, vol. 27, no. 6, pp. 513–548, 2003.

[11] M. Boulon, "A 3-d direct shear device for testing the mechanical behaviour and the hydraulic conductivity of rock joints," presented at the Proc. Mechanics of Jointed and Faulted Rock, 1995, pp. 407–413.

[12] D. Ferre Sentis, "Rhéologie et microstructures des Sheet Moulding Compounds hautes performances au cours de leur mise en forme par compression," 2017.

Chapitre 4 : Étude des contraintes internes d'élaboration

Il s'agit dans ce chapitre de mener une caractérisation expérimentale des contraintes internes développées lors de la mise en forme d'un pré-imprégné thermoplastique. Pour cela, des mesures de l'évolution de la courbure du composite en fonction de la température via l'outil de corrélation d'images VIC-3D sont réalisées. La caractérisation expérimentale a été confrontée à une approche numérique basée sur un modèle prédictif des contraintes internes.

Table des matières

4.1. Introduction ... 120
4.2. Propriétés thermomécaniques du composite ... 120
4.2.1. Modules élastiques ... 120
4.2.2. Coefficient de dilatation thermique ... 122
4.2.3. Module de compressibilité ... 124
4.2.4. Synthèse des propriétés thermomécaniques ... 125
4.3. Théorie non linéaire des stratifiés ... 126
4.3.1. La théorie ... 126
4.3.2. Exemple d'étude ... 129
4.4. Courbures et contraintes résiduelles de fabrication ... 130
4.4.1. Mesures des courbures ... 130
(a) Constat industriel ... 132
(b) Cas d'étude ... 133
4.4.2. Comparaison expérience-simulation ... 136
4.5. Courbures et contraintes internes de service : effet de l'humidité ... 139
4.5.1. Préparation et conditionnement des éprouvettes ... 139
4.5.2. Mesures des courbures ... 142
4.6. Conclusion et perspectives ... 143
Références ... 144

4.1.Introduction

L'objet de ce chapitre est d'étudier les états mécaniques internes générés par le procédé d'élaboration. Ces états de déformations et contraintes résiduelles constituent le véritable état initial du matériau avant sa mise en service. L'approche proposée est basée sur la théorie modifiée des stratifiés qui permet de relier les courbures mesurées aux champs mécaniques que sont les déplacements, les déformations et les contraintes.

4.2.Propriétés thermomécaniques du composite

4.2.1. Modules élastiques

La DMA (Analyse Mécanique Dynamique) est un moyen expérimental permettant l'étude de l'évolution des propriétés mécaniques du matériau, soumis à des sollicitations cycliques. Elle permet aussi d'analyser la réponse du matériau par des chargements de faibles amplitudes, sous environnement contrôlé (température, humidité). Pour notre application, la DMA a été utilisée pour étudier l'évolution des modules élastiques du pré-imprégné PA 6-6 renforcé par des fibres de verre tissées (sergé 2-2), selon trois directions (Figure 4.1). L'objectif est de déterminer la dépendance des modules à la température et l'orientation des mèches. Des essais de flexion trois points sont réalisés moyennant une DMA (Mettler Toledo DMA 1) sur des éprouvettes de forme parallélépipédique de dimensions $50 \times 5 \times 2\ mm^3$. Toutes les éprouvettes ont été découpées dans une plaque composite dont la séquence d'empilement est [0°/90°/0°/90°] et ensuite étuvées selon le protocole RH0[1] recommandé par Solvay.

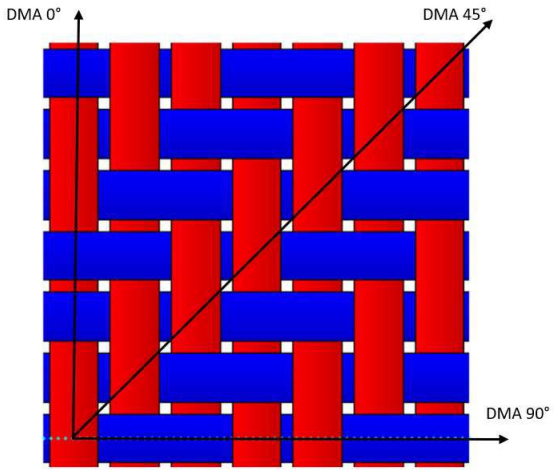


Figure 4.1 Coupe dans le plan (XY) du composite sergé 2-2 montrant les trois directions retenues pour l'analyse par DMA.

La méthode adoptée est la suivante :

- Déplacement maximal de la membrane fixé à 5 µm,

[1] RH0 : étuvage à 90°C, sous vide pendant 5 jours.

- Fréquence de mesure de 1Hz,
- Montée et descente en température régulées à 2°C/min, pour garantir une température homogène dans l'échantillon,
- Plage de température allant de 25°C à 200°C,
- Maintien en température à 200°C, pendant 10 minutes,
- Refroidissement jusqu'à 25°C.

Les résultats montrant l'évolution du module de stockage E' et du facteur de perte appelé aussi facteur d'amortissement tan (δ) sont reportés dans la figure 4.2. Les courbes moyennes avec des barres d'erreur sont données. Des erreurs moyennes de 3% sur les résultats confirment la bonne répétabilité des essais. Plus la température augmente et plus le module E' diminue, passant d'une valeur maximale de 18000 MPa à la température ambiante pour les éprouvettes orientées à 0° (respectivement 20000 MPa pour 90° et 10000 MPa pour 45°) à 11500 MPa (respectivement 13000 MPa et 2000 MPa). Le maxima de tan (δ), souvent assimilé à la température de la transition vitreuse Tg de la matrice est localisé aux environs de 70°C. Ces valeurs sont identiques à celles mesurées par Klein et al. [1].

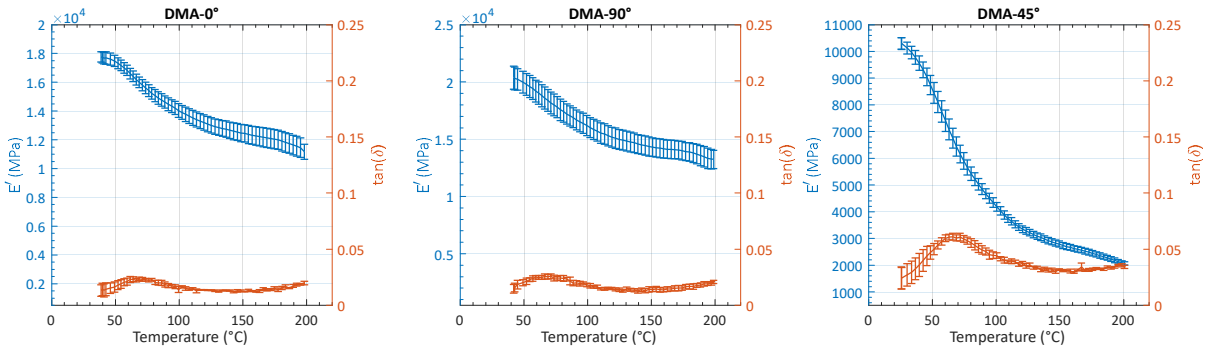


Figure 4.2 Courbes du module de stockage E' et du facteur de perte en fonction de la température et de l'orientation des mèches obtenues par DMA des éprouvettes PA 6-6/GF50.

Pour illustrer l'effet de l'orientation sur les propriétés thermoélastiques, les courbes de tendance moyennes sont données dans la figure 4.3. En termes de réponse à la sollicitation en flexion 3 points, les éprouvettes découpées à 0° et 90° doivent théoriquement avoir des modules égaux car les mèches chaîne et trame sont identiques (type de renfort, titre, nombre de fibre). Ici, un écart d'environ 2000 MPa est constaté. Ceci pourrait être dû à des défauts d'orientation initiale des mèches dans le préconsolidé ou à des défauts de découpe. Concernant les éprouvettes découpées à 45°, le module E' est largement en dessous de ceux à 0° et 90°, soit une chute d'environ 50 % par rapport à celui mesuré à 0°.

Dans la suite de cette étude, étant donné que la caractérisation est faite à une basse fréquence (1 Hz), on fait l'hypothèse que le module de stockage E' est égal au module de Young du composite.

On considère ainsi que le module de Young longitudinal (E_L) est celui mesuré à 0° et que le module transversal (E_T) est celui mesuré à 90°.

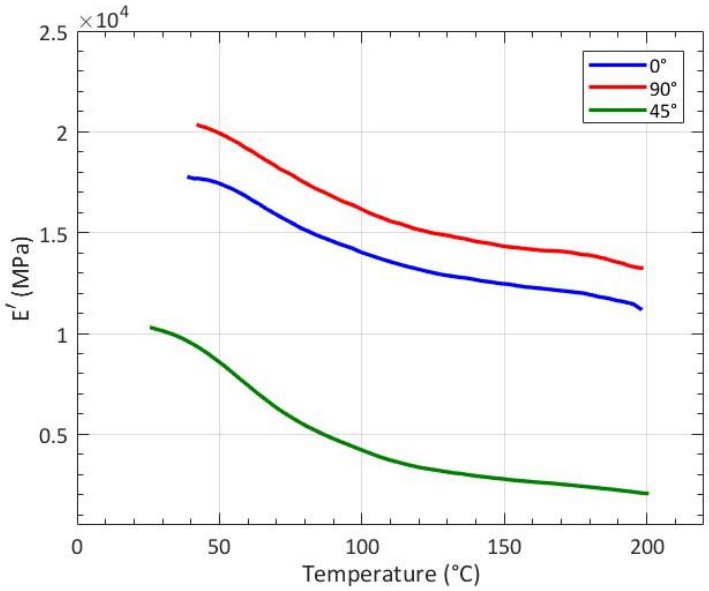


Figure 4.3 Courbes du module de stockage E' mesuré en DMA en fonction de la température montrant l'effet de l'orientation, à une fréquence de 1Hz.

4.2.2. Coefficient de dilatation thermique

La dilatation thermique est un phénomène physique engendré par une élévation de la température. Dans le cas des matériaux composites, le contrôle de celle-ci est de première importance puisqu'elle influe sur de nombreux paramètres matériau [2]. Dans notre cas, la quantification de ce phénomène est réalisée grâce à des mesures dilatomètriques réalisées sur des échantillons préconsolidés de PA 6-6 à renfort fibres de verre tissées, préalablement étuvées[2]. Les éprouvettes découpées à 0° et 45°, avec des bases carrées et une longueur initiale de 43 mm sont caractérisées. Les essais sont réalisés via un dilatomètre linéaire de type L75HS500LT Linséis (LTEN, Nantes).

La méthode adoptée est la suivante :

- Plage de température de 20°C à 200°C,
- Vitesse de chauffe 2 K/min,
- Isotherme à 200°C pendant 10 minutes.
- Refroidissement jusqu'à l'ambiante à 2 K/min.

[2] Sauf indication contraire, tout étuvage est réalisé selon le protocole RH0 recommandé par Solvay.

- Effort de 200 mN initialement appliqué par le piston sur la base de l'éprouvette.

Le déplacement du piston enregistré en fonction de la température est relié à la variation de longueur des éprouvettes subissant un changement de température : on peut ainsi caractériser la dilatation thermique linéique. La variation de longueur ΔL, exprimée en µm, par rapport à la longueur initiale de l'éprouvette L_0 (en mm) est donnée dans la figure 4.4a. Le coefficient de de dilatation thermique correspondant est calculé par la relation :

$$CTE = \frac{1}{L_0}\frac{\Delta L}{\Delta T} \tag{4.1}$$

Tout d'abord, nous tenons à préciser que faute de régulation thermique associé au dispositif utilisé, les premiers point de mesure, soit 15 °C au-dessus de la température initiale, sont à exclure de l'interprétation.

D'après les figures 4.4a-b, nous constatons que l'évolution des deux grandeurs présentées n'est pas la même que l'on soit au-dessous ou au-dessus de la Tg (mesurée par DSC et DMA aux alentours de 70 °C). En fait, le passage d'un état caoutchoutique à un état vitreux implique une diminution du coefficient de dilatation thermique. Par ailleurs, nous remarquons que les valeurs de CTE à 0°, comme attendu, sont inférieures à celles à 45° [3].

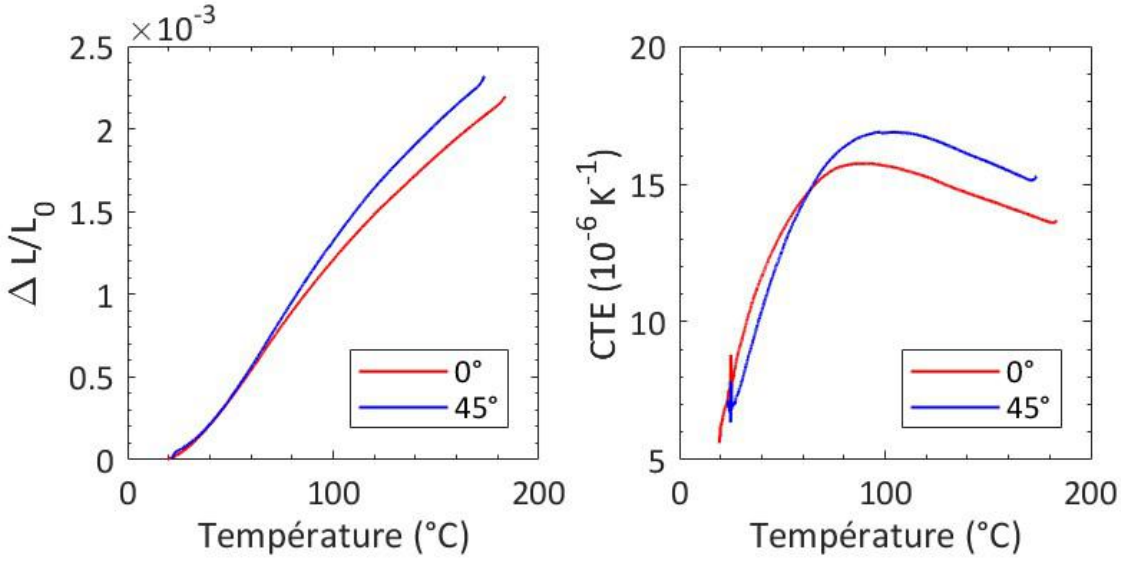


Figure 4.4 Essais de dilatométrie réalisés sur un pré-imprégné de PA 6-6 à renfort fibres de verre tissées.

4.2.3. Module de compressibilité

Lors du refroidissement du composite après sa mise en forme, une évolution de son volume due majoritairement aux retraits thermiques est généralement observée [4], [5]. Il nous faut donc une relation d'état susceptible de relier le changement de volume à la température : le module de compressibilité K. Par définition, il peut être exprimé sous la forme :

$$K = -V_0 \frac{\Delta P}{\Delta V} \tag{4.2}$$

V_0 est le volume de référence à la pression P_0, ΔP est la variation de pression et ΔV est la variation du volume correspondant.

Ce paramètre peut être estimé à partir des courbes Pression-Volume-Température (PVT) caractéristiques de chaque polymère. Dans le cadre de cette étude, le module de compressibilité du composite est issu de deux études antérieures portant sur une matrice PA 6-6 [6], [7]. La récupération des valeurs depuis les mesures présentées dans [6], [7] est réalisée grâce à l'outil Engauge Digitizer.

D'après ces deux études, nous constatons une augmentation du module au cours du refroidissement, qui s'accélère en dépassant la Tg (Figure 4.5). À partir des valeurs issues de la littérature, on déduit une expression pour l'évolution du module de compressibilité de la matrice dans la gamme de température de 0°C à 100°C sous la forme :

$$K_m = 10^9(4.5 - 2.5 \tanh\ (0.03(T - T_g))) \tag{4.3}$$

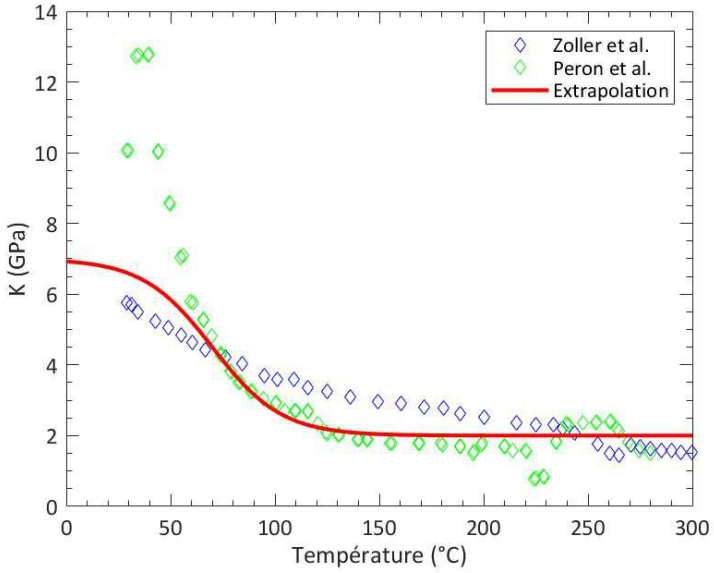


Figure 4.5 Évolutions en fonction de la température du module de compressibilité de la matrice PA 6-6 [6], [7].

En utilisant l'expression de la loi des mélanges pour une valeur de fraction volumique $V_f = 50\%$, le module de compressibilité du composite peut être déduit à partir de la relation suivante :

$$K = K_f V_f + K_m(1 - V_f) = 0.5.(K_f + K_m) \tag{4.4}$$

4.2.4. Synthèse des propriétés thermomécaniques

Le matériau étudié présente comme agent du renfort des fibres tissées de verre E dont les caractéristiques sont recensées dans le tableau ci-dessous :

Propriété	Symbole	Valeur	Unité
Module d'Young	E	75	GPa
Module de cisaillement	G	30	GPa
Module de compressibilité	K	50	GPa
Coefficient de Poisson	ν	0.25	-

Tableau 4.1 Propriétés des fibres de verre.

A partir des caractérisations des propriétés thermomécaniques du préimprégné 4 plis et de la matrice , on a pu remonter aux propriétés homogénéisées du composite PA 6-6 à renfort fibres de verre tissées pour une température comprise entre 0 et 300 °C (figure 4.6).

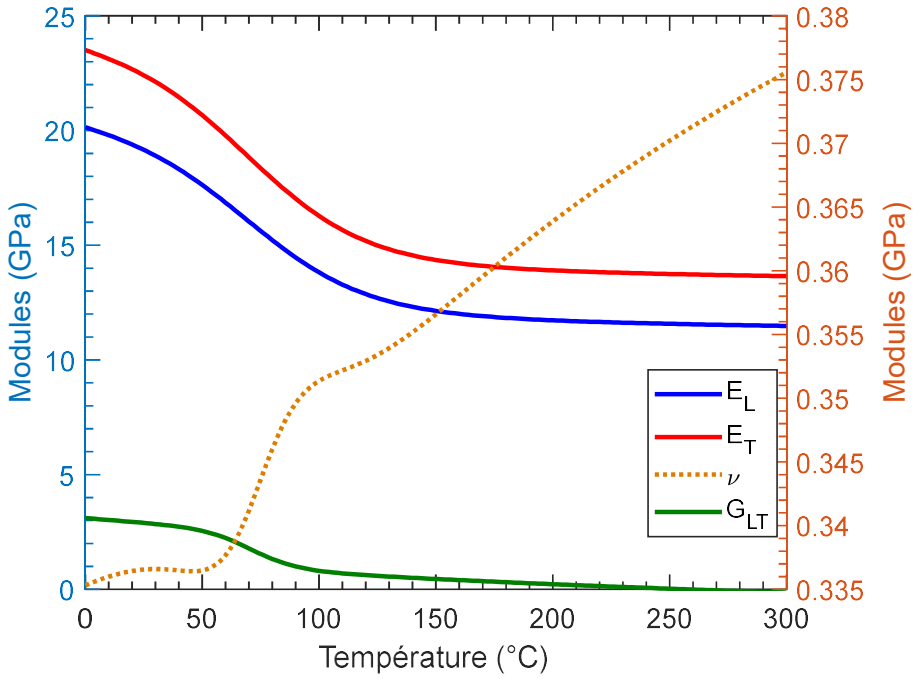


Figure 4.6 Évolutions des propriétés thermoélastiques du pré-imprégné à matrice thermoplastique et renfort fibres de verre tissées pour un taux volumique de fibres de 50 % et un ratio chaîne/trame de 0.5.

4.3.Théorie non-linéaire des stratifiés

4.3.1. La théorie

Comme énoncé dans le chapitre bibliographique, il existe principalement deux approches pour prédire les contraintes résiduelles. Nous utilisons ici une méthode basée sur la théorie modifiée des stratifiés.

D'après les travaux de Cowley et al.[8] et Hyer et al.[9], il est possible d'estimer l'évolution des contraintes résiduelles en fonction du temps et de la température par mesure de la courbure globale (déformation hors-plan) lors du refroidissement d'un stratifié.

Dans la suite, nous détaillons la démarche à suivre pour la modélisation des contraintes internes. Pour cela considérons une plaque composite stratifiée, à laquelle on associe un repère global (x, y, z), le pli central est choisi comme pli de référence. Lorsqu'elle est soumise à des sollicitations thermiques ou hygroscopiques, la plaque subit une déformation hors-plan traduite par des déplacements u^0 et v^0 du plan médian selon les axes x et y respectivement.

Si on considère les hypothèses simplificatrices suivantes :

- Le stratifié est assimilé à une plaque mince, formée d'un empilement de plis solidaires,
- L'épaisseur du stratifié est petite comparée à ses autres dimensions,
- Les dimensions de la plaque sont considérées infinies dans les deux directions du plan x et y : les effets de bord sont négligés.
- Les déformations sont petites : lois de comportement élastique linéaire,
- Les normales au plan de la plaque avant déformation restent normales au plan après déformation,
- Les efforts appliqués ne résultent que de contraintes et de moments dans le plan de la plaque : hypothèse des contraintes planes,
- L'épaisseur du composite est constante au cours du temps,
- Les interfaces fibres-matrice sont parfaites.

Alors les déplacements des points A et B (voit figure 4.7) sont exprimés en fonction du déplacement hors-plan du plan de référence w^0 sous la forme :

$$u = u^0 - z\frac{\partial w^0}{\partial x} \tag{4.5}$$

$$v = v^0 - z\frac{\partial w^0}{\partial y} \tag{4.6}$$

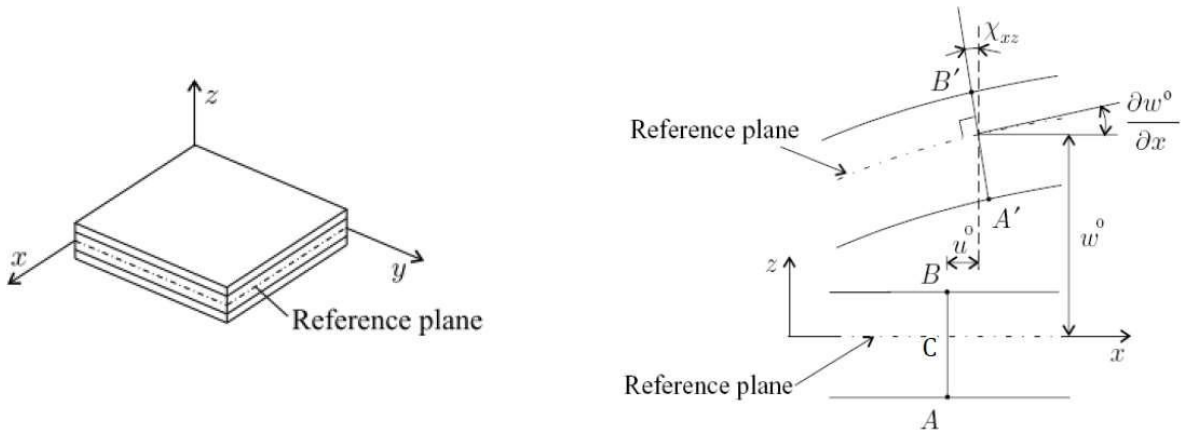


Figure 4.7 Déformation d'une plaque composite [10].

Les expressions des déformations ε_{xx} , ε_{yy} et du cisaillement γ_{xy} sont données en fonction des déplacements u et v :

$$\begin{cases} \varepsilon_{xx} = \dfrac{\partial u}{\partial x} = \dfrac{\partial u^0}{\partial x} - z\dfrac{\partial^2 w^0}{\partial x^2} \\ \varepsilon_{yy} = \dfrac{\partial v}{\partial y} = \dfrac{\partial v^0}{\partial y} - z\dfrac{\partial^2 w^0}{\partial y^2} \\ \gamma_{xy} = \dfrac{\partial u}{\partial x} + \dfrac{\partial v}{\partial y} = \dfrac{\partial u^0}{\partial x} + \dfrac{\partial v^0}{\partial y} - 2z\dfrac{\partial^2 w^0}{\partial x.\partial y} \end{cases} \tag{1.7}$$

Partant de l'hypothèse des petites déformations, l'équation (4.7) fait apparaître les trois formes de courbures des plaques : a (courbure cylindrique selon l'axe x), b (courbure cylindrique selon l'axe y) et c (dans le plan xy). Cependant, des études [11], [12] montrent que ces expressions surestiment les contraintes internes dans le cas des stratifiés asymétriques. Pour contourner ce problème, des relations non linéaires entre déplacements et déformations sont proposées. Hyer [13] a proposé une expression des composantes du champ de déformation selon les trois directions principales (x, y, z) sous une forme qui reproduit les courbures observées sur des stratifiés asymétriques (figure.4.8).

$$\begin{cases} \varepsilon_{xx} = \dfrac{\partial u^0}{\partial x} - z\dfrac{\partial^2 w^0}{\partial x^2} + \dfrac{1}{2}\left(\dfrac{\partial w^0}{\partial x}\right)^2 \\ \varepsilon_{yy} = \dfrac{\partial v^0}{\partial y} - z\dfrac{\partial^2 w^0}{\partial y^2} + \dfrac{1}{2}\left(\dfrac{\partial w^0}{\partial y}\right)^2 \\ \gamma_{xy} = \dfrac{1}{2}\left(\dfrac{\partial u^0}{\partial y} + \dfrac{\partial v^0}{\partial x} + \left(\dfrac{\partial w^0}{\partial x}\right)\left(\dfrac{\partial w^0}{\partial y}\right)\right) - z\dfrac{\partial^2 w^0}{\partial x \partial y} \end{cases} \tag{4.8}$$

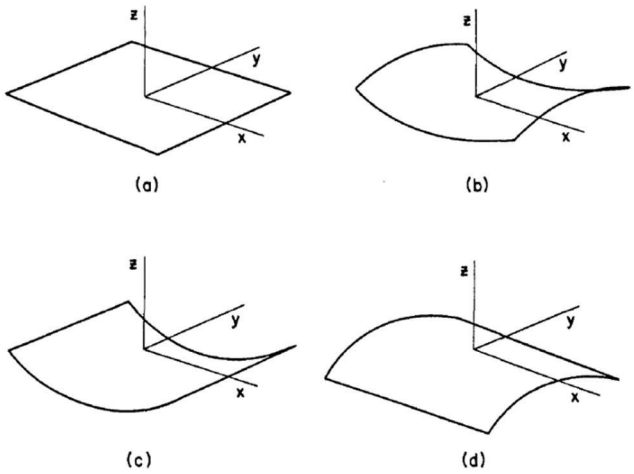


Figure 4.8 Les différents scénarios de distorsion observés, (a) Stratifié à l'état initial, (b) courbure en selle de cheval, (c) courbure cylindrique selon la direction x, (d) courbure cylindrique selon la direction y [13].

Dans la continuité des travaux de Hyer, Dano [9] a proposé les expressions suivantes des déplacements :

$$\begin{cases} u^0(x,y) = cx - \dfrac{a^2x^3}{6} - \dfrac{abxy^2}{4} \\ v^0(x,y) = dx - \dfrac{b^2y^3}{6} - \dfrac{abx^2y}{4} \\ w^0(x,y) = -\dfrac{1}{2}(a\,x^2 + by^2 + c\,xy) \end{cases} \tag{4.9}$$

Dans l'expression du déplacement hors-plan $w^0(x,y)$, figurent deux constantes a, b qui correspondent aux courbures principales dans les directions x et y respectivement. Ce sont des courbures cylindriques observées par exemple dans des empilements croisés [0°/90°]. La troisième constante c correspond à une courbure dite de torsion (twist curvature) qui peut être observée dans les empilements 0°/45°.

L'évolution des propriétés mécaniques du composite dans son repère global est prise en compte par une loi de comportement thermoélastique linéaire dont les composantes sont les tenseurs de rigidité et de dilatation thermique $\boldsymbol{C}$ et $\boldsymbol{\alpha}$.

$$\boldsymbol{\sigma} = \boldsymbol{C}\,(\boldsymbol{\varepsilon} - \boldsymbol{\alpha}\Delta T) \tag{4.10}$$

$\boldsymbol{\sigma}$, $\boldsymbol{\varepsilon}$ et $\Delta\boldsymbol{T}$ sont respectivement le tenseur de contrainte résiduelle et de déformation résiduelle, et l'incrément de température.

La fonction énergie potentielle totale de la plaque s'exprime sous la forme :

$$E_{tot} = \iiint \sigma_{ij}\varepsilon_{ij}dV \tag{4.11}$$

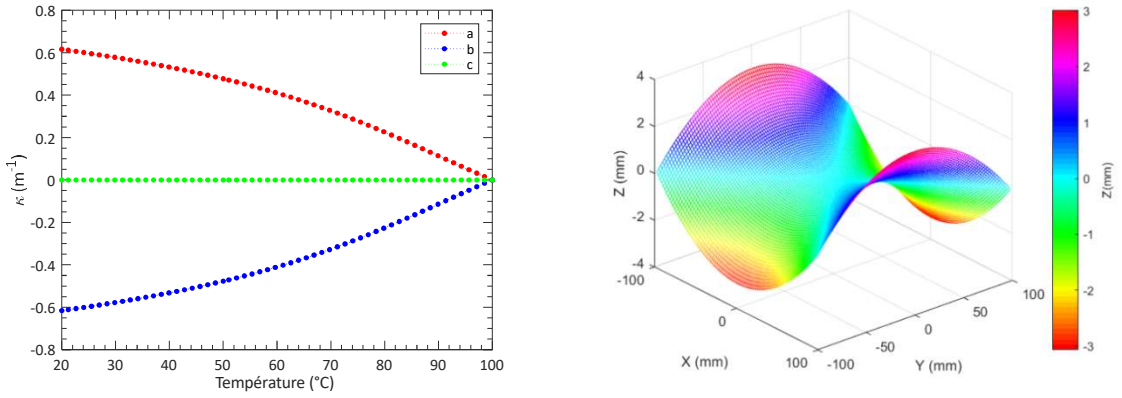
Connaissant les tenseurs de rigidité et de dilatation thermique, le tenseur de déformation et par voie de conséquence les valeurs des courbures sont déterminées par la minimisation de l'énergie.

4.3.2. Exemple d'étude

On s'est intéressé dans cet exemple à l'étude du développement des contraintes internes d'élaboration lors du refroidissement d'un pré-imprégné à matrice thermoplastique PA 6-6 et renfort fibres de verre tissées. Les paramètres retenus pour cette première simulation sont :

- Dimensions : $200 \times 200 \times 2.05$ mm^3,
- Empilement : [0°/0°/90°/90°],
- Refroidissement de 100°C jusqu'à 20°C, à une vitesse de 2 K. min^{-1},
- Ratio chaîne/trame (weight ratio warp/weft) : 80/20,

D'après les informations ci-dessus, il s'agit d'un stratifié quasi-unidirectionnel à l'échelle du pli, et asymétrique. Dans la mesure où les propriétés thermoélastiques sont anisotropes à l'échelle du pli, et du composite, des contraintes internes d'origine thermiques sont générées. Les courbures et la forme associée données respectivement dans les figures 4.9a-b confirment ce scénario. Pour l'intervalle de température considéré, une seule forme de courbure en selle de cheval (a>0, a=-b) apparaît. Ces courbures évoluent d'une façon non linéaire en fonction de la température.



(a) (b)

Figure 4.9 (a) Évolution des courbures pour un stratifié [0/0/90/90] au cours du refroidissement, (b) Représentation de la forme associée aux courbures simulées à 20°C.

À l'échelle mésoscopique la différence des retraits thermiques des plis génère des contraintes internes [14], [15]. Ces dernières peuvent être à l'origine de divers mécanismes d'endommagement, en l'occurrence les microfissures matricielles et la décohésion fibre-matrice [16], [17]. Pour l'empilement [0°/0°/90°/90°], c'est la composante transverse aux fibres σ_{22} qui est en mesure d'engendrer de tels mécanismes, car c'est dans cette direction que la résistance à la

rupture est la plus faible. La distribution des contraintes σ_{11} et σ_{22} dans l'épaisseur z à la température ambiante 20°C est représentée dans la figure 4.10a. Les valeurs pour z>0 correspondent aux plis à 90° et celles pour z<0 aux plis à 0°. Tout d'abord, nous remarquons que les contraintes sont symétriques par rapport au plan de référence, passant par le milieu du composite (z=0). Les valeurs de σ_{11} sont négatives pour les quatres plis ce qui signifient que ceux-ci sont soumis à des contraintes de compression dont l'intensité maximale est atteinte au milieu du composite. La contrainte σ_{22} est quant à elle positive. Elle atteint sa valeur maximale à z=0, c'est-à-dire à l'interface entre le 2ème et 3ème plis.

L'évolution des valeurs maximales de σ_{22} en fonction de la température est tracée dans la figure 4.10b. On note une évolution non-linéaire qui s'amplifie au passage de la température de transition vitreuse (70°C). Une valeur maximale de 10 MPa est atteinte à 20°C.

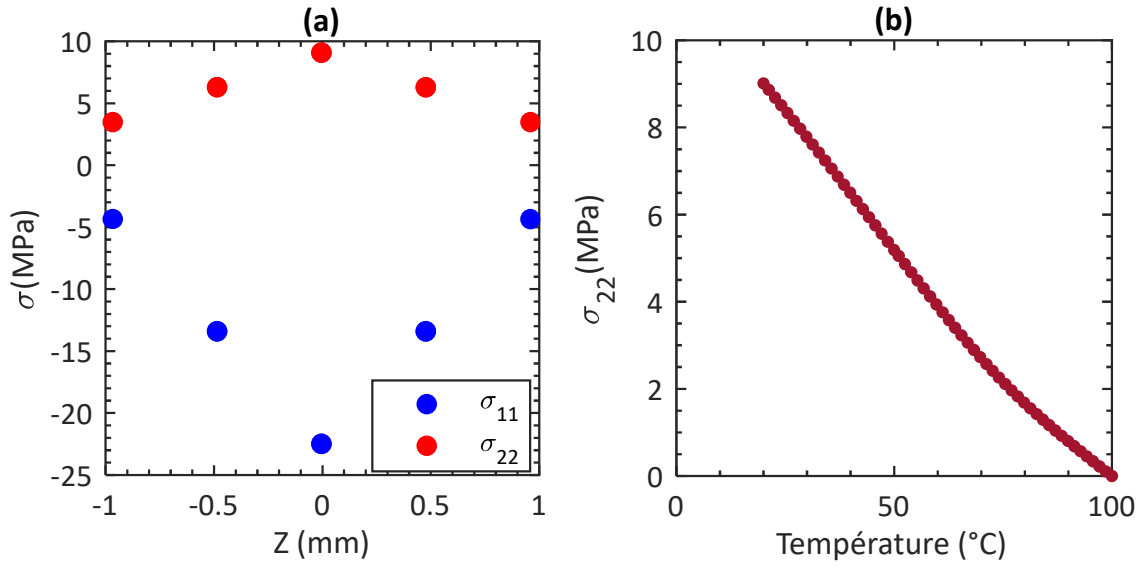


Figure 4.10 Contraintes internes induites par le refroidissement d'un stratifié quasi-unidirectionnel, (a) distribution des contraintes σ_{11} et σ_{22} dans l'épaisseur, (b) évolution de la valeur maximale de σ_{22} en fonction de la température.

4.4.Courbures et contraintes résiduelles de fabrication

4.4.1. Mesures des courbures

Plusieurs techniques optiques pour mesurer les déformations induites par les procédés d'élaboration sont reportées dans la littérature [9], [10]. Les plus utilisées sont la photoélasticité, le moiré géométrique, l'interférométrie moiré, la tomographie à rayons X, et la corrélation d'images numériques (DIC). Cette dernière est utilisée pour mesurer le champ de déformation

d'un objet déformable, à partir de la comparaison d'images numériques prises à différentes états mécaniques [18], [19].

Dans le présent travail, un système de stéréo-corrélation d'images VIC 3D à deux caméras est utilisé pour mesurer les courbures de plaques de préimprégné thermoplastique renforcé de fibres tissées. Le principe de cette technique est donné dans la figure 4.11. On distingue deux caméras CCD[3] qui permettent la détermination de la position tridimensionnelle d'un point en se basant sur le principe de la triangulation [20]. La détermination de l'intersection des deux droites optiques, passant par les centres optiques des deux caméras, et des 'points visibles' appartenant au plan de l'échantillon fournit des informations locales sur les éventuelles distorsions géométriques.

Le calcul de cette intersection impose :

- Le calibrage des caméras pour garantir leurs synchronisations par définition des bons paramètres intrinsèques des caméras (centre optique, distance focale, distorsion d'optique) et du montage (angle et distance entre les deux caméras).
- La préparation des surfaces à scanner. La stéré-corrélation fonctionne en mode suivi de cible. La surface de l'éprouvette doit être dotée d'une texture suffisamment identifiable. Un mouchetis (marquage aléatoire) est appliqué sur la surface du composite. Celui-ci doit adhérer au composite pour qu'il se déforme comme lui, et présenter un bon contraste. Le mouchetis retenu dans une étude est blanc sur fond noir appliqué avec une bombe de peinture acrylique sur la surface à imager.
- Un éclairage constant et uniforme des zones à observer. La fréquence de la lumière doit être choisie en bonne concordance avec la fréquence des caméras.

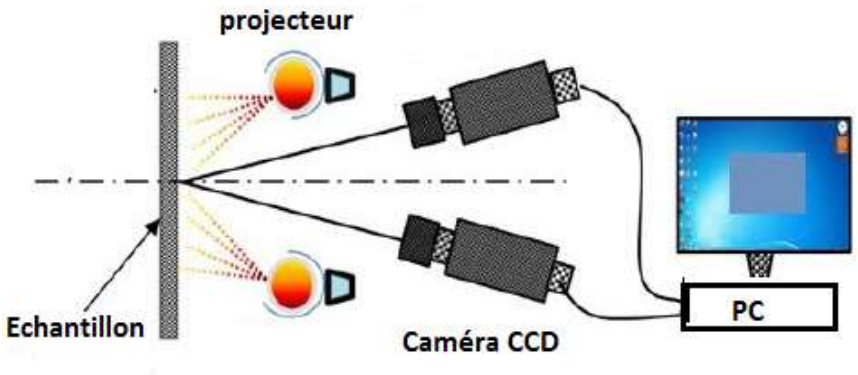


Figure 4.11 Schéma de principe du système VIC 3D à deux caméras [21].

[3] Par abus de langage, nous désignons par caméra le capteur associé à son système optique.

La corrélation d'images 3D appliquée à une plaque composite donne un nuage de points révélateur de sa géométrie extérieure. Le spectre de couleur donne l'intensité de la distribution de la déformation ou la hauteur de chacun des 'points visibles' de la surface du matériau étudié. L'exploitation de ces mesures permet le calcul des courbures et la détermination des contraintes internes de fabrication et de service.

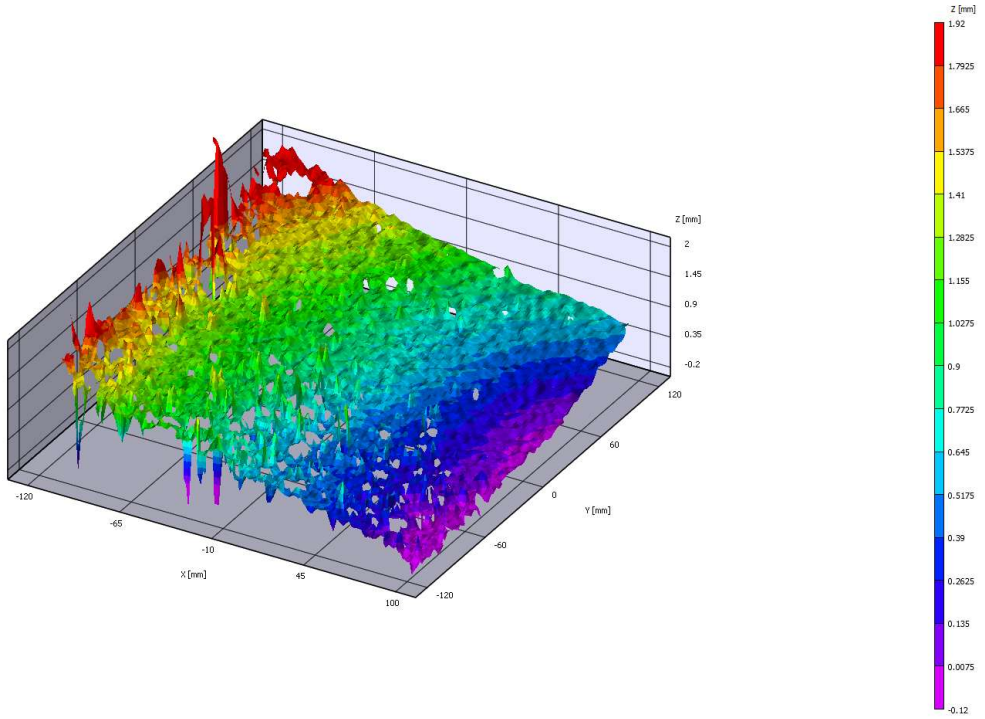


Figure 4.12 Distribution de la déformation hors-plan (selon l'axe Z) à la surface d'une plaque composite pré-imprégnée à renfort fibres de verre tissées.

(a) Constat industriel

Les travaux réalisés dans le cadre de cette thèse portent principalement sur du préimprégné thermoplastique à renforts tissés. L'IRT Jules Verne a fait fabriquer ces plaques par Solvay. Parmi les plaques délivrées pour la caractérisation des contraintes internes, nous avons réceptionné une plaque de dimensions $900 \times 800 \times 2.05$ mm^3. La plaque est obtenue par thermocompression et présente une séquence d'empilement de [+45°/-45°/+45°/-45°]. Nous avons constaté que la plaque présente initialement une distorsion géométrique qui fait apparaître une surface concave. Pour quantifier cette distorsion, la géométrie extérieure de la plaque est mesurée par stérécorrélation.

Tout d'abord, la plaque est étuvée conformément au protocole RH0 recommandé par Solvay. Ensuite, un mouchetis aléatoire est appliqué et une prise de vue par VIC 3D de la plaque est faite. Le résultat permet tout d'abord de relever la géométrie de la plaque qui met en évidence sa

concavité (Figure 4.13a). On constate que l'écart entre les hauteurs maximale et minimale le long de l'axe z, la coordonnée hors-plan, est d'environ 14 mm. À partir du nuage de points représentatifs de la géométrie extérieure, les deux directions principales selon x et y sont identifiées (Figure 4.8b) et extraites. Les points expérimentaux sont approximés par un polynôme de degré deux (Figure 4.8c-d). Les courbures a (selon x) et b (selon y) sont les coefficients des termes du polynôme de plus haut degré. Les valeurs des courbures estimées par le logiciel sont : $a = 0.13381\ m^{-1}$ et $b = 0.1116\ m^{-1}$.

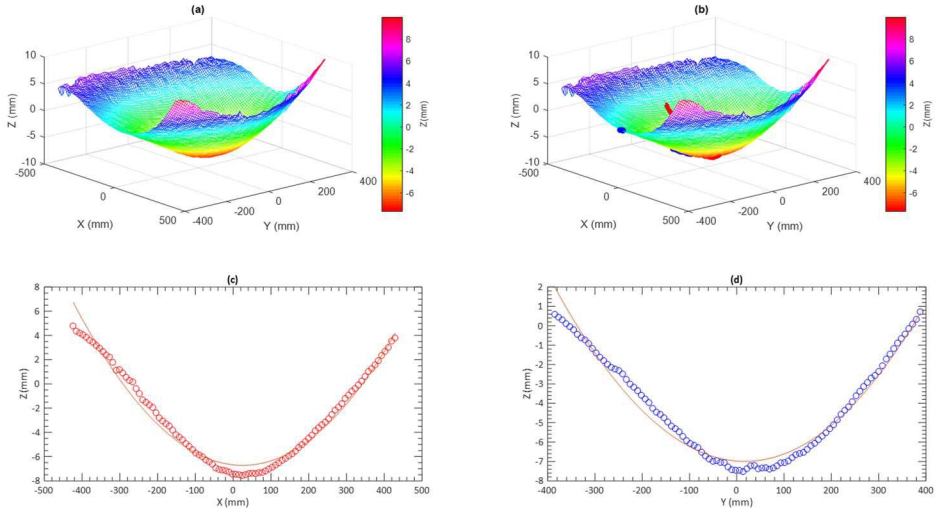


Figure 4.13 Mesure des courbures induites par des contraintes internes dans une plaque préconsolidée de PA 6-6/GF50 (a) géométrie, (b) détermination des directions principales selon x et y, (c) distribution de la déformation hors plan dans la direction principale selon x, (d) distribution de la déformation hors plan dans la direction principale selon y.

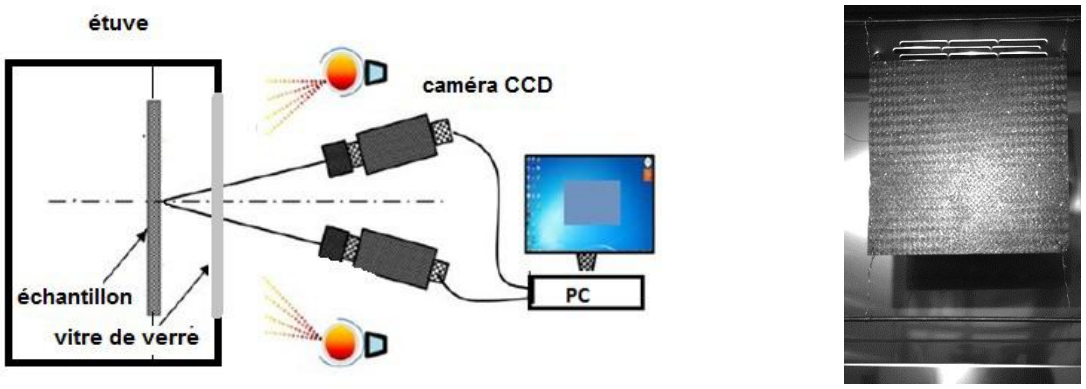
(b) Cas d'étude

La finalité de cette étude consiste à mesurer l'évolution de la courbure en fonction de la température. La caractérisation porte sur une plaque carrée de dimensions $200 \times 200 \times 2.05\ mm^3$. Les essais ont été réalisés sur le dispositif expérimental présenté dans la figure 4.14. Il est constitué d'une étuve équipée de son propre système de régulation en température. Au niveau de la porte de celle, nous avons fixé une vitre de verre d'épaisseur 2 mm. Elle aura une double fonction : (i) une barrière pour empêcher les pertes thermiques, et par voie de conséquence maintenir l'échantillon en température uniforme et (ii) faciliter la prise de vue par le système VIC 3D de la surface de la plaque. Le choix de la vitre doit concilier les deux critères suivants :

- Être suffisamment épaisse pour minimiser les pertes de chaleur par conduction,
- Avoir un faible coefficient thermo-optique afin de limiter la distorsion du faisceau de lumière capté par les caméras lors de sa réflexion par l'échantillon [22].

La plaque doit être maintenue immobile pendant la caractérisation, elle est alors fixée par ses quatre coins à l'intérieur de l'étuve grâce à des fils métalliques (figure 4.14b).

Étant donné que des études précédentes [6], [23] ont montré que la genèse des contraintes internes se produit aux alentours de la température de transition vitreuse, une plage de température de 20 à 100°C (Tg+30°C) est considérée dans cette étude. Le protocole expérimental retenu consiste à faire varier la température entre 100 et 20°C (descente puis montée) par palier de 10°C. Afin de garantir une température homogène dans la plaque, un maintien de 10 minutes par palier de température est respecté. Pour chaque palier, une prise de vue de la surface de la plaque par le système VIC 3D est réalisée.



(a) (b)

Figure 4.14 Mesure de l'évolution de la courbure d'une plaque préconsolidée en fonction de la température, (a) schéma de principe du dispositif expérimental, (b) maintien de l'échantillon dans l'étuve.

La figure 4.10 présente un exemple d'image 3D de l'échantillon pris à 70°C. Nous remarquons que la plaque présente toujours une géométrie concave (Figure 4.15a) caractérisée par des courbures de formes cylindriques d'axes x et y (Figure 4.15c-d). On utilise la démarche détaillée précédemment pour mesurer les courbures.

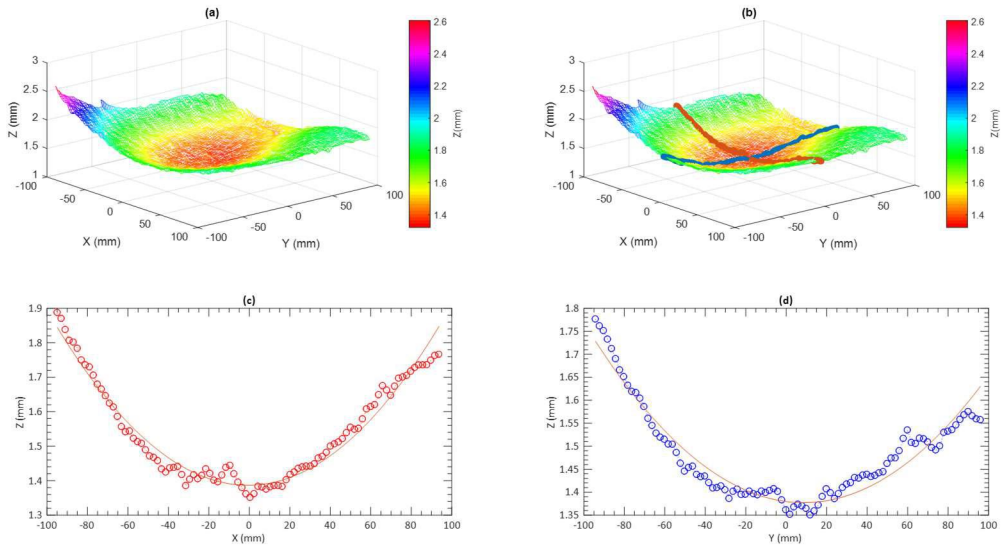


Figure 4.15 Mesure des courbures induites pour une plaque préconsolidée de PA 6-6/GF50 (a) géométrie, (b) détermination des directions principales selon x et y, (c) distribution de la déformation hors plan dans la direction principale x, (d) distribution de la déformation hors plan dans la direction principale y.

La mesure des courbures a et b du stratifié tissé équilibré, dont la séquence d'empilement est [+45°/-45°/+45°/-45°], en fonction de la température, est donnée dans la figure 4.16. On commencera par noter une évolution des deux grandeurs, particulièrement en ce qui concerne la courbure selon x. Ce résultat est une conséquence directe des évolutions des propriétés du composite en fonction de la température. Confrontées aux résultats du paragraphe précédent, les valeurs mesurées ici sont relativement proches de celles de la grande plaque. Cependant, un écart plus important entre les courbures à la température ambiante est remarquable. Cette différence pourrait être attribuée à un effet d'échelle, c'est-à-dire des dimensions dans le plan.

Les barres d'erreurs représentées sur le graphe correspondent aux écarts entre les mesures prise lors du refroidissement et du chauffage. Ces écarts sont faibles et le comportement réversible.

Finalement, les courbures mesurées sont relativement faibles et indiquent un état de contraintes internes lié au refroidissement beaucoup moins important que dans le cas des composites croisés [0°/90°].

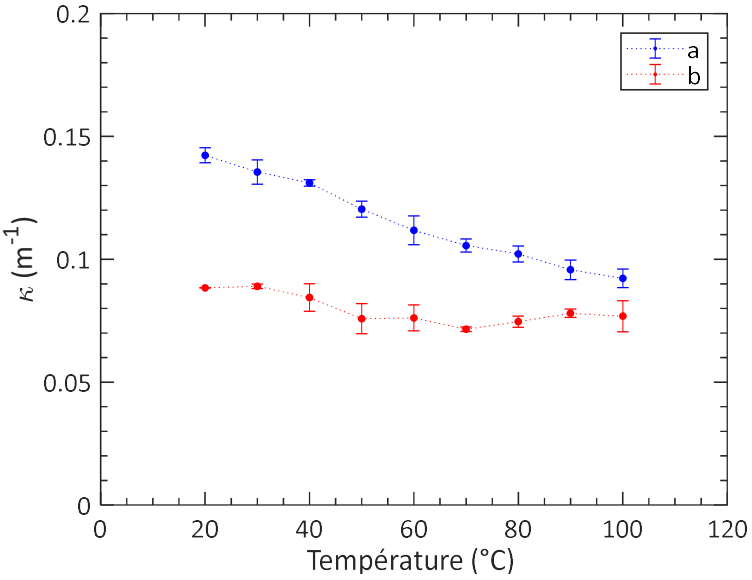


Figure 4.16 Évolution des courbures pour le stratifié [+45°/-45°/+45°/-45°] au cours du refroidissement et du chauffage.

4.4.2. Comparaison expérience-simulation

Le modèle présenté ci-dessus est appliqué à l'étude du stratifié équilibré [+45°/-45°/+45°/-45°]. À l'échelle macroscopique ce matériau est considéré comme étant homogène et isotrope. L'hypothèse qui consiste à considérer que les contraintes internes sont étroitement liées à l'hétérogénéité matérielle à l'échelle des plis semble être non respectée pour le présent empilement. Les résultats issus de la prédiction de la genèse des contraintes internes lors du refroidissement sont recensés dans le tableau 4.2.

On notera que dans cette configuration, le modèle ne prédit ni de distorsions géométriques de la plaque ni le développement de contraintes internes, pour les deux échelles macroscopique (échelle de la plaque) et mésoscopique (échelle de pli). Ce résultat est néanmoins à considérer avec prudence. En effet, le modèle se base sur le comportement des plis homogènes équivalent et ne tient pas compte de toutes les origines des contraintes internes. À titre d'exemple, à ce niveau, le modèle n'intègre pas l'influence de l'interface fibre/matrice ni le rôle des éventuels défauts de mise en forme sur la distribution des contraintes dans le stratifié.

Paramètres matériau	**a** $(\mathbf{m^{-1}})$	**b** $(\mathbf{m^{-1}})$	**c** $(\mathbf{m^{-1}})$	$\boldsymbol{\sigma_{11}}$ **(MPa)**	$\boldsymbol{\sigma_{22}}$ **(MPa)**	$\boldsymbol{\gamma_{12}}$ **(MPa)**
Empilement : [+45/-45/+45/-45]						
Ratio chaîne/trame : 50/50	≈ 0	≈ 0	0	≈ 0	≈ 0	0
Vitesse de refroidissement : -2K/min						

Tableau 4.2 Résultats de la prédiction des contraintes internes sur le stratifié [+45°/-45°/+45°/-45°] équilibré, valeurs données à 20°C.

Nous allons, dans ce qui suit, analyser la qualité de la corrélation des résultats numériques et expérimentaux en faisant varier un jeu de paramètres intrinsèques au matériau. L'objectif est d'identifier l'influence de ces paramètres dans le développement des contraintes internes. Les trois cas d'analyse à traiter sont présentés dans le tableau 4.3.

	Empilement	**Vitesse de refroidissement**	**Plage de température**	**Ratio chaîne/trame**
Cas 1	[+45°/-45°/+45°/-45°]	2 K/min	100°C-20°C	60/40
Cas 2	[+45°/-45°/+45°/-45°]	2 K/min	100°C-20°C	90/10
Cas 3	[+45°/-45°/+45°/-45°]	2 K/min	70°C-20°C	90/10

Tableau 4.3 Paramètres intrinsèques au matériau retenus pour prédire les contraintes internes.

Les résultats de la prédiction des contraintes internes induites par le refroidissement du stratifié [+45°/-45°/+45°/-45°] sont donnés dans la figure 4.17. On note que dans les trois cas considérés des contraintes internes sont développées au cours du refroidissement. Il s'agit bien de conséquences attendues suite aux choix de stratifiés présentant des hétérogénéités matérielles.

— ***Effet du ratio chaîne/trame***

En faisant varier ce paramètre (cas 1 et 2), on tend vers un stratifié quasi-unidirectionnel anisotrope favorisant ainsi le développement des contraintes internes. Les résultats sontprésentés dans la figure 4.17a-b. Une forme unique de distorsion géométrique est prédite dans les deux cas : une courbure de torsion (a=b=0, c ≠ 0). Ce paramètre a aussi un important effet sur la contrainte σ_{22} qui a pratiquement triplé.

— ***Effet de la température imposée***

Dans le modèle, ce paramètre d'entrée peut être considéré comme étant la température libre de contrainte. Son choix initial est d'importance, comme le montre les figures 4.17b-c. On remarque qu'un passage de 70°C à 100°C a fait augmenter la courbure c de 35% et la contrainte σ_{22} de 46%.

Ces résultats montrent que plus le stratifié est anisotrope, plus les contraintes résiduelles sont flagrantes.

NB : L'étude de l'effet de la vitesse de refroidissement sur le développement des contraintes résiduelles a montré que celle-ci est négligeable. Pour notre matériau isotrope à échelle de pli, des simulations pour trois vitesses de refroidissement de 2, 10 et 100 K/min, les courbures et les niveaux de contraintes étaient négligeables.

On rappelle que pour un stratifié asymétrique, où il a été montré que plus la vitesse de refroidissement est élevée et moins la valeur finale des contraintes résiduelle est importante [6].

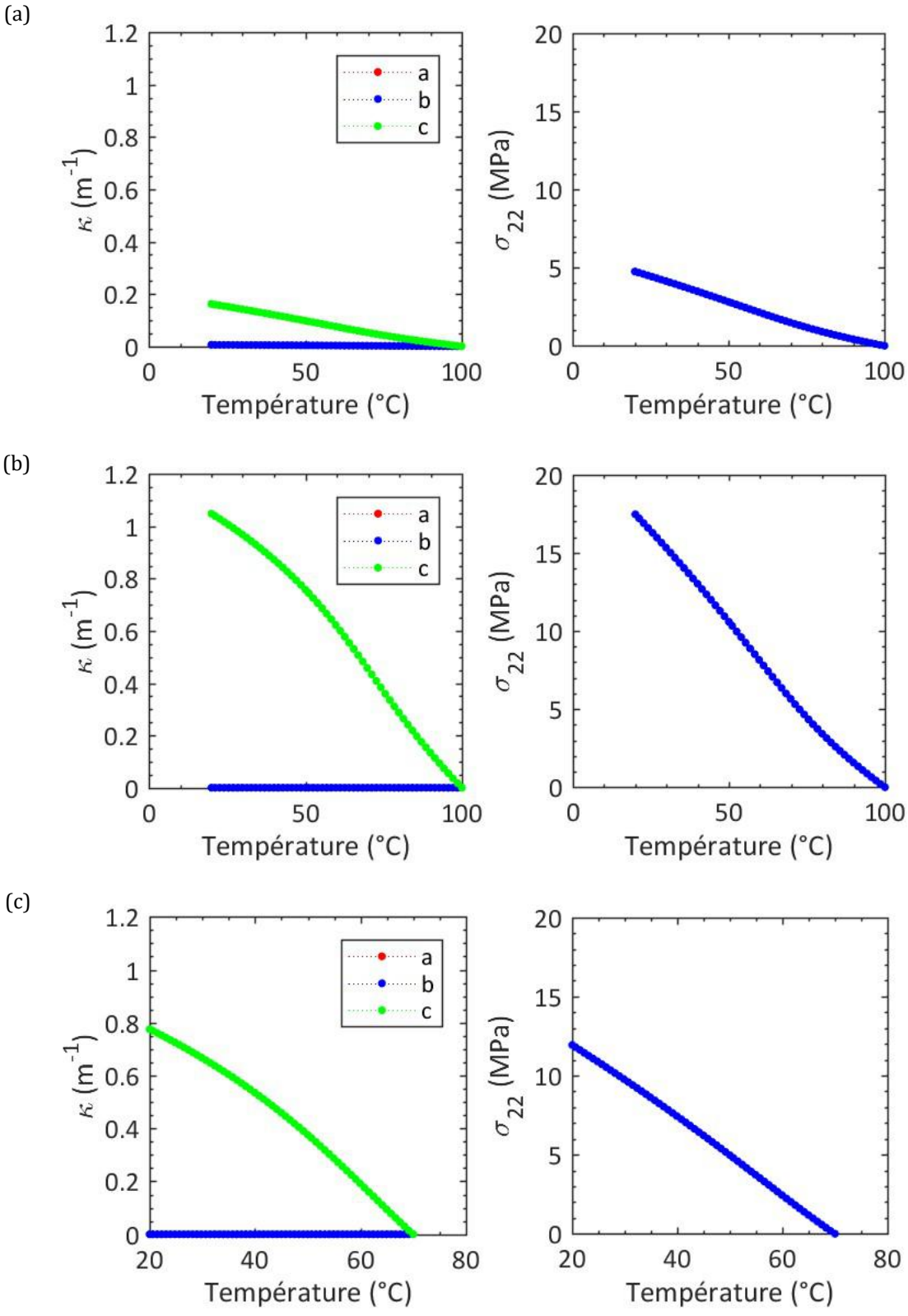


Figure 4.17 Prédiction des contraintes internes induites par le refroidissement du stratifié [+45°/-45°/+45°/-45°], a) cas 1, b) cas 2 et c) cas 3.

4.5.Courbures et contraintes internes de service : effet de l'humidité

4.5.1. Préparation et conditionnement des éprouvettes

Afin d'étudier l'influence de la teneur en eau sur le développement des contraintes internes dans un pré-imprégné thermoplastique, plusieurs éprouvettes sont découpées à partir de la plaque composite de l'étude selon le schéma détaillé dans la figure 4.12. Les éprouvettes sont de forme parallélépipédique de dimensions $350 \times 31 \times 2.05$ mm^3. Un polissage de finition a été effectué avec un papier abrasif de fins grains afin d'enlever les bavures aux niveaux des bords de l'éprouvette.

En confrontant le plan de découpe à la séquence d'empilement de la plaque, on remarque que :

- Les éprouvettes découpées à 0° présentent une séquence d'empilement de [0°/90°/0°/90°].
- Les éprouvettes découpées à 45° présentent une séquence d'empilement de [+45°/-45°/+45°/-45°].

Par souci de clarté, dans la suite de l'étude, les éprouvettes seront référencées par leur direction de découpe (0° ou 45°).

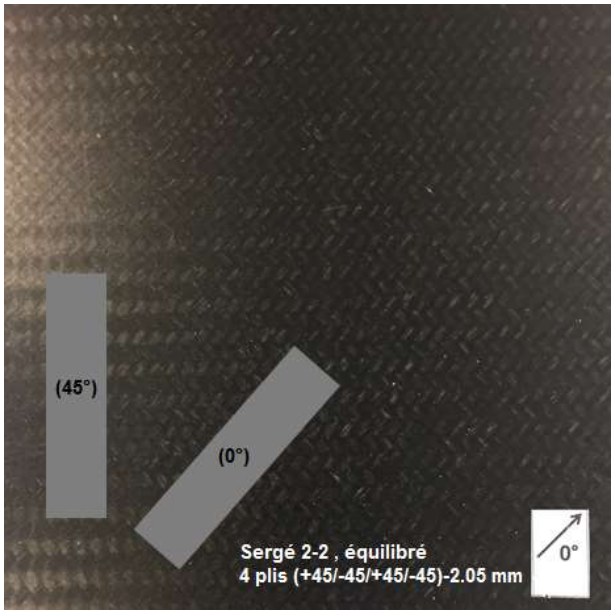


Figure 4.18 Découpe des éprouvettes de PA 6-6/GF50 pour étudier l'influence de la teneur en eau sur le développement des contraintes internes de service.

Les éprouvettes ont été séparées en deux lots et placées dans des conditions de vieillissement hygroscopique différentes recensées dans le tableau 4.4. Au préalable, les éprouvettes ont été étuvées à 70°C pendant 48 heures.

Le suivi gravimétrique a été réalisé par des pesées régulières, à l'aide d'une balance électronique (SARTORIUS MC BA 100 ; précision 0.1 mg).

	identifiant	**Empilement**	**Conditionnement**	
			HR (%)	**Température (°C)**
Éprouvette 1	0°	[0°/90°/0°/90°]	90	20
Éprouvette 2	45°	[+45°/-45°/+45°/-45°]	90	20
Éprouvette 3	0°	[0°/90°/0°/90°]	50	20
Éprouvette 4	45°	[+45°/-45°/+45°/-45°]	50	20

Tableau 4.4 Répartition des éprouvettes utilisées pour étudier les contraintes internes de service.

La figure 4.20 présente le teneur en eau macroscopique en fonction du ratio de la racine carrée du temps par l'épaisseur initiale. Ce paramètre d'intérêt est calculé selon l'expression ci-dessous :

$$C_{glob}(t) = 100\frac{m(t) - m_0}{m_0} \tag{4.12}$$

Avec m_0 la masse initiale mesurée après l'étuvage et m(t) la masse à l'instant t.

On remarque sur les courbes d'absorption (Figure 4.20), que la cinétique d'absorption est relativement similaire pour les éprouvettes testées dans des conditions environnementales données. Les légers écarts observés peuvent être notamment dus à une variabilité locale des propriétés intrinsèques du matériau. Ce résultat semble confirmer que le comportement diffusif est indépendant de la séquence d'empilement et que l'orientation des fibres n'a pas d'influence sur le coefficient de diffusion d'eau [24]. La Figure (4.21) présente les cinétiques de désorption pour les éprouvettes précédemment vieillies à 50 % d'Humidité Relative (HR 50) et à 90 % d'Humidité Relative (HR 90). Les courbures seront identifiées dans cette phase de désorption.

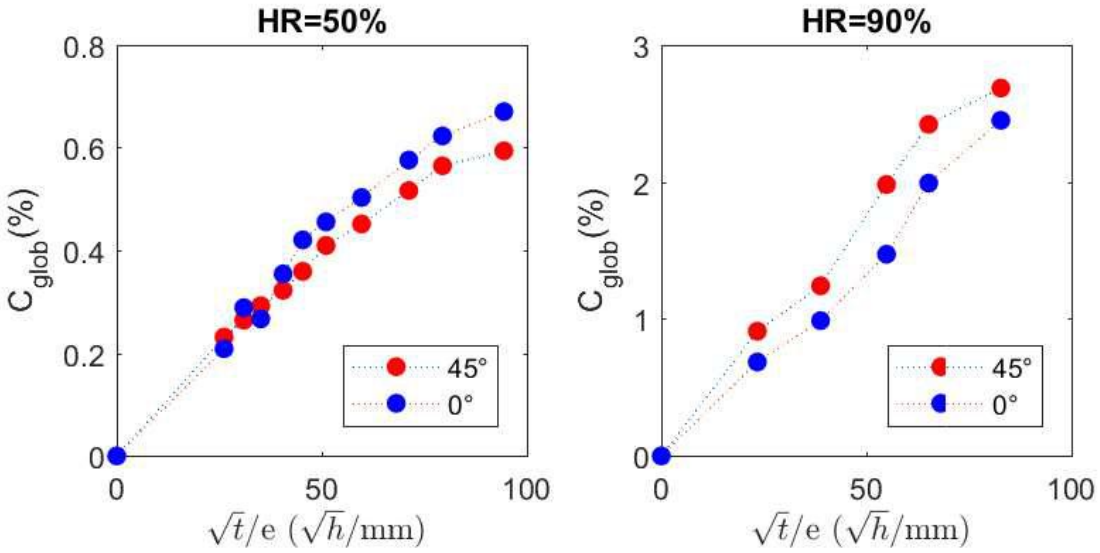


Figure 4.19 Cinétique de diffusion en absorption des éprouvettes PA 6-6/GF50.

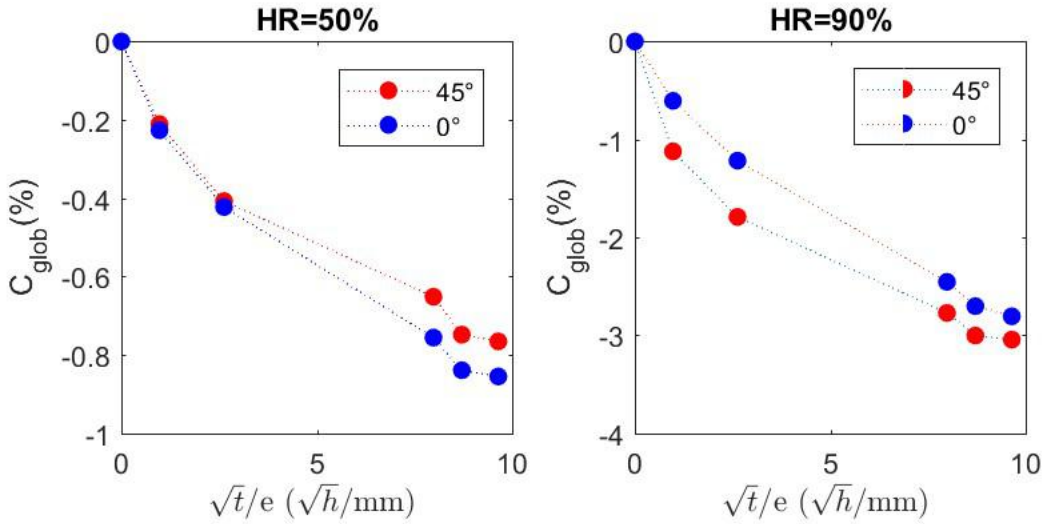


Figure 4.20 Cinétique de diffusion en désorption des éprouvettes PA 6-6/GF50.

4.5.2. Mesures des courbures

Les courbures mesurées (figures (4.22) et (4.23)) au cours de la désorption se révèlent négligeables. Le fait d'induire un gradient de teneur en eau au cours de la phase de désorption ne produit pas de courbures. L'empilement symétrique se révèle finalement du premier ordre sur le développement des courbures et des contraintes internes induites.

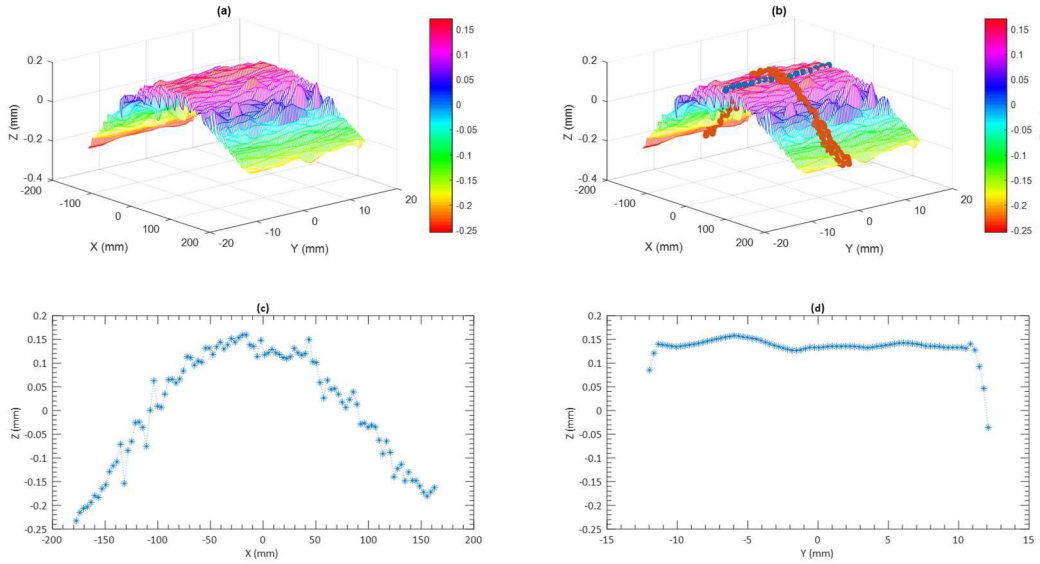


Figure 4.21 Mesure des courbures induites par des contraintes internes dans une plaque préconsolidée de PA 6-6/GF50 (a) géométrie, (b) détermination des directions principales selon x et y, (c) distribution de la déformation hors plan dans la direction principale x, (d) distribution de la déformation hors plan dans la direction principale y.

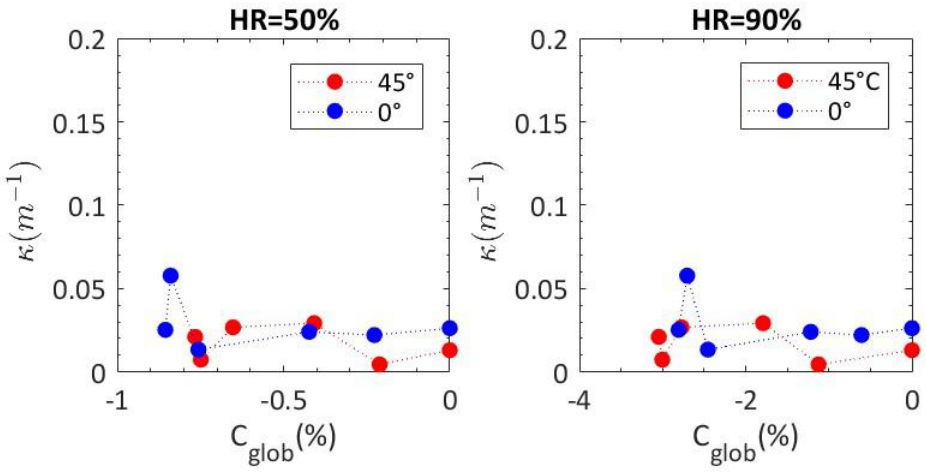


Figure 4.22 Évolution de la courbure mesurée par corrélation d'image dans des éprouvettes de PA 6-6 renforcé fibres de verre tissées en fonction de la teneur en eau.

4.6.Conclusion

Dans ce chapitre, un modèle basé sur la théorie modifié des stratifiés a permis d'estimer les contraintes internes générées lors du refroidissement d'un composite à matrice thermoplastique et renfort tissé. Cette approche permet de lier les courbures mesurables aux contraintes internes induites. La stéréo-corrélation d'images a permis de caractériser les courbures générées par le procédé d'élaboration. Dans un premier temps, le modèle prédictif est utilisé pour simuler le développement des contraintes résiduelles induites par le refroidissement du préimprégné. L'étude des effets de la séquence d'empilement, le ratio chaîne/trame et la température libre des contraintes a montré que plus le stratifié est anisotrope et plus les contraintes résiduelles sont importantes. Ensuite, des gradients de temperature et d'humidité sont imposés au composite étudié, afin de générer des hétérogénéités à l'échelle des plis. La mesure expérimentale des distorsions géométriques générées par ces gradients montre que pour le stratifié équilibré, il n'y a pas de développement de courbures.

Pour conclure, le choix de l'empilement se révèle primordial, en effet des empilements symétriques ne sont pas aptes à générer des courbures et ce même pendant les processus transitoires mettant en jeu des gradients de températures ou de teneur en eau.

Références

[1] N. Klein, G. Marom, A. Pegoretti, and C. Migliaresi, "Determining the role of interfacial transcrystallinity in composite materials by dynamic mechanical thermal analysis," *Composites*, vol. 26, no. 10, pp. 707–712, 1995.

[2] M. Dupeux, *Aide-mémoire de science des matériaux-3e éd.* Dunod, 2013.

[3] Y. Nawab, F. Jacquemin, P. Casari, N. Boyard, Y. Borjon-Piron, and V. Sobotka, "Study of variation of thermal expansion coefficients in carbon/epoxy laminated composite plates," *Compos. Part B Eng.*, vol. 50, pp. 144–149, 2013.

[4] J. Faraj, "Analyse thermocinétique de la cristallisation en milieu confiné d'un composite à base d'une résine thermoplastique (Polyamide 66)," 2016.

[5] Y. Nawab, P. Casari, N. Boyard, and F. Jacquemin, "Characterization of the cure shrinkage, reaction kinetics, bulk modulus and thermal conductivity of thermoset resin from a single experiment," *J. Mater. Sci.*, vol. 48, no. 6, pp. 2394–2403, 2013.

[6] M. Péron, F. Jacquemin, P. Casari, G. Orange, J.-L. Bailleul, and N. Boyard, "Thermo-mechanical characterization of a thermoplastic composite and prediction of the residual stresses and lamina curvature during cooling," presented at the AIP Conference Proceedings, 2017, vol. 1896, p. 030015.

[7] D. Walsh and P. Zoller, *Standard pressure volume temperature data for polymers*. CRC Press, 1995.

[8] K. D. Cowley and P. W. R. Beaumont, "The measurement and prediction of residual stresses in carbon-fibre/polymer composites," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 57, no. 11, pp. 1445–1455, 1997.

[9] M.-L. Dano and M. W. Hyer, "Thermally-induced deformation behavior of unsymmetric laminates," *Int. J. Solids Struct.*, vol. 35, no. 17, pp. 2101–2120, 1998.

[10] L. P. Kollár and G. S. Springer, *Mechanics of composite structures*. Cambridge university press, 2003.

[11] Y. Weitsman, "Residual Thermal Stresses Due to Cool-Down of Epoxy-Resin Composites," *J. Appl. Mech.*, vol. 46, no. 3, pp. 563–567, Sep. 1979.

[12] M. Gigliotti, M. R. Wisnom, and K. D. Potter, "Loss of bifurcation and multiple shapes of thin [0/90] unsymmetric composite plates subject to thermal stress," *Compos. Sci. Technol.*, vol. 64, no. 1, pp. 109–128, 2004.

[13] M. W. Hyer, "Calculations of the Room-Temperature Shapes of Unsymmetric Laminatestwo," *J. Compos. Mater.*, vol. 15, no. 4, pp. 296–310, 1981.

[14] P. P. Parlevliet, H. E. Bersee, and A. Beukers, "Residual stresses in thermoplastic composites—A study of the literature—Part I: Formation of residual stresses," *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 37, no. 11, pp. 1847–1857, 2006.

[15] P. P. Parlevliet, H. E. N. Bersee, and A. Beukers, "Residual stresses in thermoplastic composites – a study of the literature. Part III: Effects of thermal residual stresses," *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 38, no. 6, pp. 1581–1596, 2007.

[16] L. L. Warnet, R. Akkerman, and P. E. Reed, "The Effect of Residual Stress on Transverse Cracking in Cross-Ply Carbon-Polyetherimide Laminates Under Bending," vol. 32, B. R. K. Blackman, A. Pavan, and J. G. Williams, Eds. Elsevier, 2003, pp. 465–476.

[17] J. F. Timmerman, B. S. Hayes, and J. C. Seferis, "Cure temperature effects on cryogenic microcracking of polymeric composite materials," *Polym. Compos.*, vol. 24, no. 1, pp. 132–139, 2003.

[18] A. Makeev, Y. He, P. Carpentier, and B. Shonkwiler, "A method for measurement of multiple constitutive properties for composite materials," *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.*, vol. 43, no. 12, pp. 2199–2210, 2012.

[19] R. K. Fruehmann, J. M. Dulieu-Barton, S. Quinn, and J. P. Tyler, "The use of a lock-in amplifier to apply digital image correlation to cyclically loaded components," *Opt. Lasers Eng.*, vol. 68, pp. 149–159, 2015.

[20] D. Garcia, "Mesure de formes et de champs de déplacements tridimensionnels par stéréo-corrélation d'images," 2001.

[21] K. Saranath, R. Harilal, and M. Kashfuddoja, "Material Characterization of Carbon Fiber Reinforced Polymer Laminate Using Virtual Fields Method," 2014.

[22] M. Lallemand and J. Martinet, "Influence de la température sur le coefficient thermo-optique des fluorures alcalino-terreux," *Rev. Phys. Appliquée*, vol. 17, no. 3, pp. 111–117, 1982.

[23] Y. Nawab, F. Jaquemin, P. Casari, N. Boyard, and V. Sobotka, "Evolution of chemical and thermal curvatures in thermoset-laminated composite plates during the fabrication process," *J. Compos. Mater.*, vol. 47, no. 3, pp. 327–339, 2013.

[24] H. Obeid, "Durabilité de composites à matrice thermoplastique sous chargement hygro-mécanique: étude multi-physique et multi-échelle des relations microstructure-propriétés-états mécaniques," 2016.

Conclusion générale – Perspectives

Au cours de leur mise en forme par thermoestampage, les matériaux composites à matrice polymère thermoplastique et renfort tissé subissent des mécanismes de déformation complexes et multi-échelles. La compréhension de ces mécanismes et des phénomènes induits s'inscrit dans la logique d'une maîtrise accrue de ces matériaux et de leurs procédés de mise en forme. Cette maîtrise passe par une hiérarchisation de ces mécanismes, des caractérisations adéquates et une étude des couplages entre comportement mécanique et évolutions structurales. Dans cette veine, l'objectif de cette thèse a été de comprendre les mécanismes à l'origine de certains des défauts se produisant lors de la mise en forme par thermoestampage de ces matériaux.

La revue bibliographique non-exhaustive a fait apparaître que l'étude de la mise en forme des préimprégnés textiles est un problème largement ouvert et peu étudié. Sur le plan expérimental, la majorité des études portent sur l'estampage, l'emboutissage ou la compression des renforts secs. Peu de travaux se sont penchés sur le préimprégné et sur le rôle de la matrice et de sa viscosité thermo-dépendante. Toutefois, des études récentes ont montré qu'il est abusif d'appliquer aux pré-imprégnés les lois de comportement élaborées pour des renforts secs pour modéliser leur mise en forme. En outre, les méthodes et dispositifs expérimentaux de caractérisation ne sont pas encore standardisés ce qui explique la disparité des résultats de la littérature. Sur le plan numérique, divers points nécessitent d'être développés comme, par exemple, la prédiction des contraintes internes d'élaboration et de service pour les stratifiés thermoplastiques.

Les développements de cette thèse visent ainsi à combler certaines lacunes mises en exergue dans cet état de l'art. Pour cela, nous avons tout d'abord mené une campagne de caractérisation du comportement du préimprégné thermoplastique à l'état fondu. Des essais de bias-extension ont été réalisés sur un banc de caractérisation expérimental spécialement développé pour caractériser le cisaillement plan, considéré comme un des principaux modes de déformation des renforts fibreux tissés. Ces essais réalisés dans des conditions proches du procédé industriel ont mis en exergue le rôle de la matrice dans la réponse thermomécanique du préimprégné. La mesure des temps caractéristiques de relaxation a par ailleurs confirmé l'importance de ce phénomène. La caractérisation thermomécanique a été complétée par des observations ex situ des éprouvettes déformées, réalisées sur un microtomographe à rayons X de laboratoire. Des images 3D à différentes résolutions spatiales ont été obtenues pour analyser les structures

fibreuses induites. Ces images se sont montrées très utiles pour l'analyse des mésostructures induites par le cisaillement plan et ont permis l'identification des micromécanismes de déformation. Pour cela, trois descripteurs de la mésostructure (angle de cisaillement, taux volumique des mèches et épaisseur) ont été caractérisés et étudiés localement sur des cellules de la taille de l'armure textile. L'étude qualitative et quantitative a permis d'obtenir plusieurs résultats intéressants. Ainsi, l'existence de zones bien délimitées cisaillées, demi-cisaillées et non cisaillées telles qu'elles sont prévues théoriquement est remise en cause, avec des transitions bien plus continues, ce phénomène étant associé et dépendant d'une part à la présence de la matrice et sa température de mise en forme, perturbant la cinématique des mèches, et d'autre part aux effets de courbures des mèches dont la taille caractéristique est finie. En outre, si les mésostructures fibreuses déformées ne semblent pas dépendre de la couche de tissus considérée, nous avons mis en évidence des augmentations d'épaisseur substantielles et non-homogènes des préimprégnés, engendrant des porosités résiduelles importantes. Ces mécanismes de déconsolidation en cisaillement (proches des phénomènes de dilatance observés dans les milieux granulaires) ne sont pas pris en compte dans les modèles de la littérature.

Nous avons ensuite caractérisé un autre mécanisme de déformation important survenant au cours de la mise en forme des préimprégnés thermo-estampés : la friction pli/pli se produisant lors du cisaillement transverse des pré-imprégnés. Pour cela, une étude a été menée sur un matériau modèle dont la microstructure et les propriétés rhéologiques miment celles du préimprégné d'origine industrielle, en utilisant un dispositif expérimental original de cisaillement simple à effort normal contrôlé. L'influence de trois paramètres clés de la mise en forme sur les interactions pli/pli a pu être mise en exergue. La vitesse de glissement et la température ont des effets notables mais contraires à certaines données reportées dans la littérature. Ce point appelle des études complémentaires, notamment à d'autres contraintes normales. Nous avons aussi mis en évidence le rôle important de la contrainte normale sur la contrainte tangentielle de friction pli/pli. Pour une température et vitesse de glissement constantes, le coefficient de friction pli/pli décroît avec l'augmentation de la contrainte normale. Ce résultat peut être expliqué par l'aplanissement des plis en contact.

Le dernier chapitre de cette thèse a été dédié à l'étude des contraintes internes induites au cours du thermo-estampage. Un modèle de prédiction de ces contraintes lors du refroidissement des pré-imprégnés a été proposé. Il est basé sur la théorie modifiée des stratifiés et tient en compte de la thermo-dépendance des propriétés. Pour alimenter ce modèle, les propriétés thermoélastiques et thermiques du préimprégné industriel ont été déterminées en utilisant divers moyens expérimentaux (DMA, dilatomètre…). Le modèle a été appliqué pour simuler le

développement de contraintes internes lors du refroidissement pour un composite à renfort tissé multi-couches. L'influence de divers paramètres a pu être testée : la séquence d'empilement, le ratio chaîne/trame et la température libre de contraintes. Les résultats de la simulation ont montré que plus le stratifié est anisotrope plus les distorsions géométriques et les contraintes internes sont importantes. Outre cette première étude, une caractérisation expérimentale des contraintes internes d'origine thermique a été réalisée pour un stratifié équilibré à matrice PA66 et renfort fibres de verre tissées. Des mesures de l'évolution de la courbure grâce un système de stéréocorrélation VIC 3D ont montré le développement de contraintes internes au cours du refroidissement. Ces courbures augmentent avec la température. La corrélation simulation/expériences a montré certains écarts. Ces derniers peuvent être dus au fait que le modèle se concentre sur le comportement de plis homogénéisés et ne tient compte ni du comportement à l'échelle des mèches, ni des effets des défauts éventuels de mise en forme. L'effet de la teneur en eau a également été caractérisée afin d'étudier le développement des contraintes internes de service. Pour le composite considéré ici, les résultats montrent que les variations de teneur en eau sont sans effet notable sur la genèse des distorsions géométriques dues au développement des contraintes internes.

Enfin, ce travail de thèse ouvre la voie à plusieurs **perspectives** scientifiques et technologiques :

- Compléter la caractérisation en cisaillement plan à l'état mou par des observations in situ afin de mieux comprendre l'évolution de la cinématique de l'essai de bias-extension au cours de l'essai. Ces observations devraient permettre une meilleure compréhension des évolutions méso et microstructurales au cours du temps. On espère ainsi élaborer des lois phénoménologiques mettant en relation les trois descripteurs : angle de cisaillement, épaisseur et taux de mèches.
- Un suivi in situ par tomographie à rayons X des interactions pli/pli en cisaillement transverse pourrait aussi fournir des éléments de réponse sur l'évolution de l'architecture des réseaux fibreux au cours de leur frottement, pour proposer des lois d'interaction pli/pli plus pertinentes.
- Une étude de la genèse des contraintes internes à une échelle plus fine, c'est-à-dire à l'échelle de la mèche permettrait une meilleure définition du modèle prédictif de ces dernières et des défauts géométriques qu'elles induisent.

The Ultimate Composite

Product Data Sheet

21.09.2015

PA66 HF Consolidated Laminate

50% Glass fiber vol. – balanced – twill 2-2 – 650 g/m²

Provisional Data Sheet

Indicative medium values at 23°C, depending on the processing conditions

	Standards	Unit	Values d.a.m.	Values Cond.
Polymer characteristics				
Appearance		Solid, black, quasi cylindrical, chips		
Density	*ISO 1183/A*	g/cm^3	1,14	
Melting temperature (2nd melting)		°C	262	
Melt viscosity	*Shear 10 to 10^3 s^{-1}*	Pa.s	30 - 50	(high fluidity)
Crystallization temperature		°C	231	
Crystallinity		%	40	
Transition temperature		°C	69	20
Tensile modulus	*ISO 527*	MPa	3800	
Tensile strength at break	*ISO 527*	MPa	90	
Elongation at break	*ISO 527*	%	4	
Reinforcement characteristics				
FIBER				
Material			E-Glass	
Density		g/cm^3	2.7	
Linear weight		dtex	12000	
FABRIC				
Area weight		g/m²	650	
Weight ratio warp/weft		%	50 / 50	
Finish		Adapted to EVOLITE		
PRE-PREG				
Area weight		g/m²	930	
Thickness	*After consolidation*	mm	0.50	
Density	*After consolidation*	g/cm^3	1.87	
Consolidated Plate				
Density		g/cm^3	1.87	
Thickness		mm	2.00 (+/- 0.10)	
Morphology		4 layers, twill 2-2, balanced		
Fiber content volume	*Depending on consolidation*	%	50	
Weight ratio warp/weft		%	50 / 50	

d.a.m. = dry as moulded
Cond = conditioned RH50

SOLVAY

	Standards	Unit	Values d.a.m.	Values Cond.
Mechanical Properties				
Tensile	*ISO 527-4*			
✓ **Longitudinal (warp, 0°)**				
Modulus		MPa	22900 (760)	21400 (500)
Strength		MPa	500 (40)	400 (15)
Deformation		%	2.6 (/)	2.1 (/)
✓ **Transversal (weft, 90°)**				
Modulus		MPa	22900 (280)	21000 (200)
Strength		MPa	416 (15)	415 (15)
Deformation		%	2.2 (/)	2.2 (/)
Compression	*ISO 14126*			
✓ **Longitudinal (warp, 0°)**				
Modulus		MPa	/	23000 (600)
Strength		MPa	450 (30)	340 (40)
Deformation		%	3.3 (/)	1.6 (0.3)
✓ **Transversal (weft, 90°)**				
Modulus		MPa	/	22200 (600)
Strength		MPa	429 (18.5)	310 (20)
Deformation		%	2.5 (/)	1.6 (0.15)
In plane shear	*ISO 14129*			
Modulus		MPa		1800 (50)
Strength for 5% strain		MPa		36 (2)
Out of plane shear	*ISO 14130 (ILSS)*			
Modulus		MPa		
Flexural	*ISO 14125 with large displacements and sliding corrections*			
✓ **Longitudinal (warp, 0°)**				
Modulus		MPa	20700 (900)	20900 (500)
Strength		MPa	650 (30)	560 (20)
Deformation		%	3.2 (/)	2.6 (0.1)
✓ **Transversal (weft, 90°)**				
Modulus		MPa	21300 (300)	20000 (500)
Strength		MPa	730 (40)	580 (40)
Deformation		%	3.9 (/)	2.9 (0.2)
Impact	*ISO 6603-2*			
Peak load	*225 J impact*	kN		
Peak energy		J		
Total energy		J		
Max deflection		mm		
Deflection at perforation		mm		

Thermal Properties			
Heat Capacity	$J.kg^{-1}.K^{-1}$	990	/
Conductivity			
✓ Longitudinal (warp, 0°)	$W.m^{-1}.K^{-1}$		
✓ Tranversal (weft, 90°)	$W.m^{-1}.K^{-1}$		
✓ Out of plane	$W.m^{-1}.K^{-1}$		

d.a.m. = dry as moulded
Cond = conditioned RH50

	Standards	Unit	Values d.a.m.	Values Cond.
Emissivity		-	0,9	
Coefficient of thermal expansion (CTE)				
✓ Longitudinal (warp, 0°)		$\mu m.m^{-1}.K^{-1}$		
✓ Transversal (weft, 90°)		$\mu m.m^{-1}.K^{-1}$		

d.a.m. = dry as moulded
Cond = conditioned RH50

Disclaimer

The information contained in this document is given in good faith based on our current knowledge. It is only an indication and it is in no way binding. This information must on no account be used as a substitutive for necessary prior tests which alone can ensure that a product is suitable for a given use. ANY WARRANTY OF PRODUCT PERFORMANCE, MERCHANDABILITY OR FITNESS FOR A PARTICULAR PURPOSE IS EXPRESSLY EXCLUDED. Users are responsible for ensureing compliance with local legislation and for obtaining the necessary certifications and authorizations. Users are requested to check that they are in possession of the latest version of this document, and Rhodia is at their disposal to supply any additional information.

Safety information

Detailed information regarding safety are available on the safety data sheet (SDS).
SDS is sent with the first material order, or available by contacting our customer services

Regulations compliance

Grades produced or imported in Europe comply with directive 453/2010/EC, which amends REACH directive 1907/2006/EC
This grade complies with RoHS directive 2002/95/EC
Unless specified, this grade is not suitable for food contact, medical devices or toy applications

Customer services

Our customer services are not only concerned with manufacturing and supply of Engineering Plastics products. We are available to assist our customers in finding technical solutions that meet their requirements. Specific support is in particular offered on:
- Material selection
- Material testing
- Parts design advice, training for design engineers
- Part testing
- Processing through different technologies
- Assembly and post-processing technology expertise
- Parts optimization through Computer Aided Design

You can find more information on Rhodia Product range on our internet product finder at the following address:
http://www.rhodia.com/en/markets_and_products/product_finder

SOLVAY
asking more from chemistry®