HAL open science

Simulation des distorsions de cuisson de pièces composites élaborées par co-bonding en autoclave

Laure Moretti

▶ **To cite this version:**

Laure Moretti. Simulation des distorsions de cuisson de pièces composites élaborées par co-bonding en autoclave. Matériaux. Ecole des Mines d'Albi-Carmaux, 2019. Français. NNT : 2019EMAC0009 . tel-02903049

HAL Id: tel-02903049

https://theses.hal.science/tel-02903049v1

Submitted on 20 Jul 2020

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Université Fédérale
Toulouse Midi-Pyrénées

THÈSE

en vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

délivré par
IMT – École Nationale Supérieure des Mines d'Albi-Carmaux

---

présentée et soutenue par

Laure MORETTI

le 13 Décembre 2019

Simulation des distorsions de cuisson de pièces composites élaborées par co-bonding en autoclave

---

École doctorale et discipline ou spécialité :
MEGEP : Génie mécanique, mécanique des matériaux

Unité de recherche :
Institut Clément Ader, UMR CNRS 5312, IMT Mines Albi

Directeur(s) de Thèse :
Philippe Olivier, Professeur, Université Toulouse III - Paul Sabatier
Gérard Bernhart, Professeur, IMT Mines Albi

Autres membres du jury :
Véronique Michaud, Professeur, EPFL *(Présidente)*
Sylvain Drapier, Professeur, Mines Saint-Étienne *(Rapporteur)*
Frédéric Jacquemin, Professeur, Université de Nantes *(Rapporteur)*
Bruno Castanié, Professeur, INSA Toulouse *(Examinateur)*
Guy Sola, Expert Simulation des Procédés, Dassault Aviation *(Invité)*

Résumé

Simulation des distorsions de cuisson de pièces composites élaborées par co-bonding en autoclave

Les composites stratifiés en fibres de carbone et à matrices thermodurcissables sont, grâce à leurs propriétés spécifiques, des matériaux très performants pour les pièces de structure primaire en aéronautique. Cependant, durant leur élaboration, de nombreux phénomènes multi-physiques conduisent à l'apparition de contraintes et de déformations résiduelles qui impactent la géométrie finale de la pièce. Ces écarts de géométrie sont critiques pour les pièces de grandes dimensions et les assemblages. Il est donc primordial de prédire ces déformations par la simulation.

Le travail effectué au cours de cette thèse s'inscrit au sein du projet MAESTRIA du CORAC porté par la DGAC et dans le cadre d'un partenariat étroit avec Dassault Aviation. La recherche menée s'intéresse plus particulièrement aux assemblages co-collés. Le film de colle époxy utilisé pour ces collages a un comportement propre et risque d'avoir une influence sur les déformations de cuisson des assemblages. La colle, souvent ignorée dans les simulations de cuisson, a donc fait l'objet d'une caractérisation et d'une modélisation propre.

Un effort de caractérisation important est fourni afin d'identifier les lois de comportement associées aux variations des propriétés des matériaux au cours de la cuisson. Une fois les lois de comportement matériaux identifiées, la modélisation FEA est implémentée sous Abaqus via des subroutines utilisateurs FORTRAN. Le modèle a ensuite été confronté à des cas expérimentaux. Des mesures de distorsions de plaques, cornières et assemblages sont effectuées. Si le modèle fourni des résultats très satisfaisants pour les pièces composites, les résultats des mesures sur les assemblages révèlent un comportement de l'adhésif plus complexe qu'attendu et une influence non négligeable du film de colle sur les distorsions.

La dernière partie de ce travail de recherche se concentre donc sur la compréhension et l'étude approfondie du comportement de ce film de colle. Pour ce faire diverses analyses sont effectuées dont des instrumentations d'assemblages collés par fibres optiques à réseaux de Bragg permettant de suivre les déformations in-situ tout au long de la cuisson.

Mots-clés : Distorsions de cuisson, Matériaux composites, Co-bonding, Colle époxy, Fabrication virtuelle

---

Abstract

Simulation of cure distortions of composite parts co-bonded in autoclave

Because of their specific properties, composite laminates made of carbon and thermosetting resins are very efficient materials for primary structural parts in aeronautics. However, during their cure, composite parts are subjected to several multi-physical phenomena, which may cause residual stresses and strains that will impact the final geometry of the part. Those variations of geometry are critical for parts of large dimensions and assemblies. Therefore, a simulation tool is needed to predict the cure strains.

The work conducted during this Ph.D is part of the MAESTRIA project of the CORAC supervised by the DGAC and is undertaken as a part of a strong partnership with Dassault Aviation. In this research work a special interest is given to co-bonded assemblies. The epoxy adhesive film used has its own behaviour and may have an influence on cure strains of assemblies. The adhesive, often ignored in cure simulations, is thus subjected to its own characterization and modelling.

A significant characterization work is done to identify the behaviour laws of materials throughout their cure. Based on this characterization work, a FEA model is implemented on Abaqus using FORTRAN user subroutines. The model is then compared to experimental measurements for validation. Distortion measurements are done on composite plates, corners and assemblies. The model provides accurate results for composite parts, however, the measurements obtained for assemblies revealed an adhesive behavior more complex than expected and a significant influence of the adhesive film on distortions.

Therefore, the last part of this research work focuses on understanding and in-depth studying of the behavior of this adhesive film. To do so, various analyses are carried out, including cure monitoring of co-bonded assemblages by optical fibre grated with Bragg gratings.

Keywords: Cure distortions, Composite materials, Co-bonding, Epoxy adhesive, Virtual manufacturing

Remerciements

Ces travaux de thèse, financés par Armines, ont été effectués à l'Institut Clément Ader dans le cadre du projet MAESTRIA du CORAC porté par la DGAC.

Je tiens à remercier, dans un premier temps, l'ensemble du jury, Mme Véronique Michaud, M. Sylvain Drapier, M. Frédéric Jacquemin et M. Guy Sola, d'avoir accepté d'examiner mon travail ainsi que pour les discutions et les conseils constructifs qu'ils m'ont fournis.

Je remercie évidemment mes directeurs et encadrants de thèse Philippe Olivier, Bruno Castanié, Gérard Bernhart et, pour une courte durée, Gilles Dusserre pour leur soutien et pour la confiance et l'autonomie qu'ils m'ont accordées au cours de cette thèse. Cela aura été un plaisir de travailler avec chacun d'eux tout au long de ces trois années.

Je remercie également tous les membres de l'équipe de notre partenaire industriel Dassault Aviation, en particulier Fanny Chouteau et Sandrine Box, pour les discussions constructives, leur aide et leur gentillesse.

Je souhaite également remercier de tout mon cœur Nathalie Gleizes sans qui la plupart des essais expérimentaux effectués au cours de cette thèse n'auraient sans doute pas vus le jour. Je lui suis redevable pour toutes ces longues heures passées ensembles en salle blanche et pour tous ses conseils et la gentillesse dont elle a toujours fait preuve.

Je remercie les stagiaires qui m'ont aidé dans ces travaux, Cyril Bernolin et Vincent Raffault, pour l'intérêt et le sérieux dont ils ont su faire preuve au cours des quelques mois passés au laboratoire. Cela aura été un plaisir de travailler avec eux.

Un grand merci évidemment à l'ensemble des membres du laboratoire, en particulier aux doctorants et post-doctorants qui auront su faire de ces trois années un excellent souvenir. Une pensée en particulier à Jim, Geneviève, Wafaa, Landry, Guillaume, Flo ainsi qu'à tous mes amis albigeois, toulousains, parisiens et à tous ceux que j'oublie certainement qui ont fortement, parfois même un peu trop, animé ces années de thèse. Je remercie aussi évidement Fanny, la colocataire idéale, qui a su être là pour les bons moments comme pour les coups durs et qui s'est occupée de tout pendant mes dernières semaines de rédaction.

Finalement toutes mes pensées vont à ma mère et ma sœur qui m'ont toujours soutenue et qui m'ont appris à quel point il était important de s'amuser dans son travail.

Table des matières

Remerciements v
Table des matières vii

Introduction générale 1
1 Etat de l'art sur les déformations de cuisson des assemblages composites collés 3
Introduction 4
1.1 Les matériaux composites et les adhésifs structuraux 5
1.1.1 Les composites 5
1.1.2 Les procédés d'élaboration et d'assemblage des composites 7
1.1.3 Propriétés physico-chimiques des polymères 9
1.2 Phénomènes multi-physiques responsables des déformations de cuisson . 11
1.2.1 Différentiels de dilatation thermique 11
1.2.2 Le retrait chimique 13
1.2.3 Gradients de température 16
1.2.4 Interaction pièce outillage 16
1.2.5 Flux de résine et consolidation 17
1.2.6 Relaxation viscoélastique 20
1.2.7 Humidité 20
1.2.8 Cas des assemblages collés 20
1.3 Modélisation de cuisson des matrices thermodurcissables 21
1.3.1 Modèles thermocinétiques 22
1.3.2 Modélisation des changements d'état physico-chimique 23
1.3.3 Modèles constitutifs mécaniques 24
1.3.4 Modélisation de l'interaction pièce/outillage 28
1.4 Méthodes de suivi des déformations et des propriétés 28
1.4.1 Méthodes classiques d'analyses des matériaux à base thermodurcissable 29
1.4.2 Suivi des déformations thermochimiques hors autoclave 31

1.4.3 Suivi des propriétés et déformations mécaniques 35
1.4.4 Suivi des déformations par Fibres Optiques à Réseaux de Bragg . 38
Conclusion 40
2 Caractérisation des comportements matériaux du préimprégné et de l'adhésif 43
Introduction 44
2.1 Propriétés générales des matériaux étudiés 45
2.1.1 Le préimprégné M21EV/IMA 45
2.1.2 L'adhésif structural FM300-M 46
2.2 Caractérisation cinétique 47
2.2.1 Méthode de mesure par calorimétrie différentielle à balayage . . . 47
2.2.2 Caractérisation de l'avancement maximal de réaction 50
2.2.3 Identification des paramètres du modèle de Kamal Sourour modifié 51
2.2.4 Résultats du modèle de Kamal Sourour modifié 52
2.3 Propriétés thermiques 53
2.3.1 Capacité calorifique 53
2.3.2 Conductivité thermique 55
2.4 Transitions d'état des résines 57
2.4.1 Transition vitreuse 57
2.4.2 Gélification 58
2.4.3 Dégradation des résines 59
2.5 Déformations thermo-chimiques 60
2.5.1 Mesure des déformations thermochimiques par TMA 60
2.5.2 Mesure des déformations thermo-chimiques par Fibres Optiques à Réseaux de Bragg 63
2.6 Modèle constitutif mécanique 65
2.6.1 Modèles constitutifs des résines thermodurcissables 65
2.6.2 Identification du modèle constitutif du préimprégné 67
2.6.3 Identification du modèle constitutif de l'adhésif structural 72
Conclusion 74
3 Mise en place et validation de la modélisation des distorsions de cuisson 75
Introduction 76
3.1 Mise en place du modèle des distorsions de cuisson 76
3.1.1 Architecture globale du code FORTRAN 76
3.1.2 Module thermocinétique 78
3.1.3 Module contraintes et déformations 79
3.2 Étude de la sensibilité du modèle 80
3.2.1 Sensibilité du module thermocinétique 80
3.2.2 Sensibilité du module de simulation des contraintes et déformations 85
3.3 Validation du modèle thermocinétique de cuisson 87
3.3.1 Validation du modèle sur une plaque épaisse 87
3.3.2 Validation du modèle par mesures en arrêt de cycle 89
3.4 Fabrication et mesures des distorsions post-cuisson des cas génériques . 90
3.4.1 Fabrication des cas génériques 90
3.4.2 Mesures des déformations 94

3.5 Étude des mesures de distorsions et validation du modèle 97
3.5.1 Mesures des distorsions et validation de la modélisation des pièces de type plaques 97
3.5.2 Mesures des distorsions et validation de la modélisation des pièces de type cornières 101
3.5.3 Mesures des distorsions et problématique des assemblages collés . 103
Conclusion 105
4 Étude approfondie des liaisons collées 107
Introduction 108
4.1 Étude de la co-cuisson des plaques fines 108
4.1.1 Étude par tomographie des plaques co-cuites 108
4.1.2 Influence de la pression sur le flux de colle et les déformations . . 109
4.2 Influence des différentes méthodes d'assemblages collés sur les distorsions 110
4.2.1 Profils de distorsions 110
4.2.2 Simulation du co-collage 111
4.2.3 Étude des interfaces de collage 113
4.3 Influence du film de colle sur les déformations des pièces co-collées . . . 115
4.4 Suivi des déformations par fibres optiques à réseaux de Bragg 116
4.4.1 Fabrication et mesure des déformations de cuisson par FBG . . . 116
4.4.2 Mesures des déformations de cuisson dans un assemblage co-collé avec deux films de colle 120
4.4.3 Mesures des déformations de cuisson dans un assemblage co-collé sans film de colle 129
4.4.4 Comparaison du développement des déformations mesurées au sein des assemblages co-collés 135
Conclusion 137
Conclusion générale et perspectives 139

Table des figures 143
Liste des tableaux 151
Listes des symboles 153
Propriétés générales 153
Déformations et contraintes 153
Propriétés thermochimiques 154
Propriétés thermocinétiques 154
Propriétés mécaniques 155
Fibres optiques à réseaux de Bragg 155
Acronymes 157
Bibliographie 159

Introduction générale

La place, sans cesse croissante, des matériaux composites dans de nombreux domaines industriels est maintenant acquise, et ce tout particulièrement dans l'industrie aéronautique. Les intérêts économiques non négligeables que représentent l'allégement des structures, ainsi que les baisses de consommation de carburant qui y sont associées, ont donné aux composites et à leurs excellentes propriétés spécifiques une position majeure dans les efforts de recherche et de développement mis en œuvre à l'heure actuelle.

Ces efforts de recherche concernent, évidement, l'amélioration de la qualité et de la diversité de ces matériaux, mais également l'augmentation de la productivité et de l'amélioration des procédés de fabrication associés. Les matériaux composites, par leur complexité et leur forte anisotropie, sont des matériaux compliqués à mettre en œuvre. Si les systèmes à base thermoplastiques sont de plus en plus utilisés grâce, en partie, à leur flexibilité de fabrication et d'assemblage, les matériaux thermodurcissables restent abondamment utilisés pour les pièces de structure primaire aéronautique. La maitrise des coûts de fabrication ainsi que des méthodes d'assemblages de ces structures continuent à mobiliser d'importants efforts.

Le développement d'outils de fabrication virtuelle, dits de "virtual manufacturing", a pour objectif d'apporter une meilleure flexibilité de conception tout en permettant d'importantes économies lors de la mise en place des procédés de fabrication. L'utilisation d'outils de simulation pertinents vont permettre d'optimiser les cycles de fabrication et d'adapter les outillages aux géométries de pièces souhaitées.

Dans cette optique le COnseil pour la Recherche Aeronautique Civile (CORAC) a mis en place la plateforme Usine Aéronautique du Futur (UAF). L'un des projets de cette dernière est le projet MAitrisE par la SimulaTion des pRocédés Industriels Aéronautiques (MAESTRIA) supervisé par la DGAC et piloté par Dassault Aviation. Ce projet a pour objectif la maitrise de la simulation des processus de fabrication et d'assemblage pour les matériaux métalliques et composites. Les travaux de recherche présentés dans cette thèse sont effectués dans le cadre de ce projet. Ils traitent plus particulièrement de la simulation des déformations de cuisson des pièces composites élaborées par co-bonding en autoclave.

Durant le cycle de cuisson des pièces composites, de nombreux phénomènes multi-physiques entrent en jeu. Ceux-ci conduisent à l'apparition de contraintes résiduelles et de déformations qui impactent les géométries des pièces lors du démoulage et qui viennent fortement compromettre leur stabilité géométrique. Ceci est particulièrement vrai pour les structure primaire aéronautique de grandes tailles où le déplacement induit par les déformations de cuisson est exacerbé par les dimensions de la pièce.

Ces structures primaires sont, en général, constituées de diverses pièces composites assemblées entre elles, souvent à l'aide d'adhésifs structuraux thermodurcissables. Si la déformation des pièces composites thermodurcissables a fait l'objet de nombreuses recherches, l'influence des techniques de collage utilisées dans l'industrie sur la déformation des pièces et leur modélisation est elle assez mal connue.

L'objectif du travail présenté est donc de développer un outil de simulation des distorsions de cuisson des stratifiés de préimprégnés M21EV/IMA, ils sont constitués d'une matrice époxy renforcée en fibres de carbone. L'outil développé doit également permettre la simulation des déformations de cuisson liées à l'assemblages par co-bonding de ces stratifiés à l'aide d'un adhésif structural époxy FM300-M.

Le premier chapitre de ce manuscrit présente l'état de l'art concernant les déformations de cuisson des assemblages composites collés. Il permet de mettre en avant les phénomènes majeurs responsables des distorsions de cuisson et de présenter les méthodologies de modélisation existantes. Suite à cette étude bibliographique il apparait que, si la cuisson des composites a fait l'objet de nombreuses recherches, le comportement des adhésif structuraux au cours des cuissons a, lui, plus rarement été étudié.

En s'appuyant sur l'identification au cours du Chapitre 1 des phénomènes majeurs agissants sur les déformations de cuisson, la caractérisation des comportements du préimprégné M21EV/IMA et de l'adhésif structural FM300-M est traitée dans le Chapitre 2. Les comportements thermocinétiques, thermochimiques et thermomécaniques sont identifiés pour les deux matériaux. Diverses méthodes expérimentales sont mises en place pour permettre la caractérisation de ces comportements au cours de la cuisson du préimprégné et de l'adhésif.

Le Chapitre 3 présente la mise en place du modèle éléments finis de simulation de cuisson. Au cours de ce chapitre la robustesse et la validité du modèle sont également étudiées. Divers cas génériques composites sont fabriqués et assemblés par collage en autoclave afin de valider l'outil de simulation. Ces cas génériques permettent de mettre en évidence un comportement complexe de la colle et une influence non négligeable sur les distorsions de cuisson.

Suite à ces observations le Chapitre 4 fournit une étude plus approfondie du comportement de la colle au cours de la cuisson. Divers essais et modélisations sont mis en place dans cet objectif, dont des suivis de déformations in-situ au cours de cycles autoclave par fibres optiques à réseaux de Bragg.

Finalement, les principales conclusions de ce travail de recherche ainsi que les perspectives envisagées pour des travaux futurs sont présentées.

Chapitre

1

Etat de l'art sur les déformations de cuisson des assemblages composites collés

Introduction 4
1.1 Les matériaux composites et les adhésifs structuraux 5
1.1.1 Les composites 5
1.1.1.1 Les renforts 5
1.1.1.2 La matrice 5
1.1.1.3 Les préimprégnés 7
1.1.2 Les procédés d'élaboration et d'assemblage des composites 7
1.1.2.1 Les procédés d'élaboration des composites 7
1.1.2.2 Les procédés de fabrication des structures intégrées 9
1.1.3 Propriétés physico-chimiques des polymères 9
1.1.3.1 Gélification 10
1.1.3.2 Fusion des thermoplastiques 10
1.1.3.3 Vitrification 10
1.1.3.4 Dégradation des résines 10
1.2 Phénomènes multi-physiques responsables des déformations de cuisson . . 11
1.2.1 Différentiels de dilatation thermique 11
1.2.2 Le retrait chimique 13
1.2.3 Gradients de température 16
1.2.4 Interaction pièce outillage 16
1.2.5 Flux de résine et consolidation 17
1.2.6 Relaxation viscoélastique 20
1.2.7 Humidité 20
1.2.8 Cas des assemblages collés 20
1.3 Modélisation de cuisson des matrices thermodurcissables 21
1.3.1 Modèles thermocinétiques 22

1.3.1.1 Le fort couplage entre la thermique et la cinétique 22
1.3.1.2 Etude de la cinétique de polymérisation des systèmes époxy 22
1.3.2 Modélisation des changements d'état physico-chimique 23
1.3.3 Modèles constitutifs mécaniques 24
1.3.3.1 Modèles viscoélastiques 24
1.3.3.2 Les modèles CHILE 26
1.3.4 Modélisation de l'interaction pièce/outillage 28
1.4 Méthodes de suivi des déformations et des propriétés 28
1.4.1 Méthodes classiques d'analyses des matériaux à base thermodurcissable 29
1.4.1.1 L'analyse calorimétrique différentielle - DSC 29
1.4.1.2 Laser Flash Analysis - LFA 30
1.4.1.3 Analyse Thermogravimmétrique - TGA 30
1.4.1.4 Analyse thermomécanique - TMA 30
1.4.1.5 Analyse Mécanique Dynamique - DMA 31
1.4.2 Suivi des déformations thermochimiques hors autoclave 31
1.4.2.1 Mesure par rhéomètre 32
1.4.2.2 Mesure par analyse thermo-mécanique (TMA) 32
1.4.2.3 Dynamic Speckle Pattern global analysis - DSP 32
1.4.2.4 Mesure in-situ dans l'épaisseur d'un stratifié 33
1.4.2.5 Dilatomètres Volumiques à Piston 35
1.4.3 Suivi des propriétés et déformations mécaniques 35
1.4.3.1 Propriétés mécaniques 35
1.4.3.2 Interaction pièce outillage 37
1.4.4 Suivi des déformations par Fibres Optiques à Réseaux de Bragg . 38
1.4.4.1 Généralités sur les fibres optiques à réseaux de Bragg 38
1.4.4.2 Méthode de mesure des déformations par FBGs 39
Conclusion 40

Introduction

Avec l'utilisation de plus en plus fréquente des matériaux composites dans de nombreux domaines comme l'aéronautique, le spatial, l'automobile ou encore l'industrie navale, leurs compositions ainsi que leurs procédés d'élaboration et d'assemblage ne cessent de se diversifier. Ce chapitre décrit, dans un premier temps, la diversité de ces matériaux et de leurs méthodes de fabrication et d'assemblage. Une étude bibliographique approfondie sera ensuite présentée afin de comprendre plus précisément les phénomènes multiphysiques entrants en jeux durant leur cuisson. Cette étude va permettre de mettre en avant les phénomènes les plus impactants sur les déformations de cuisson. Ce sont ces phénomènes qui devront donc faire l'objet d'une caractérisation et d'une simulation approfondie. Les différentes méthodologies de modélisation de la cuisson des composites disponibles dans la littérature seront également étudiées. Finalement, les méthodes d'analyses des matériaux et de mesures des déformations existantes seront décrites afin de faciliter la compréhension des essais présentés dans la suite de ce manuscrit.

1.1 Les matériaux composites et les adhésifs structuraux

1.1.1 Les composites

Un matériau composite résulte de l'assemblage de plusieurs matériaux non miscibles. Ce mélange permet d'obtenir des gammes de propriétés très variées s'adaptant à de nombreux domaines d'application. En aéronautique, par exemple, c'est souvent la légèreté combinée à une bonne tenue mécanique qui est recherchée. Le composite est en général composé de renforts noyés dans une matrice possédant une résistance mécanique bien plus faible. Cette matrice permet le maintient de la géométrie de la pièce et la transmission des sollicitations qui lui sont imposées. Ce sont des matériaux homogènes très fortement anisotropes. La qualité des propriétés d'un composite dépend, évidemment, des caractéristiques des matériaux qui le composent. Mais la qualité des interfaces entre ces matériaux est également impactante et est fortement influencée par le procédé de fabrication [30].

Le composite utilisé dans le cadre de ce travail de recherche est élaboré à partir d'un préimprégné composé d'une matrice thermodurcissable M21EV. La M21EV est une matrice époxy chargée en nodules thermoplastiques dont nous détaillerons l'intérêt plus bas. Les renforts utilisés sont des fibres de carbone IMA. Le matériau est produit par Hexcel.

1.1.1.1 Les renforts

Les renforts sont en général des matériaux à hautes propriétés mécaniques. Ils assurent la tenue mécanique du composite. Ils demandent également de bonnes propriétés thermiques et électriques en fonction de l'utilisation visée. Ils peuvent être de type minéral ou organique. Les renforts existent également sous différentes formes : particules, microbilles, fibres courtes ou longues. Dans le cas des fibres IMA nous sommes en présence de fibres longues de carbone, haute performance et à module intermédiaire.

1.1.1.2 La matrice

Le but de la matrice est d'assurer la cohésion du composite. Elle permet de donner sa forme à la pièce. Il existe différents types de matrices (polymère, céramique, métallique, minérales ou encore biosourcée). La M21EV étudiée ici est une matrice polymère.

Les matrices polymères sont couramment utilisées en aéronautique. On distingue les thermoplastiques et les thermodurcissables. Si les thermodurcissables ont longtemps dominé le marché des composites grâce, entre autres, à leurs propriétés mécaniques, les thermoplastiques ont vocation à être de plus en plus utilisés. La matrice M21EV est une matrice époxy (thermodurcissable) chargée en nodules de thermoplastiques.

Les thermodurcissables

Les thermodurcissables, comme leur nom l'indique, durcissent au cours de leur polymérisation. Un réseau tridimensionnel de monomères liés par liaisons covalentes se forme, le réseau est dit « réticulé ». Cette réaction est irréversible. Il est impossible de faire refondre le matériau une fois polymérisé. Une montée en température ne peut entrainer que la dégradation de la pièce [30, 86].

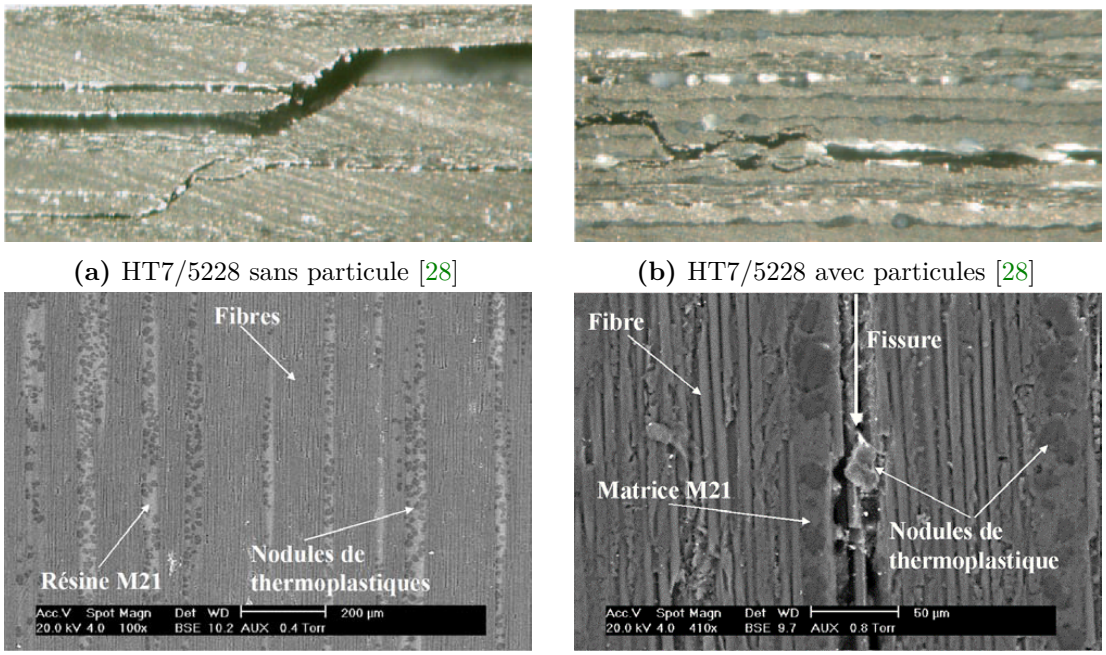
Lors de cette polymérisation le matériau passe d'un état fluide visqueux à un état caoutchoutique pour aboutir à son état vitreux final. Au cours de ces transformations, comme nous le verrons plus en détails plus loin, le matériau subit des changements de propriétés drastiques. Il gagne en tenue mécanique et se durcit. L'objectif est alors de s'approcher au maximum d'une polymérisation totale afin d'obtenir les meilleures caractéristiques mécaniques. Dans la pratique cet état est rarement atteint, la polymérisation est une réaction complexe, souvent exothermique et compliquée à contrôler complètement [86].

Il existe plusieurs types de thermodurcissables. Pour les pièces soumises à fortes sollicitations mécaniques les résines époxy sont généralement préférées.

Les thermoplastiques

Les thermoplastiques, lorsqu'ils sont chauffés, voient la force des liaisons de leurs chaines polymériques diminuer. Ainsi, la rigidité du matériau diminue jusqu'à fusion complète et son comportement est alors proche du fluide. Les matériaux thermoplastiques peuvent donc être réchauffés et refroidis de nombreuses fois avec une altération limitée de leurs propriétés. Cela a un impact capital sur leur mise en œuvre et leur recyclabilité [86]. Ces propriétés permettent d'utiliser des procédés de soudage qui provoquent un fort intérêt industriel.

Les thermodurcissables à nodules thermoplastiques



(a) HT7/5228 sans particule [28]

(b) HT7/5228 avec particules [28]

(c) M21/T700 avant rupture [75]

(d) M21/T700 après rupture [75]

Figure 1.1 – Microscopies et morphologies de rupture pour des préimprégnés chargés ou non en particules thermoplastiques

Les résines thermodurcissables, malgré leurs bonnes propriétés mécaniques, possèdent une faible ténacité. Cette caractéristique détériore considérablement la tenue des composites à matrices thermodurcissables lors d'un impact. Pour pallier à cela, des particules ILT, « InterLaminar Toughening », sont utilisées afin d'augmenter la ténacité des zones

inter-plis riches en résines. La figure 1.1 illustre la propagation d'une fissure au sein du HT7/5228 et du M21/T700. Celles-ci contournent les nodules thermoplastiques, ralentissant ainsi leur propagation.

Dans le cas de la M21EV, ce sont des nodules thermoplastiques qui permettent d'améliorer la tenue du matériau. Ces nodules complexifient cependant le comportement du composite. En effet ils influent sur les propriétés dans l'épaisseur de la pièce. Le préimprégné M21EV/IMA étudié ici est ainsi complètement orthotrope, il ne présente pas d'isotropie transverse.

1.1.1.3 Les préimprégnés

Les préimprégnés sont des produits semi-finis. Les fibres sont déjà imprégnées de résine partiellement polymérisée. La matrice est dans un état intermédiaire qu'on appelle stade B. Dans cet état, le thermodurcissable est presque insoluble. Les composites drapés à partir de plis de préimprégné sont moulés et cuits sous vide sans ajout de résine. Les préimprégnés sont utilisés pour les pièces de structures primaires aéronautiques.

1.1.2 Les procédés d'élaboration et d'assemblage des composites

1.1.2.1 Les procédés d'élaboration des composites

Afin d'obtenir un matériau composite abouti à partir du mélange renfort/matrice, il est nécessaire de faire durcir cette dernière. Dans le cas des matrices résineuses cette étape passe par la polymérisation. Les procédés de mise en forme disponibles sont nombreux et vont avoir une influence directe sur les propriétés des pièces obtenues. Les principaux procédés vont être succinctement présentés ici. On peut les classifier selon deux catégories : les procédés voie humide et les procédés voie sèche. Dans le premier cas la résine est apportée sous forme liquide tandis que dans le deuxième les matériaux utilisés sont directement des préimprégnés.

Les procédés voie humide

Les procédés par voie humide, souvent notés LCM pour Liquid Composite Moulding, impliquent donc l'apport de résine à l'état liquide. La résine est introduite dans un moule où sont placées des préformes sèches. Ces procédés de fabrication peuvent être divisés en deux catégories en fonction de la méthode d'apport de résine : soit sous l'action seule du vide, soit à l'aide d'une pompe à injection. Les procédés classiquement utilisés pour les pièces aéronautiques sont le Resin Transfer Moulding (RTM), qui fonctionne à l'aide d'une pompe à injection, et les infusions comme la Vacuum Assisted Resin Infusion Moulding (VARIM) ou la Vacuum Bag Resin Infusion (VBRI), qui utilisent le vide [31, 64].

Le procédé RTM consiste à injecter, par un ou plusieurs points d'injection, la résine dans une préforme sèche déposée dans un moule rigide. Dans le cas de l'infusion le moule supérieur est remplacé par une membrane déformable formant avec le moule inférieur un sac étanche. La résine est ensuite portée par le gradient de pression généré dans le sac à vide, comme illustré dans la figure 1.2 [64].

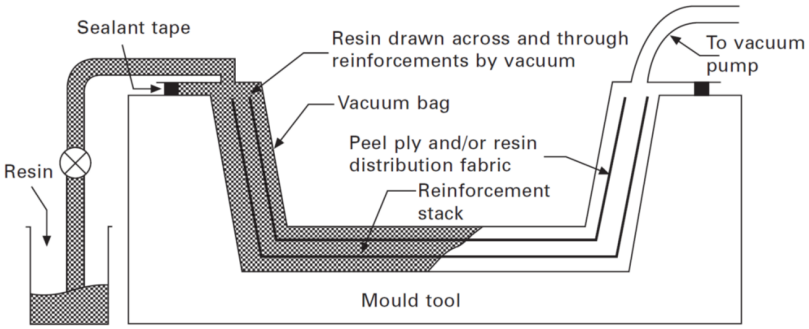


Figure 1.2 – Procédé d'infusion VBRI [64]

Les procédés voie sèche

Les procédés voie sèche sont, eux, principalement dédiés aux préimprégnés. Ces matériaux présentent de nombreux avantages. Leur forme semi-finie offre une bonne commodité d'utilisation et permet un meilleur contrôle du taux volumique de fibres. De plus, les questions de surplus de mélange résine-durcisseur ainsi que les risques d'incendie liés à l'exothermie du mélange sont évités. Cependant, ce sont des procédés qui restent couteux.

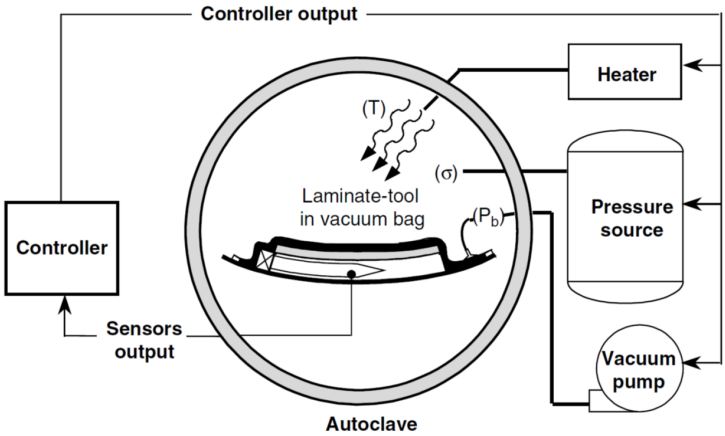


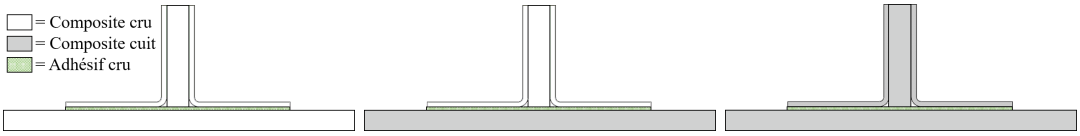
Figure 1.3 – Montage autoclave [40]

Les moulages sous vide avec une cuisson en étuve ou en autoclave peuvent être cités en particulier [7]. Lors du moulage sous vide, la pièce est drapée sur un moule rigide puis compactée dans un sac étanche. Ce sac étanche est obtenu, comme pour l'infusion, en associant l'outillage avec une membrane déformable. L'ensemble outillage, pièce compactée, membrane déformable ainsi que tout un panel de produits d'environnement, permettant de protéger le moule ou encore de répartir le vide, est ensuite placé en étuve ou en autoclave. Lorsqu'il s'agit d'une cuisson en étuve, la pièce, toujours sous vide, subit un cycle en température à une pression atmosphérique. La cuisson en autoclave est, elle, réservée aux pièces hautes performances. C'est un procédé majeur dans la fabrication des pièces de structure primaire en aéronautique. C'est donc ce procédé de fabrication qui sera utilisé et étudié tout au long de ce manuscrit. La cuisson est

effectuée dans une enceinte fermée, appelée autoclave, qui permet l'application d'une pression de quelques bars par l'intermédiaire d'un fluide (air, azote...) comme illustré dans la figure 1.3. Ce fluide permet également la régulation de la température du cycle de cuisson [7].

1.1.2.2 Les procédés de fabrication des structures intégrées

Les méthodes d'assemblage des structures intégrées (Integrated structures) sont usuellement divisées en trois méthodes : co-cuisson (co-cure), co-collage (co-bonding) et collage secondaire (secondary bonding). Ces méthodes sont illustrées dans la figure 1.4.



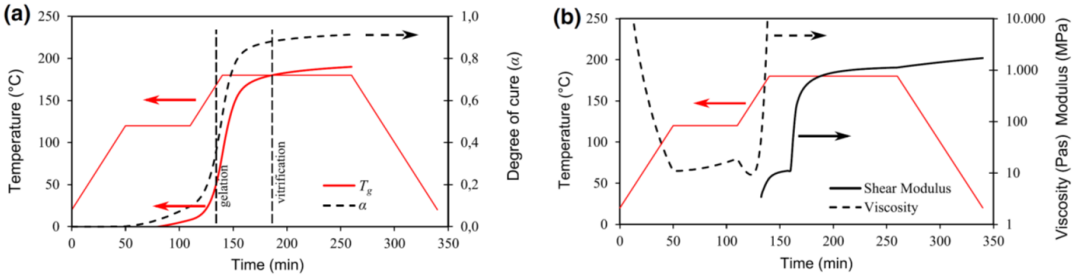
(a) Co-Cuisson **(b)** Co-Collage **(c)** Collage Secondaire

Figure 1.4 – Les différentes méthodes d'assemblages par collages

La co-cuisson consiste à draper et à cuire ensembles, en autoclave, les différentes pièces composites. Cela peut s'effectuer avec ou sans film de colle. Le collage secondaire consiste, lui, à cuire préalablement tous les composants, à les assembler avec un film de colle et à venir re-cuire l'ensemble afin de faire polymériser la colle. Finalement, dans le cas du co-collage qui nous intéresse ici, une première pièce composite est cuite séparément puis assemblée à l'aide d'un film adhésif avec une seconde pièce à l'état cru.

1.1.3 Propriétés physico-chimiques des polymères

Au cours de leur cuisson les polymères vont passer par divers états physico-chimiques. Les thermodurcissables, par exemple, vont gélifier et les thermoplastiques vont entrer fusion. Les deux types de polymère peuvent également, en réagissant sous l'action de la température, vitrifier et aller même jusqu'à leur dégradation. Ces états vont avoir une forte influence sur les propriétés matériaux et sur leurs comportements durant la cuisson [5] (voir figure 1.5). Il est donc essentiel de bien les comprendre et de déterminer avec précision quand ont lieu ces changements d'état physico-chimique au cours de la cuisson.



(a) α et T_g **(b)** Viscosité et module

Figure 1.5 – Développement des propriétés matériaux au cours d'un cycle de cuisson à 2 paliers [5]

1.1.3.1 Gélification

La gélification correspond à une augmentation brutale de la viscosité. Elle intervient à un degré d'avancement de réaction précis, noté α_{gel}, qui s'accompagne d'un phénomène de percolation. Deux phases coexistent ; la phase "gel" constituée d'une macromolécule de grande taille, et la phase sol, constituée de monomères, dimères, trimères et autres, résultants de la polycondensation. La réaction continuant, la phase "gel" ne cesse de se développer tandis que la phase "sol" tend à devenir quasi-inexistante. Le développement de la phase gel est un phénomène irréversible pour les thermodurcissables, seule la dégradation thermique du matériaux va permettre la rupture des molécules. La gélification s'accompagne d'un changement rhéologique important puisque, comme nous l'avons vu, la viscosité augmente et tend ensuite vers l'infini. La résine passe en fait d'un état visqueux à un état viscoélastique dit caoutchoutique [8]. Avant gélification, les résines thermodurcissables présentent des modules de cisaillement très bas et ne développent quasiment pas de contraintes internes. Une fois le point de gel passé, les propriétés mécaniques de la résine commencent à croitre et des contraintes notables vont pouvoir se développer au sein du matériau (voir figure 1.5). On comprend alors pourquoi ce changement d'état est capital pour la compréhension du développement des déformations et des contraintes résiduelles au cours de la cuisson.

1.1.3.2 Fusion des thermoplastiques

Durant la polymérisation des thermoplastiques, il est possible de voir apparaitre une phase cristalline. Les chaines du polymère s'organisent de manière à former un agrégat minimisant l'énergie du système. Si cette organisation n'est pas possible la structure est dite amorphe. Même en cas d'apparition d'une phase cristalline, une part de phase amorphe persiste toujours, on parle alors de semi-cristallins. Le taux de cristallinité va fortement dépendre des temps de cuisson et des températures auxquelles le matériau est soumis et va influencer ses propriétés. Lorsqu'un polymère semi-cristallin est chauffé, la fusion des cristallites occasionne un pic endothermique. Cette fusion traduit le passage de l'état caoutchoutique à l'état liquide. Le pic endothermique caractéristique de cette transformation peut être analysé afin de calculer le taux de cristallinité du matériau [32].

1.1.3.3 Vitrification

La vitrification est également une transition clef pour la compréhension des matériaux polymères. Celle-ci a lieu à une température appelée température de transition vitreuse et notée T_g. Elle définit le passage d'un état liquide ou caoutchoutique à un état vitreux. La masse moléculaire et le volume libre diminuent. Cette transition déclenche un certain nombre de modifications des propriétés matériaux, la cinétique de réaction est ralentie et le matériau adopte alors ses propriétés mécaniques finales et un comportement élastique comme illustré dans la figure 1.5 [5]. C'est dans cet état que se développent la majorité des contraintes résiduelles responsables des distorsions de cuisson.

1.1.3.4 Dégradation des résines

A partir d'une certaine température, dite température de dégradation thermique, les polymères subissent une détérioration moléculaire irréversible. Celle ci va induire d'importantes pertes de propriétés. Les réactions de polymérisation étant exothermiques,

une mauvaise gestion du cycle de température peut induire un emballement thermique important. Si la température du matériau atteint celle de dégradation, la pièce sera défectueuse.

1.2 Phénomènes multi-physiques responsables des déformations de cuisson

Comme nous l'avons vu plus haut, de nombreux phénomènes peuvent être cause de déformation lors de la fabrication de pièces composites. Cette partie a pour but la compréhension de ces comportements multi-physiques et la classification des paramètres responsables. Cette étape est capitale afin de mettre en place un outil simulation efficient.

1.2.1 Différentiels de dilatation thermique

Lors d'une cuisson en autoclave, la pièce est soumise à de fortes variations de températures. Or, les fibres de carbone du composite possèdent un coefficient de dilatation thermique (CTE) bien inférieur à celui de la résine. Ce différentiel d'expansion thermique est source de contraintes à l'échelle microscopique et macroscopique.

La fibre en elle-même est généralement orthotrope. Le coefficient de dilatation des fibres dans le sens longitudinal est très bas, voir négatif, tandis qu'il est plus élevé dans les sens transverses. Il reste cependant largement inférieur à celui de la résine qui possède un coefficient de dilatation thermique plus de dix fois plus élevé dans le cas de la M21. Cet écart conduit au développement de contraintes résiduelles à l'échelle microscopique lors du refroidissement de la pièce, et ce, même au sein de matériaux unidirectionnels. Ces contraintes résiduelles peuvent affecter la tenue mécanique du matériau mais ne sont pas, généralement, causes de distorsions. Elles se développent à une échelle très locale et les quelques effets de distorsion que ces contraintes peuvent induire sont répartis dans le volume global de la pièce [107].

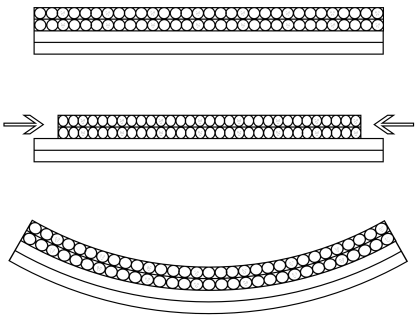


Figure 1.6 – Distorsions induites par le différentiel de dilatation thermique lors du refroidissement

Les différentiels de dilatation ont cependant aussi un impact à l'échelle du stratifié. C'est alors l'anisotropie entre les plis qui crée des contraintes résiduelles. Les plis de préimprégné possèdent, pour des raisons évidentes, des CTE bien plus élevés dans les directions transverses que dans la direction longitudinale aux fibres. L'écart de

dilatation entre le sens transverse et longitudinal du pli unidirectionnel cause des contraintes dans le plan des stratifiés multidirectionnels. Ce phénomène est cause de distorsion lorsque le drapage n'est pas symétrique. Il génère des contraintes importantes lors du refroidissement qui induiront des distorsions au démoulage, comme illustré dans la figure 1.6.

Ces phénomènes deviennent d'autant plus complexes lorsque des gradients thermiques, et donc de degré d'avancement de réaction, se développent au sein de la pièce. En effet le coefficient de dilatation thermique des résines thermodurcissables va dépendre de son état physico-chimique. Lors de la réticulation de la résine, la mobilité de ses molécules diminue avec la formation de réseaux de chaines moléculaires. Cette diminution de la mobilité moléculaire va induire une diminution du coefficient de dilatation thermique. Ainsi le coefficient de dilatation thermique à l'état vitreux va être inférieur à celui à l'état caoutchoutique et visqueux.

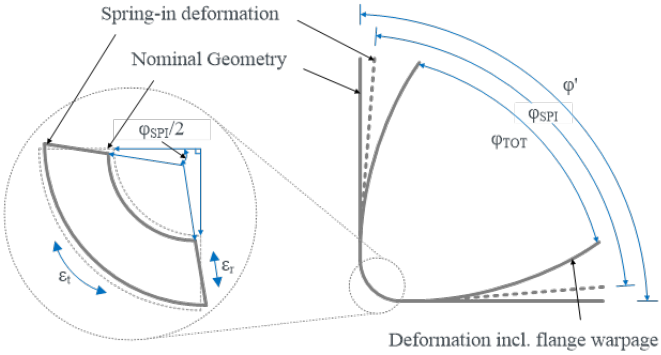


Figure 1.7 – Spring-in d'une pièce en L [34]

Dans les pièces courbes, les différentiels de coefficients de dilatation thermique sont aussi causes de déformation, et ce même si le drapage est équilibré et symétrique. Le stratifié étant plus riche en résine dans l'épaisseur, le coefficient de dilatation thermique est plus grand dans cette direction que dans la direction circonférentielle. Ce phénomène modifie les angles des zones courbes des pièces composites, on observe alors du spring-in (voir figure 1.7). Nelson and Cairns [69] décrivent analytiquement ce phénomène de spring-in par une équation simple :

$$\varphi_{SPI} = \varphi - \Delta\varphi \tag{1.2.1}$$

$$\Delta\varphi = \varphi \cdot \frac{\varepsilon_\theta^{th} - \varepsilon_R^{th}}{1 + \varepsilon_R^{th}} = \varphi \cdot \frac{(CTE_\theta - CTE_R) \cdot \Delta T}{1 + CTE_R \cdot \Delta T} \tag{1.2.2}$$

$\varepsilon_\theta^{therm}$ et ε_R^{therm} sont les déformations thermiques dans le plan et dans l'épaisseur du stratifié. CTE_θ et CTE_R sont les coefficients de dilatation du stratifié dans le plan et dans l'épaisseur. ΔT est la variation de température subie. $\Delta\varphi$ est la variation angulaire due au spring-in et φ est l'angle initial de la pièce.

Le différentiel de dilatation thermique dans le plan et dans l'épaisseur du stratifié n'est pas la seule source de déformation des pièces courbes. Wisnom et al. [107] remarquent

que, dans les portions courbes, les contraintes orthoradiales (voir figure 1.8) agissent sur une longueur circonférentielle plus petite dans le pli interne que dans le pli externe de la courbure. Les forces ne sont alors pas équilibrées et peuvent causer de la flexion et de la torsion dans ces zones angulaires.

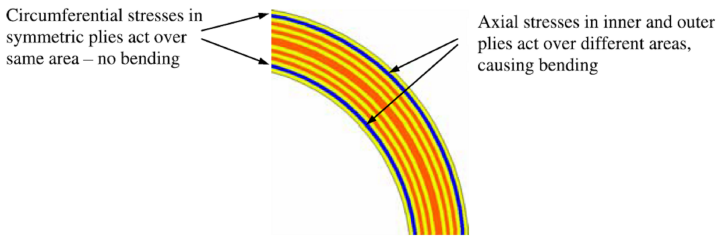


Figure 1.8 – Action des contraintes dans les plis internes et externes d'une zone courbe [107]

1.2.2 Le retrait chimique

Comme vu plus haut, les propriétés de la résine évoluent en fonction de son état physico-chimique (visqueux, caoutchoutique et vitreux). Le module d'Young par exemple est relativement bas à l'état caoutchoutique. C'est pour cette raison que, jusque dans les années 80, la déformation des pièces composites est essentiellement attribuée aux différentiels de dilatation thermiques. La pièce était alors considérée libre de contrainte à la température de cuisson et seule la phase de refroidissement était modélisée. L'origine des contraintes était considérée comme uniquement thermique. Cependant Hamamoto et Hyer [35] démontrent en 87 que les déformations observées, en particulier le spring-in, ne peuvent pas être uniquement expliquées par les différentiels de dilatation thermique en long et en travers des plis à l'état vitreux. La continuité fibre matrice, donc la gélification, reste cependant nécessaire pour le développement de contraintes notables. D'autres phénomènes doivent donc être pris en compte pour expliquer la complexité de la distorsion des pièces composites. L'un d'entre eux est le retrait chimique.

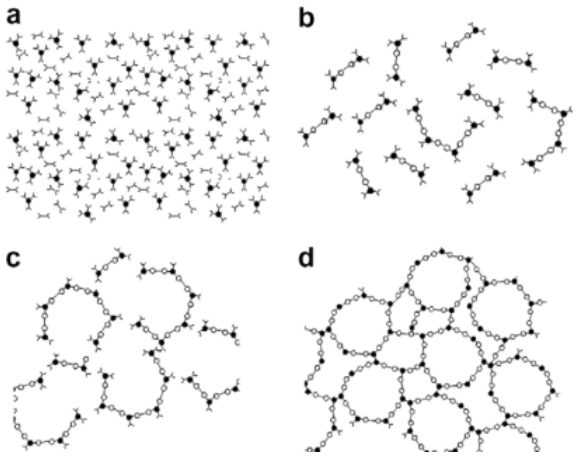


Figure 1.9 – Réticulation de la résine [29] (a) solution de monomère en début de réaction, (b) début de la gélification (c) fin de la gélification (d) polymère réticulé en fin de la vitrification

Le retrait chimique de la matrice est dû à sa réticulation. Pendant cette réticulation, des liaisons covalentes se forment au détriment de liaisons de Van Der Waals plus faibles, comme illustré dans la figure 1.9. Cette transformation d'une résine aux molécules faiblement liées à une résine hautement réticulée formant un réseau de chaines de polymères augmente la densité et réduit le volume de la matrice. Ce phénomène n'a lieu que durant la polymérisation et cesse dès que la matrice est complètement réticulée. Une augmentation de la raideur de la résine avec la réticulation est également observée, c'est le durcissement chimique.

Les fibres, elles, ne sont évidemment pas sujettes au retrait chimique. L'action du retrait chimique de la résine sur les fibres fait donc apparaître des contraintes à l'interface fibres/matrice ou encore à l'échelle des plis, ces effets sont similaires à ceux de la contraction thermique. Comme pour les différentiels de dilatation thermique, le retrait chimique crée des contraintes à l'échelle microscopique, à l'échelle des plis et peut modifier les angles des courbures. Ce phénomène a été mis en évidence par White and Hahn en 1993 [105]. En mesurant la déformation d'une éprouvette composite par Analyse Thermo-Mécanique (TMA), ils ont pu observer que la pièce continuait à se déformer même au niveau des paliers isothermes. Pour les résines époxy, le retrait chimique est en général responsable de 3% à 8% de la distorsion finale d'une pièce [2, 51, 72, 73, 107].

L'équation de Nelson et Cairns permettant de calculer le spring-in dû à la dilatation thermique (1.2.2) peut donc être complétée avec le retrait chimique du matériau. Cette équation a été définie par Radford et Diefendorf [84] et est décrite dans l'équation 1.2.3.

$$\Delta\varphi = \varphi \cdot [\frac{\varepsilon_\theta^{th} - \varepsilon_R^{th}}{1+\varepsilon_R^{th}} + \frac{\varepsilon_\theta^{ch} - \varepsilon_R^{ch}}{1+\varepsilon_R^{ch}}] = \varphi \cdot [\frac{(CTE_\theta - CTE_R)\cdot\Delta T}{1+CTE_R\cdot\Delta T} + \frac{\varepsilon_\theta^{ch} - \varepsilon_R^{ch}}{1+\varepsilon_R^{ch}}] \quad (1.2.3)$$

$\varepsilon_\theta^{chem}$ et ε_R^{chem} sont les déformations chimiques dans le plan et dans l'épaisseur du stratifié. $CTE_R \cdot \Delta T$ et ε_R^{chem} sont parfois considérés très petits et l'équation peut être simplifiée, ce qui conduit alors à l'équation 1.2.4.

$$\Delta\varphi = \varphi \cdot [(CTE_\theta - CTE_R)\cdot\Delta T + \varepsilon_\theta^{ch} - \varepsilon_R^{ch}] \quad (1.2.4)$$

Cependant, un problème se pose lors de l'utilisation de ce modèle analytique pour le spring-in. L'équation de Radford et Diefendorf ne distingue pas l'action du retrait chimique en fonction des différents états de la résine. Or il se trouve que la résine à l'état caoutchoutique peut se cisailler facilement dans l'épaisseur grâce à son faible module de cisaillement. La déformation en cisaillement devrait donc être capable de compenser au moins en partie l'effet du retrait chimique sur l'angle de la pièce. Dans la pratique certaines contraintes de cisaillement demeurent. Wisnom et al. [108] traitent le problème avec une cinématique de type « shear-lag analysis ».

Avant gélification, la résine est un liquide fluide. Comme vu plus haut, il n'y a pas de continuité fibre/matrice et le retrait chimique a donc une influence quasi-négligeable sur le spring-in avant le point de gel. L'équation de Radford suppose implicitement que le matériau a un comportement élastique. Cependant à l'état caoutchoutique la résine a un module en cisaillement très bas comparé à la raideur dans le plan du composite. Le module en cisaillement ne peut cependant pas être complètement négligé.

Cela reviendrait à considérer, comme dans les modèles des années 80-90 évoqués plus haut, que la pièce est libre de contraintes à la vitrification. Il y a donc un phénomène intermédiaire entre les deux cas illustrés dans la figure 1.10.

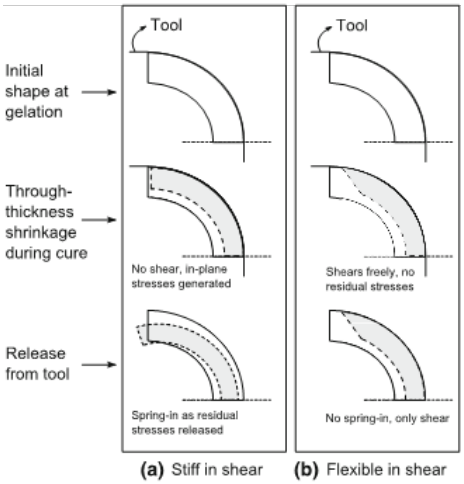


Figure 1.10 – Analyse "Shear-Lag" [5, 108]

Ce phénomène peut être pris en compte dans les modèle éléments finis avec l'évolution des propriétés mécaniques des matériaux mais n'est pas pris en compte par le modèle analytique de Radford. La nouvelle équation développée par Wisnom et al. [5, 108] est décrite dans 1.2.5 et 1.2.6.

$$\Delta\varphi = -\varepsilon_R^{ch} \cdot [\varphi - \frac{e^{aR_\varphi\varphi} - e^{-aR_\varphi\varphi}}{R_\varphi \cdot a \cdot (e^{aR_\varphi\varphi} + e^{-aR_\varphi\varphi})}] + \varphi \cdot [(CTE_\theta^g - CTE_R^g) \cdot \Delta T + \varepsilon_\theta^{ch,g} - \varepsilon_R^{ch,g}] \tag{1.2.5}$$

$$a = \sqrt{\frac{10 \cdot G_{\theta r}}{E_\theta \cdot h^2}} \tag{1.2.6}$$

CTE_θ^g et CTE_R^g sont les coefficients de dilatation thermique dans le plan et dans l'épaisseur à l'état vitreux. $\varepsilon_\theta^{ch,g}$ et $\varepsilon_R^{ch,g}$ sont les déformations chimiques dans le plan et dans l'épaisseur du stratifié à l'état vitreux, ces termes peuvent certainement être considérés égaux à 0. ΔT est le gradient de température pendant le refroidissement (entre T vitrification et RT). φ est la courbure en radians et R_φ est le rayon de courbure. $G_{\theta r}$ est le module de cisaillement interlaminaire et E_θ est le module effectif dans le plan à l'état caoutchoutique. h est l'épaisseur de la pièce.

Cette équation modifiée ne prend pas en compte les déformations dans le plan. Celles-ci peuvent cependant avoir un impact sur le spring-in en changeant la longueur d'arc avant vitrification. Pour plus de justesse un terme devrait donc être ajouté prenant en compte l'expansion thermique dans le plan entre la gélification et la vitrification. Wisnom et al. mesurent un écart maximal de 15% entre les résultats analytiques et leurs valeurs expérimentales.

1.2.3 Gradients de température

La conduction thermique du moule et des différents matériaux soumis au cycle de cuisson crée des différentiels de température et donc des différentiels de degré d'avancement de réaction de polymérisation au sein de la pièce. Cela influe sur les déformations thermiques et chimiques et sur le développement des propriétés mécaniques du matériau et peut donc causer l'apparition de contraintes. Ce phénomène ne peut pas être négligé pour les pièces épaisses [5, 9, 10, 39, 45, 90]. De plus, la réaction de réticulation de la matrice est une réaction hautement exothermique qui peut générer des gradients thermiques locaux importants. L'influence du gradient de température sur la déformation s'accentue quand la transition vitreuse est atteinte car les CTE de la résine caoutchoutique et vitreuse sont très différents [39, 94]. Ces gradients de température et de degré d'avancement vont également impacter les propriétés thermiques du matériau telles que la conductivité ou la capacité thermique.

1.2.4 Interaction pièce outillage

Il a longtemps été considéré, à tort, que les plaques symétriques planes ne subissaient pas de distorsion. Cette affirmation était basée sur l'hypothèse que seuls les différentiels de dilatation entre les plis et le retrait chimique étaient causes de déformation. En se limitant à ces deux phénomènes il était donc impossible d'obtenir de la distorsion dans une plaque symétrique. Cependant ces suppositions sont en contradiction avec plusieurs résultats expérimentaux. L'exemple de la figure 1.11 montre qu'en augmentant la surface d'une plaque symétrique fine sa distorsion augmente [61, 100, 102]. De même, il a été démontré que la pression et les conditions d'interface entre le moule et la pièce, comme le démoulant, la rugosité de la surface ou encore le coefficient de dilatation du moule, avaient une influence sur les distorsions finales de la pièce [22, 94, 97, 99]. Par ailleurs, Waris et al. [103] observent, en mesurant le développement des déformations au cours d'un procédé RTM à l'aide de fibres optiques à réseaux de Bragg, des différences entre les déformations générées en utilisant un moule composite HexTool^{TM} et celles générées en utilisant un moule en aluminium. Le développement des déformations diffère entre les deux types de moule principalement au cours du refroidissement, mais des différences sont également observables durant les autres étapes du cycle de cuisson.

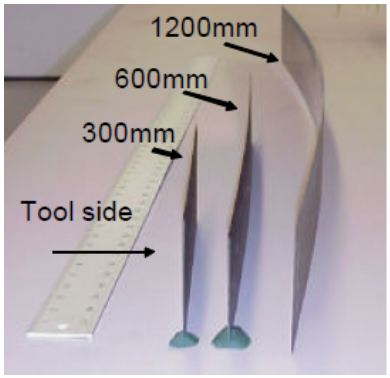
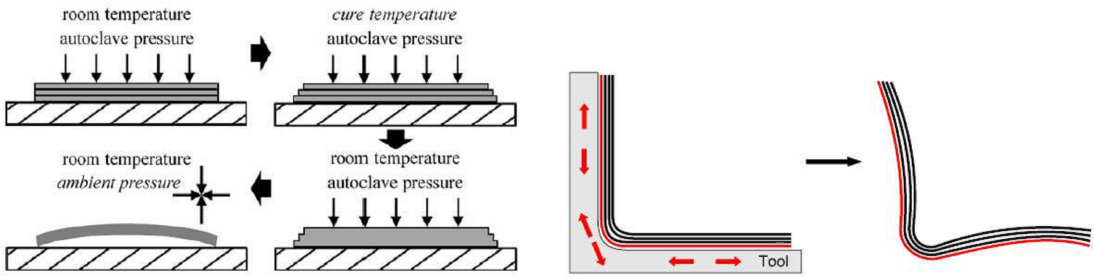


Figure 1.11 – Influence des dimensions de plaques sur la distorsion [102]

L'interaction entre la pièce et l'outillage lors d'un procédé autoclave est donc cause de distorsions. C'est un paramètre extrinsèque dû au différentiel de dilatation entre le

moule et la pièce composite et à la pression générée dans l'autoclave qui vient forcer le contact à l'interface outillage/pièce. La déformation occasionnée par ces interactions a alors une origine non-thermoélastique [81].

En début de cycle, pendant la chauffe, le cisaillement dû aux frottements et à l'expansion thermique du moule crée des tensions dans le plan au sein de la pièce. Le pli adjacent à l'outil est étiré plus fortement que les plis plus éloignés comme illustré dans la figure 1.12. Ceci crée un gradient de contraintes dans le plan, dans l'épaisseur de la pièce. Quand la résine vitrifie cette distribution non uniforme des contraintes est « figée » (« locked-in ») [81, 94] dans le stratifié. Lorsque celui-ci est finalement retiré du moule, l'énergie de déformation interne va tendre vers une valeur minimale et le moment de flexion induit par les contraintes résiduelles va causer la distorsion de la pièce.



(a) Plaque **(b)** Raidisseur

Figure 1.12 – Interaction outillage/pièces [5]

Ces contraintes commencent à apparaitre avant même que la résine ait développé un taux de réticulation significatif. A ce moment-là, le module de cisaillement est très bas et la continuité fibre/matrice n'est pas assurée. Ces contraintes sont attribuées au frottement des fibres sur l'outillage [22, 94, 99].

A ce phénomène s'ajoute le différentiel de coefficient de dilatation entre le moule et la pièce pendant le refroidissement [99, 100, 101]. Une interaction de cisaillement entre la pièce et l'outil apparait alors induisant des contraintes internes dans l'épaisseur du laminé qui finissent par le détacher de l'outil.

Un dernier phénomène dû à l'interaction pièce/outillage est le verrouillage de la géométrie de la pièce dû à une interaction forcée [81]. Certaines géométries de pièce forcent la pièce à bouger avec l'expansion de l'outil. Le cas le plus courant est celui d'un tube subissant l'expansion d'un mandrin. Ce phénomène est également illustré par le fait qu'un plus grand spring-in est observé pour les géométries C que pour les géométries L [100]. Les auteurs ne sont cependant pas unanimes sur le sujet puisque Albert et Fernlund ne trouvent, eux, pas d'écart significatif [2].

1.2.5 Flux de résine et consolidation

Durant le cycle autoclave, la résine passe par des états de basse viscosité où elle peut être très fluide. Elle suit alors certains flux dus aux conditions d'autoclave (pression, drainant...). Ces flux peuvent affecter la distribution du taux volumique de fibre au sein de la pièce [85].

L'évolution usuelle de la viscosité de la résine au cours d'un cycle de cuisson est illustrée dans la figure 1.13. Lorsque la température augmente la viscosité diminue avec l'agitation

moléculaire. Dès que la viscosité est assez basse, la pression comprime la résine et évacue l'excès dans le drainant. La viscosité atteint un point minimum à partir duquel la réaction de polymérisation prend le dessus et l'augmentation de la taille des molécules fait de nouveau augmenter la viscosité, comme expliqué dans la partie 1.1.3.1. Quand la résine atteint le point de gel, la viscosité augmente rapidement et le flux s'arrête. La résine forme un gel. Elle continue ensuite sa réticulation jusqu'à produire la pièce finale rigide.

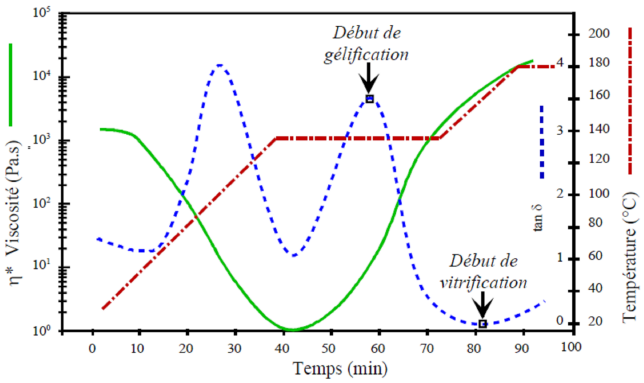


Figure 1.13 – Evolution de la viscosité de la résine durant un cycle d'autoclave classique [74]

Le flux de résine affecte la distribution volumique de fibres, la formation de zones riches en résine et les dimensions finales de la pièce. Il peut être la cause de nombreux défauts illustrés dans la figure 1.14 : gauchissement (1), zones riches (2) ou pauvres (3) en résine, porosités...

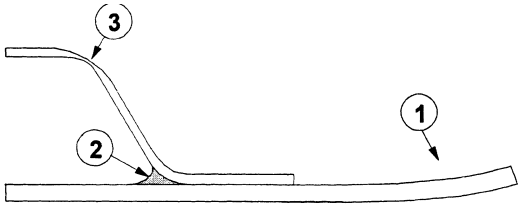


Figure 1.14 – Exemples de défauts causés par le flux de résine [41]

Par exemple, lorsque la pièce est produite en autoclave dans une poche à vide, la résine est généralement drainée côté sac, rendant cette zone pauvre en résine. Inversement, la zone basse de la pièce côté moule bénéficie de l'action de la pression de l'autoclave et s'enrichit en résine. Ce gradient de taux volumique de fibre influe sur le retrait chimique et la dilatation thermique, les propriétés du stratifié deviennent alors dissymétriques comme illustré dans la figure 1.15. Ce phénomène augmente en ampleur avec l'épaisseur de la plaque.

Les angles sont des zones particulièrement affectées par la consolidation, comme illustré dans la figure 1.16. Dans le cas des moules femelles on observe ce qu'on appelle le pontage des fibres (« fiber bridging ») [5, 37, 80]. La friction entre les fibres au niveau de l'angle empêche les couches de se conformer exactement à la géométrie du moule. La pression est inefficace dans cette zone et on obtient une zone à basse pression ou

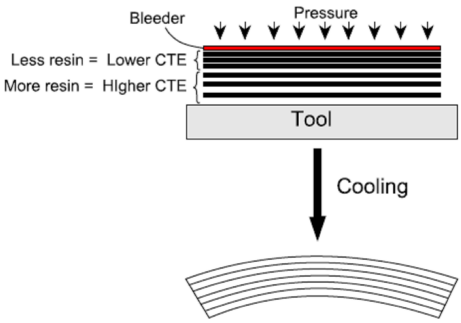
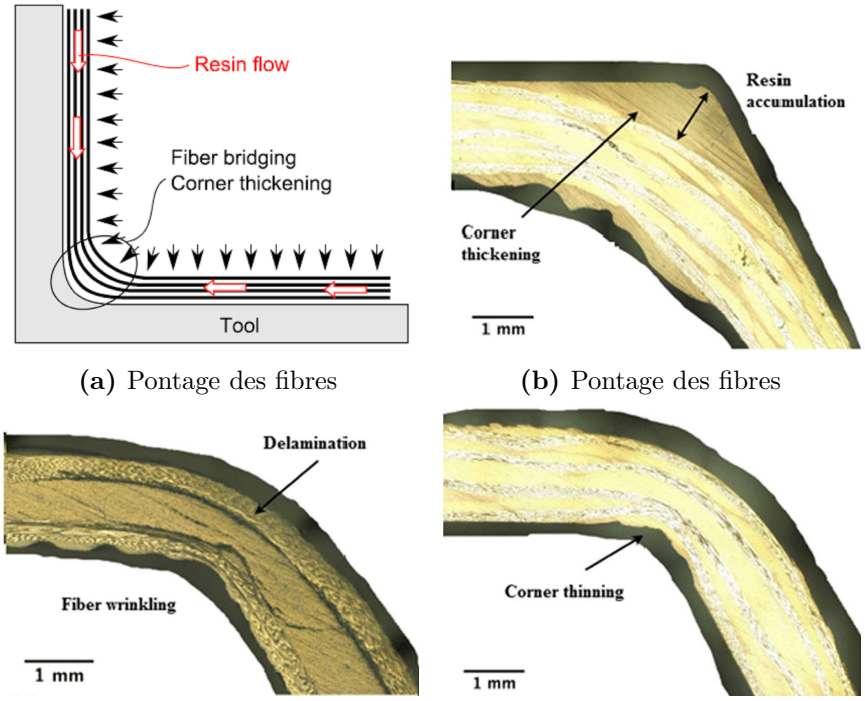


Figure 1.15 – Gradient de taux volumique de fibre [5]

s'infiltre plus de résine. Cet effet est plus prononcé pour des angles fins. Dans cette zone, la résine étant en surplus, les effets des différentiels de CTE et de retrait chimique sont exacerbés et peuvent augmenter le spring-in. Pour un moule mâle l'effet d'angle est différent. Les fibres extérieures sont compressées et se plissent [37] comme illustré dans la figure 1.16.



(a) Pontage des fibres **(b)** Pontage des fibres

(c) Plissement des fibres **(d)** Affinement

Figure 1.16 – Effets d'angle lors de la consolidation [5, 37]

D'après la littérature, les préimprégnés à base de matrice époxy M21E chargée en nodules thermoplastiques ne présentent pas de gradient de taux volumique de fibre notable [61, 94]. Ce phénomène devrait donc pouvoir être négligé dans le cas du préimprégné M21EV/IMA dont la matrice a une composition très proche de la résine M21E.

1.2.6 Relaxation viscoélastique

Weitsman démontre en 1979 [104] qu'une analyse linéaire élastique des contraintes résiduelles entraine une surestimation des contraintes thermiques apparaissant au cours du refroidissement de la pièce composite de plus de 20%. Certains auteurs [24, 57] observent qu'en augmentant le temps de refroidissement la distorsion des pièces diminue. De même, en réduisant la vitesse de refroidissement de 5,6°C/min à 0,56°C/min, White [105] observe que la courbure résiduelle est diminuée de 12%. Les résines thermodurcissables possèdent un comportement viscoélastique. En se limitant à un modèle élastique les phénomènes de relaxation viscoélastique sont ignorés, ce qui cause ces surestimations des distorsions.

Cependant, la littérature n'est pas unanime sur le sujet. Expérimentalement Svanberg et Holmberg [95] remarquent, eux, que la vitesse de refroidissement n'a pas d'impact fort sur la distorsion finale des pièces composites. De même K.E. Tarsha Kurdi et P. Olivier [98] n'observent pas une forte influence de la vitesse de refroidissement sur les distorsions mesurées en fin de cycle. Sur 6 éprouvettes faites de M21/T800S mesurées d'abord 1 jour après cuisson puis 1 mois après cuisson, Stefaniak et al. [94] n'observent aucune modification des distorsions.

Cependant, les auteurs travaillant sur des résines époxy seules, en particulier les colles époxy, observent souvent une forte relaxation viscoélastique [19, 82, 83, 104]. Le film de FM300-M risque donc d'avoir un comportement viscoélastique notable.

1.2.7 Humidité

L'effet de l'humidité est similaire à celui du différentiel de dilatation et à celui du retrait chimique. L'équation de Radford et Diefendorf (équation 1.2.3) comprenait initialement le coefficient de gonflement humide dans leur calcul du spring-in, comme défini dans l'équation 1.2.7.

$$\Delta\varphi = \varphi' \cdot [\frac{(CTE_\theta - CTE_R) \cdot \Delta T}{1 + CTE_R \cdot \Delta T} + \frac{\varepsilon_\theta^{ch} - \varepsilon_R^{ch}}{1 + \varepsilon_R^{ch}} + \frac{\beta_\theta - \beta_R}{1 + \beta_R}] \tag{1.2.7}$$

β_θ et β_R coefficients de gonflement humide dans le plan et dans l'épaisseur du stratifié.

Cependant, plusieurs auteurs observent expérimentalement que son influence reste négligeable [51, 94]. De plus, comme vu plus haut, sur 6 éprouvettes faites de M21/T800S mesurées d'abord 1 jour après cuisson puis 1 mois après cuisson, Stefaniak et al. [94] n'observent aucune modification des déformations. Aucune relaxation ou déformation n'est donc observée suite à une exposition prolongée à l'humidité ambiante. Ce phénomène peut donc probablement être négligé.

1.2.8 Cas des assemblages collés

Il devient de plus en plus courant dans l'industrie aéronautique d'utiliser des assemblages collés pour les pièces de structure primaire. La transmission des déformations et les différentiels de CTE ou de retraits chimiques entre les différents substrats vont pouvoir induire des déformations. Il est alors possible de parler de distorsions indirectes [51]. De plus, les colles, n'étant par chargées en fibres, possèdent un CTE bien plus important que

les composites. Leur retrait chimique va également être plus conséquent. Des contraintes résiduelles importantes peuvent donc être générées entre la couche d'adhésif et les substrats composites [14].

Les distorsions et les contraintes résiduelles de cuisson pour les assemblages collés en autoclave restent peu étudiées dans la littérature. Un certain nombre de travaux ont cependant été menés pour des assemblages composite/métallique hors autoclave. Ces travaux de recherche traitent en général des problématiques de réparation aéronautique [14, 19, 53] et de déformations des panneaux extérieurs automobiles [27, 34, 58, 78, 82, 83]. Dans le domaine automobile, les joints de colle causent des déformations visibles en surface des assemblages collées métal/composite. Lorsque ces déformations sont situées sur la surface extérieure du véhicule, elles sont considérées comme des défauts critiques nommés "Bond-Line Read-Out" (BLRO). Les études visant à maitriser les déformations de cuisson haute température de ces assemblages observent bien des distorsions de cuisson non négligeables, dues principalement aux différentiels de CTE et de retrait chimique. Certains auteurs se sont également intéressés aux développement des contraintes résiduelles des assemblages métal/composite afin de minimiser la dégradation de la tenue mécanique du joint de colle [47, 78]. Les contraintes résiduelles sont mesurées en étudiant la courbure d'éprouvettes bi-matériaux adhésif/substrat.

Si quelques articles étudiant la cuisson des assemblages collées pour des panneaux auto-raidis existent [20, 56], dans la majorité des cas, ces études ignorent l'influence de la colle. Les modèles mis en place sont donc globalement les mêmes que pour les cuissons composites classiques. De plus, les modèles éléments finis utilisés dans ces études sont rarement validés expérimentalement [56]. Les déformations de cuisson des assemblages composites collés en autoclave ont, de ce fait, été peu étudiés jusqu'ici et le comportement de la colle en particulier reste insuffisamment connu.

1.3 Modélisation de cuisson des matrices thermodurcissables

Depuis les années 1970, de nombreux auteurs ont cherché à modéliser le développement des contraintes résiduelles et des déformations de cuisson des matériaux composites. Comme nous avons pu le voir, les phénomènes responsables de la déformation des pièces lors d'une cuisson autoclave sont complexes. Les modèles analytiques, s'ils nous permettent d'expliquer plus précisément les phénomènes en jeu, ne permettent pas d'obtenir des résultats suffisamment proches des résultats expérimentaux. Pour pouvoir prévoir correctement les déformations il est donc nécessaire de procéder à une analyse par éléments finis FEA. Si on reprend les phénomènes décrits précédemment, pour simuler les déformations de cuisson dans leur totalité il faudrait être, à priori, capable de modéliser

— L'état thermocinétique et physico-chimique des résines,
— Les déformations thermiques liées aux différents CTE entrant en jeu durant la cuisson,
— Les déformations chimiques liées au retrait chimique,
— Le flux de résine,
— Le gonflement humide,

— L'évolution des propriétés mécaniques des matériaux au cours de la cuisson,
— L'interaction de l'outillage avec la pièce,
— Dans le cas particulier des assemblages collés, la colle et son influence.

Il a été vu précédemment que le flux de résine et l'humidité ont une influence quasi-négligeable sur les résines de types M21EV. Même en ignorant ces phénomènes, les modèles FEA développés devraient donc être capables de fournir des résultats satisfaisants.

1.3.1 Modèles thermocinétiques

Les matériaux thermodurcissables ont des propriétés intimement liées au degré d'avancement de leur réaction de réticulation et à leur état physico-chimique. La quasi-totalité des propriétés intrinsèques des matrices thermodurcissables, telles que les propriétés mécaniques ou encore la conductivité ou les coefficients de dilatation thermique, vont en dépendre. Cette cinétique de réaction et ces changements de phase de la résine sont directement dépendants du chemin temps-température suivi par le matériaux. Or, la réaction de réticulation est une réaction hautement exothermique. Les élévations de température liées à cette exothermie peuvent engendrer des gradients thermiques et de taux de réticulation et, éventuellement, porter la résine jusqu'à sa dégradation, si la réaction n'est pas contrôlée. Il est donc essentiel de maitriser le couplage entre la thermique et la cinétique lors de la cuisson. Ce n'est qu'ainsi qu'il va être possible de prédire et simuler le comportement thermocinétique des matériaux.

1.3.1.1 Le fort couplage entre la thermique et la cinétique

Une méthode utilisée depuis plus de 30 ans et qui s'est avérée performante pour coupler les modèles cinétiques à l'état thermique des matériaux est l'équation de la chaleur. Elle est construite à partir de l'équation de conduction de la chaleur de Fourrier et de la loi de conservation de l'énergie sans transfert de masse (voir équation 1.3.1).

$$\rho_c Cp \frac{\delta T}{\delta t} = div(\lambda(T) \cdot gradT) + \rho_m \Delta H_{tot} V_m \frac{d\alpha}{dt} \tag{1.3.1}$$

ρ_c et ρ_m sont ici respectivement la masse volumique du composite et de la matrice. Cp et λ sont respectivement la capacité calorifique et la conductivité thermique du matériaux. ΔH_{tot} est l'enthalpie totale de réaction et α est le degré d'avancement de la réaction de réticulation de la résine. V_m est la fraction volumique de résine.

1.3.1.2 Etude de la cinétique de polymérisation des systèmes époxy

Il existe deux types de modèles cinétiques : les modèles phénoménologiques et les modèles mécanistiques. Les modèles phénoménologiques décrivent les réactions de manière globale. Ils ne s'intéressent pas aux détails des réactions intervenant entre les différents composants de la résine. Les modèles cinétiques mécanistiques suivent eux scrupuleusement les différentes réactions chimiques en jeux. Ce sont alors des modèles complexes qui demandent la détermination de nombreux paramètres [1]. De plus, ils nécessitent des connaissances approfondies de la composition de la résine étudiée, or celle-ci est confidentielle pour la plupart des résines disponibles sur le marché. De ce fait,

pour l'étude de la cinétique des époxy, les modèles phénoménologiques sont largement préférés [1, 5, 48, 55, 75].

Dans le cas des résines époxy à nodules thermoplastiques de type M21EV, les modèles de Bailleul [1] et de Kamal Sourour [48, 55, 75] sont régulièrement utilisés. En s'appuyant sur le travail comparatif des différents modèle cinétiques effectué par Paris [75] sur la M21E, le modèle de Kamal Sourour modifié semble être le plus adapté pour le type de résine étudié dans ce manuscrit. Il est décrit par les équations 1.3.2 et 1.3.3.

$$\frac{d\alpha}{dt} = (k_1 + k_2 \cdot \alpha^m)(\alpha_{max} - \alpha)^n \tag{1.3.2}$$

$$k_i = A_i \cdot exp(-\frac{E_{a_i}}{R \cdot T}) \tag{1.3.3}$$

n et m sont les ordres partiels de réaction. A_i est le facteur pré-exponentiel et E_{a_i} est l'énergie d'activation. α_{max} désigne l'avancement maximal de la réaction.

1.3.2 Modélisation des changements d'état physico-chimique

Comme évoqué précédemment, les résines thermodurcissables vont, au cours de leur cuisson, passer par différents états physico-chimiques : visqueux, caoutchoutique et vitreux. Une grande partie des propriétés de ces matériaux sont fortement dépendantes de cet état. Il est donc nécessaire, pour simuler correctement la cuisson des matériaux à base époxy, de connaitre l'état physico-chimique des résines en tout point de la pièce et à tout moment du cycle.

Comme vu plus haut, le passage de l'état visqueux à caoutchoutique est fixé par le point de gel alors que le passage de l'état caoutchoutique à vitreux est lui fixé par la température de transition vitreuse. Tandis que le point de gel peut être décrit par un avancement limite α_{gel} constant, la température de transition vitreuse, elle, évolue avec le degré d'avancement de la réaction de réticulation du thermodurcissable. Une des lois de comportement classiquement utilisées [1, 5, 55, 75] pour décrire l'évolution de la transition vitreuse des résines époxy est le modèle de Di Benedetto. Initialement développé par A.T. DiBenedetto et publié par L.E. Nielsen en 1969 [16, 70], le modèle a ensuite été repris par Pascault et Williams [76, 77] dans les années 90. C'est cette dernière version du modèle qui est maintenant abondamment utilisée dans la littérature et qui est décrite par l'équation 1.3.4.

$$\frac{T_g - T_{g0}}{T_{g\infty} - T_{g0}} = \frac{\lambda_{T_g} \cdot \alpha}{1 - (1 - \lambda_{T_g}) \cdot \alpha} \tag{1.3.4}$$

T_g est la température de transition vitreuse instantanée, T_{g0} et $T_{g\infty}$ sont respectivement les températures de transitions vitreuses à l'état non réticulé et complètement réticulé. λ_{T_g} correspond au rapport des mobilités de chaînes associé à la loi de Di Benedetto.

1.3.3 Modèles constitutifs mécaniques

Le succès d'une modélisation numérique dépend de la justesse avec laquelle elle retransmet les principaux phénomènes physiques et chimiques entrant en jeu. Il est capital de modéliser correctement le développement des variables d'état et des propriétés mécaniques des matériaux. Il existe une multitude de modèles dans la littérature, allant des modèles 1D élastiques linéaires jusqu'à des modèles 3D viscoélastiques. L'objectif principal lors de l'élaboration de ces modèles est de parvenir à obtenir une précision suffisante tout en limitant au maximum les coûts de calculs. Afin d'estimer de manière efficiente les déformations et contraintes résiduelles de cuisson, de nombreux modèles constitutifs mécaniques ont été développés dans la littérature.

1.3.3.1 Modèles viscoélastiques

Les matériaux polymères présentent un comportement intermédiaire entre un solide élastique et un fluide visqueux. On dit alors qu'ils ont un comportement viscoélastique. Chaque type de comportement possède une analogie mécanique. Le ressort est l'analogie de la réponse solide élastique et l'amortisseur est celle de la réponse d'un fluide visqueux. Le comportement réel des matériaux peut alors être assimilé à des combinaisons de ressorts de d'amortisseurs [44]. Un des modèles couramment utilisés pour décrire le comportement viscoélastique des polymères est le modèle de Maxwell généralisé. Il est composé de plusieurs éléments de Maxwell en parallèles comme illustré dans la figure 1.17.

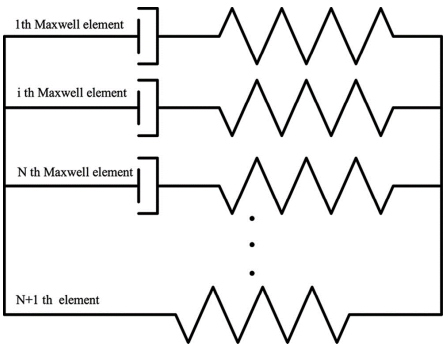


Figure 1.17 – Modèle de Maxwell Généralisé [17]

Le comportement viscoélastique dépend également de l'historique des états de contraintes du matériau. Cette dépendance n'est pas prise en compte par l'analogique mécanique présentée ci-dessus. De plus cette dépendance au temps n'est pas forcément uniforme. Il est courant que les phénomènes les plus récents aient un impact plus grand que les plus anciens. Afin de prendre en compte ce phénomène on utilise un modèle basé sur la convolution à l'aide d'une formulation intégrale dite « héréditaire ». L'expression la plus générale pour la loi constitutive d'un matériau anisotrope viscoélastique linéaire est définie par l'équation 1.3.5.

$$\sigma_{ij} = \int_{-\infty}^{t} C_{ijkl}(\alpha, T, t-\tau)\frac{\partial}{\partial\tau}[\varepsilon_{kl}^{tot}(\tau) - \varepsilon_{kl}^{tc}(\tau)]d\tau \tag{1.3.5}$$

C_{ijkl} est le tenseur de raideur. ε_{kl}^{tot} est le tenseur de déformation totale et ε_{kl}^{tc} est le tenseur de déformation non mécanique, c'est-à-dire thermochimique. t est le temps présent, τ est le temps passé et α est le degré d'avancement de la réaction.

Il existe deux formes de modèles viscoélastiques : la forme intégrale, présentée dans l'équation 1.3.5, et la forme différentielle. De manière générale la forme intégrale est privilégiée dans la littérature [5, 44, 56, 59, 106]. Certains auteurs ont cependant récemment démontré qu'un modèle différentiel pouvait permettre de gagner en temps de calcul [17].

La température a un effet important sur les matériaux viscoélastiques. Les tracés du logarithme du module de relaxation en fonction du logarithme de temps pour différentes températures forment une famille de courbes. Ces courbes linéaires peuvent facilement être décalées parallèlement l'une par rapport l'autre pour former une courbe maitresse. En d'autres mots, l'effet de la température sur le comportement du matériau est équivalent à un décalage de l'échelle de temps pour une température de référence. C'est le principe de superposition temps-température et les matériaux présentant ce comportement sont dits thermo-rhéologiquement simples.

Si le matériau est supposé thermo-rhéologiquement simple et qu'il n'a subi aucune déformation avant t=0 alors, en utilisant la forme intégrale du principe de superposition, l'équation 1.3.5 peut être réécrite.

$$\sigma_i = \int_0^t C_{ijkl}(\alpha, T_r, \xi - \xi') \frac{\partial}{\partial \tau} [\varepsilon_{kl}^{tot}(\tau) - \varepsilon_{kl}^{tc}(\tau)] d\tau \tag{1.3.6}$$

Le temps réduit est défini comme il suit

$$\xi = \int_0^t \frac{1}{a_T(\alpha, T)} dt' \tag{1.3.7}$$

$$\xi = \int_0^\tau \frac{1}{a_T(\alpha, T)} d\tau' \tag{1.3.8}$$

a_T est le facteur de glissement lié à l'équivalence temps-température. La matrice de raideur à une température de référence est notée $C_{ijkl}(\alpha, T_r, \xi - \xi') = C_{ijkl}(\alpha, \xi)$ En utilisant un modèle de Maxwell généralisé de M éléments et les séries de Prony il est possible d'écrire :

$$C_{ijkl}(\alpha, \xi) = C_{ijkl_\infty} + \sum_{m=1}^{M} C_{ijkl_m} \cdot exp(-\frac{\xi(\alpha, T)}{\rho_m(\alpha)}) \tag{1.3.9}$$

C_{ijkl_∞} sont les raideurs complètement relaxées et C_{ijkl_m} sont les raideurs discrètes dépendantes de la cuisson des éléments associés au temps discret de relaxation $\rho_m(\alpha)$. En combinant les équations précédentes on a :

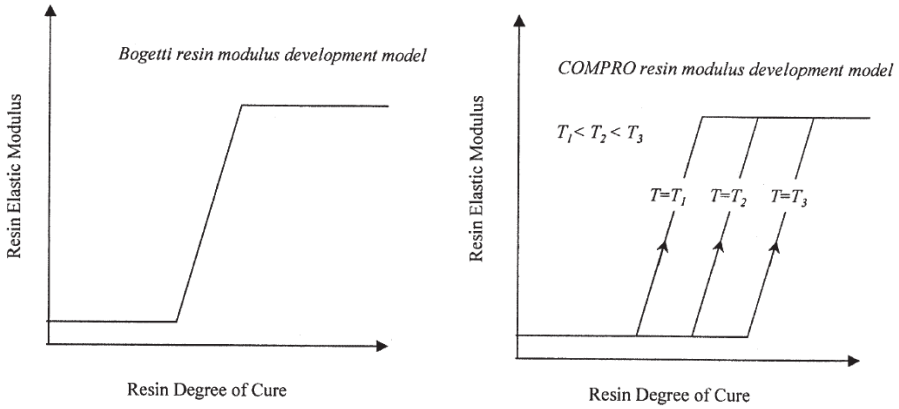
$$\sigma_i = C_{ijkl_\infty} \cdot [\varepsilon_{kl}^{tot}(t) - \varepsilon_{kl}^{tc}(t)] + \sum_{m=1}^{M} C_{ijkl_m} \cdot \int_0^t exp(-\frac{\xi(\alpha, T)}{\rho_m(\alpha)}) \cdot [\varepsilon_{kl}^{tot}(\tau) - \varepsilon_{kl}^{tc}(\tau)] d\tau \tag{1.3.10}$$

Ces modèles viscoélastiques, s'ils permettent une modélisation très précise prenant en compte la relaxation viscoélastique, demandent un travail de caractérisation important

et sont très couteux en temps de calcul et en mémoire. Plusieurs auteurs proposent donc des modèles simplifiés. Zobeiry et al. [111] proposent, par exemple, de simplifier le modèle viscoélastique jusqu'à obtenir un modèle dit « pseudo-viscoélastique » permettant un gain considérable en temps de calcul. Svanberg et al., de leur côté, établissent un modèle « path dependant » dans lequel seules les raideurs vitreuses et caoutchouteuses sont utilisées et aucune intégration n'est nécessaire [59, 96]. Ce modèle a, par la suite, été généralisé par Ding et al. [18] afin de pouvoir être appliqué à des matériaux rhéologiquement complexes. Zhang et al. développent, eux, un modèle basé sur le nombre adimensionnel de Deborah [110] afin de gagner en temps de calcul. On voit donc que de nombreuses solutions sont proposées dans la littérature. Le modèle simplifié le plus couramment utilisé reste cependant le modèle CHILE (« Cure Hardening Instantaneously Linear Elastic ») développé par Johnston et al. [46] .

1.3.3.2 Les modèles CHILE

Le modèle CHILE [46] (« Cure Hardening Instantaneously Linear Elastic ») est un modèle souvent utilisé dans la modélisation des distorsions et du développement des contraintes résiduelles de cuisson au sein des pièces composites. Cette désignation indique que le module élastique augmente linéairement avec le degré d'avancement de réaction du matériau. La résine est considérée isotrope et a une réponse « linéaire élastique instantanée ». Bien que les constantes élastiques puissent évoluer au fur et à mesure de la simulation, le comportement du matériau à chaque instant donné est supposé linéaire élastique.



(a) Bogetti et Gillespie **(b)** Johnston

Figure 1.18 – Modèles de développement élastiques développés par Bogetti et Gillespie et Johnston [46]

Le principe du modèle CHILE a initialement été développé par Bogetti et Gillespie [10] en 1992. Le modèle originel est illustré dans la figure 1.18a. Tant que le degré d'avancement de réaction est inférieur à α_{gel}, la résine est un fluide visqueux. Son module, alors très bas, est considéré constant. Lors de la vitrification, la raideur de la résine augmente linéairement avec l'avancement de la réaction. Finalement, le module élastique, correspondant à l'état cuit du matériau, est de nouveau considéré comme constant [5]. Les équations développées ont ensuite été réutilisées et modifiées par Johnston et al. [45, 46] pour mettre au point le modèle CHILE illustré dans la figure

1.18b. Les auteurs y ajoutent une dépendance à la température pour les constantes élastiques de la matrice. Cette dépendance est décrite par l'équation 1.3.11.

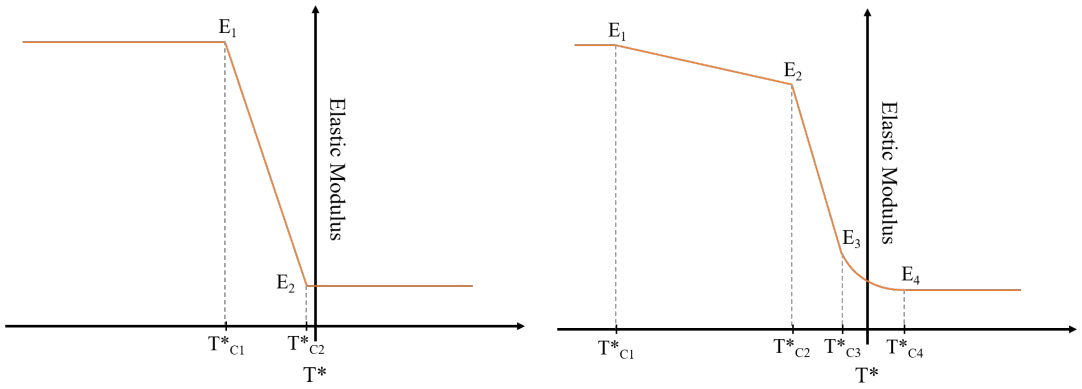
$$E = \begin{cases} E_1 & \text{si } T^* < T^*_{C1}, \\ E_1 + \frac{T^* - T^*_{C1}}{T^*_{C1} - T^*_{C2}} \cdot (E_1 - E_2) & \text{si } T^*_{C1} \leq T^* < T^*_{C2}, \\ E_2 & \text{si } T^* > T^*_{C2}. \end{cases} \tag{1.3.11}$$

E_1 est le module « non-relaxé » qui correspond à l'état cuit du matériau à $T << T_g$, E_2 est le module « relaxé » a $T >> T_g$. T^*= $T - T_g$ est le différentiel entre la température de la résine et la température de transition vitreuse instantanée. T^*_{C1} et T^*_{C2} sont les valeurs critiques de T^* à la fin et au démarrage de la vitrification.

Le modèle CHILE a ensuite été réutilisé et parfois modifié par de nombreux auteurs [6, 14, 15, 52]. Une version modifiée de ce modèle peut être extraite du travail de Khoun et Curiel et Fernlund [14, 52]. Cette version modifiée est décrite dans l'équation 1.3.12 et illustrée dans la figure 1.19. Notons que Khoun utilise ce modèle pour décrire le comportement d'un composite époxy/carbone et que Curiel et al. l'appliquent à l'adhésif époxy FM300 avec succès. Ces modèles semblent donc adaptés au préimprégné M21EV/IMA et à la colle FM300-M.

$$E = \begin{cases} E_1 & \text{si } T^* < T^*_{C1}, \\ E_1 + \frac{T^* - T^*_{C1}}{T^*_{C1} - T^*_{C2}} \cdot (E_1 - E_2) & \text{si } T^*_{C1} \leq T^* < T^*_{C2}, \\ E_2 + \frac{T^* - T^*_{C2}}{T^*_{C2} - T^*_{C3}} \cdot (E_2 - E_3) & \text{si } T^*_{C2} \leq T^* < T^*_{C3}, \\ A \cdot exp(-K \cdot T^*) & \text{si } T^*_{C3} \leq T^* < T^*_{C4}, \\ E_4 & \text{si } T^* > T^*_{C4}. \end{cases} \tag{1.3.12}$$

E_1, E_2, E_3, E_4, A, K, T^*_{C1}, T^*_{C2}, T^*_{C3} et T^*_{C4} sont les différentes constantes du modèle. T^* est toujours le différentiel entre la température de la résine et la température de transition vitreuse instantanée.



(a) CHILE classique **(b)** CHILE modifié

Figure 1.19 – Modèles CHILE

1.3.4 Modélisation de l'interaction pièce/outillage

Différents modèles ont été développés dans la littérature afin de simuler l'interaction outillage/pièce. Johnston et al. [46] et Fernlund et al. [24] la modélisent à l'aide d'une couche élastique de cisaillement (single shear layer) constituée d'éléments à bas module. La quantité de contraintes transmises à l'interface est ajustée en adaptant le module élastique des éléments de la couche. Par exemple, si les propriétés élastiques du moule sont attribuées aux éléments de la couche, la pièce est considérée comme parfaitement liée au moule. Il y a alors une grande quantité de contraintes en cisaillement transmises à la pièce. Inversement, si le module de cisaillement de la couche est choisi très bas, l'interface est modélisée avec très peu de transfert de contraintes. Le module hors plan doit être maintenu égal à celui du matériau pour éviter la pénétration de la pièce dans la couche de l'interface. En adaptant les modules élastiques et de cisaillement il est possible de simuler la quantité de contraintes transférées entre l'outil et la pièce ainsi que toute une gamme de conditions d'interfaces. Néanmoins, cette méthode ne fournit pas toujours des résultats satisfaisants. Le modèle de Johnston par exemple échoue à simuler justement les déformations dans des pièces à drapage symétrique [46, 49, 61]. Twigg et al. [101] effectuent une étude paramétrique de l'influence de la couche de cisaillement utilisée. Ils observent que, bien que cette méthode ne soit pas capable de retranscrire parfaitement la répartition du cisaillement le long de la pièce, elle permet d'obtenir des déformations finales assez proches de la réalité.

Mezeix, Fiorina et al. proposent également une méthodologie de simulation de l'interaction outillage/pièce [25, 61]. Cette interface est modélisée par une couche unique d'éléments au comportement orthotrope linéaire couplé avec une contrainte en cisaillement hors plan à rupture. Quand le cisaillement hors plan atteint la rupture, la rigidité de l'élément est réduite à 0 tout en conservant l'élément en place. Le type d'interface et le gauchissement final dépendent donc du module de cisaillement hors plan et de sa limite à rupture. Ceux-ci sont déterminés en comparant le gauchissement calculé en fonction des différents modules et contraintes à rupture et les résultats expérimentaux. Ces modèles sont des modèles semi-empiriques et les calculs sont effectués en utilisant une formulation explicite.

Cinar et al. [12] utilisent eux une loi de Coulomb classique, associée à une contrainte de glissement limite. Jusqu'à cette contrainte limite la pression reste proportionnelle à la contrainte de cisaillement à l'interface. Cependant, une fois la contrainte limite dépassée, la pièce se met à glisser. Le coefficient de friction utilisé va dépendre de l'état physico-chimique du matériau.

1.4 Méthodes de suivi des déformations et des propriétés

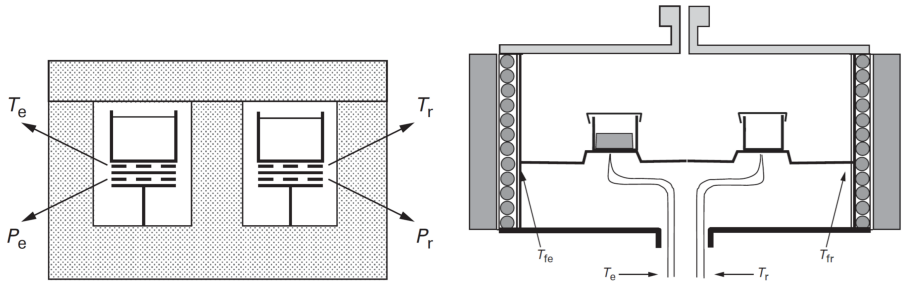
L'une des difficultés dans l'étude de la distorsion des pièces composites est le suivi des déformations et des propriétés matériaux au cours de la cuisson. Les données nécessaires à l'implémentation d'un modèle permettant de simuler les déformations de cuisson sont, d'après ce que nous avons décrit jusqu'ici, les propriétés thermocinétiques, les transitions de phase, les déformations thermochimiques, les propriétés thermomécaniques et le comportement à l'interface outillage/pièce.

1.4.1 Méthodes classiques d'analyses des matériaux à base thermodurcissable

Les principales méthodes d'analyse des matériaux à base thermodurcissable disponibles vont être présentées dans cette partie.

1.4.1.1 L'analyse calorimétrique différentielle - DSC

Les techniques de mesure par calorimétrie différentielle, notées DSC, reposent sur la mesure des variations d'énergie thermique fournies à un échantillon par rapport à une référence inerte. Il existe deux types de DSC, la première est la DSC à compensation de puissance et la seconde la DSC à flux de chaleur. Les deux types de DSC sont illustrés dans la figure 1.20. La DSC à compensation de puissance possède deux microfours séparés. C'est la différence des puissances électriques utilisées afin de maintenir l'égalité de température entre le four de l'échantillon et celui de la référence qui est mesurée. La DSC à flux de chaleur ne possède, elle, qu'un four où sont placés l'échantillon et la référence. La différence d'enthalpie ou encore de capacité calorifique va causer une variation de température entre les deux creusets. C'est donc la différence de flux de chaleur en fonction du temps ou de la température qui est mesurée [32, 60].



(a) DSC à compensation de puissance **(b)** DSC à flux de chaleur

Figure 1.20 – Types d'appareillages DSC existants [32]

Dans tous les cas, les quantités de chaleur mesurées sont tracées en fonction du temps ou de la température. Les pics d'absorption de chaleur, dits endothermiques, ou de libération de chaleur, dits exothermiques, permettent alors de repérer et d'évaluer les transitions de phase du matériau étudié. La température de transition vitreuse, le taux de réticulation ou de cristallinité, ou encore la température de fusion et de dégradation thermique peuvent ainsi être étudiées. L'enthalpie totale (notée ΔH_{tot}) liée à chacun de ces événements thermiques peut alors être obtenue en intégrant l'aire sous le pic associé (voir équation 1.4.1).

$$\Delta H_{tot} = \int_{ti}^{tf} H(t)dt \tag{1.4.1}$$

Pour obtenir le taux de réticulation (noté α) pour un thermodurcissable ou le taux de cristallinité pour un thermoplastique il suffit alors d'appliquer l'équation 1.4.2.

$$\alpha(t) = \frac{1}{\Delta H_{tot}} \int_{ti}^{t} H(t)dt \tag{1.4.2}$$

Dans le cas des mesures DSC classiques, les rampes thermiques appliquées sont linéaires. La DSC à température modulée (MDSC), apparue dans les années 90 grâce aux travaux de Reading et al. [33, 87], permet d'appliquer une modulation périodique de la température associée à la rampe thermique linéaire. Ce type de mesure a pour objectif de séparer la contribution dépendant de la température de celle dépendant de la vitesse de changement de température. Ces mesures permettent donc de découpler les effets réversibles et irréversibles de chaleur et de mesurer directement la capacité calorifique des matériaux testés [33].

1.4.1.2 Laser Flash Analysis - LFA

La méthode Flash (Laser Flash Analysis, notée LFA), permet de mesurer la diffusivité thermique des matériaux. Une lampe Xenon Flash est associée à un four et à un détecteur infra-rouge haute vitesse. La lampe irradie l'échantillon, cette impulsion induit une augmentation de la température du matériau qui est mesurée par le détecteur infra-rouge. A partir de la température mesurée en fonction du temps, la diffusivité est calculée. Différentes méthodes peuvent être utilisées pour calculer cette diffusivité, un des modèles disponibles est le modèle de Cape et Lehman [11]. Il est habituellement intégré dans les logiciels de traitement fournis avec les machines disponibles sur le marché.

1.4.1.3 Analyse Thermogravimmétrique - TGA

Les mesures par analyse thermogravimétrique, notées ATG ou TGA, permettent de mesurer l'évolution de la masse d'un échantillon au cours d'une sollicitation thermique [60]. Une balance associée à un système de chauffe sous gaz inerte permet de suivre la perte de masse liée à l'évaporation ou encore à la dégradation des matériaux étudiés. Certains de ces appareils permettent également de faire des mesures DSC, cependant la précision de ces appareils TGA-DSC est souvent inférieure à celle d'une DSC seule. Les mesures TGA permettent également d'obtenir le taux massique de fibres. Au delà de 500°C, seules les fibres résistent en température et la résine est totalement calcinée. La masse restante, après une longue isotherme au delà de 500°C, est considérée comme étant la masse de fibres.

1.4.1.4 Analyse thermomécanique - TMA

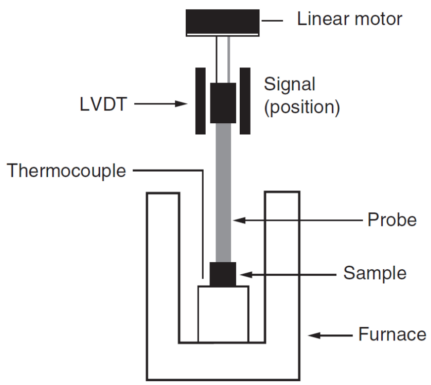


Figure 1.21 – Appareil de mesure TMA type [60]

L'analyse thermomécanique, notée ATM ou TMA, est une technique de caractérisation permettant de mesurer les variations dimensionnelles d'un échantillon sous une contrainte statique. La configuration classique de ces appareils est illustrée dans la figure 1.21 [60]. Plusieurs types de mesure peuvent être effectués. Les variations de longueur ou de volume sont mesurées en fonction de la température et de la sollicitation appliquée. Les modes possibles de sollicitation sont : traction, pénétration, flexion et expansion volumique. Pour les mesures volumiques le matériau est placé dans un liquide et la détection des déplacements est effectuée par un piston. Dans tous les cas, l'appareil doit préalablement être étalonné à l'aide d'éprouvettes à faibles coefficients de dilatation, habituellement en quartz ou en Invar. Les mesures TMA sont généralement utilisées pour caractériser la dilatation thermique des matériaux et les transitions de phase.

1.4.1.5 Analyse Mécanique Dynamique - DMA

Les matériaux polymères ont un comportement viscoélastique. Afin de caractériser ce type de comportement des essais d'analyse mécanique dynamique (AMD ou DMA) peuvent être mis en place. L'échantillon de matériau étudié est sollicité à une contrainte ou a une déformation oscillatoire. La plupart des appareils disponibles sur le marché utilisent une sollicitation en déformation et mesurent les contraintes générées. Les essais peuvent être effectués avec différents modes de sollicitation : flexion trois points, traction longitudinale, torsion, cisaillement entre plateaux parallèles ou encore compression.

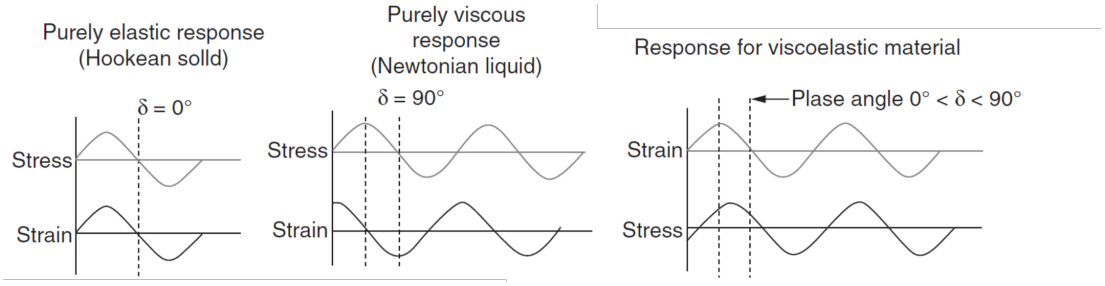


Figure 1.22 – Réponse à une sollicitation sinusoïdale pour des matériaux purement élastiques, purement visqueux et viscoélastiques [60]

Ces mesures vont permettre de caractériser les phénomènes de relaxation du matériau. Les composantes élastiques et anélastiques des matériaux sont mesurées en fonction de la température pour une fréquence fixe ou en fonction de la fréquence pour une température fixe. La composante élastique est en phase par rapport à la contrainte tandis que la composante anélastique est en quadrature, comme illustré dans la figure 1.22 [60]. La mesure permet alors d'obtenir les modules mécaniques de conservation en cisaillement (G') et en élongation (E'), les modules de perte correspondants (G", E"), ainsi que l'angle de perte $tan\delta = \frac{G"}{G'}$ (ou $\frac{E"}{E'}$).

1.4.2 Suivi des déformations thermochimiques hors autoclave

La mesure et la compréhension du développement des déformations thermochimiques est une étape clef pour la simulation des déformations et contraintes résiduelles de cuisson. Cependant, ces mesures ne sont pas évidentes à mettre en place, en particulier pour la mesure du retrait chimique. Différentes méthodes ont été développées dans la littérature, certaines d'entre elles vont être présentées dans cette partie.

1.4.2.1 Mesure par rhéomètre

Plusieurs auteurs ont mis en place des mesures de déformations thermochimiques à l'aide de rhéomètres [52, 68, 93]. Cependant ces mesures sont généralement limitées au comportement post-gel. L'éprouvette est alors pré-cuite préalablement ou dans le rhéomètre avec une force nulle. Une fois le point de gel passé, une faible force est appliquée (Shah et al. [93] utilisent une force de 0,1N) afin d'éviter au maximum les effets de consolidation. L'appareil compense alors le gap pour conserver cette force et la mesure du gap permet de suivre les changements de dimensions. Les résultats obtenus montrent un retrait chimique linéairement proportionnel au degré d'avancement de réaction [93].

1.4.2.2 Mesure par analyse thermo-mécanique (TMA)

Yu et al. [109] effectuent des mesures par TMA sur un adhésif. Le retrait chimique est mesuré au cours d'isothermes pour différentes forces. La force permettant de minimiser les erreurs de mesure est de l'ordre de 0,05N. Les résultats obtenus sont illustrés dans la figure 1.23. Le retrait chimique présente un comportement linéaire en fonction du degré d'avancement de réaction. Des changement de pentes peuvent être observés lors de la gélification et de la vitrification. Shah et al. [93] appliquent cette méthode de mesure à une résine époxy. Les essais menés ne sont cependant pas fructueux. La mise en place de l'expérience est plus complexe que prévue et le retrait chimique obtenu est de l'ordre de 20% ce qui parait aberrant.

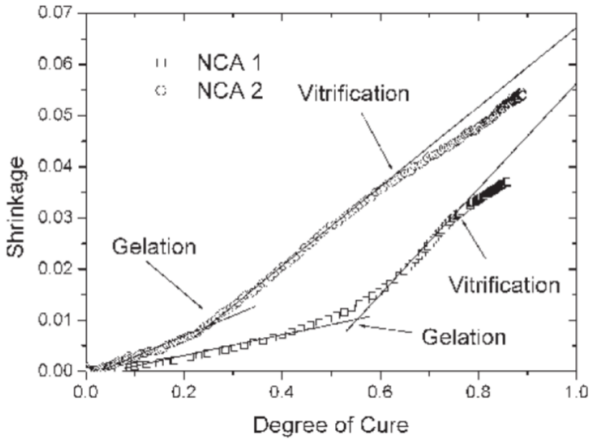


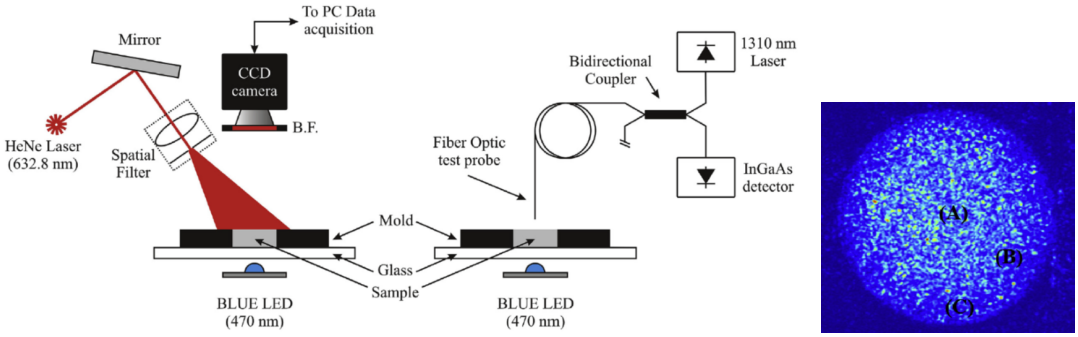
Figure 1.23 – Mesures de retrait chimique par TMA sur un adhésif [109]

Un autre type de mesure par TMA est effectué par P.A. Olivier [73]. La résine crue est placée dans un piston cylindrique en aluminium. La paroi du piston est traitée avec un agent de démoulage liquide afin d'éviter l'adhésion de la résine à la paroi. La TMA est équipée d'une jauge d'extension. La force de la jauge est fixée à 0,1 mN. P.A. Olivier utilise également la TMA pour effectuer des mesures sur des preimprégnés drapés et pré-compressés. Les éprouvettes sont placées dans les mors de la TMA et les déformations peuvent être mesurées durant la cuisson du stratifié.

1.4.2.3 Dynamic Speckle Pattern global analysis - DSP

Le « Dynamic Speckle Pattern global analysis » (noté DSP), utilisé par Arenas et al. [3], permet d'avoir une description qualitative du comportement du matériau en surface.

Les auteurs complètent les résultats globaux obtenus par une mesure locale par fibres optiques à Interféromètre de Fizeau (IF).



(a) Montage expérimental **(b)** Mouchetis

Figure 1.24 – Mesure du retrait chimique par DSP [3]

Lorsqu'une surface plane, optiquement rugueuse, est illuminée par une lumière avec un haut degré de cohérence, comme une lumière laser, les rayons dispersés ont une distribution d'intensité particulière. La surface éclairée apparait alors comme couverte par une structure granulaire raffinée. Cette structure est constituée de spots de formes variables, alternativement sombres et clairs, répartis de façon aléatoire à la surface du matériau. Cette distribution n'a pas de lien direct avec les propriétés macroscopiques de surface du matériau. Cette distribution d'intensité est appelée motif moucheté (« speckle pattern »). Chaque mouvement de la surface du matériau crée une fluctuation du motif appelé mouchetis dynamique (« dynamic speckle »), comme illustré dans la figure 1.24b. Le montage expérimental mis en place est disponible dans la figure 1.24a. Des moules en caoutchouc sont utilisés pour fabriquer les éprouvettes. Ceux-ci sont collés sur des plaques en verre. Les éprouvettes sont éclairées par des LED sous la plaque en verre afin de polymériser la résine. Des caméras sont mises en place pour la stéréo-corrélation. La mesure par DSP peut être couplée avec une mesure des déformations dans l'épaisseur par interféromètre de Fizeau. Ce dernier mesure la variation de la cavité d'interférence entre l'extrémité du capteur et la surface.

1.4.2.4 Mesure in-situ dans l'épaisseur d'un stratifié

Garstka et al. [29] proposent une méthode afin de mesurer le retrait chimique et la dilatation thermique sur préimprégnés. Le principe est proche des mesures TMA présentées précédemment mais permet de travailler sur une plus grande éprouvette et de réduire ainsi les risques d'erreurs dus à la variabilité des éprouvettes. De plus, la sonde utilisée couvre la totalité de la surface de l'éprouvette permettant ainsi d'éviter la pénétration de la sonde dans le matériau dans les premiers temps du cycle de cuisson. Garstka et al. font cuire des plaques de pré-imprégnés entre 2 plaques chauffantes. Pour prévenir la moindre rotation des surfaces chauffantes en contact avec le composite l'ensemble est fixé dans un bloc à colonnes. Pour surveiller l'uniformité de la température, quatre thermocouples sont placés autour de l'éprouvette. Une caméra est fixée sur un trépied et est focalisée sur des cibles contrastées marquées sur les bords des plaques chauffantes en acier. Le suivi de la position des deux points de référence permet le calcul de la distance relative entre eux. Les données sont ensuite filtrées et analysées sur MATLAB. Le type de résultats obtenus est illustré dans la figure 1.26.

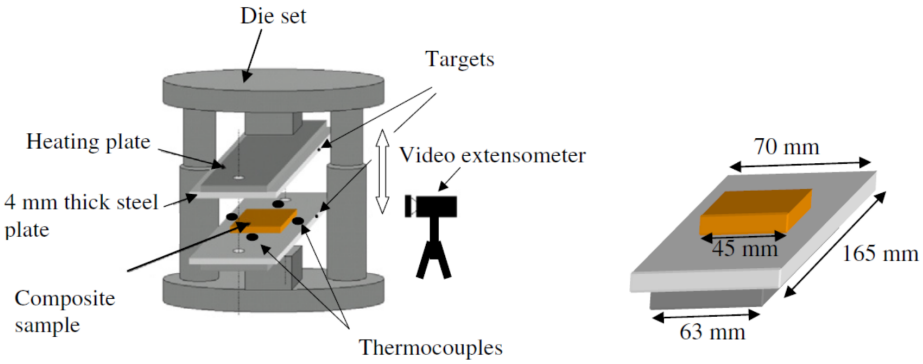


Figure 1.25 – Méthode de mesure in-situ dans l'épaisseur de stratifié de Garstka et al. [29]

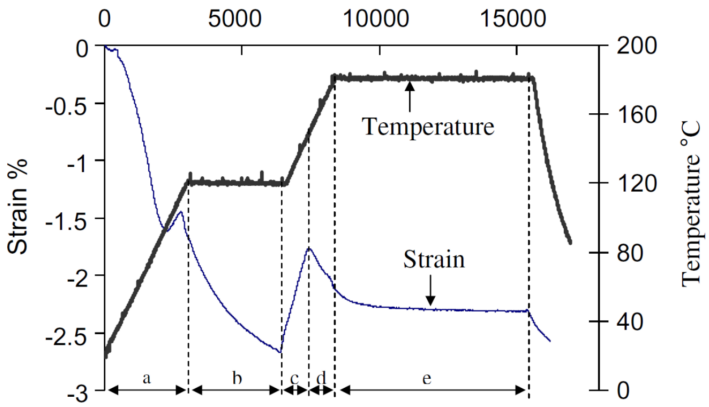
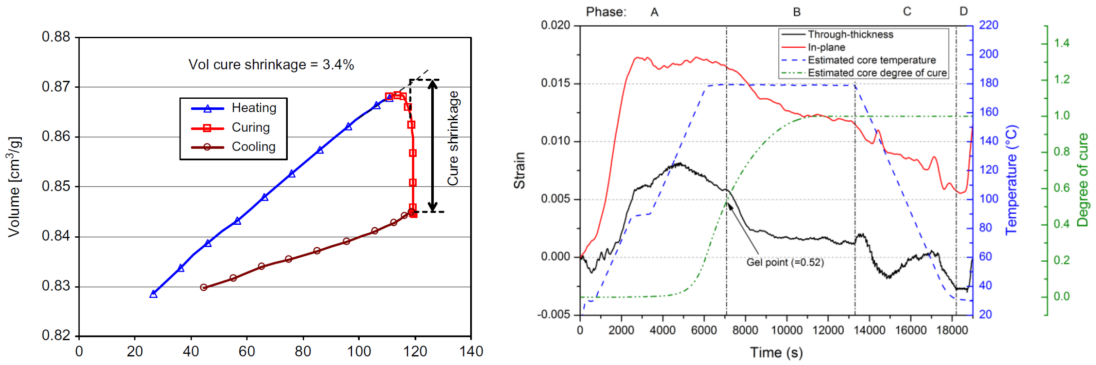


Figure 1.26 – Déformation mesurée dans l'épaisseur d'un stratifié [29]

Dans la zone a, la déformation dans l'épaisseur est due à 2 phénomènes en compétition, la consolidation d'une part et la dilatation thermique de l'autre. Le retrait chimique n'a pas encore d'influence conséquente car l'avancement de la réaction de polymérisation est encore trop faible. Durant le palier isotherme (zone b), la déformation diminue essentiellement à cause de la consolidation et d'un léger retrait chimique. Dans la zone c trois mécanismes sont en compétition, le retrait chimique, la dilatation thermique et de la consolidation. Après gélification (zone d), seuls entrent en jeu le retrait chimique et la dilatation thermique. Le premier phénomène a le dessus sur le dernier car l'avancement de la réaction augmente rapidement. Le CTE diminue avec le passage à l'état caoutchoutique. Durant le deuxième palier (zone e), seul le retrait chimique entre en jeu. Le matériau est presque entièrement réticulé, la déformation varie peu. Finalement le refroidissement commence et la déformation diminue avec le retrait thermique. Trois phénomènes impactent donc la déformation dans l'épaisseur de l'échantillon : la consolidation avant la gélification, la dilatation thermique durant les rampes de températures et le retrait chimique. A partir de la mesure de la déformation après gélification en isotherme, le retrait chimique est approximé par une fonction polynomiale du troisième ordre. Il est ainsi possible de séparer le retrait chimique des autres phénomènes.

1.4.2.5 Dilatomètres Volumiques à Piston

Les dilatomètres à piston permettent de mettre en place des mesures volumiques, ils sont particulièrement utilisés pour les mesures de retrait chimique. Il en existe de plusieurs types mais ils sont habituellement composés d'une cavité et d'un piston. L'échantillon est placé dans un fluide dont les variations de volume sont suivies par le piston. Pour l'étude des composites on peut en particulier remarquer le PvT GNOMIX, le PvTα et le PvT-HADDOC [67, 79, 92]. Le type de résultats obtenus est illustré dans la figure 1.27.



(a) PvT GNOMIX - résine epoxy **(b)** PvT-HADDOC - UD carbone/epoxy

Figure 1.27 – Mesures des déformations de cuisson à l'aide de PvT GNOMIX [92] et PvT-HADDOC [79]

1.4.3 Suivi des propriétés et déformations mécaniques

1.4.3.1 Propriétés mécaniques

La compréhension et la caractérisation de l'évolution des propriétés mécaniques des matériaux durant leurs cuissons est essentielle à la modélisation des contraintes résiduelles. Cependant, la faible capacité des résines à supporter des contraintes avant gélification rend toujours cette caractérisation particulièrement compliquée. Il est donc courant d'approximer les propriétés mécaniques des résines avant le point de gel ou de considérer que les contraintes développées dans cet état sont négligeables. Dans la plupart des modèles développés, le modèle constitutif mécanique est donc basé sur des essais DMA effectués sur des éprouvettes cuites. Le comportement avant le point de gel est soit approximé soit considéré comme étant équivalent à l'état de la résine cuite à haute température. Cependant, il est connu que les résines thermodurcissables ne retrouvent jamais leur état initial. Il semble donc nécessaire de comprendre avec plus de précision le comportement mécanique durant la cuisson des résines thermodurcissables. Plusieurs auteurs ont donc mis au point des méthodes de mesure afin d'obtenir plus de précisions sur l'évolution des propriétés mécaniques au cours de la cuisson.

Crasto et Kim effectuent des mesures en flexion d'éprouvettes de préimprégné cru à l'aide d'un rhéomètre [13]. Ils obtiennent ainsi le module dynamique en cisaillement du matériau au cours de différents cycles de cuisson, un de ces cycles est illustré dans la figure 1.28. Par ailleurs, Olivier a également mesuré le développement du module de traction transverse à l'aide d'une TMA durant cuisson [72]. Johnston [45] a, de son côté, effectué des essais de torsion sur une éprouvette unidirectionnelle de 8 plis à l'aide d'un

rhéomètre. L'éprouvette est sollicitée à une contrainte en torsion sinusoïdale, la force de torsion nécessaire est alors mesurée. Afin de compléter ces résultats, des essais de DMA sur des éprouvettes précuites ont également été effectués.

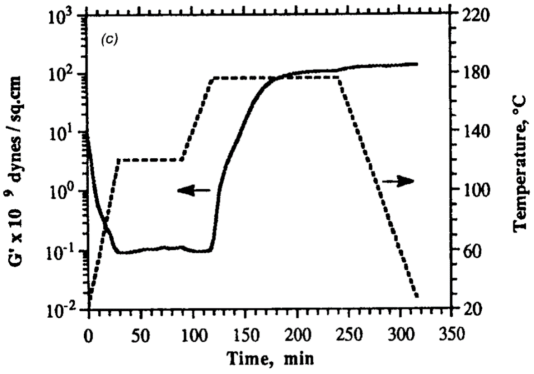
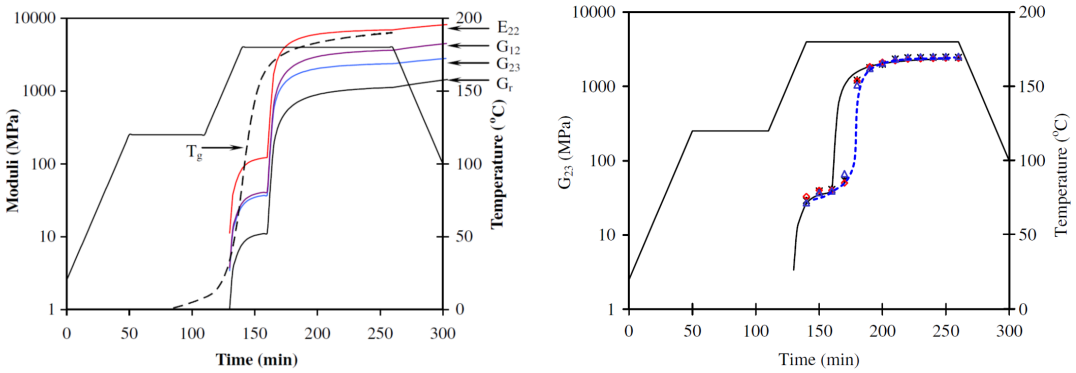


Figure 1.28 – Mesure à l'aide d'un rhéomètre du module dynamique de cisaillement du préimprégné AS4/3501-6 durant cuisson [13]

Un certain nombre d'auteurs ont par ailleurs mesuré le développement des modules mécaniques par DMA sur des pièces composites précuites [1, 21, 43, 89, 90]. Ces mesures sont limitées aux propriétés post-gel mais permettent d'obtenir une partie du développement des propriétés mécaniques durant cuisson. Ersoy et al. [21], par exemple, sollicitent des éprouvettes précuites de préimprégné en cisaillement. Les modules simulés et mesurés sont illustrés dans la figure 1.29. Msallem et al. sollicitent, eux, des éprouvettes précuites de résine thermodurcissable chargée en nodules thermoplastiques en traction [1].

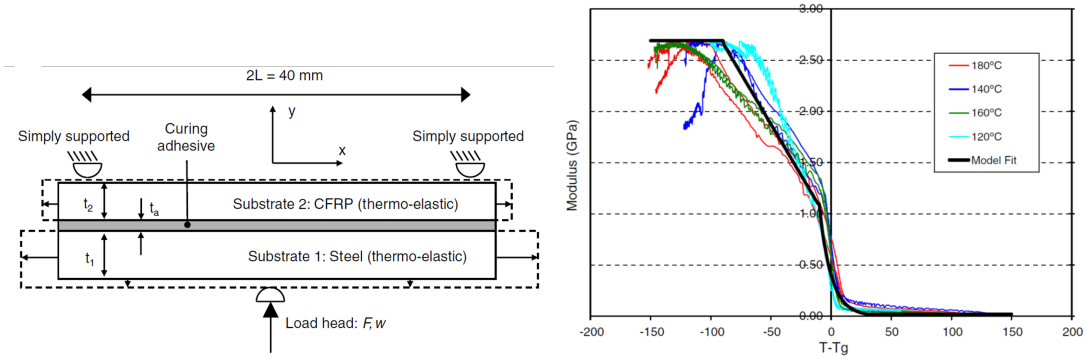


(a) Simulations **(b)** Simulation et mesures DMA

Figure 1.29 – Mesure et simulation des propriétés mécanique d'un préimprégné AS4 / 8556 durant cuisson [21]

Des essais de traction dans le sens transverse d'un composite époxy/carbone unidirectionnel ont aussi été mis en place par Nawab durant sa thèse [67]. Les échantillons composites étaient placés de part et d'autre d'une plaque en aluminium et sollicités cycliquement dans une machine à traction équipée d'un four. Les mesures avant gélification semblent cependant fournir des modules trop élevés, le module transverse à l'état cru mesuré est de 5,5 GPa.

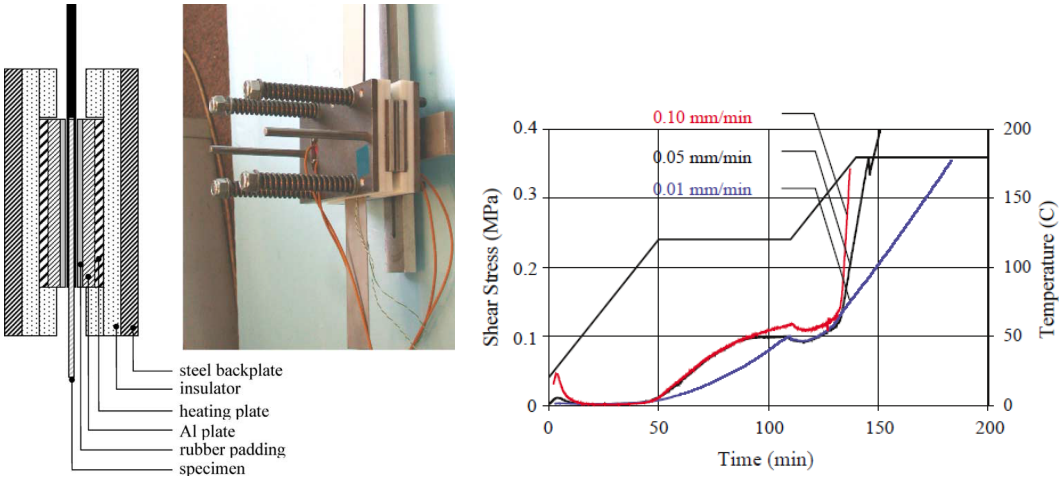
Curiel et al. [14] se sont intéressés aux développement des contraintes résiduelles lors de l'assemblage d'un composite cuit avec de l'acier à l'aide d'un film époxy FM300. Afin de mesurer le développement des propriétés mécaniques, les auteurs ont sollicité en DMA des éprouvettes bi-matériaux semblables à celles décrites dans la figure 1.30a, mais sans la partie composite. Les mesures sont faites à 0,1 Hz et avec un déplacement de 100 μm. Les résultats sont visibles dans la figure 1.30b. Le module d'Young est obtenu en appliquant la théorie des poutres et les modules de cisaillement sont calculés en supposant le coefficient poisson constant durant le cycle. Ils utilisent alors un modèle constitutif mécanique de type CHILE modifié comme présenté précédemment dans la partie 1.3.3.2 (une zone exponentielle mais une unique pente) également illustré dans la figure 1.30b.



(a) Montage expérimental **(b)** Résultats

Figure 1.30 – Mesure du module de Young durant la cuisson d'un adhésif FM300 par DMA [14]

1.4.3.2 Interaction pièce outillage



(a) Montage expérimental **(b)** Mesures

Figure 1.31 – Outillage de mesure des contraintes de cisaillement aux interfaces [22]

L'étude de l'influence de l'outillage sur les déformations est particulièrement complexe. Différentes méthodes ont été proposées dans la littérature. Ersoy et al. [22, 29], par

exemple, ont mis au point un appareil de mesure installé sur une machine de traction. Le montage est constitué de deux plateaux chauffants et d'un système de pressurisation fait de vis à ressort (voir figure 1.31a). La vitesse de traction est calculée afin de représenter au mieux la vitesse relative entre les deux surfaces pendant la chauffe. On part du principe que les rampes de température créent du déplacement entre l'outillage et le préimprégné tandis que le point central du préimprégné reste fixe par rapport à l'outillage. La vitesse de traction est ramenée à 0 pendant les paliers isothermes.

Le type de résultat obtenu est illustré dans la figure 1.31b. Ces essais montrent qu'il y a un développement de forces en cisaillement même à l'état visqueux. Le point de gel se manifeste par une augmentation soudaine des forces de cisaillement en fonction du temps. Cette méthode permet de déterminer le point de gel directement sur le préimprégné. Les auteurs étudient également l'influence des différents agents démoulants sur les contraintes en cisaillement.

Plusieurs auteurs [21, 24, 99] utilisent également des jauges de déformation fixées sur l'outillage afin de mesurer les déformations des pièces pendant le cycle de fabrication. Celles-ci sont fixées sur un outillage fin et mesurent les déformations dans le plan. Le stratifié est ensuite drapé de l'autre côté de l'outil. Il est alors possible de mesurer les déformations de l'outillage pendant la totalité du cycle autoclave pour différents types de surfaces ou pour différentes pressions. En retirant la participation de la dilatation thermique du moule à la déformation totale mesurée, les déformations dues uniquement au comportement du stratifié peuvent être extraites. Wisnom et al. [107] utilisent également des jauges de déformation pour quantifier l'influence du moule sur les déformations de cuisson. Un mécanisme est mis en place afin de pré-cuire certaines zones du préimprégné et d'y fixer les jauges.

1.4.4 Suivi des déformations par Fibres Optiques à Réseaux de Bragg

Il est possible de mesurer la déformation lors de la cuisson de stratifiés en incluant, au sein ou entre les plis, ce qu'on appelle des fibres optiques à réseaux de Bragg (notées FBG pour Fiber Bragg Grating) [36, 62, 63, 65, 66, 71, 88, 103].

1.4.4.1 Généralités sur les fibres optiques à réseaux de Bragg

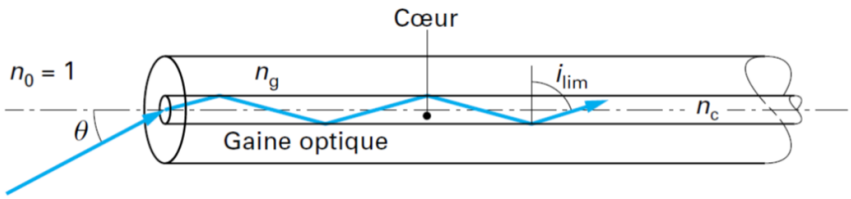


Figure 1.32 – Fibre optique [23]

La fibre optique (FO) est composée d'un cœur diélectrique recouvert d'une gaine optique généralement en silice (SiO_2). Les deux parties ont des indices différents tels que $n_c > n_g$. Comme illustré dans la figure 1.32 un faisceau lumineux entrant par une extrémité est donc réfléchi à chaque dioptre (interface cœur/gaine) jusqu'à sa sortie par l'autre extrémité [23].

Les ondes peuvent alors se comporter de deux façons. Elles peuvent suivre un chemin direct et l'énergie est transportée par un unique mode de propagation, le mode fondamental. On parle alors de fibre monomode. C'est le cas le plus courant et ce sont ces fibres qui sont utilisées pour les mesures de déformations in-situ. Notons cependant que l'énergie peut également se répartir entre de nombreux modes, ce type de fibre est dit multimodes. La fibre optique est isolée du milieu extérieur par un revêtement, souvent à base de thermoplastique.

Le réseau de Bragg, noté RB ou BG, est une micro-structure inscrite dans le cœur de la FO. Par l'alternance de franges sombres et brillantes il va créer une variation périodique de l'indice de réfraction de la fibre. La longueur d'onde pour laquelle les multiples réflexions au sein du réseau sont en accord de phase est la longueur d'onde de Bragg : $\lambda_B = 2 \cdot n_e \cdot \mu \cdot \Lambda$ avec n_e l'indice de réflexion effectif et Λ le pas de la période du BG. Ainsi le BG réfléchit cette longueur d'onde tandis que l'autre partie du signal continue. Toute variation du pas de période du BG ou de l'indice de réflexion effectif entraine donc une modification proportionnelle de la longueur d'onde réfléchie. Ces deux variables peuvent être influencées par la déformation, la température et la pression comme décrit dans l'équation 1.4.3.

$$\frac{\Delta\lambda_B}{\lambda_B} = (\alpha_{FO} + \zeta_{FO}) \cdot \Delta T + (1 - p_e) \cdot \varepsilon - (1 - 2 \cdot \nu)[1 - \frac{n_e^2}{2} \cdot (p_{11} + 2 \cdot p_{12})]\frac{\Delta P}{E} \quad (1.4.3)$$

α_{FO} Coefficient de dilatation de la fibre (0,57 ppm/°C), ζ_{FO} coefficient thermo-optique de la fibre (10-5/°C).
p_e est la constante photoélastique de la silice (0,22), et finalement on a les coefficients de Pockels : p_{12}=0,252 et p_{11}=0,113.

1.4.4.2 Méthode de mesure des déformations par FBGs

Pour une pression de 7 bars l'influence de la pression ne représente pas plus de 2% de la déformation totale mesurée. Il est donc possible de négliger ce facteur. Le décalage en longueur d'onde d'un BG au sein d'un composite est donc une combinaison linéaire de la déformation dans les 3 axes principaux et de la température. De plus les FBG standards ont une faible sensibilité aux effets transverses et/ou graduels. L'effet combiné de la température et de la déformation longitudinale peut donc être décrit par l'équation 1.4.4

$$\frac{\Delta\lambda_B}{\lambda_{B0}} = a \cdot \Delta T + b \cdot \varepsilon \quad (1.4.4)$$

a et b sont, respectivement, le coefficient thermo-élasto-optique et le coefficient photoélastique. λ_B est la longueur d'onde au moment de la mesure et λ_{B0} est la longueur d'onde initiale du réseau de Bragg.

Notons cependant que, même s'ils sont ici négligés, les FBG restent sensibles aux effets transverses. Ceux-ci peuvent générer des phénomènes dits de biréfringence, la modification de la forme cylindrique de la fibre induit alors une division du spectre réfléchi par le BG [66, 103]. Cet effet peut éventuellement être exploité afin d'obtenir l'état des déformations mécaniques 3D [103].

Afin d'évaluer correctement les déformations mesurées par la FBG, il est nécessaire de séparer la déformation mécanique subie par la FBG et l'effet de la température sur celle-ci. Pour cela une FBG de référence, soumise uniquement à la température, peut être utilisée. Son comportement est alors décrit par l'équation 1.4.5. La déformation mécanique longitudinale imposée par le composite à la fibre optique peut alors être obtenue en appliquant l'équation 1.4.6.

$$\frac{\Delta\lambda_{B_T}}{\lambda_{B_T}} = a \cdot \Delta T \tag{1.4.5}$$

$$\varepsilon = \frac{\frac{\Delta\lambda_B}{\lambda_B} - \frac{\Delta\lambda_{B_T}}{\lambda_{B_T}}}{b} \tag{1.4.6}$$

Une méthode envisageable pour cela est d'utiliser un réseau de Bragg « encapsulé » [65, 66] qui, bien que situé au cœur du matériau, ne sera pas en contact direct avec celui-ci comme illustré dans la figure 1.33.

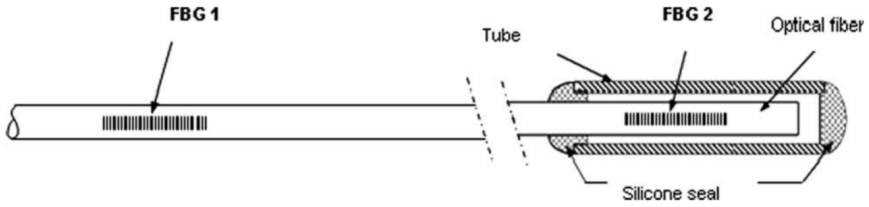


Figure 1.33 – FBG encapsulé [65]

Il est également important de retirer le revêtement de la FO ou de la commander directement sans le revêtement. En effet celui-ci dégrade le transfert de charges entre la fibre et la matrice. De plus, pour certaines FO le revêtement a une température de fusion inférieure à celle appliquée durant le cycle de cuisson du composite étudié. Dans ce cas, le revêtement se dégrade et compromet l'adhésion entre le capteur et le matériau.

Conclusion

Cette étude bibliographique a mis en évidence que les phénomènes responsables des déformations sont multi-physiques et complexes. Les plus impactants semblent être ceux liés aux différentiels de dilatation thermique et de contraction chimique. Cependant, un travail important de mesure et de dé-corrélation des phénomènes est nécessaire afin de prédire correctement les distorsions de cuisson. Si les déformations de cuisson en autoclave des préimprégnés ont fait l'objet de nombreuses recherches, la colle reste peu étudiée. Or, d'après les travaux effectués sur des assemblages hors autoclave, celle-ci risque d'avoir une influence non négligeable sur les distorsions.

Ainsi, la première étape de ce travail de recherche devra donc être la caractérisation des principaux phénomènes influant sur les déformations de cuisson du préimprégné et de la colle. En s'appuyant sur les résultats présentés dans la littérature, le travail de caractérisation se concentrera donc sur le comportement thermocinétique des matériaux, leurs transitions de phase, leurs propriétés thermomécaniques et leurs déformations thermiques et chimiques.

Une fois les phénomènes responsables des déformations identifiés et caractérisés, la simulation FEA pourra être mise en place. Celle-ci devra se baser sur trois principaux modules : un module thermocinétique, un module contraintes et déformations constitué d'un modèle constitutif mécanique et du calcul des déformations thermo-chimiques et, éventuellement, un module interaction outillage/pièce. Le modèle développé devra alors être validé par des mesures post-cuisson d'abord, puis par des mesures in-situ. Ces dernières semblent particulièrement complexes à mettre en place au sein d'une enceinte autoclave. La méthode retenue est la mesure par fibres optiques à réseaux de Bragg présentée dans cette étude bibliographique.

Chapitre

2

Caractérisation des comportements matériaux du préimprégné et de l'adhésif

Introduction 44
2.1 Propriétés générales des matériaux étudiés 45
2.1.1 Le préimprégné M21EV/IMA 45
2.1.2 L'adhésif structural FM300-M 46
2.2 Caractérisation cinétique 47
2.2.1 Méthode de mesure par calorimétrie différentielle à balayage 47
2.2.1.1 Mesure de l'enthalpie totale de réaction 48
2.2.2 Caractérisation de l'avancement maximal de réaction 50
2.2.3 Identification des paramètres du modèle de Kamal Sourour modifié 51
2.2.4 Résultats du modèle de Kamal Sourour modifié 52
2.3 Propriétés thermiques 53
2.3.1 Capacité calorifique 53
2.3.1.1 Méthode de mesure 53
2.3.1.2 Capacité calorifique de l'adhésif FM300-M 54
2.3.1.3 Capacité calorifique du préimprégné M21EV/IMA 55
2.3.2 Conductivité thermique 55
2.4 Transitions d'état des résines 57
2.4.1 Transition vitreuse 57
2.4.2 Gélification 58
2.4.3 Dégradation des résines 59
2.5 Déformations thermo-chimiques 60
2.5.1 Mesure des déformations thermochimiques par TMA 60
2.5.2 Mesure des déformations thermo-chimiques par Fibres Optiques à Réseaux de Bragg 63
2.6 Modèle constitutif mécanique 65

2.6.1 Modèles constitutifs des résines thermodurcissables 65
2.6.2 Identification du modèle constitutif du préimprégné 67
2.6.2.1 Comportement du préimprégné cuit 67
2.6.2.2 Comportement du préimprégné cru 68
2.6.3 Identification du modèle constitutif de l'adhésif structural 72
Conclusion 74

Introduction

Comme vu au cours du chapitre précédent, un travail important de caractérisation va devoir être effectué afin d'alimenter le modèle de cuisson. Une compréhension fine des comportements thermocinétiques, physico-chimiques, thermochimiques et thermomécaniques des matériaux est nécessaire.

La plupart des ces phénomènes étant couplés les uns avec les autres, il est nécessaire de les séparer pour les identifier. La méthodologie de caractérisation utilisée est illustrée dans la Figure 2.1. Dans un premier temps les propriétés générales des matériaux sont identifiées. Le comportement cinétique est ensuite étudié ainsi que les propriétés thermiques telles que la conductivité et la capacité calorifique. Le comportement thermocinétique des matériaux peut alors être défini en utilisant l'équation de la chaleur, comme détaillé dans la partie 1.3.1. Le couplage des comportements thermocinétiques effectué, les transitions physico-chimiques des matériaux sont caractérisées. Ce n'est qu'alors que les propriétés thermochimiques et thermomécaniques, intimement liées à la température, aux avancements des réactions de réticulation et aux états physico-chimiques des résines, peuvent être caractérisées.

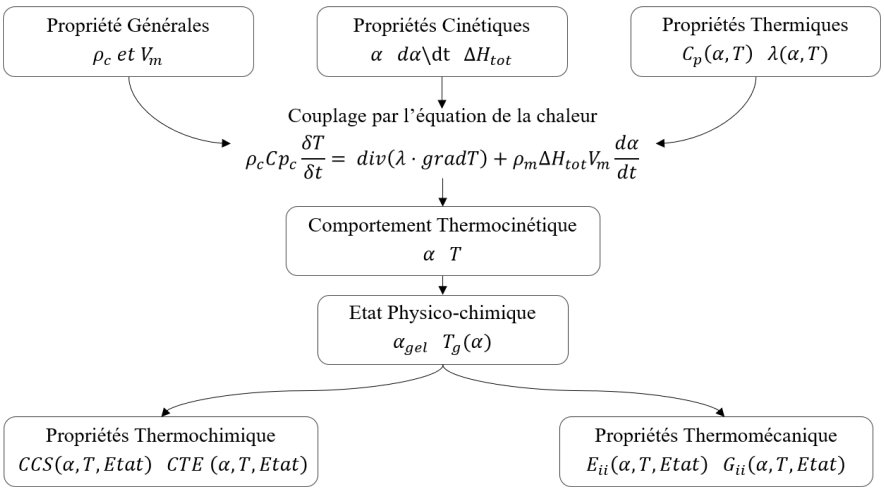


Figure 2.1 – Méthodologie de caractérisation des comportements matériaux durant cuisson

L'ensemble des résultats expérimentaux présentés par la suite sont normalisés. Cette normalisation est effectuée par rapport à la valeur maximale mesurée.

2.1 Propriétés générales des matériaux étudiés

Comme vu plus haut, le composite étudié au cours de cette thèse est un préimprégné produit par Hexcel et composé d'une matrice thermodurcissable M21EV et de renforts IMA en fibres de carbone. Le film adhésif utilisé pour les assemblages est un film structural époxy FM300-M produit par Cytec. Les propriétés générales de ces matériaux vont être présentées.

2.1.1 Le préimprégné M21EV/IMA

Le préimprégné étudié est le M21EV/34%/UD200/IMA produit par Hexcel. Ce matériau est abondamment utilisé dans l'industrie aéronautique pour les pièces de structure primaire. Les fibres de carbone HexTow® IMA, également produites par Hexcel, sont des fibres continues, hautes performances, à module intermédiaire [42]. Les propriétés communiquées par le fournisseur sont détaillées dans le tableau 2.1 pour des mèches de 12 000 filaments.

Propriété	**Unité**	**Valeur**
Module en traction	MPa	297
Résistance mécanique (12K)	MPa	6,067
Déformation à rupture (12K)	%	1,8
Masse Volumique	$g \cdot cm^{-3}$	1,79
Chargement en carbone	%	95,0

Table 2.1 – Propriétés générales des fibres IMA [42]

La matrice M21EV est une matrice thermodurcissable époxy chargée de nodules thermoplastiques qui permettent d'améliorer la ténacité du matériau. Ces nodules forment de fines couches entre les empilements de fibres comme illustré dans la figure 2.2. Ils modifient le comportement du matériau et les propriétés du composite formé sont alors totalement orthotropes. Il ne présente donc pas d'isotropie transverse, le comportement dans l'épaisseur des plis va différer du comportement transverse aux fibres dans le plan de drapage. Les principales propriétés du préimprégné M21EV/IMA sont récapitulées dans le tableau 2.1.

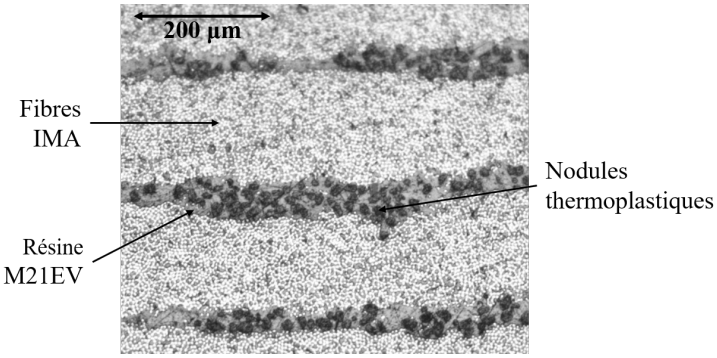


Figure 2.2 – Coupe dans l'épaisseur d'un stratifié unidirectionnel M21EV/IMA observée au microscope optique

Propriété	Symbole	Unité	Valeur
Masse volumique du composite cuit	ρ_c	$g \cdot cm^{-3}$	1,575
Fraction volumique de fibre	V_f	%	56
Fraction volumique de résine cuite	V_m	%	44
Fraction massique de fibre	M_f	%	66
Fraction massique de résine cuite	M_m	%	34
Épaisseur d'un pli cuit	e	μm	190

Table 2.2 – Propriétés générales du préimprégné M21EV/IMA [38]

La fraction massique de fibres est une propriété clé pour la suite des travaux de caractérisation présentés dans ce chapitre. Les films de résine M21EV non renforcée n'étant pas disponibles, cette fraction massique permettra par la suite de calculer les propriétés de la résine. Plusieurs méthodes ont été envisagées pour la mesure de cette fraction massique. Dans un premier temps, des essais par dissolution acide de la résine ont été effectués. Cependant, cette méthode n'a pas été concluante pour la M21EV/IMA.

Des essais de calcination sont donc effectués sous atmosphère inerte à l'aide d'une TGA7 de Perkin Elmer. Des échantillons de M21EV/IMA de 8 mg sont chauffés avec une rampe de 100°C/min entre l'ambiante et l'isotherme de 500°C. Cette dernière est maintenue pendant au moins 2h comme illustré dans la figure 2.3. A cette température la résine est entièrement calcinée, seules les fibres demeurent. La variation de masse mesurée correspond donc au taux massique de résine. Le taux massique de résine M_m obtenu suite à ces essais est de $33,59 \pm 3,1\%$.

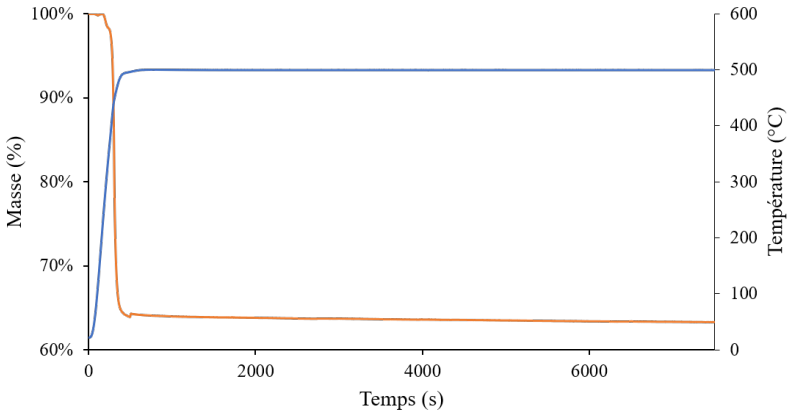


Figure 2.3 – Mesure par TGA de la perte de masse occasionnée par la calcination de la résine

2.1.2 L'adhésif structural FM300-M

Les films FM® 300 produits par Cytec sont des films adhésifs époxy modifiés. Ces films sont disponibles avec trois types de carriers polyesters permettant d'améliorer la résistance à l'humidité de l'adhésif et de réduire la corrosion galvanique lors d'assemblages métal/composites [26]. Dans le cas de la FM300-M ce carrier forme un mat aléatoire

comme illustré dans la figure 2.4. Une étude plus approfondie de ce mat polyester sera effectuée dans la suite du chapitre. Les principales propriétés de l'adhésif sont résumées dans le tableau 2.3.

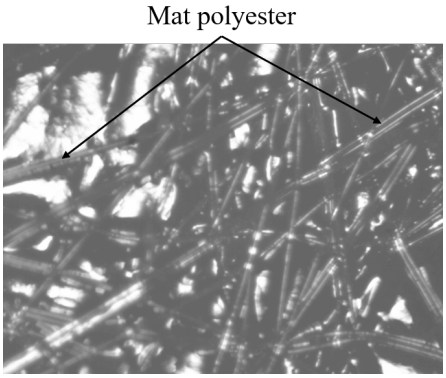


Figure 2.4 – Film de FM300-M cru observé au microscope optique

Propriété	**Symbole**	**Unité**	**Valeur**
Masse volumique de la résine cuite	ρ_m	$g \cdot cm^{-3}$	1,50
Épaisseur d'un pli cuit	e	μm	130
Volatiles	-	%	1 max
Dégazage	-	%	0,92% TWL /0,07% CVCM

Table 2.3 – Propriétés générales de l'adhésif structural FM300-M [26]

2.2 Caractérisation cinétique

Les matériaux thermodurcissables ont, comme expliqué plus haut, des propriétés intimement liées à leur degré d'avancement de réaction et à leur état physico-chimique. Cette partie va être consacrée à la caractérisation des comportements cinétiques du préimprégné et de l'adhésif.

En s'appuyant sur le travail de C. Paris [75] réalisé sur le système de matrice M21E, le modèle semblant le plus pertinent pour le type de résine étudié ici est le modèle de Kamal Sourour modifié. Il a été décrit précédemment dans les équations 1.3.2 et 1.3.3. Ce modèle est donc utilisé pour décrire la cinétique du préimprégné M21EV/IMA et de l'adhésif structural FM300-M. Dans cette partie les différents paramètres régissant ce modèle cinétique vont être caractérisés.

2.2.1 Méthode de mesure par calorimétrie différentielle à balayage

Afin de décrire le comportement cinétique de la résine, des essais de calorimétrie sont réalisés à l'aide d'une DSC TA instrument Q100.

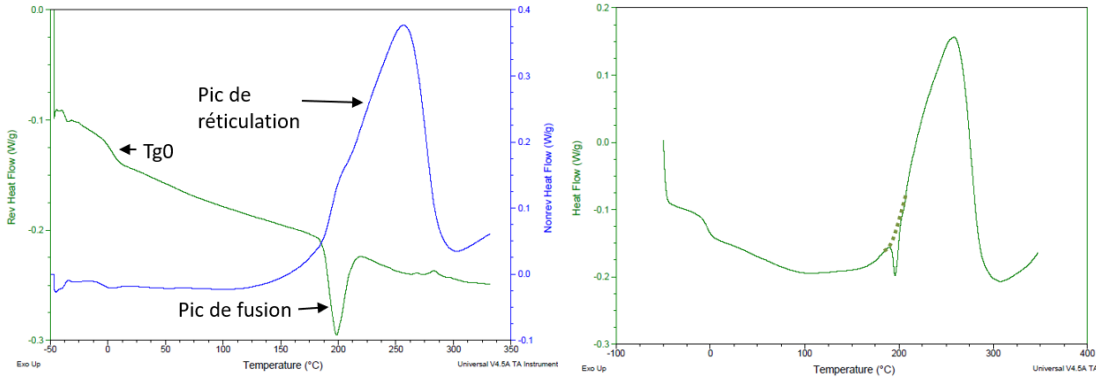
Les échantillons de matériau sont placés dans des creusets hermétiques en aluminium. La masse de matériau utilisée est de 23±0,5 mg pour le préimprégné et de 18±0,5 mg

pour la colle. L'appareil est calibré à l'aide d'éprouvettes d'indium. Une calibration supplémentaire est effectuée au saphir pour les essais en DSC modulée qui permettent de distinguer les phénomènes réversibles des irréversibles.

Les essais dynamiques sont effectués à diverses rampes de température allant de 1°C/min à 20°C/min. Afin de ne pas dégrader les matériaux dans l'enceinte de la DSC, les essais débutent à -50°C et montent jusqu'à 350°C pour le préimprégné et 270°C pour la colle. Lors des essais en DSC modulée, une amplitude de 1°C/min et une fréquence de 60s sont utilisés. Des essais isothermes sont également effectués entre 110°C et 210°C. Chaque essai est suivi d'une mesure en balayage dynamique à 10°C/min. Chaque type d'essai est effectué au moins trois fois.

2.2.1.1 Mesure de l'enthalpie totale de réaction

La résine M21EV est une résine thermodurcissable chargée en nodules thermoplastiques. Afin de pouvoir découpler les contributions dues à la fusion du thermoplastique (signal réversible) de celles dues à la réticulation de la résine (signal non réversible), des mesures par DSC modulées en balayage dynamique de 10°C/min sont effectuées suivant le protocole décrit dans la partie 2.2.1. Le type de résultat obtenu est illustré dans la figure 2.5a.



(a) MDSC **(b)** DSC

Figure 2.5 – Mesures de l'enthalpie totale de réaction du préimprégné par (a)MDSC et (b)DSC

Le comportement calorimétrique de la M21EV est très similaire à celui de la M21 étudiée par C. Paris [75]. La première variation observée sur le signal réversible, proche de 0°C, est la T_{g0}. Elle correspond à la transition vitreuse à l'état non réticulé du thermodurcissable. Le pic endothermique qui est, lui aussi, retranscrit par le signal réversible correspond à la fusion des nodules thermoplastiques. Le pic de réaction exothermique du thermodurcissable est observable sur le signal non réversible. En intégrant ce pic de réaction exothermique, l'enthalpie totale de réaction obtenue est de 144,3±2,3 J/g pour le pré-imprégné. En rapportant cela au taux massique de résine dans le pré-imprégné, l'enthalpie calculée pour la résine seule est de 429,6±7,0 J/g.

Afin d'éviter d'effectuer tous les essais de caractérisation cinétique en MDSC, qui est une méthode plus contraignante que la DSC classique, les résultats obtenus avec les deux types de mesures sont comparés (voir figure 2.5). Les mesures DSC et MDSC sont effectuées en balayage dynamique à 10°C/min. Lors des essais en DSC non modulée,

le signal réversible vient parasiter le pic de réaction. L'enthalpie totale est calculée en supprimant le pic de fusion avant d'intégrer le pic exothermique de réaction comme illustré dans la figure 2.5b. L'enthalpie totale mesurée est alors de 144,1±3,8 J/g. La valeur étant très proche de celle obtenue pour la MDSC, cette méthode de mesure est utilisée pour le reste des essais calorimétriques.

Des mesures calorimétriques par DSC classique en balayage dynamique à 10°C/min sont également effectuées sur la FM300-M. Comme illustré dans la figure 2.6, dans le cas de l'adhésif un pic complet de réaction exothermique est observé. Le pic n'est pas parasité par d'autres phénomènes, il n'est donc pas nécessaire d'effectuer des essais MDSC. L'enthalpie totale mesurée est de 261,1±8,8 J/g.

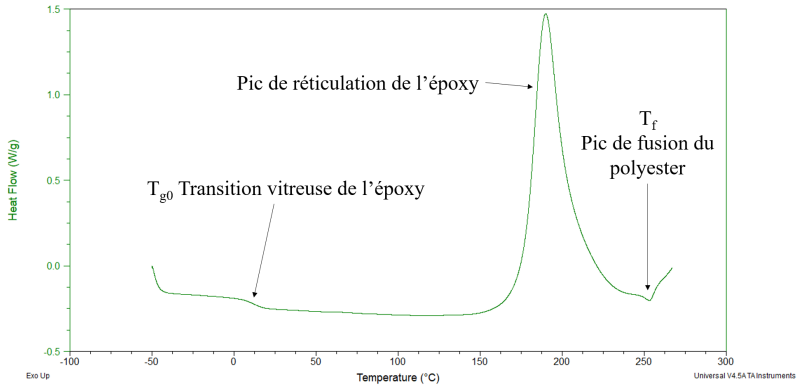


Figure 2.6 – Mesure de l'enthalpie totale de réaction de la FM300-M par DSC en balayage dynamique à 10°C/min

Un léger pic endothermique est observable au dessus de 250°C, après réticulation complète de l'époxy. Ce pic est attribué à la fusion du mat polyester qui est donc de type thermoplastique. Afin d'observer plus précisément ce pic, une mesure DSC en balayage dynamique (toujours à 10°C/min) est effectuée après réticulation complète de l'adhésif, les résultats sont illustrés dans la figure 2.7. Le pic endothermique de fusion et la transition vitreuse du matériau cuit sont alors les seuls phénomènes visibles.

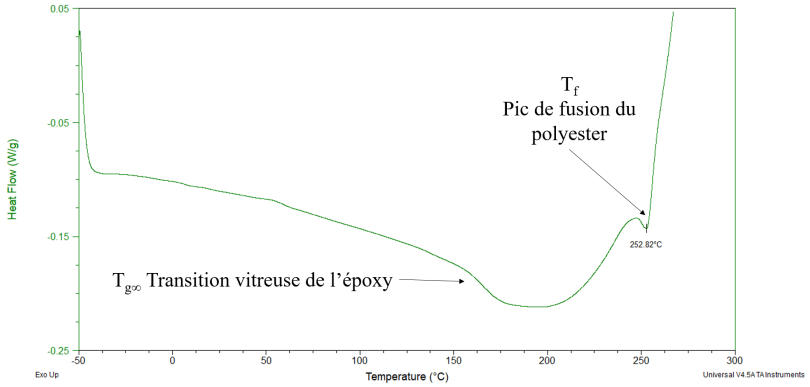


Figure 2.7 – Observation de la température de fusion du mat polyester de la FM300-M par DSC en balayage dynamique à 10°C/min après une isotherme de 180°C

2.2.2 Caractérisation de l'avancement maximal de réaction

Les équations du modèle de Kamal Sourour modifié présentées dans la partie 1.3.1 sont rappelées dans les équations 2.2.1 et 2.2.2.

$$\frac{d\alpha}{dt} = (k_1 + k_2 \cdot \alpha^m)(\alpha_{max} - \alpha)^n \tag{2.2.1}$$

$$k_i = A_i \cdot exp(-\frac{E_{a_i}}{R \cdot T}) \tag{2.2.2}$$

n et m sont les ordres partiels de réaction. A_i est le facteur pré-exponentiel et E_{a_i} est l'énergie d'activation. α_{max} désigne le degré d'avancement maximal de la réaction de réticulation.

Cette valeur de degré d'avancement de réaction maximal peut être déterminée grâce aux mesures DSC isothermes. Suite à chaque isotherme, l'enthalpie résiduelle est mesurée par un essai en balayage dynamique à 10°C/min et en appliquant l'équation 2.2.3. Une loi de comportement dépendante de la température peut alors être définie pour décrire l'évolution du degré d'avancement maximal de réaction.

$$\alpha_{max} = 1 - \frac{\Delta H_{res}}{\Delta H_{tot}} \tag{2.2.3}$$

ΔH_{tot} et ΔH_{res} sont respectivement l'enthalpie totale de réaction de réticulation et l'enthalpie résiduelle après isotherme. α_{max} est le degré d'avancement maximal de réaction pour l'isotherme appliqué.

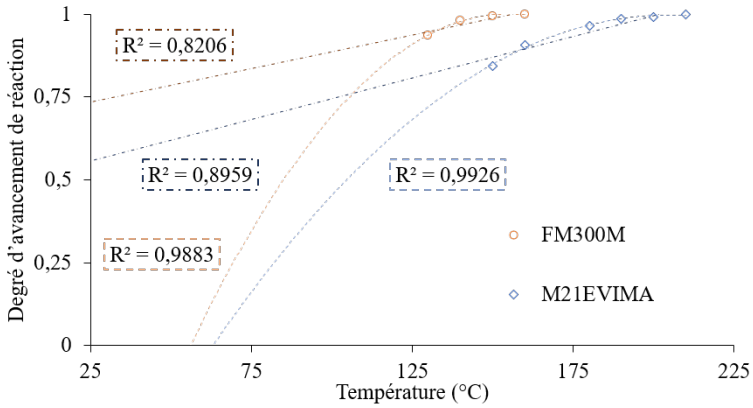


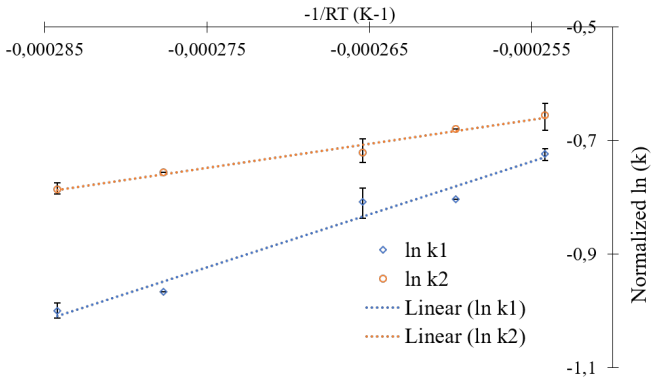
Figure 2.8 – Évolution du degré d'avancement maximal de réticulation du préimprégné M21EV/IMA et de l'adhésif FM300-M

Les résultats obtenus pour les deux matériaux sont illustrés dans la figure 2.8. Les lois de comportement polynomiales offrent une bonne corrélation avec les mesures expérimentales d'avancement maximal des matériaux. L'utilisation de lois linéaires semble moins pertinente et donnerait un avancement de 49% à 0°C et de 56% à 25°C pour le préimprégné, ce qui est incohérent.

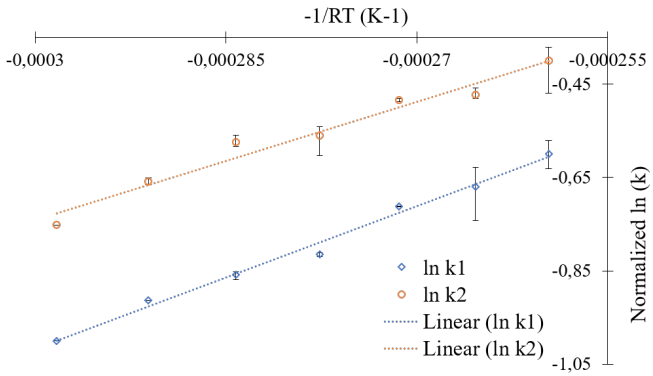
En comparant, dans la figure 2.8, l'évolution de l'avancement maximal des deux matériaux on remarque que la colle réticule plus rapidement que le préimprégné. Cette différence de comportement n'est pas surprenante mais va, comme nous le verrons par la suite, avoir une influence sur le comportement et le développement de contraintes au sein des assemblages.

2.2.3 Identification des paramètres du modèle de Kamal Sourour modifié

Afin de caractériser les paramètres restants de la loi de Kamal Sourour modifiée divers essais DSC en isothermes et en balayages dynamiques sont effectués suivant la méthodologie décrite dans la partie 2.2.1.



(a) M21EV/IMA



(b) FM300-M

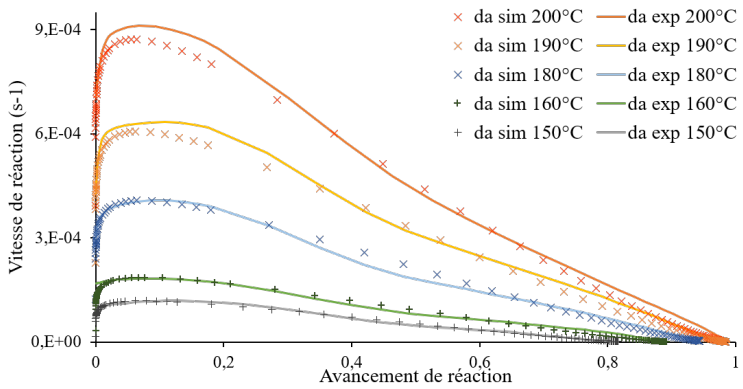
Figure 2.9 – Identification des paramètres de la loi de Kamal Sourour modifiée

Les paramètres sont identifiés à l'aide d'un algorithme Matlab utilisant la fonction lsqnln associé à un multistart de 500. Ces fonctions permettent d'identifier les valeurs des paramètres de la loi de Kamal Sourour modifiée en minimisant l'écart entre la loi et les valeurs expérimentales obtenues par DSC à l'aide d'un solveur par moindres carrés non linéaires. La fonction multistart permet de lancer le solveur à partir de multiples valeurs initiales. Cette étape assure ainsi que les minimums identifiés sont globaux et non locaux. L'algorithme Matlab est appliqué à l'ensemble des essais DSC en isothermes et en dynamiques. Il permet d'identifier les paramètres n, m, k_1, k_2. En modifiant l'équation 2.2.2 à l'aide d'un logarithme népérien l'équation peut être mise

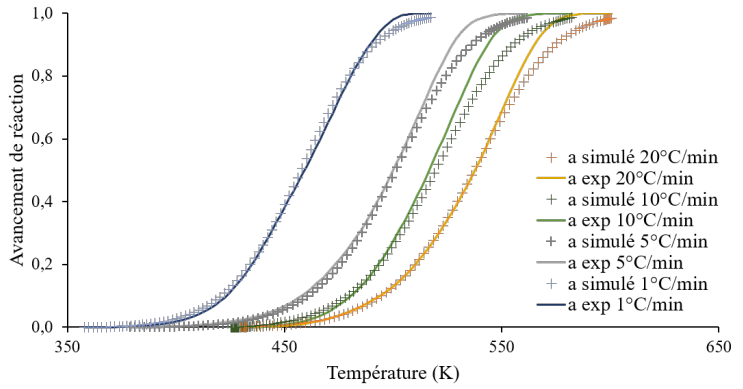
sous une forme linéaire dépendante de la température permettant d'identifier A_i et E_{a_i}. L'identification des paramètres de la loi de Kamal Sourour modifiée appliquée au préimprégné et à la colle sont illustrés dans la figure 2.9.

2.2.4 Résultats du modèle de Kamal Sourour modifié

Les résultats obtenus en appliquant le modèle de Kamal Sourour modifié avec les paramètres identifiés sur la totalité des mesures sont comparés aux résultats expérimentaux obtenus par DSC. La figure 2.10a reprend les résultats en isothermes pour le préimprégné et la figure 2.10b les résultats obtenus en balayages dynamiques.



(a) Isothermes



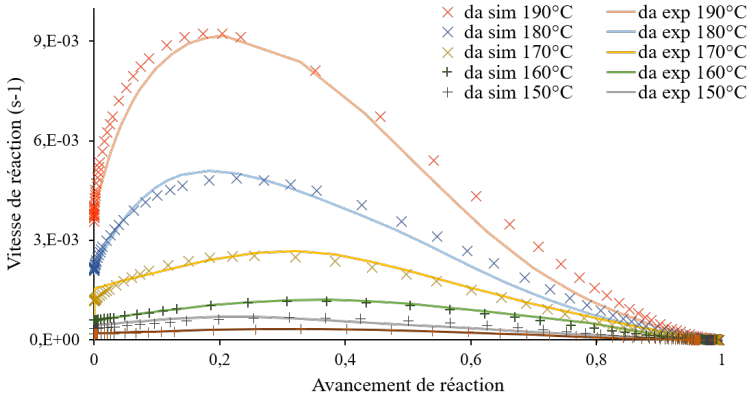
(b) Dynamiques

Figure 2.10 – Comparaison entre les mesures DSC et la simulation de l'évolution de l'avancement de réaction du M21EV/IMA

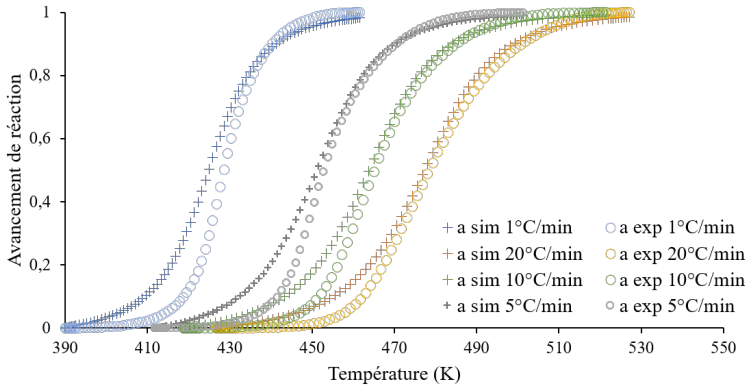
De même, les résultats du modèle sont comparés aux résultats expérimentaux obtenus par DSC pour l'adhésif. La figure 2.11a reprend les résultats obtenus en isothermes. Les résultats du modèle pour les essais en balayages dynamiques sont présentés dans la figure 2.11b.

Le modèle de Kamal Sourour identifié montre une bonne corrélation avec les résultats expérimentaux, aussi bien pour le préimprégné que pour l'adhésif. Quelques écarts peuvent malgré tout être observés lors des essais dynamiques rapides. Ceux-ci ne devraient pas détériorer significativement la qualité du modèle et restent d'autant plus

acceptables que la vitesse maximale de chauffe des cycles de cuisson étudiés dans ce manuscrit est de 1,5°C/min.



(a) Isothermes



(b) Dynamiques

Figure 2.11 – Comparaison entre les mesures DSC et la simulation de l'évolution de l'avancement de réaction de la FM300-M

2.3 Propriétés thermiques

2.3.1 Capacité calorifique

2.3.1.1 Méthode de mesure

La capacité calorifique à pression constante, notée Cp, représente l'énergie à apporter à une unité de masse d'un matériau pour faire augmenter sa température d'un degré. Le Cp d'un matériau peut être mesuré par DSC modulée en utilisant l'équation 2.3.1.

$$\Phi = m \cdot Cp \cdot \frac{dT}{dt} \tag{2.3.1}$$

Φ est le flux de chaleur mesuré au cours de la MDSC et m la masse de l'échantillon.

L'évolution du Cp au cours de la cuisson est décrite à l'aide d'une loi des mélanges (voir équation 2.3.2). Des mesures de Cp doivent être réalisées sur des éprouvettes cuites

et crues afin de décorréler l'effet de la température de celui du degré d'avancement de réaction. Des mesures en MDSC sont réalisées afin de caractériser le comportement du Cp pour les résines non réticulées (Cp_{cru}) et complètement réticulées (Cp_{cuit}). La méthode d'essai est celle présentée dans la partie 2.2.1. Chaque éprouvette est soumise à trois rampes de 10°C/min, la première rampe fournissant le Cp_{cru} et la dernière le Cp_{cuit}. Les rampes sont appliquées entre 0°C et 300°C pour le préimprégné et 0°C et 250°C pour la colle.

$$Cp(\alpha, T) = Cp_{cuit}(T) \cdot \alpha + Cp_{cru}(T) \cdot (1 - \alpha) \tag{2.3.2}$$

2.3.1.2 Capacité calorifique de l'adhésif FM300-M

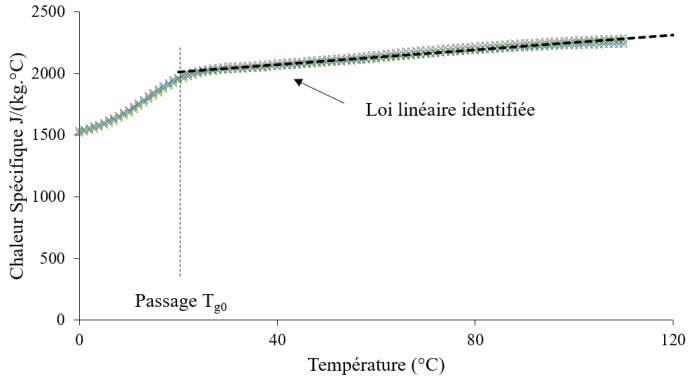


Figure 2.12 – Evolution du Cp mesuré par MDSC sur la FM300-M crue

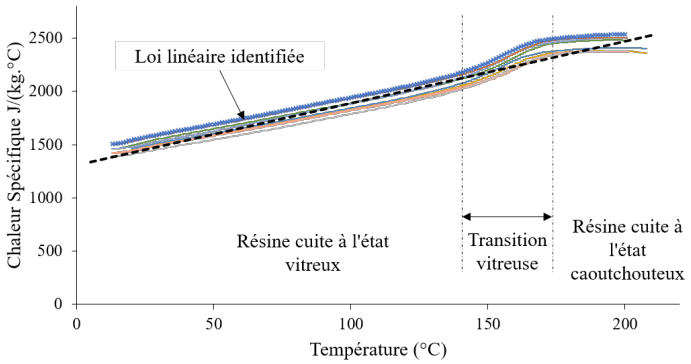


Figure 2.13 – Evolution du Cp mesuré par MDSC sur la FM300M cuite

Les comportements obtenus pour les éprouvettes de FM300-M crues et cuites sont illustrés dans les figures 2.12 et 2.13. Certains auteurs [1, 75] ont mis en évidence un comportement linéaire du Cp en fonction de la température qui semble correspondre aux résultats obtenus ici, du moins sur une certaine plage de température. Comme attendu le passage de la T_g entraine un saut de Cp observable aussi bien sur les éprouvettes crues que sur les éprouvettes cuites. Ce type de comportement a déjà été mis en évidence sur des résines thermodurcissables [67]. Cependant, dans le cas des éprouvettes crues, la T_{g0} intervient à des températures en dessous de 20°C. Les cycles de cuisson

démarrant usuellement à température ambiante cette particularité de comportement n'a pas d'intérêt majeur pour le modèle mis en place. A l'état cuit, l'influence de la transition vitreuse semble plus faible. Afin de ne pas alourdir le modèle, il a été décidé d'ignorer ce saut lié au passage de la transition vitreuse. Ce choix de modélisation sera confirmé plus bas lors de l'étude de sensibilité du modèle. Une régression linéaire est donc utilisée (courbe en pointillée sur les figures 2.12 et 2.13).

2.3.1.3 Capacité calorifique du préimprégné M21EV/IMA

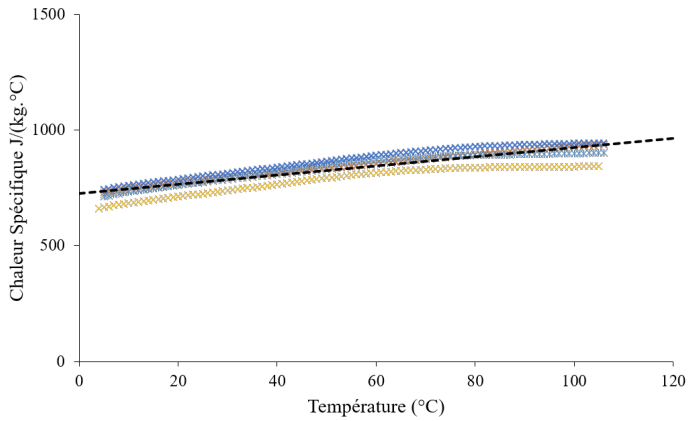


Figure 2.14 – Evolution du Cp mesuré par MDSC sur le préimprégné cru

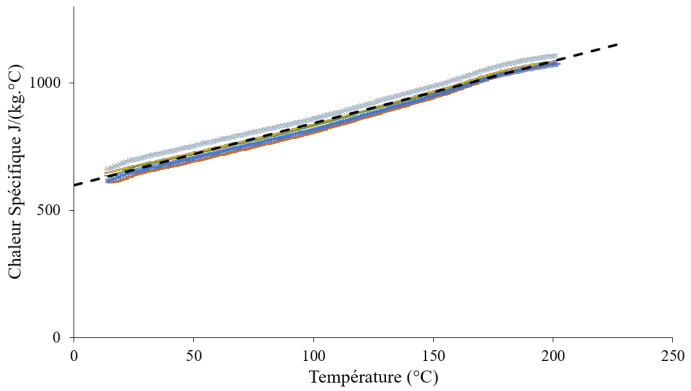


Figure 2.15 – Evolution du Cp mesuré par MDSC sur le préimprégné cuit

Les résultats des mesures de Cp par MDSC pour le préimprégné M21EV/IMA sont illustrés dans les figures 2.14 et 2.15. Le passage de la T_g intervient en dessous de 0°C pour les éprouvettes crues et est bien moins marqué à l'état cuit que pour l'adhésif. Il a donc été décidé, comme pour la FM300-M, de se contenter d'une loi linéaire en fonction de la température associée à une loi de mélange (équation 2.3.2).

2.3.2 Conductivité thermique

La conductivité thermique d'un matériau définit la quantité de chaleur transférée par unité de surface et de temps lorsque celui-ci est soumis à un gradient de température.

La conductivité va dépendre de la température et de l'avancement de réaction de la résine. Il est donc nécessaire de mettre au point une méthode de mesure durant cuisson.

Pour cela, la diffusivité des matériaux est mesurée par Laser Flash, noté LSF ou LFA, à l'aide d'une Netzsch LFA 457 MicroFlash. La conductivité de chaque matériau peut ensuite être calculée à l'aide de l'équation 2.3.3. Afin de mesurer la diffusivité à l'état cru le support des échantillons est recouvert d'agent démoulant (FREKOTE 700 NC). Les éprouvettes de matériau peuvent alors être mesurées tout au long de la cuisson sans risque pour l'appareil.

$$\lambda(\alpha, T) = a(\alpha, T) \cdot Cp(\alpha, T) \cdot \rho(\alpha, T) \tag{2.3.3}$$

λ est la conductivité thermique, Cp est la capacité calorifique, a est la diffusivité et ρ est la masse volumique du matériau.

Pour chaque matériau, des rampes de 2°C/min sont appliquées avec plusieurs plateaux isothermes à 25°C, 50°C, 75°C, 100°C, 125°C, 150°C, 175°C, 200°C, 225°C et 250°C. Au cours de chaque plateau, trois mesures de diffusivité sont effectuées. Afin de décorréler l'influence de la température de celle de l'avancement de réaction, chaque éprouvette est soumise à ce cycle trois fois de suite.

Une fois de plus, une loi des mélanges est utilisée pour définir l'évolution de la conductivité au cours de la cuisson (2.3.4) et des lois de comportement linéaires sont utilisées pour décrire λ_{cuit} et λ_{cru}.

$$\lambda(\alpha, T) = \lambda_{cuit}(T) \cdot \alpha + \lambda_{cru}(T) \cdot (1 - \alpha) \tag{2.3.4}$$

Les résultats obtenus pour le préimprégné et la colle sont illustrés dans les Figures 2.16 et 2.17. La conductivité, à un degré d'avancement de réaction stable, évolue linéairement en fonction de la température. Les lois linéaires associées sont donc déterminées pour les matériaux crus et cuits.

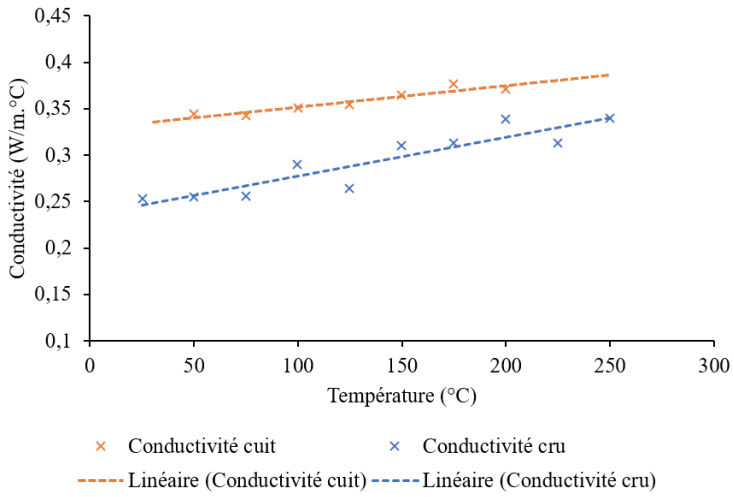


Figure 2.16 – Évolution de la conductivité en fonction de la température pour de le préimprégné

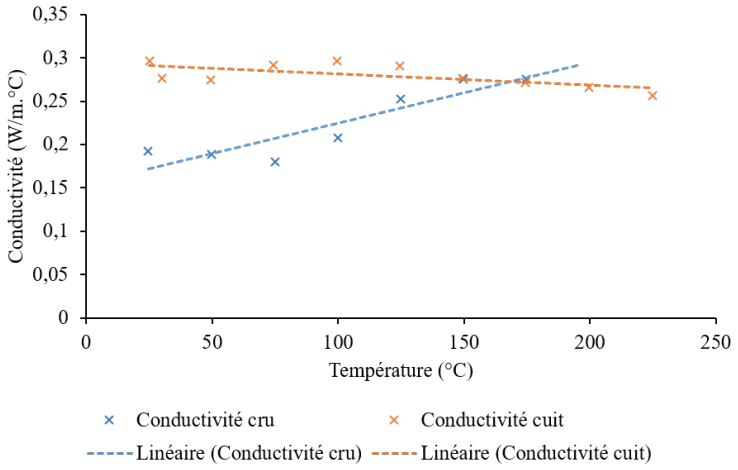


Figure 2.17 – Évolution de la conductivité en fonction de la température pour de l'adhésif

2.4 Transitions d'état des résines

Comme évoqué précédemment, les résines thermodurcissables vont, au cours de leur cuisson, passer par différents états physico-chimiques : visqueux, caoutchoutique et vitreux. Les systèmes préimprégnés, en particulier, sont des produits semi-finis ; la résine est initialement dans un état partiellement réticulé dit stade B. Dans les premiers temps de la cuisson, la résine va voir sa viscosité chuter suite à la linéarisation des chaînes moléculaires. La gélification va ensuite se poursuivre jusqu'à la vitrification du matériau. Une grande partie des propriétés des matériaux sont fortement dépendantes de ces états. Il est donc nécessaire, pour simuler correctement la cuisson de matériaux à base époxy, de connaitre l'état physico-chimique des résines en tout point de la pièce et à tout moment du cycle.

Comme vu précédemment, le passage de l'état visqueux à l'état caoutchoutique est fixé par le point de gel, qui marque la fin du processus de gélification, alors que le passage de l'état caoutchoutique à l'état vitreux est, lui, fixé par la température de transition vitreuse. Tandis qu'au point de gel on peut associer un degré d'avancement limite α_{gel} constant, la température de transition vitreuse évolue avec le degré d'avancement de la réaction de réticulation de la matrice thermodurcissable. Finalement, si la température appliquée au matériau devient trop haute, la matrice thermodurcissable va définitivement se dégrader.

Dans cette partie nous nous evertuerons à caractériser ces changements de phase et à définir et identifier les lois de comportement qui régissent leurs évolutions.

2.4.1 Transition vitreuse

Comme vu précédemment, une des lois de comportement classiquement utilisées [1, 5, 55, 75] pour décrire l'évolution de la transition vitreuse des résines époxy est le modèle

de Di Benedetto repris par Pascault et Williams [16, 70, 76, 77]. La loi de comportement associée est rappelée dans l'équation 2.4.1

$$\frac{T_g - T_{g0}}{T_{g\infty} - T_{g0}} = \frac{\lambda_{T_g} \cdot \alpha}{1 - (1 - \lambda_{T_g}) \cdot \alpha} \tag{2.4.1}$$

T_g est la température de transition vitreuse instantanée, T_{g0} et $T_{g\infty}$ sont respectivement les températures de transition vitreuse à l'état non réticulé et complètement réticulé. λ_{T_g} correspond au rapport des mobilités de chaînes associé à la loi de DiBenedetto.

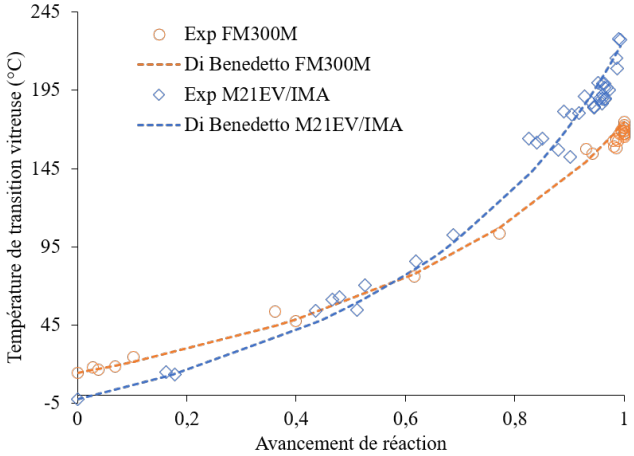


Figure 2.18 – Identification des paramètres de la loi de Di Benedetto pour le préimprégné et la colle

Les transitions vitreuses sont mesurées par DSC pour divers degrés d'avancement de réaction. Les mesures sont effectuées pour l'adhésif et le préimprégné. Les paramètres de la loi de Di Benedetto sont identifiés à partir de ces résultats expérimentaux à l'aide d'un solveur Excel GRG non linéaire associé à un multistart de 10000. Ce solveur permet de minimiser le gradient au carré $(T_{g_{exp}} - T_{g_{sim}})^2$ et le multistart assure que les paramètres obtenus correspondent bien au minimum global et non à un des minimums locaux. La comparaison entre le modèle obtenu et les mesures de températures de transition vitreuse par DSC est disponible dans la figure 2.18. Le modèle est adapté aux comportements de l'adhésif et du préimprégné.

2.4.2 Gélification

L'identification du point de gel au cours de la cuisson a été effectuée par les partenaires industriels dans le cadre du projet MAESTRIA. Une étude rhéologique a permis de définir le temps de gel au cours d'une isotherme à 150°C après une montée à 1°C/min depuis la température ambiante, c'est à dire au cours du premier palier isotherme du cycle de cuisson utilisé au cours de ce travail de recherche. En associant ces mesures au modèle cinétique développé dans cette thèse, il est possible de calculer le degré d'avancement de réaction au temps de gel et d'obtenir ainsi α_{gel}.

Cette valeur du degré d'avancement limite au point de gel sera par la suite confirmée aux cours des essais de caractérisation du comportement thermochimique.

2.4.3 Dégradation des résines

La température de dégradation est mesurée par à l'aide d'une TGA7 de Perkin Elmer. Dans le cas de la M21EV/IMA, une rampe de 20°C/min est appliquée et la dégradation est identifiée en repérant la chute de masse associée comme illustré dans la figure 2.19. La température de dégradation à 20°C/min est de 371,09°C.

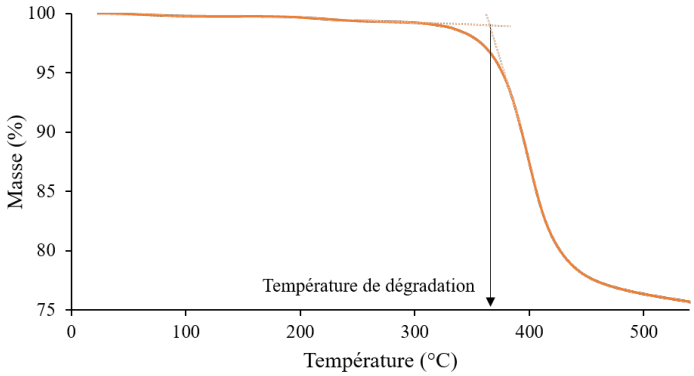


Figure 2.19 – Dégradation du préimprégné M21EV/IMA mesurée par TGA pour une rampe de 20°C/min

En utilisant les essais de calcination effectués afin de déterminer le taux massique de fibre, la température de dégradation au cours d'une rampe de 100°C/min peut être mesurée (voir figure 2.20). Cette température est alors de 405,97±4,81°C. L'inertie de la vitesse de chauffe fait augmenter la température de dégradation. Cependant, la température de dégradation étant largement supérieure aux températures auxquelles est soumis le préimprégné durant la cuisson, aucune dégradation n'est attendue au cours du cycle. L'étude de la dégradation n'a donc pas été enrichie d'essais supplémentaires à des vitesses de chauffe plus lentes.

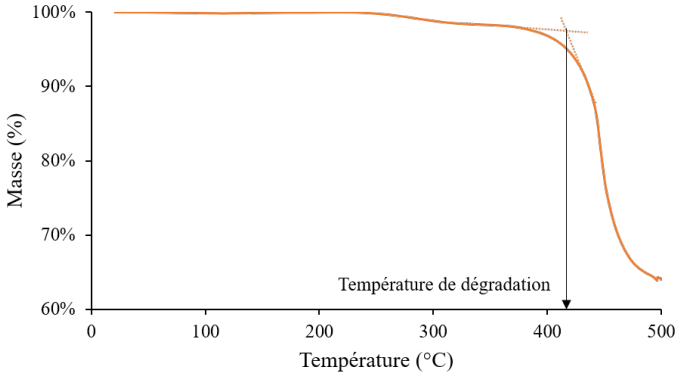


Figure 2.20 – Dégradation du préimprégné M21EV/IMA mesurée par TGA pour une rampe de 100°C/min

La perte de masse de la FM300-M a, elle, été mesurée durant une rampe de 5°C/min. Les résultats sont disponibles dans la figure 2.21. A cette vitesse de chauffe, la dégradation thermique a lieu à 285,68±0,56°C. Cette température reste également bien supérieure

aux températures de cuisson auxquelles est soumis le matériau et ce, nous le confirmerons plus bas, même pour des pièces épaisses.

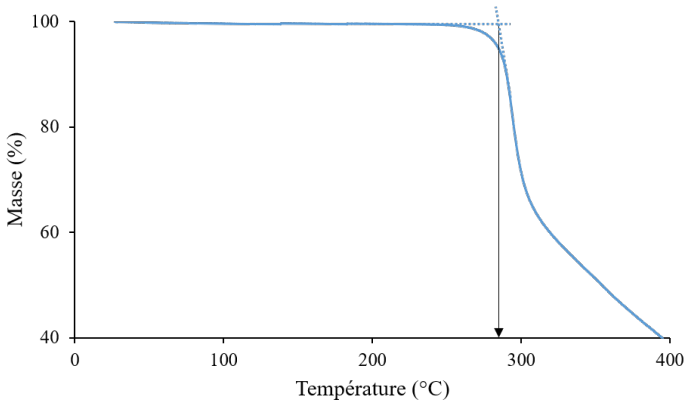


Figure 2.21 – Dégradation de l'adhésif FM300-M

2.5 Déformations thermo-chimiques

Les déformations de cuisson ont trois origines principales : thermiques, chimiques et mécaniques. Les déformations mécaniques sont générées par la mise en pression et les interactions entre la pièce et l'outillage tandis que les déformations thermiques et chimiques sont occasionnées par les variations de températures et la réticulation du matériau. Les déformations thermiques sont dépendantes des coefficients de dilatation thermique (CTE) et des incréments de température (voir 2.5.1). Les déformations chimiques sont elles dues au retrait chimique des résines durant leur réticulation. Le retrait peut être modélisé à l'aide d'un coefficient de retrait chimique (CCS) et va dépendre de l'incrément de degré d'avancement de réaction (voir l'équation 2.5.2) [54, 67, 109]. Les deux types de coefficients vont être dépendants de l'état physico-chimique de la résine (voir les équations 2.5.3 et 2.5.4).

$$\Delta\varepsilon^{therm} = CTE \cdot \Delta T \tag{2.5.1}$$

$$\Delta\varepsilon^{chim} = CCS \cdot \Delta\alpha \tag{2.5.2}$$

$$CTE_i = \begin{cases} CTE_i^{sup\,T_g} & \text{si } T \geq T_g(\alpha) \text{ et } i = 1,2,3, \\ CTE_i^{inf\,T_g} & \text{si } T < T_g(\alpha) \text{ et } i = 1,2,3. \end{cases} \tag{2.5.3}$$

$$CCS_i = \begin{cases} CCS_i^{av\,gel} & \text{if } \alpha < \alpha_{gel} \text{ et } i = 1,2,3, \\ CCS_i^{ap\,gel} & \text{if } \alpha \geq \alpha_{gel} \text{ et } i = 1,2,3. \end{cases} \tag{2.5.4}$$

2.5.1 Mesure des déformations thermochimiques par TMA

Les CTE et CCS sont déterminés à l'aide d'essais de dilatométrie par analyse thermo-mécanique (TMA). Ces essais sont effectués à l'aide d'un appareil de mesure Netzsch

TMA 402 F3 Hyperion. Des essais sont mis en place afin de caractériser les déformations thermochimiques des matériaux tout au long de la cuisson.

Avant toute mesure, l'appareil est protégé de film démoulant. La correction des mesures est effectuée grâce à un essai préalable sur une éprouvette de quartz positionnée dans l'appareillage protégé de démoulant. Cette mesure permet de déterminer la dilatation du support de l'échantillon ainsi que du démoulant qui le protège. Les mesures de dilatométrie des échantillons de matériau peuvent alors être corrigées afin de soustraire l'effet du support et du démoulant.

Les éprouvettes de préimprégné sont découpées dans des stratifiés compactés crus. Ces stratifiés sont pré-compactés sous vide 15 min tous les 5 plis, puis le stratifié complet est compacté 24h. Le réseau de vide utilisé est compris entre -800 mba et -600 mba. Le préimprégné étant, comme vu précédemment, totalement orthotrope, il est nécessaire d'effectuer des mesures dans les trois directions de plis : parallèlement aux fibres, perpendiculairement aux fibres dans le plan de stratification et perpendiculairement aux fibres dans l'épaisseur du préimprégné. Les déformations thermochimiques dans l'épaisseur du matériau sont mesurées sur des échantillons découpés au sein d'une plaque au drapage quasi-isotropique de 16 plis. Pour mesurer les propriétés dans le plan de stratification, les échantillons proviennent de la découpe d'une plaque épaisse de 40 plis unidirectionnelle $[0_{40}]$. Ces échantillons sont mesurés dans la direction parallèle aux fibres et dans la direction perpendiculaire aux fibres dans le plan de stratification.

Les échantillons testés sont positionnés sur le support échantillon entre deux films de démoulant. Une force de 1mN est appliquée afin de permettre la mesure tout en minimisant au maximum l'écrasement de l'échantillon. Trois types d'essais sont effectués.

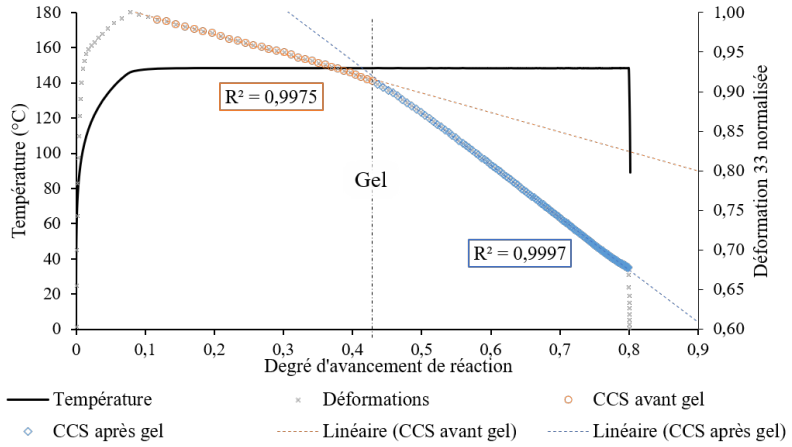


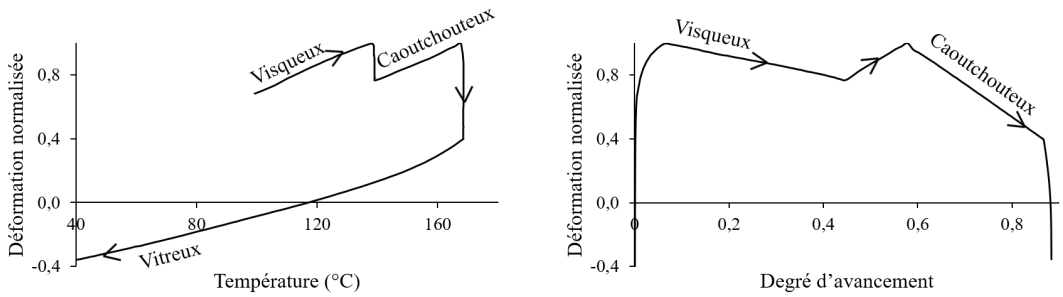
Figure 2.22 – Déformation mesurée par TMA au cours d'une isotherme de 150 °C dans l'épaisseur d'un stratifié M21EV/IMA

Tout d'abord, afin d'identifier les CCS, des échantillons sont chauffés à 20°C/min de 20°C à 150°C. L'isotherme est maintenue durant six heures. Durant ce palier il n'y a pas d'effet thermique, seul le retrait chimique agit sur les déformations. Les différents CCS peuvent être extraits en étudiant l'évolution de la déformation en fonction du degré d'avancement de réaction comme illustré dans la figure 2.22. Un changement de pente est observé au passage du point de gel. La valeur mesurée pour α_{gel} par ces essais thermochimiques correspond bien aux mesures présentées dans la partie 2.4.2.

Puis, pour identifier les CTE, des échantillons crus sont chauffés avec une rampe de 1°C/min de 20°C jusqu'à 300°C puis refroidis jusqu'à 20°C toujours à la même vitesse de 1°C/min. Le cycle est répété deux fois pour chaque échantillon. Afin d'extraire la déformation thermique de ces mesures, l'effet du retrait chimique est soustrait à la mesure de déformation comme décrit dans l'équation 2.5.5. Il ne reste alors qu'à étudier l'évolution de la déformation thermique en fonction de la température pour obtenir les différents CTE.

$$\Delta\varepsilon^{therm} = \Delta\varepsilon^{tot} - \Delta\varepsilon^{chim} \tag{2.5.5}$$

Finalement, les déformations thermochimiques sont mesurées au cours d'un cycle de cuisson complet comme illustré dans la figure 2.23. Durant les rampes thermiques la résine passe par ses états visqueux, caoutchoutiques et vitreux. Les déformations sont principalement impactées par la dilatation thermique liée aux CTE. Le changement de pente de déformation en fonction de la température associé au passage de la transition vitreuse est mis en évidence dans la figure 2.23a. Durant les deux isothermes du cycle de cuisson, seul le retrait chimique agit sur les déformations thermochimiques, comme illustré dans la figure 2.23b. C'est ici le changement de pente de déformation en fonction de l'avancement de réaction au passage du point de gel qui peut être observé. Les CCS sont calculés au cours des isothermes et les CTE au cours des rampes en soustrayant, comme expliqué plus haut, l'effet chimique sur les déformations. Les valeurs sont comparées avec celles mesurées au cours des deux autres types d'essais et permettent de confirmer la cohérence de l'ensemble des résultats obtenus.



(a) Déformation (T) **(b)** Déformation (α)

Figure 2.23 – Déformation dans l'épaisseur d'un stratifié M21EV/IMA mesurée par TMA au cours d'un cycle de cuisson

Des mesures TMA classiques sont également effectuées sur des éprouvettes découpées à partir d'une plaque unidirectionnelle cuite de M21EV/IMA. Ces essais permettent de confirmer la cohérence des mesures effectuées sur les éprouvettes crues en comparant les CTE mesurés. Les éprouvettes cuites sont soumises à des rampes de chauffe de 2°C/min de 20°C à 300°C comme illustré dans la figure 2.24. Le refroidissement est effectué à la même vitesse jusqu'à 25°C. Le procédé est répété deux fois de suite. Les éprouvettes de préimprégné sont sollicitées dans les trois directions. Les écarts de mesure calculés entre les CTE obtenus sur éprouvettes cuites et sur éprouvettes crues varient entre +2% et -9%.

Si la méthodologie présentée fonctionne très bien pour le préimprégné, elle ne permet pas de mesurer correctement les déformations de l'adhésif. En effet, l'adhésif FM300-M génère des bulles lors de sa cuisson. Celles-ci vont venir parasiter les mesures effectuées par le dilatomètre, la force appliquée de 1mN ne suffisant pas à les écraser. Des essais complémentaires ont été effectués avec une force de 2mN mais celle-ci écrase le matériau et fausse les mesures. Des éprouvettes ont également été préchauffées à 50°C sous vide durant 100 min mais cela ne suffit pas à évacuer la totalité des bulles. Une autre méthode de mesure doit donc être mise en place.

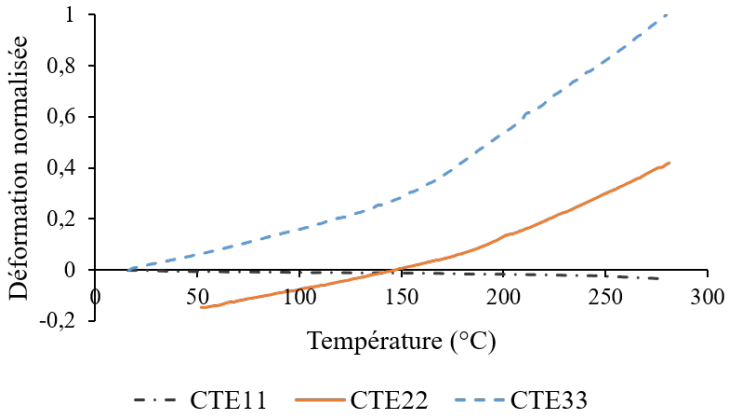


Figure 2.24 – Mesure de la dilatation thermique sur éprouvette cuite de M21EV/IMA selon chaque direction de pli

2.5.2 Mesure des déformations thermo-chimiques par Fibres Optiques à Réseaux de Bragg

Afin d'étudier les déformations de cuisson de l'adhésif, une méthode autre que la TMA doit être mise en place. Les déformations ont alors été mesurées par des Fibres Optiques à Réseaux de Bragg (FBG) dont le fonctionnement a été décrit dans la partie 1.4.4.

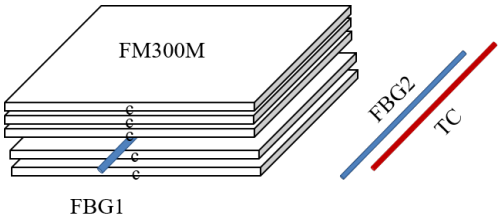


Figure 2.25 – Suivi des déformations par FBG : montage expérimental

Afin d'étudier les déformations de cuisson du FM300-M, un stratifié de 5 plis d'adhésif est instrumenté avec une fibre optique gravée d'un unique réseau de Bragg. Le stratifié est cuit sous vide en étuve. Il est drapé sur un moule en Invar recouvert d'un film démoulant FEP. Comme illustré dans la figure 2.25 deux FBGs sont utilisées. La première, nommée FBG1, est placée entre deux films d'adhésif. Elle est soumise à la fois à la déformation mécanique que lui impose l'adhésif et à l'effet de la température de cuisson (voir l'équation 2.5.6 [66]). Afin d'obtenir uniquement la déformation due à

l'adhésif une deuxième FBG, nommée FBG2, est utilisée comme référence. Celle-ci est placée sur le moule et n'est donc sujette qu'à l'effet de la température (voir la partie 1.4.4 et l'équation de rappel 2.5.7). On suppose alors que, la pièce étant très fine, la température est homogène au sein de la colle et correspond à celle mesurée par FBG2. Cette FBG de référence permet de calculer la déformation de l'adhésif vue par la FBG2 en soustrayant l'effet de la température. Les résultats obtenus sont illustrés dans la figure 2.26

$$\frac{\Delta\lambda_{B1}}{\lambda_{B10}} = a \cdot \Delta T + b \cdot \varepsilon \tag{2.5.6}$$

$$\frac{\Delta\lambda_{B2}}{\lambda_{B20}} = a \cdot \Delta T \tag{2.5.7}$$

a et b sont, respectivement, le coefficient thermo-élasto-optique et le coefficient photo-élastique. λ_{B1} et λ_{B2} sont les longueurs d'onde des réseaux de Bragg de FBG1 et FBG2 au moment de la mesure et λ_{B10} et λ_{B20} sont les longueurs d'onde initiales des réseaux de Bragg.

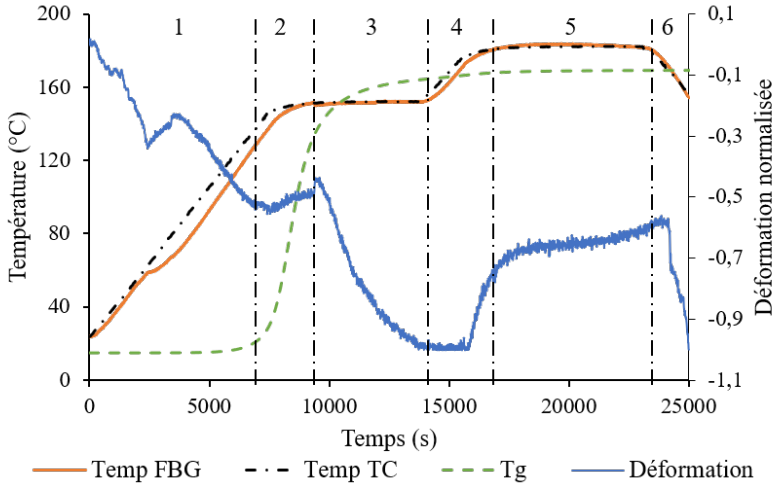


Figure 2.26 – Suivi des déformations du FM300-M par FBG

Six principaux domaines sont observables dans la figure 2.26. En début de cycle (zone 1) la résine est dans un état visqueux. La continuité du déplacement entre la fibre et l'adhésif n'est pas garantie. Qualitativement on semble cependant observer l'effet de la mise sous vide de l'adhésif. Dans la zone 2 la réticulation démarre, l'effet de la dilatation thermique atténué par l'effet du retrait chimique devient visible. Le premier palier est alors atteint (zone 3), seul le retrait chimique agit sur les déformations. En fin de palier la réticulation de l'adhésif est quasi-totale, les seuls effets observables dans les zones qui suivent sont la dilatation et la contraction thermique et ce qui semble être une légère relaxation à la fin du deuxième palier. Les différents CTE et CCS sont identifiés en appliquant la même méthode que pour le préimprégné ; en travaillant soit sur les paliers isothermes soit sur les rampes thermiques.

Si les résultats de ces essais permettent d'obtenir des mesures cohérentes et complètes pour les CTE, les données obtenues pour le retrait chimique sont incomplètes. Les

propriétés avant le point de gel en particulier ne peuvent pas être mesurées par cette méthode. Les résultats obtenus par FO ne peuvent être considérés stables que lorsque la continuité du déplacement entre la fibre et le matériau est assurée et cela n'est valable qu'après le point de gel. Ainsi, le coefficient de retrait chimique de l'adhésif a été supposé constant tout au long du cycle. Le retrait chimique avant le point de gel n'agit que sur une très courte durée et à un moment du cycle ou les modules sont extrêmement bas aussi bien pour l'adhésif que pour le préimprégné. Cette approximation ne devrait donc pas avoir d'influence notable sur la simulation des distorsions finales.

Ces mesures permettent aussi d'observer que le retrait chimique de l'adhésif reste du même ordre de grandeur que celui mesuré parallèlement aux fibres du préimprégné. Bien que la colle ne soit pas renforcée en fibres de carbone le mat polyester qu'elle contient limite le retrait chimique au cours de la cuisson.

La cohérence des essais est également validée par des mesures TMA sur des éprouvettes cuites. Les éprouvettes sont découpées dans une plaque réticulée de 20 films adhésifs et mesurées dans l'épaisseur. Chaque échantillon est soumis à une rampe de 2°C/min de 25°C à 200°C suivie d'une isotherme de 5 min et d'un refroidissement jusqu'à 25°C toujours à 2°C/min. Le cycle est répété deux fois pour chaque échantillon. Les résultats obtenus sont illustrés dans la figure 2.27. Les CTE mesurés par TMA et ceux obtenus par FBG diffèrent en moyenne de 8,9 %.

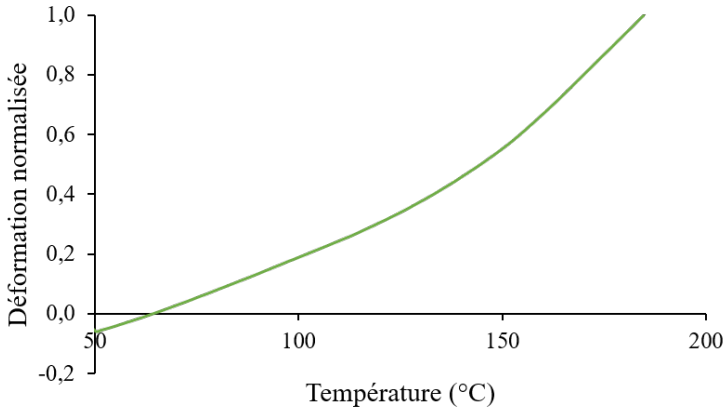


Figure 2.27 – Mesure de la dilatation thermique sur éprouvette cuite de FM300-M

2.6 Modèle constitutif mécanique

2.6.1 Modèles constitutifs des résines thermodurcissables

Il a été vu plus haut que les résines époxy ont un comportement viscoélastique. Afin d'éviter l'utilisation d'un modèle constitutif viscoélastique complexe et coûteux en calcul, le modèle CHILE a été privilégié. Deux modèles peuvent être différentiés au sein des modèles de type CHILE, le modèle CHILE développé par Johnston [46] et le modèle modifié utilisé par Khoun et Curiel [14, 52]. Ces modèles constitutifs mécaniques, utilisés

pour décrire l'évolution des modules des résines thermodurcissables non renforcées, ont été présentés dans la partie 1.3.3.2. Ils sont rappelés dans les équations 2.6.1 et 2.6.2.

$$E = \begin{cases} E_1 & \text{si } T^* < T^*_{C1}, \\ E_1 + \frac{T^* - T^*_{C1}}{T^*_{C1} - T^*_{C2}} \cdot (E_1 - E_2) & \text{si } T^*_{C1} \leq T^* < T^*_{C2}, \\ E_2 & \text{si } T^* > T^*_{C2}. \end{cases} \tag{2.6.1}$$

E_1 est le module « relaxé » a $T >> T_g$, E_2 est le module « non-relaxé » qui correspond à l'état cuit du matériau à $T << T_g$.

$$T^* = T_g - T = \frac{\lambda \cdot \alpha}{1 - (1 - \lambda) \cdot \alpha} \cdot (T_{g\infty} - T_{g0}) + T_{g0} - T \tag{2.6.2}$$

T^* est le différentiel entre la température de la résine et la température de transition vitreuse instantanée. T^*_{C1} et T^*_{C2} sont les valeurs critiques de T^* au démarrage et à la fin de la vitrification.

$$E = \begin{cases} E_1 & \text{si } T^* < T^*_{C1}, \\ E_1 + \frac{T^* - T^*_{C1}}{T^*_{C1} - T^*_{C2}} \cdot (E_1 - E_2) & \text{si } T^*_{C1} \leq T^* < T^*_{C2}, \\ E_2 + \frac{T^* - T^*_{C2}}{T^*_{C21} - T^*_{C3}} \cdot (E_2 - E_3) & \text{si } T^*_{C2} \leq T^* < T^*_{C3}, \\ A \cdot exp(-K \cdot T^*) & \text{si } T^*_{C3} \leq T^* < T^*_{C4}, \\ E_4 & \text{si } T^* > T^*_{C4}. \end{cases} \tag{2.6.3}$$

E_1, E_2, E_3, E_4, A, K, T^*_{C1}, T^*_{C2}, T^*_{C3} et T^*_{C4} sont les différentes constantes du modèle CHILE modifié.

La méthode de mesure couramment utilisée [4, 97] consiste à appliquer, à l'aide d'une DMA, une rampe de température à une éprouvette cuite sollicitée mécaniquement à différentes isofréquences. Les propriétés mécaniques du matériau diminuent durant la rampe de température, le passage de la température de transition vitreuse implique en particulier une baisse importante du module de la matrice thermodurcissable. Les données obtenues sont alors utilisées afin de déterminer les paramètres du modèles constitutif choisi et ce comportement est assimilé au développement des propriétés mécaniques durant la cuisson. Bien que le comportement durant la cuisson du matériau puisse être extrapolé à partir de ces résultats, cette méthode de caractérisation ne permet pas de suivre expérimentalement le comportement du matériau au cours de sa réticulation.

En effet, les matériaux thermodurcissables ne retrouvent jamais, après cuisson, leurs propriétés d'origine. Le préimprégné est, en début de cuisson, dans état partiellement réticulé (« stade B »). Au cours du cycle le matériau va passer par divers état physico-chimiques et ses propriétés mécaniques vont évoluer jusqu'à, en fin de cuisson, permettre d'obtenir un matériau solide vitreux fortement réticulé. Or, en effectuant la caractérisation du comportement thermomécanique du préimprégné sur une pièce complètement réticulée, le matériau ne repasse pas par la totalité de ces états. Une méthodologie de mesure des propriétés thermomécaniques au cours de la cuisson est donc mise en place afin de caractériser le comportement complet du préimprégné et de l'adhésif.

L'ensemble des mesures thermomécaniques présentées par la suite ont été effectuées à l'aide d'une Metravib Dynamical Mechanical Analysis DMA$^+$ 100.

2.6.2 Identification du modèle constitutif du préimprégné

La caractérisation du comportement thermomécanique du préimprégné s'appuie sur trois types d'essais : des mesures statiques sur éprouvettes cuites, des essais DMA sur éprouvettes cuites et des essais DMA sur éprouvettes crues.

2.6.2.1 Comportement du préimprégné cuit

Des essais mécaniques en statique sur éprouvettes cuites en autoclave ont été effectués à température ambiante par le partenaire industriel. La totalité des modules en traction-compression (E_{11}, E_{22}, E_{33}) et cisaillement (G_{12}, G_{13}, G_{23}) statiques pour le matériau cuit ont été fournis ainsi que les coefficients de poisson ($\nu_{12}, \nu_{13}, \nu_{23}$). Ces derniers sont supposés constants tout au long de la cuisson.

Des mesures classiques de traction dynamique ont également été effectuées en DMA sur des éprouvettes cuites. Comme vu précédemment, le préimprégné ne présente pas d'isotropie transverse. Il est donc nécessaire de caractériser les propriétés mécaniques selon les trois directions de pli. Afin de caractériser le comportement thermomécanique parallèlement (direction 11) et perpendiculairement (direction 22) aux fibres dans le plan de drapage, des éprouvettes sont découpées au jet d'eau au sein d'un stratifié cuit en autoclave $[0_8]$. Pour obtenir des éprouvettes permettant de caractériser les propriétés thermomécaniques dans l'épaisseur du pli (direction 33), celles-ci sont découpées au jet d'eau dans l'épaisseur d'une plaque épaisse $[0_{200}]$ cuite. Ces essais sont effectués à une isofréquence de 1Hz et la sollicitation en traction est effectuée en déplacement imposé, celui-ci est fixé à 3.10^{-6} m. L'évolution du module est mesurée au cours d'une rampe thermique de 2°C/min allant de 20°C jusqu'à 300°C. Les résultats obtenus pour chaque module en traction sont illustrés dans la figure 2.28.

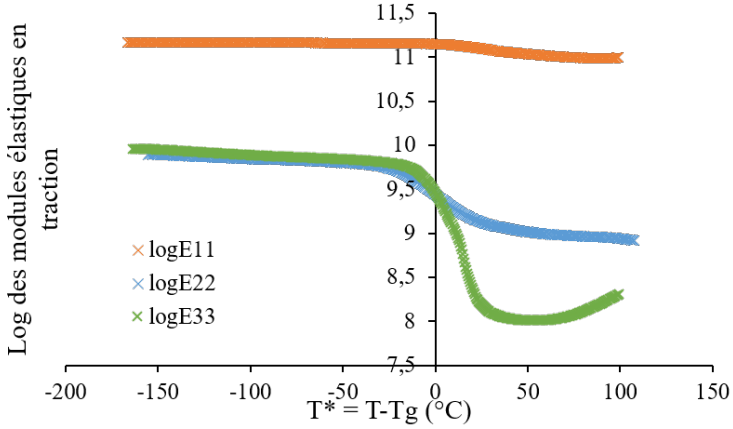


Figure 2.28 – Mesures par DMA de l'évolution des modules de traction des éprouvettes M21EV/IMA cuites en fonction de T^*

Ces deux premiers types d'essais permettent d'obtenir une caractérisation assez complète du comportement des modules en traction du matériau cuit. Comme attendu, les comportements varient en fonction de la direction de sollicitation, et ce même entre E_{22}

et E_{33}. En effet, le module en traction dans l'épaisseur chargée en thermoplastiques (E_{33}) retrouve des propriétés mécaniques bien plus basses à haute températures que le module E_{22}. Les évolutions des modules élastiques en traction en fonction de T^* présentent bien deux pentes et une zone exponentielle, le modèle CHILE le plus adapté au préimprégné M21EV/IMA semble donc être le modèle CHILE modifié présenté dans l'équation 2.6.3. L'évolution du module E_{11} reste minimisée par le maintient des propriétés des fibres de carbone en température. Dans la suite des travaux le module E_{11} sera donc considéré indépendant de la température et de l'avancement de réaction.

2.6.2.2 Comportement du préimprégné cru

La mise en place des essais sur éprouvettes crues s'est révélée plus complexe. En effet, solliciter le préimprégné cru perpendiculairement au fibre n'est pas possible, sous traction les fibres se détachent les unes des autres. Les essais ont donc été effectués sur des stratifiés crus [+45/-45/+45]. Les mords de la DMA sont protégés à l'aide de films démoulants FEP. Les essais sont effectués avec un déplacement imposé de 3.10^{-6} m et à une isofréquence de 1Hz. Trois types d'essais en traction sont effectués : des rampes thermiques de 1°C/min et 2°C/min de 20°C jusqu'à 220°C, un cycle de cuisson complet suivi d'une rampe thermique de 2°C/min de 20°C/min jusqu'à 300°C et deux cycles de cuisson consécutifs suivis d'une rampe thermique de 2°C/min de 20°C/min jusqu'à 300°C. Ces essais en cisaillement plan permettent à la fois d'obtenir le comportement en cisaillement G_{12} du matériau cuit et cru. A partir de ces mesures, il est possible, en supposant les coefficients de poisson constants, de calculer E_{22} en considérant que celui-ci est proportionnel à G_{12}. De fait, en comparant dans la figure 2.29 les mesures normalisées de E_{22} ($E_{22}(T^*)/Max(E_{22})$) sur éprouvettes cuites et les mesures normalisées de G_{12} ($G_{12}(T^*)/Max(G_{12})$) en post-cuisson les valeurs paraissent suffisamment proches pour valider cette hypothèse.

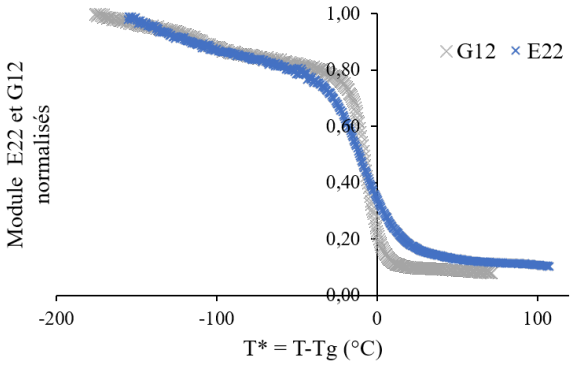
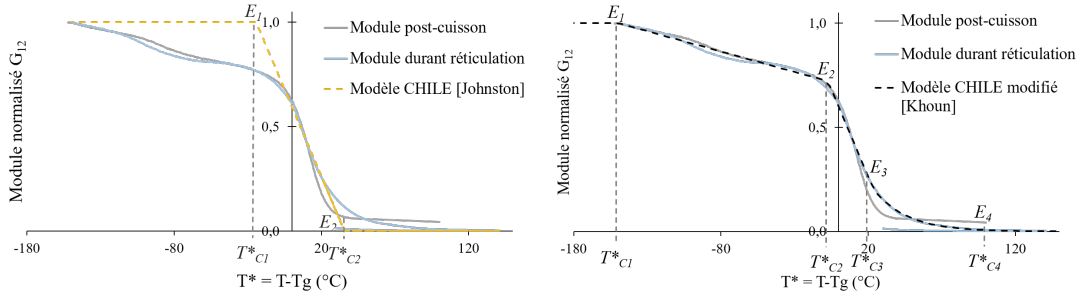


Figure 2.29 – Comparaison entre $G_{12}(T^*)$ et $E_{22}(T^*)$ normalisés mesurés par DMA en post-cuisson

Afin d'identifier les paramètres du modèle constitutif mécanique CHILE, les résultats des essais dynamiques sont tracés en fonction de T^* (voir équation 2.6.2). L'évolution du module obtenue pour les essais de traction au cours de la cuisson est illustré dans la figure 2.30. Les paramètres sont identifiés pour les deux types de modèle CHILE. Le modèle CHILE modifié apparait comme étant le plus adapté au comportement de la résine M21EV.



(a) CHILE **(b)** CHILE modifié

Figure 2.30 – Comparaison entre les mesures expérimentales et les modèles CHILE identifiés pour décrire le comportement du module de cisaillement du préimprégné M21EV/IMA

Comme attendu, le comportement thermomécanique du thermodurcissable au cours de la cuisson et en post cuisson varie. Afin de décrire au mieux le comportement du préimprégné un nouveau modèle mécanique constitutif est développé. Le comportement est alors divisé en trois domaines comme illustré dans la figure 2.31. Avant réticulation (domaine 1), le matériau sort de son « stade B » de préimprégné et ses propriétés mécaniques diminuent. Lorsque la réticulation démarre (domaine 2), les propriétés mécaniques se développent et les modules augmentent. Finalement, le matériau atteint ses propriétés cuites (domaine 3) et, même si le comportement cuit reste assez proche du cru, il ne retrouve jamais ses propriétés initiales. Un nouveau modèle constitutif mécanique est donc mis en place pour prendre en compte ces trois domaines. Les lois de comportement utilisées restent basées sur le modèle CHILE modifié décrit dans l'équation 2.6.3. Les paramètres du modèle sont identifiés à l'aide d'un algorithme d'optimisation Matlab. Tout comme pour l'identification des lois de comportement cinétique, l'algorithme s'appuie sur une méthode des moindres carrés non linéaires et un multistart de 500 permettant de garantir l'identification d'un minimum global et non local.

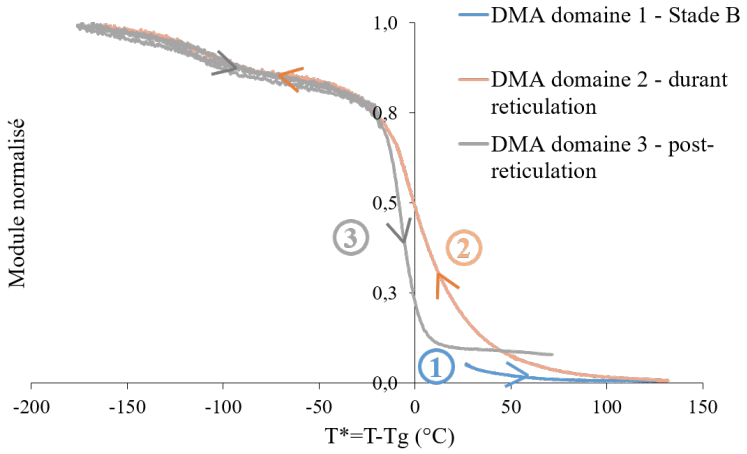


Figure 2.31 – Les trois domaines du comportement thermomécanique observables pour le préimprégné

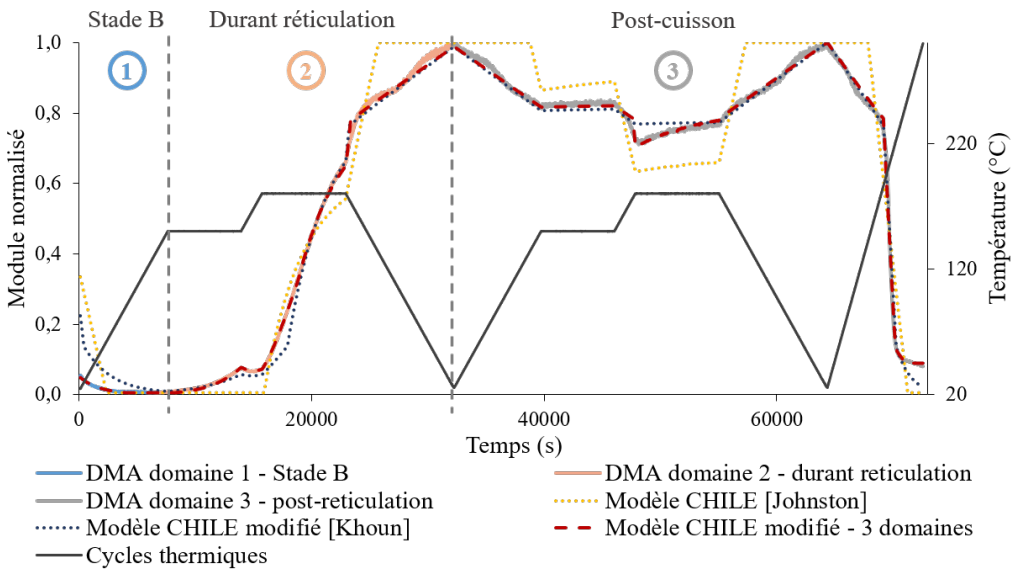


Figure 2.32 – Comparaison entre les mesures DMA du module de cisaillement du préimprégné et les différents modèle CHILE identifiés

La comparaison entre le modèle CHILE de Johnston, le modèle CHILE modifié utilisé par Khoun et le modèle développé au cours de cette thèse est disponible dans la figure 2.32. Les modèles sont identifiés sur le suivi du module de cisaillement au cours de deux cycles consécutifs de cuisson suivis par une rampe post-cuisson. Le modèle développé séparant les trois domaines de comportement apparait comme étant le plus adapté au préimprégné M21EV/IMA. Il permet de décrire l'évolution de module de cisaillement et du module en traction dans la direction 22 (transverse plan). Le comportement du module transverse dans l'épaisseur des plis, E_{33}, au cours de la cuisson reste maintenant à être identifié.

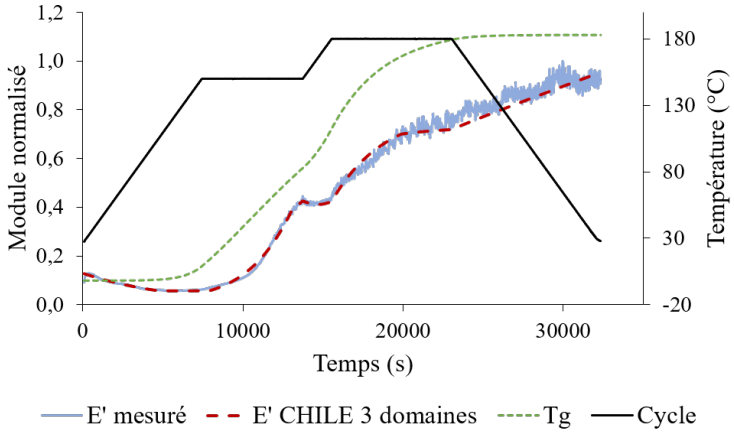


Figure 2.33 – Suivi de l'évolution du module en compression par DMA au cours d'un cycle de cuisson pour le préimprégné

Lors d'une cuisson en autoclave, dans leur épaisseur, les matériaux sont essentiellement sollicités en compression. Afin de caractériser l'évolution du module E_{33} en compression au cours de la cuisson du préimprégné, des échantillons sont découpés dans un stratifié cru

de 16 plis au drapage quasi-isotropique. L'appareillage est protégé de films démoulants et un effort statique de -10N associé à un effort dynamique de -2N sont appliqués en compression. Les essais sont effectués à une isofréquence de 1Hz. Les éprouvettes sont soumises à deux cycles de cuisson consécutifs. Le modèle constitutif mécanique est identifié à partir des résultats obtenus afin de décrire le comportement thermomécanique dans l'épaisseur du matériau. Les résultats des essais au cours d'un cycle de cuisson pour le préimprégné et le modèle constitutif identifié à partir de ces mesures sont illustrés dans la figure 2.33. Une fois de plus le modèle CHILE modifié à trois domaines est utilisé.

On remarque que le comportement thermomécanique des modules en cisaillement G_{23} et G_{13} n'a pas été caractérisé. Celui-ci a été supposé proportionnel au module G_{12} et les modules en cisaillement sont calculés en utilisant les mesures statiques de G_{23} et G_{13} et les mesures DMA sur les éprouvettes crues [+45/-45/+45]. Bien que cette approximation soit un peu grossière, il est possible de supposer que cela n'aura pas d'influence majeure sur la modélisation du développement des contraintes. En effet, comme nous le verrons dans la partie 3.2.2 au cours d'une étude de sensibilité du modèle, les comportements de G_{23} et G_{13} à l'état cru n'influent que très peu sur les déformations de cuisson.

Le tableau 2.4 résume les essais effectués et l'identification des propriétés mécaniques associées.

Propriété identifiée	**Comportement cuit**	**Comportement cru**	**Modèle utilisé**
E_{11}	Essais statiques DMA [0_8] cuit	-	Constant
E_{22}	Essais statiques DMA [90_8] cuit	Essais statiques DMA [+45/-45/+45] cru	CHILE 3 domaines
E_{33}	Essais statiques DMA compression cuit	Essais statiques DMA compression cru	CHILE 3 domaines
G_{12}	Essais statiques DMA [+45/-45/+45] cuit	Essais statiques DMA [+45/-45/+45] cru	CHILE 3 domaines
G_{13}	Essais statiques DMA [+45/-45/+45] cuit	Essais statiques DMA [+45/-45/+45] cru	CHILE 3 domaines
G_{23}	Essais statiques DMA [+45/-45/+45] cuit	Essais statiques DMA [+45/-45/+45] cru	CHILE 3 domaines
ν_{12}	Essais statiques	-	Constant
ν_{13}	Essais statiques	-	Constant
ν_{23}	Essais statiques	-	Constant

Table 2.4 – Bilan de l'identification des propriétés thermomécaniques du M21EV/IMA

2.6.3 Identification du modèle constitutif de l'adhésif structural

L'adhésif structural FM300-M est supposé isotrope. Une fois de plus les propriétés vont devoir être caractérisées à l'état cru et cuit. Des mesures DMA sont donc effectuées en traction sur des éprouvettes cuites et en traction et en compression sur des éprouvettes crues.

Afin de caractériser le comportement cuit de l'adhésif des éprouvettes sont découpées au sein d'un stratifié de colle de 4 plis cuit en autoclave. Une isofréquence de 1Hz est appliquée avec un déplacement imposé de 3.10^{-6} m. La mesure est effectuée au cours d'une rampe thermique de 2°C/min allant de 20°C jusqu'à 220°C.

Pour effectuer les mesures en traction sur éprouvettes crues, les échantillons sont découpés dans un stratifié de 4 plis de film adhésif. Les mesures sont effectuées au cours d'un cycle de cuisson complet. Les mords de la DMA sont protégés à l'aide de films démoulants FEP. Une isofréquence de 1Hz est appliquée avec un déplacement imposé de 3.10^{-6} m.

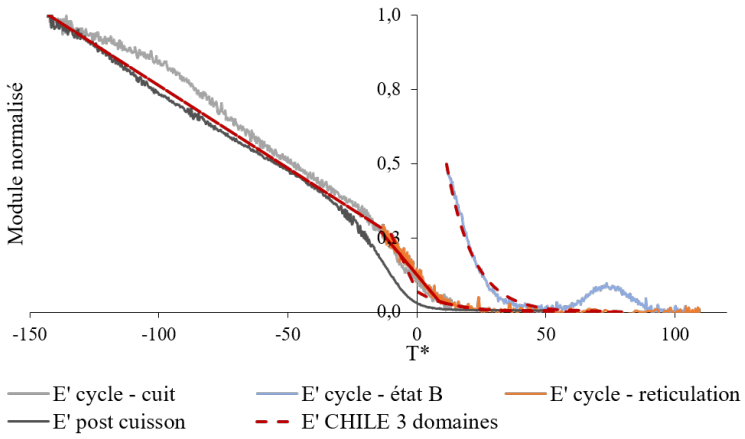


Figure 2.34 – Evolution du module élastique en traction de l'adhésif FM300-M en fonction de T^* mesuré par DMA

Les évolutions du module de traction mesuré en fonction de T^* et du temps de cuisson sont est illustrées dans les figures 2.34 et 2.35. La comparaison entre le suivi du module élastique en traction de la FM300-M par DMA au cours de la cuisson et le modèle CHILE identifié est disponible dans la figure 2.35. Le modèle CHILE développé pour le préimprégné séparant les trois différents domaines de cuisson est conservé pour la modélisation de l'adhésif. La méthode d'identification des paramètres du modèle, à l'aide d'un algorithme Matlab, utilisée pour le preimprégné est également appliquée à l'adhésif. Notons cependant que le comportement de l'adhésif varie moins que le préimprégné entre son état cru et cuit. L'écart entre les mesures post-cuisson et le comportement réticulé durant cuisson observé pour la colle peut éventuellement n'être dû qu'à la différence de comportement entre le matériau cuit en autoclave et celui cuit au cours de la DMA ou à la répétabilité de l'essai. De plus, nous n'avons pas accès à la totalité du comportement durant réticulation puisque, au cours du cycle appliqué, très peu de temps après sa vitrification, le matériau repasse à l'état caoutchoutique. Il serait donc intéressant de compléter ces mesures par des essais DMA au cours de cycles plus courts,

mieux adaptés à l'adhésif, ainsi que des mesures post-cuisson effectuées directement sur les échantillons cuits en DMA, comme fait pour le préimprégné.

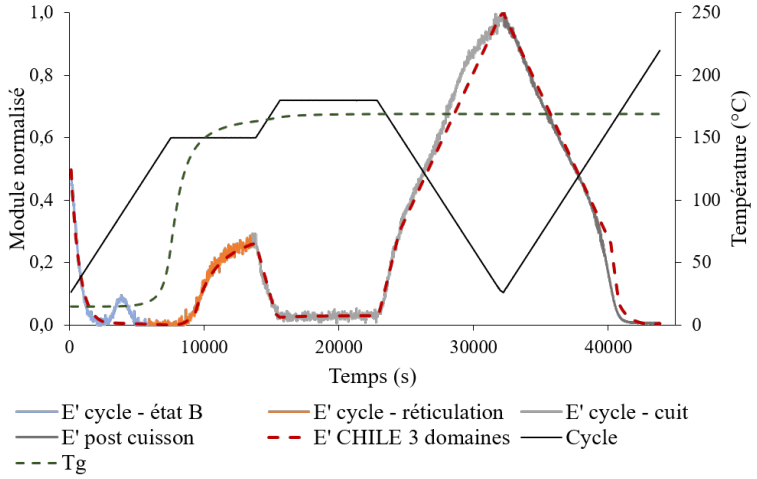


Figure 2.35 – Mesure DMA en traction au cours de la cuisson de la FM300-M et comparaison avec le modèle développé

Lors d'une cuisson en autoclave, dans leur épaisseur, les matériaux sont essentiellement sollicités en compression. Le modèle constitutif mécanique est donc identifié à l'aide des essais DMA en compression pour décrire le comportement thermomécanique de l'adhésif dans l'épaisseur. Pour les essais en compression la sollicitation statique est fixée à -5N et la dynamique à -1N. Les échantillons sont découpés dans un stratifié de 16 plis de films adhésifs. Une fois de plus ces essais n'ont été effectués qu'au cours d'un unique cycle de cuisson. Les résultats des essais au cours d'un cycle de cuisson pour l'adhésif et le modèle constitutif obtenu suite à l'identification des paramètres sur ces mesures sont illustrés dans la figure 2.36. Une fois de plus le modèle CHILE modifié à trois domaines est utilisé.

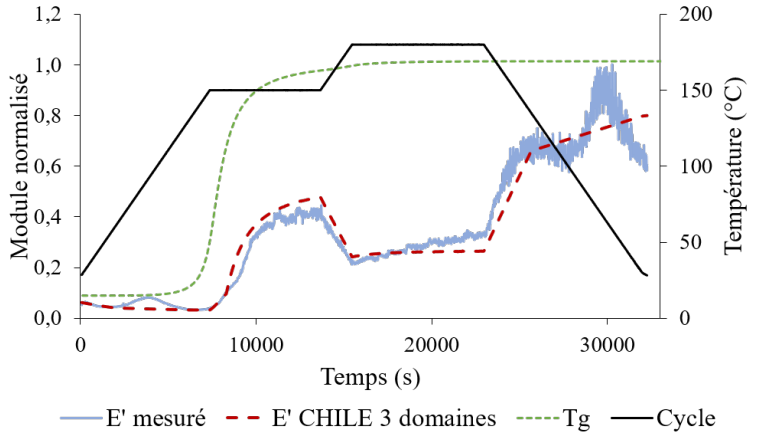


Figure 2.36 – Suivi de l'évolution du module en compression par DMA au cours d'un cycle de cuisson pour l'adhésif

Conclusion

Les comportements thermocinétiques, thermochimiques et thermomécaniques sont maintenant caractérisés pour les deux matériaux considérés. Un certain nombre de choix ont dû être effectués afin de ne pas alourdir ce travail de caractérisation et le modèle à implémenter. En particulier, afin d'éviter un modèle viscoélastique lourd, les comportements thermomécaniques des matériaux sont décrits à l'aide d'un modèle CHILE modifié. Différentes méthodologies d'essais ont été développées afin de suivre l'évolution des comportements matériaux au cours de la cuisson. Ce travail de caractérisation n'est évidement pas exhaustif et certaines approximations ont dû être faites. Cependant, les principaux paramètres influant sur les déformations que sont le comportement thermocinétique, l'état physico-chimique des résines, les propriétés thermochimiques et le comportement thermomécanique ont été identifiés tout au long de la cuisson des deux matériaux. En s'appuyant sur ce travail de caractérisation, le modèle de cuisson va pouvoir être implémenté.

Chapitre

3

Mise en place et validation de la modélisation des distorsions de cuisson

Introduction . . . 76
3.1 Mise en place du modèle des distorsions de cuisson . . . 76
3.1.1 Architecture globale du code FORTRAN . . . 76
3.1.2 Module thermocinétique . . . 78
3.1.3 Module contraintes et déformations . . . 79
3.2 Étude de la sensibilité du modèle . . . 80
3.2.1 Sensibilité du module thermocinétique . . . 80
3.2.1.1 Cas d'étude . . . 80
3.2.1.2 Maillage et incrément de temps . . . 81
3.2.1.3 Propriétés thermiques . . . 82
3.2.1.4 Degré d'avancement maximal et taux volumique de fibres . . . 83
3.2.1.5 Conditions de stockage du préimprégné . . . 84
3.2.2 Sensibilité du module de simulation des contraintes et déformations 85
3.2.2.1 Cas d'étude . . . 85
3.2.2.2 Mise en place du plan de Taguchi . . . 85
3.2.2.3 Résultats et facteurs sensibles ou influents . . . 86
3.3 Validation du modèle thermocinétique de cuisson . . . 87
3.3.1 Validation du modèle sur une plaque épaisse . . . 87
3.3.2 Validation du modèle par mesures en arrêt de cycle . . . 89
3.4 Fabrication et mesures des distorsions post-cuisson des cas génériques . . . 90
3.4.1 Fabrication des cas génériques . . . 90
3.4.1.1 Gamme de fabrication . . . 90
3.4.1.2 Cas génériques fabriqués . . . 91
3.4.2 Mesures des déformations . . . 94
3.4.2.1 Palpeur tridimensionnel . . . 94

3.4.2.2 Scanner 3D . . . 95
3.4.2.3 Mesure de forme par stéréo-corrélation . . . 95
3.4.2.4 Comparaison des trois méthodes de mesure . . . 96
3.5 Étude des mesures de distorsions et validation du modèle . . . 97
3.5.1 Mesures des distorsions et validation de la modélisation des pièces de type plaques . . . 97
3.5.1.1 Bilan et analyse des mesures de distorsions des plaques . . . 97
3.5.1.2 Simulations des distorsions de cuisson des plaques et validation du modèle . . . 99
3.5.2 Mesures des distorsions et validation de la modélisation des pièces de type cornières . . . 101
3.5.2.1 Bilan et analyse des mesures de distorsions des cornières . . . 101
3.5.2.2 Simulations des distorsions de cuisson des cornières et validation du modèle . . . 102
3.5.3 Mesures des distorsions et problématique des assemblages collés . . . 103
Conclusion . . . 105

Introduction

Dans le chapitre précédent, les comportements matériaux thermocinétiques, thermochimiques et thermomécaniques du préimprégné M21EV/IMA et de l'adhésif FM300-M ont été identifiés. Ce travail de caractérisation a donc pu être utilisé afin d'implémenter le modèle de distorsions de cuisson en autoclave des assemblages composites collés.

Ce chapitre décrit, dans un premier temps, la mise en place du modèle de cuisson éléments finis. Une étude de sensibilité de ce modèle a également été effectuée.

Différentes étapes de validation expérimentale ont ensuite été mises en place. Tout d'abord, une validation du module thermocinétique du modèle a été effectuée à l'aide de suivis des températures, des avancements de réaction de réticulation et des températures de transition vitreuse au cours de la cuisson de l'adhésif et du préimprégné.

Finalement, afin de valider le modèle complet, des pièces composites et des assemblages collés ont été fabriqués en autoclave. Différentes méthodes de mesure des distorsions de cuisson ont été comparées afin de déterminer la méthode la plus pertinente pour cette étude. La mesure des distorsions post-cuisson de ces cas génériques a permis d'analyser l'influence de certains paramètres de cuisson et de vérifier que le modèle prédit correctement les distorsions finales des pièces.

3.1 Mise en place du modèle des distorsions de cuisson

3.1.1 Architecture globale du code FORTRAN

La structure générale de l'outil de simulation développé est présentée dans la figure 3.1. Le modèle éléments finis est implémenté sous Abaqus à l'aide de diverses subroutines utilisateur FORTRAN. La structure du modèle peut être divisée en deux modules : un module thermocinétique et un module contraintes et déformations.

Le module thermocinétique, fortement inspiré du travail de C. Paris [75], s'appuie sur trois subroutines principales, la subroutine HETVAL qui permet la résolution thermocinétique, la subroutine FSOUROUR qui définit l'équation différentielle de Kamal Sourour modifiée et la subroutine DVERK qui permet sa résolution à l'aide d'une méthode de Runge Kutta.

Les subroutines USDFLD et SDVINI ont également un rôle important sur la résolution thermocinétique. La subroutine USDFLD permet de définir le degré d'avancement de réaction et la température calculée comme des "fields", ces valeurs sont utilisées pour mettre à jour la conductivité et la capacité calorifique définies dans les propriétés matériaux. La subroutine SDVINI permet, elle, de définir les valeurs initiales des variables d'état. Cette subroutine a un intérêt particulier si la pièce étudiée a déjà subi une précuisson, le degré d'avancement de réaction et la température de transition vitreuse en début de cycle peuvent ainsi être fixés aux valeurs souhaitées.

En utilisant la thermique, la cinétique et l'état physico-chimique des résines calculées par le module thermocinétique, le module contraintes et déformations est capable de calculer les déformations et contraintes générées durant la cuisson. La subroutine UEXPAN permet d'obtenir les déformées thermiques et chimiques tandis que la subroutine UMAT permet de mettre à jour les propriétés mécaniques des résines et le tenseur des rigidités associé. Le modèle calcule ainsi des contraintes et déformations. Il est également capable de séparer les déformations selon leurs origines : thermiques, chimiques et mécaniques.

Le code FORTRAN développé peut être utilisé pour des calculs éléments finis sur des géométries 2D et 3D.

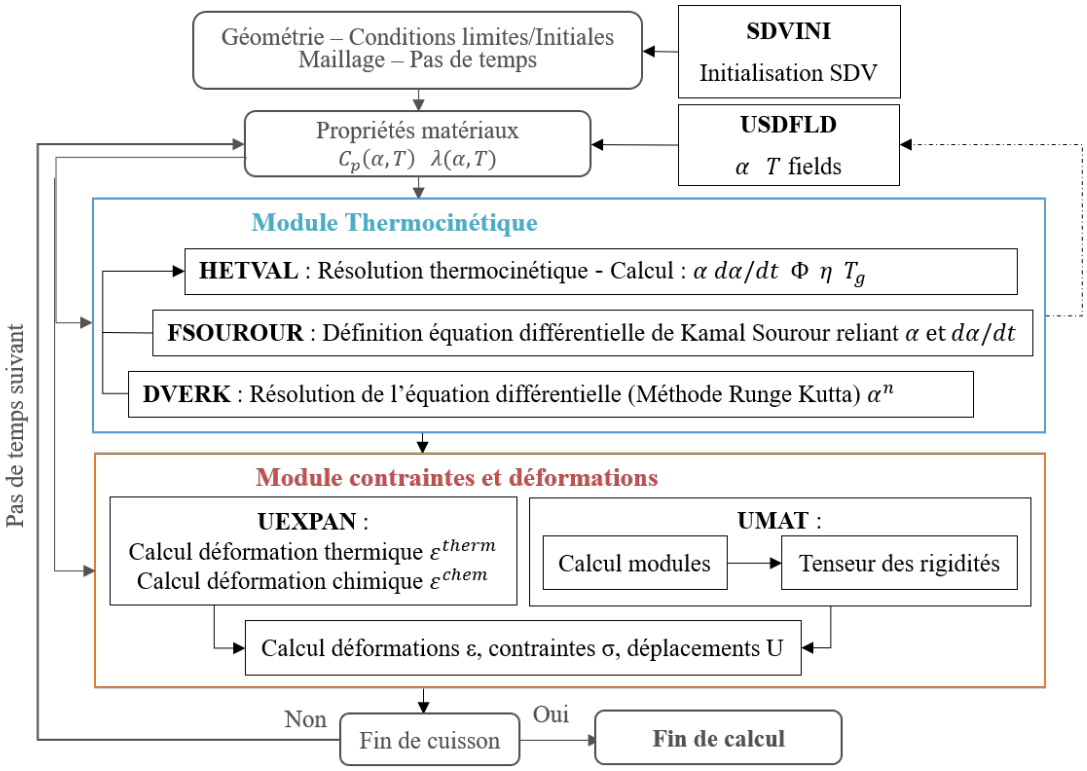


Figure 3.1 – Structure générale du modèle de cuisson

3.1.2 Module thermocinétique

La première étape, afin d'assurer une bonne résolution thermocinétique, est de définir les conditions initiales des variables d'état du modèle. L'initialisation de ces variables d'état est effectuée par la subroutine SDVINI. Si la résine est crue en début de cuisson, le degré d'avancement initial est fixé à 0 et la température transition vitreuse initiale correspond à la T_{g0}. Cependant, si la pièce considérée n'est pas à l'état cru, les valeurs d'initialisation du degré d'avancement et de la transition vitreuse peuvent être modifiées pour retranscrire cet état. Une solution alternative à cette subroutine est de définir directement les conditions initiales pour chaque set géométrique du modèle dans le fichier inp à l'aide de *Initial Conditions, type=Solution.

Le couplage thermocinétique du modèle s'appuie sur l'équation de la chaleur déjà évoquée dans la partie 1.3.1 et rappelée dans l'équation 3.1.1.

$$\rho_c Cp_c \frac{\delta T}{\delta t} = div(\lambda(T) \cdot gradT) + \rho_m \Delta H_{tot} V_m \frac{d\alpha}{dt} \tag{3.1.1}$$

L'ensemble des lois matériaux nécessaires pour résoudre l'équation de la chaleur ont été identifiées au cours du Chapitre 2. Le dernier terme de l'équation $\rho_m \Delta H_{tot} V_m \frac{d\alpha}{dt}$ retranscrit l'exothermie de réaction générée par la réticulation de la résine. Cette exothermie est calculée par la subroutine HETVAL. La cinétique de réaction est définie par le modèle de Kamal Sourour modifié comme vu plus haut. La valeur du degré d'avancement maximal doit être fixée pour que le calcul puisse se faire. Si la valeur précise du degré d'avancement de réaction final du cycle de cuisson appliqué au matériau est connue, il suffit de l'utiliser. Si cette valeur est inconnue, elle peut être calculée en appliquant la loi polynomiale développée dans la partie 2.2.2 à la température maximale théorique du cycle auquel est soumis le matériau.

Les conductivités thermiques et les capacités calorifiques du préimprégné et de la colle sont définies dans les propriétés matériaux internes à Abaqus. Elles sont calculées en appliquant une interpolation linéaire dépendante du degré d'avancement de réaction et de la température. Les valeurs de ces paramètres, définis comme "fields", sont réactualisées à chaque incrément de temps par la subroutine USDFLD.

Finalement, la température de transition vitreuse est calculée en fonction du degré d'avancement de réaction en appliquant, comme vu dans le Chapitre 2, la loi de Di Benedetto.

Variable interne FORTRAN	**Variable d'état**	**Variable interne Abaqus - Dénomination odb**
STATEV(1)	α	SDV1 - Alpha, Taux de cuisson
STATEV(2)	$d\alpha/dt$	SDV2 - DAlpha, Vitesse Avancement
STATEV(3)	Φ	SDV3 - DH, Flux chaleur exothermique
STATEV(4)	T_g	SDV4 - Tg, Température transition vitreuse

Table 3.1 – Liste des variables d'état calculées par le module thermocinétique

Ainsi la subroutine HETVAL calcule le degré et la vitesse d'avancement de réaction, le flux de chaleur exothermique généré par cette réaction et la température de transition vitreuse, et ce en chaque point d'intégration. L'ensemble des variables d'état calculées par le module thermocinétique est détaillé dans le tableau 3.1.

3.1.3 Module contraintes et déformations

L'état physico-chimique et thermocinétique des matériaux va permettre d'alimenter le module calculant les déformations et les contraintes de cuisson. Les déformations de cuisson sont la somme des déformations thermiques, chimiques et mécaniques comme le décrit l'équation 3.1.2.

$$\Delta\varepsilon_{ij}^{tot} = \Delta\varepsilon_{ij}^{therm} + \Delta\varepsilon_{ij}^{chim} + \Delta\varepsilon_{ij}^{meca} \tag{3.1.2}$$

Les déformations thermochimiques sont calculées par la subroutine UEXPAN. Cette subroutine a initialement été conçue pour définir l'incrément de déformation thermique. La subroutine UEXPAN développée pour ce modèle utilise les coefficients de dilatation thermique (CTE) et de retrait chimique (CCS) identifiés dans la partie 2.5. Ces coefficients agissent respectivement sur l'incrément de température (ΔT) et l'incrément de degré d'avancement de réaction ($\Delta\alpha$), permettant ainsi le calcul de l'incrément de déformation thermique ($\Delta\varepsilon^{therm}$) et de déformation chimique ($\Delta\varepsilon^{chim}$) comme définit dans les équations 3.1.3 et 3.1.4.

$$\Delta\varepsilon_{i}^{therm} = CTE_i \cdot \Delta T \text{ pour } i = 1, 2, 3 \tag{3.1.3}$$

$$\Delta\varepsilon_{i}^{chim} = CCS_i \cdot \Delta\alpha \text{ pour } i = 1, 2, 3 \tag{3.1.4}$$

L'incrément de déformation calculé par la subroutine UEXPAN correspond alors à l'incrément de déformation thermochimique, noté $\Delta\varepsilon^{tc}$, et décrit par l'équation 3.1.5.

$$\Delta\varepsilon_{ij}^{tc} = \Delta\varepsilon_{ij}^{therm} + \Delta\varepsilon_{ij}^{chim} \tag{3.1.5}$$

Les incréments calculés sont utilisés pour calculer et mettre à jour à chaque incrément de temps la déformation thermique et chimique en tant que variables d'état comme décrit dans les équations 3.1.6 et 3.1.7.

$$\varepsilon_{ij}^{therm^{n+1}} = \varepsilon_{ij}^{therm^{n}} + \Delta\varepsilon_{ij}^{therm^{n}} \tag{3.1.6}$$

$$\varepsilon_{ij}^{chim^{n+1}} = \varepsilon_{ij}^{chim^{n}} + \Delta\varepsilon_{ij}^{chim^{n}} \tag{3.1.7}$$

Les déformations mécaniques ($\Delta\varepsilon^{meca}$) et les contraintes développées sont, elles, calculées par la subroutine utilisateurs UMAT. Les différents modules des matériaux sont calculés en appliquant le modèle CHILE modifié séparant le comportement mécanique des matériaux selon leur état (cru, en cours de réticulation ou post-cuisson) et détaillé dans la partie 2.6. Les constantes du modèle CHILE sont fournies lors de la définition des propriétés matériaux en tant que "user material properties". A chaque incrément de temps les modules ainsi que les composantes du tenseur des rigidités (C_{ijkl}) associées sont calculés. Le tenseur des rigidités calculé est adapté au type de géométrie utilisé en se basant sur le nombre de composantes du tenseur de contraintes. Les déformations

et les contraintes générées sont calculées en appliquant la loi de Hooke généralisée, l'ensemble est décrit dans les équations 3.1.8, 3.1.9 et 3.1.10.

$$\Delta\sigma_{ij} = C_{ijkl} \cdot \Delta\varepsilon_{kl}^{meca} \tag{3.1.8}$$

$$\sigma_{ij}^{n+1} = \sigma_{ij}^{n} + \Delta\sigma_{ij}^{n} \tag{3.1.9}$$

$$\varepsilon_{ij}^{n+1} = \varepsilon_{ij}^{n} + \Delta\varepsilon_{ij}^{n} \tag{3.1.10}$$

Le modèle développé ignore pour le moment l'influence de l'outillage. L'application industrielle du projet utilise des moules en Invar recouverts par deux couches de démoulant liquide et un film démoulant FEP de 25 μm. Dans cette configuration, l'influence du moule ne devrait pas être un facteur fortement impactant pour les déformations de cuisson. Le modèle développé devrait donc être capable de fournir des résultats satisfaisants même en ignorant les phénomènes d'interaction avec l'outillage. Cependant, il sera vu plus loin qu'un certain nombre d'essais ont été effectués dans l'optique d'ajouter un module d'interaction avec l'outillage au modèle. Cette démarche s'inscrit dans une optique de transition à des moules en aluminium, bien plus économiques, mais dont les hauts coefficients de dilatation exacerbent les distorsions de cuisson.

3.2 Étude de la sensibilité du modèle

Une étude de sensibilité a été effectuée afin de comprendre quelles sont les données d'entrée clefs du modèle. L'étude se divise en deux parties : dans un premier temps une étude de sensibilité du module thermocinétique seul est effectuée, puis une étude sur le modèle complet.

3.2.1 Sensibilité du module thermocinétique

3.2.1.1 Cas d'étude

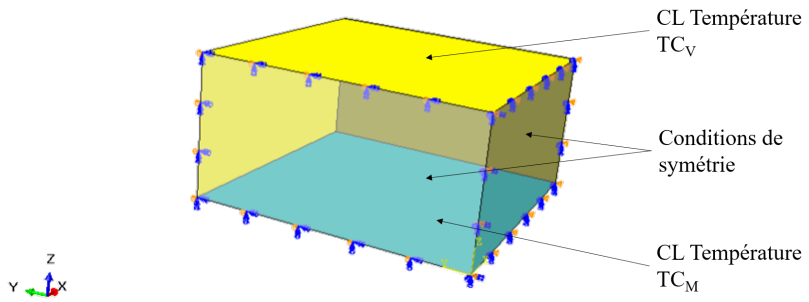


Figure 3.2 – Conditions limites utilisées pour la simulation de cuisson de la plaque épaisse

Le modèle sur lequel est effectuée l'étude de sensibilité thermocinétique est une plaque unidirectionnelle épaisse de 200 plis [0_{200}] de 150 x 150 mm. Cette plaque a été fabriquée

afin de valider le modèle thermocinétique, cet essai sera détaillé plus loin dans la partie 3.3.1. Les conditions limites utilisées pour la modélisation sont les températures réelles de cuisson mesurées par deux thermocouples ; un premier thermocouple, noté TC_M, est en contact avec le moule et un deuxième, noté TC_V, est placé sur la vessie au niveau de la surface supérieure de la plaque. La symétrie de la plaque est utilisée pour ne modéliser qu'un quart de la pièce comme illustré dans la figure 3.2. Le calcul est effectué avec un processeur Intel(R) Core (TM) i7-3820 doté de 4 cœurs.

3.2.1.2 Maillage et incrément de temps

Afin d'éviter une simulation trop lourde lors de l'étude des pièces épaisses, une rapide étude du maillage et de l'influence de l'incrément de temps est effectuée. La plaque étudiée étant unidirectionnelle, utiliser un élément par pli n'est sans doute pas nécessaire. Le tableau 3.2 récapitule les résultats obtenus pour divers maillages et divers incréments de temps.

Nombre d'éléments	Type d'éléments	Incrément de temps	Écart Overshoot	Temps CPU
10	DC3D8	10	+0,224%	8min
10	DC3D8	100	-5,153%	2min
20	DC3D8	10	Ref	13min
20	DC3D8	100	-5,445%	3min
50	DC3D8	10	-0,067%	28min
50	DC3D8	100	-5,310%	7min
100	DC3D8	10	-0,067%	52min

Table 3.2 – Influence du maillage et de l'incrément de temps sur la simulation thermocinétique de la cuisson d'une plaque de 200 plis

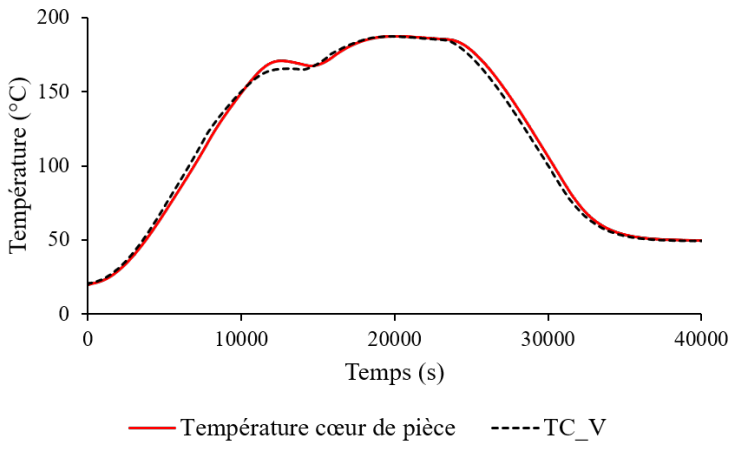


Figure 3.3 – Évolution de la température au cours du cycle de cuisson

La comparaison est effectuée en utilisant l'overshoot maximum au cours du cycle qui a lieu au cœur de la plaque. Cet overshoot dû à l'exothermie de la réaction est observé en début du premier palier de cuisson, comme illustré dans la figure 3.3. Il correspond à la différence entre la température appliquée en surface de plaque côté sac et la température

au cœur de la pièce. La valeur de référence est celle obtenue par la simulation effectuée avec un maillage de 20 éléments briques linéaires de type DC3D8 dans l'épaisseur et un incrément de temps de 10 secondes. L'étude de sensibilité est effectuée en comparant le pourcentage de variation de chaque modèle par rapport à cette valeur de référence.

L'utilisation de 20 éléments DC3D8 dans l'épaisseur avec un incrément de temps de 10 secondes permet d'obtenir des valeurs stables et représentatives tout en conservant un temps de calcul raisonnable. Pour la suite de l'étude les simulations ont donc effectuées avec ces paramètres.

3.2.1.3 Propriétés thermiques

Lors de la caractérisation des propriétés thermiques, abordée dans la partie 2.3, certaines approximations ont été effectuées afin d'identifier les lois de comportement des conductivités et des capacités calorifiques des matériaux. Dans le cas de la colle ces approximations ne présentent pas de risque pour la modélisation, le pli de colle faisant 0,13 mm et ne donnant pas lieu à des empilements importants, sa conductivité et sa capacité calorifiques ne sont pas fortement impactantes. Dans le cas de stratifiés épais de M21EV/IMA il convient cependant de vérifier l'influence des propriétés thermiques sur la qualité des résultats des simulations.

Conductivité thermique

L'évolution au cours de la cuisson de la conductivité thermique dans l'épaisseur du préimprégné est décrite par une loi des mélanges, comme rappelé dans l'équation 3.2.1. Le comportement à l'état cru et à l'état cuit est décrit par deux lois de comportement linéaires dépendantes de la température, comme décrit dans les équations 3.2.2 et 3.2.3.

$$\lambda(\alpha, T) = \lambda_{cuit}(T) \cdot \alpha + \lambda_{cru}(T) \cdot (1 - \alpha) \tag{3.2.1}$$

$$\lambda_{cru}(T) = A_{\lambda cru} \cdot T + B_{\lambda cru} \tag{3.2.2}$$

$$\lambda_{cuit}(T) = A_{\lambda cuit} \cdot T + B_{\lambda cuit} \tag{3.2.3}$$

Afin d'observer l'influence de ces paramètres, les coefficients linéaires du matériau cuit et cru sont modifiés de plus ou moins 10% de leurs valeurs. La seule variation notable sur les températures simulées est observée au niveau de l'overshoot du premier palier. Les écarts obtenus par rapport au modèle de référence sont récapitulés dans le tableau 3.3.

Facteur	**Variation**	**Écart overshoot**
$A_{\lambda cru}$	+10%	-0,275%
$A_{\lambda cru}$	-10%	+0,308%
$A_{\lambda cuit}$	+10%	-0,011%
$A_{\lambda cuit}$	-10%	+0,011%

Table 3.3 – Étude de la sensibilité du modèle : conductivité thermique

Pour une plaque de 200 plis ces écarts restent raisonnables, les approximations faites au cours du chapitre précédent ne devraient donc pas fausser les résultats des simulations de cuisson.

Capacité calorifique

La même étude est effectuée pour la capacité calorifique. Le comportement de la capacité calorifique du matériau est également décrit par une loi des mélanges et deux lois linéaires décrivant les évolutions des propriétés du matériau cru et cuit en fonction de la température. Ces lois sont rappelées dans les équations 3.2.4, 3.2.5 et 3.2.6.

$$Cp(\alpha, T) = Cp_{cuit}(T) \cdot \alpha + Cp_{cru}(T) \cdot (1 - \alpha) \tag{3.2.4}$$

$$Cp_{cru}(T) = A_{Cpcru} \cdot T + B_{Cpcru} \tag{3.2.5}$$

$$Cp_{cuit}(T) = A_{Cpcuit} \cdot T + B_{Cpcuit} \tag{3.2.6}$$

Tout comme pour la conductivité, le seul écart notable observé au cours du cycle de cuisson a lieu lors de l'overshoot du premier palier isotherme. Les écarts calculés sont regroupés dans le tableau 3.4. Ceux-ci sont très faibles, les légères approximations faites au cours du travail de caractérisation ne risquent donc pas de fausser les résultats des simulations, que ce soit pour la conductivité thermique ou pour la capacité calorifique du préimprégné.

Facteur	**Variation**	**Écart overshoot**
A_{Cpcru}	+10%	-1,17E-3%
A_{Cpcru}	-10%	+1,2E-3%
B_{Cpcru}	+10%	+5,28E-3%
B_{Cpcru}	-10%	-6,46E-3%
A_{Cpcuit}	+10%	-9,39E-3%
A_{Cpcuit}	-10%	+9,98E-3%
B_{Cpcuit}	+10%	-1,35E-2%
B_{Cpcuit}	-10%	+1,41E-2%

Table 3.4 – Étude de la sensibilité du modèle : capacité calorifique

3.2.1.4 Degré d'avancement maximal et taux volumique de fibres

Degré d'avancement maximal

Le degré d'avancement de réaction maximal a évidement un impact direct sur le degré d'avancement de réaction final obtenu en fin de cuisson. Il a également, via la loi de Kamal Sourour modifiée et l'équation de la chaleur, un impact sur l'exothermie de réaction et donc sur l'overshoot maximal. Les résultats obtenus en faisant varier ce degré d'avancement de ±5% de sa valeur sont décrits dans le tableau 3.5.

Facteur	Variation	Écart overshoot
α_{max}	+5%	+0,20%
α_{max}	-5%	-0,20%

Table 3.5 – Étude de la sensibilité du modèle : avancement maximal

Taux volumique de résine

De la même manière, la valeur du taux volumique de résine dans la plaque va influencer l'exothermie de réaction. En faisant varier celle-ci de ±10% de sa valeur, la différence entre la température de l'overshoot et celle appliquée à la surface supérieure de la plaque dévie comme décrit dans le tableau 3.6.

Facteur	Variation	Écart overshoot
V_m	+10%	+0,6%
V_m	-10%	-0,5%

Table 3.6 – Étude de la sensibilité du modèle : taux volumique de résine

3.2.1.5 Conditions de stockage du préimprégné

Lors de la fabrication de pièces composites, il arrive que le préimprégné passe un temps plus important que prévu hors de la salle réfrigérée où il doit être stocké. L'influence de ce temps d'exposition à la température ambiante avant cuisson va être étudiée. La température à laquelle est soumis le matériau est fixée à 20°C, cette température correspond à celle de la salle blanche où le primprégné est stocké au cours du drapage des pièces. Les résultats obtenus pour des temps de sortie du préimprégné allant de la journée à la semaine sont récapitulés dans le tableau 3.7. Il apparait que les sorties de matériau dépassant les quelques jours ont déjà une influence notable sur le degré d'avancement de réaction.

Temps de sortie	Écart overshoot	Degré d'avancement initial	Tg initiale
24h	-0,235%	6,14E-3	+0,58°C
48h	-0,469%	1,18E-2	+1,67°C
72h	-0,698%	3,22E-2	+3,10°C
96h	-0,915%	4,93E-2	+4,79°C
120h	-1,209%	6,82E-2	+6,70°C
168h	-1,496%	0,12	+11,07°C

Table 3.7 – Étude de l'influence du temps de sortie du préimprégné

3.2.2 Sensibilité du module de simulation des contraintes et déformations

3.2.2.1 Cas d'étude

L'étude de sensibilité va maintenant porter sur le module de simulation des contraintes et des déformations. Pour cela, le modèle complet est utilisé pour simuler la cuisson d'une plaque asymétrique $[0_{10}/90_{10}]$. Afin de rester sur des simulations rapides ni le moule ni le cycle en pression ne sont modélisés, la plaque est uniquement sujette au cycle de cuisson en température. Le cycle thermique est appliqué à toutes les surfaces extérieures de la plaque. Les conditions de symétries sont utilisées afin de ne modéliser qu'un quart de la pièce. Le maillage est construit avec des éléments briques quadratiques C3D20T à 20 nœuds et couplés thermiquement et ne comprend que 4 éléments dans l'épaisseur du stratifié comme illustré dans la figure 3.4.

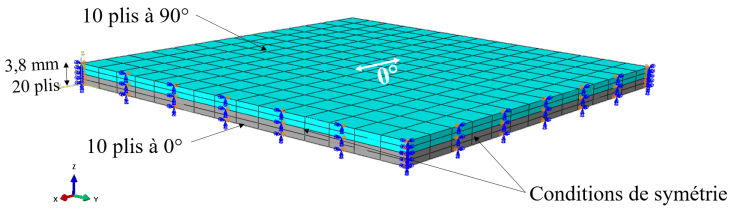


Figure 3.4 – Conditions limites et maillage utilisés pour l'étude de sensibilité

L'étude de sensibilité est effectuée en comparant les flèches maximales mesurées en fin de cuisson sur la face supérieure de la plaque.

3.2.2.2 Mise en place du plan de Taguchi

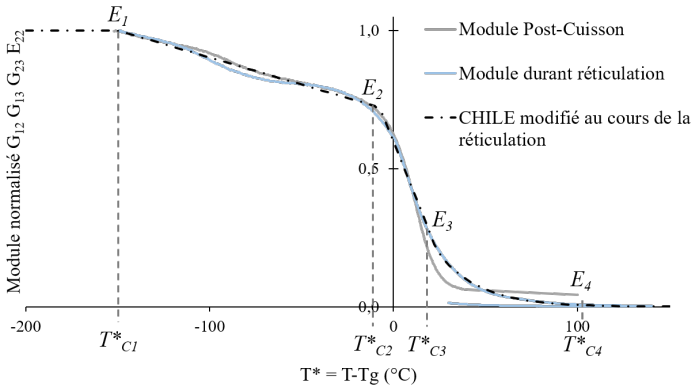


Figure 3.5 – Évolution du module de cisaillement G_{12} et modèle CHILE modifié au cours de la réticulation

Les lois de comportement et paramètres associés dirigeant le module contraintes et déformations sont nombreux. Les paramètres sélectionnés pour cette étude de sensibilité sont les suivants : les coefficients d'expansion thermique (CTE), les coefficients de retrait chimique (CCS), la totalité des modules élastiques du matériau cuit et finalement une partie des constantes du modèle CHILE modifié. Les constantes concernées sont celles qui régissent les variations du module de cisaillement G_{12} au cours de la réticulation de

la résine, et donc également des modules G_{13}, G_{23} et E_{22} qui lui sont proportionnels (voir partie 2.6.2.2). Les constantes étudiées pour cette étude de sensibilité sont E_2, E_4, T^*_{C1}, T^*_{C2} et T^*_{C3}, elles régissent le modèle CHILE au cours de la réticulation comme illustré dans la figure 3.5.

Au total, cela représente 21 paramètres, ou facteurs de contrôle, à faire varier au cours de cette étude de sensibilité des données d'entrée du modèle. Afin d'alléger le nombre de simulations à effectuer, un plan d'expérience à 21 facteurs de contrôle est élaboré en utilisant la méthode de Taguchi. Le principe des tables de Taguchi, développées par Gen'ichi Taguchi, se base sur des répertoires orthogonaux évaluant les effets des différents facteurs sur la moyenne et sur la variation des résultats des expériences conduites [91]. Comme le plan est orthogonal, il est équilibré de telle sorte à ce que les niveaux de tous les facteurs soient également pondérés. Chaque facteur de contrôle peut alors être évalué indépendamment des autres, permettant ainsi de réduire considérablement le nombre de simulations à réaliser.

La table de Taguchi utilisée est une table à 3 niveaux. Le niveau 1 correspond à la valeur du paramètre étudié -10%, le niveau 2 correspond à sa valeur réelle et le niveau 3 à sa valeur +10%. La construction de la table et l'exploitation des résultats des simulations est effectuée à l'aide du logiciel de traitement de données statistiques Minitab. Un total de 54 simulations est nécessaire pour le plan d'expérience ainsi construit.

3.2.2.3 Résultats et facteurs sensibles ou influents

Les résultats obtenus pour chaque facteur de contrôle après exploitation à l'aide du logiciel Minitab sont décrits dans le tableau 3.6 et illustrés dans la figure 3.7.

Niveau	**CTE_supTg_11**	**CTE_supTg_22**	**CTE_supTg_33**	**CTE_vitr_11**	**CTE_vitr_22**
1 : -10%	6,401	6,426	6,401	6,406	5,872
2 : Réel	6,407	6,406	6,405	6,404	6,407
3 : +10%	6,399	6,375	6,401	6,397	6,928
Delta	0,008	0,052	0,004	0,009	1,057
Rang	**17**	**7**	**20**	**15**	**1**

Niveau	**CTE_vitr_33**	**CCS_avgel_22**	**CCS_avgel_33**	**CCS_apgel_22**	**CCS_apgel_33**	**E11_cuit**
1 : -10%	6,401	6,399	6,402	6,235	6,404	6,825
2 : Réel	6,407	6,406	6,402	6,401	6,398	6,380
3 : +10%	6,399	6,402	6,404	6,571	6,406	6,002
Delta	0,008	0,008	0,002	0,336	0,008	0,824
Rang	**18**	**19**	**21**	**5**	**16**	**2**

Niveau	**E22_cuit**	**E33_cuit**	**G12_cuit**	**G13_cuit**	**G23_cuit**	**E-2**	**E-4**	**TC1**	**TC2**	**TC3**
1 : -10%	5,994	6,417	6,412	6,414	6,399	6,225	6,422	6,444	6,417	6,400
2 : Réel	6,406	6,407	6,395	6,376	6,394	6,414	6,394	6,394	6,398	6,397
3 : +10%	6,807	6,384	6,400	6,417	6,414	6,569	6,391	6,369	6,392	6,410
Delta	0,812	0,033	0,017	0,041	0,020	0,344	0,032	0,074	0,024	0,013
Rang	**3**	**9**	**13**	**8**	**12**	**4**	**10**	**6**	**11**	**14**

Figure 3.6 – Résultats obtenus pour chaque facteur de contrôle

Les facteurs de contrôle les plus impactants sur la distorsion d'une plaque asymétrique sont, par importance décroissante : le coefficient de dilatation thermique vitreux dans le sens transverse plan du pli, les modules élastiques cuits dans le sens longitudinal et transverse plan, le module intermédiaire du modèle CHILE durant cuisson E_2 et finalement le coefficient de retrait chimique après gélification toujours dans le sens transverse plan du pli. Les modules de cisaillement cuits G_{23} et G_{13} qui avaient été approximés dans la partie 2.6.2 n'ont pas une forte influence.

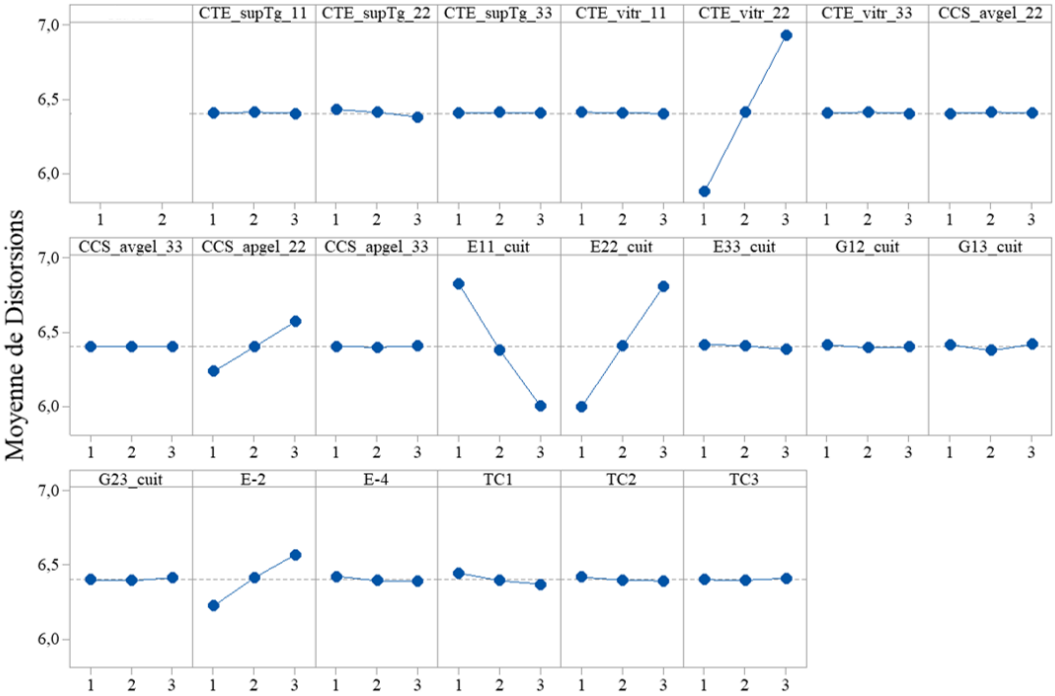


Figure 3.7 – Variations des résultats des simulations en fonction du niveau de variation appliqué pour chaque facteur de contrôle

Les propriétés du matériau dans l'épaisseur du pli n'ont ici que très peu d'impact. La source principale des déformations est l'asymétrie du drapage, ce sont donc les différentiels de comportements entre les deux directions planes du pli qui sont les plus influentes. Si l'étude avait été effectuée sur des cornières par exemple, les propriétés dans l'épaisseur du pli auraient eu un impact bien plus important.

3.3 Validation du modèle thermocinétique de cuisson

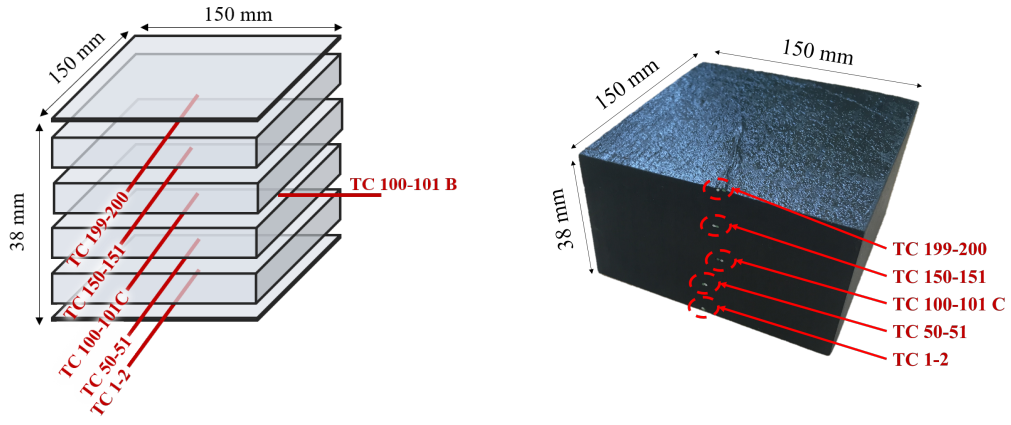
Le modèle de cuisson implémenté va maintenant devoir être validé expérimentalement. Dans un premier temps, la validité du module thermocinétique va être étudiée.

3.3.1 Validation du modèle sur une plaque épaisse

Afin de valider le modèle thermocinétique sur des pièces épaisses, un stratifié unidirectionnel de 200 plis instrumenté de thermocouples (TC) est cuit en étuve. La pièce est cuite sur une plaque en Invar protégée par un film démoulant FEP. Les six thermocouples sont placés comme illustré dans la figure 3.8 :

- TC 1-2 : entre le premier et le deuxième pli au centre la pièce
- TC 49-50 : entre le 49ème et le 50ème pli au centre la pièce
- TC 100-101 C : entre le 100ème et le 101ème pli au centre la pièce

— TC 100-101 B : entre le 100ème et le 101ème pli en bord de pièce
— TC 150-151 : entre le 150ème et le 151ème pli au centre la pièce
— TC 199-200 : entre le 199ème et le 200ème pli au centre la pièce



(a) Montage expérimental **(b)** Image de la pièce cuite

Figure 3.8 – Instrumentation du stratifié de 200 plis

A cette instrumentation seront ajoutés deux autres thermocouples sur le moule et sur la vessie au dessus de la pièce. La simulation thermocinétique de la cuisson est effectuée en utilisant les conditions limites réelles mesurées en dessous et sur la surface supérieure du stratifié. Seul le module thermocinétique est utilisé pour cette simulation en thermique. Les conditions limites et le maillage sont ceux présentés dans la partie 3.2.1.

$$EF = 1 - \frac{\sum_{i=1}^{N}(T_i^{exp} - T_i^{sim})^2}{\sum_{i=1}^{N}(T_i^{exp} - T_{moy}^{exp})^2} \tag{3.3.1}$$

L'efficience du modèle est calculée en appliquant l'équation 3.3.1 avec i le nombre de mesures expérimentales effectuées par chaque thermocouple. L'efficience du modèle est de 99,95% en cœur de pièce où l'exothermie de réaction est la plus impactante.

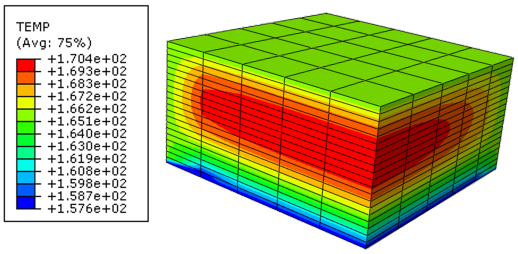


Figure 3.9 – Simulation de la cuisson d'une plaque épaisse lors de l'overshoot du premier palier isotherme

L'erreur maximale observée au niveau de l'overshoot du premier palier est de 1,08%. Cette erreur maximale a lieu en cœur le pièce (TC100-101 C) comme illustré dans la figure 3.9. La comparaison entre les données expérimentales du thermocouple TC100-101 C et les résultats de la simulation au nœud correspondant est disponible dans la figure 3.10.

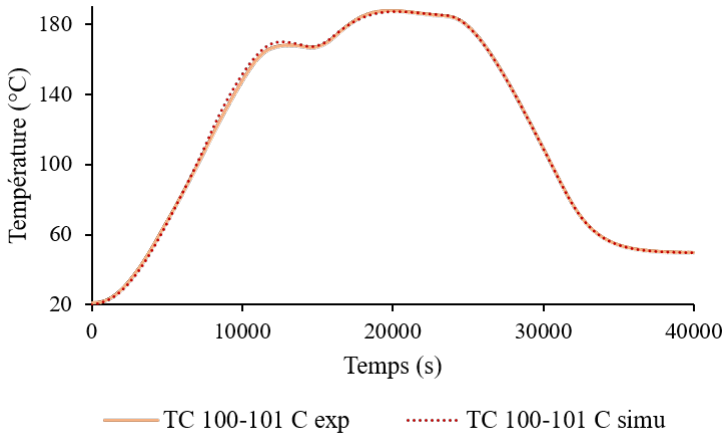


Figure 3.10 – Comparaison entre le suivi thermique du TC 100-101 C et la simulation de cuisson en cœur de pièce épaisse

3.3.2 Validation du modèle par mesures en arrêt de cycle

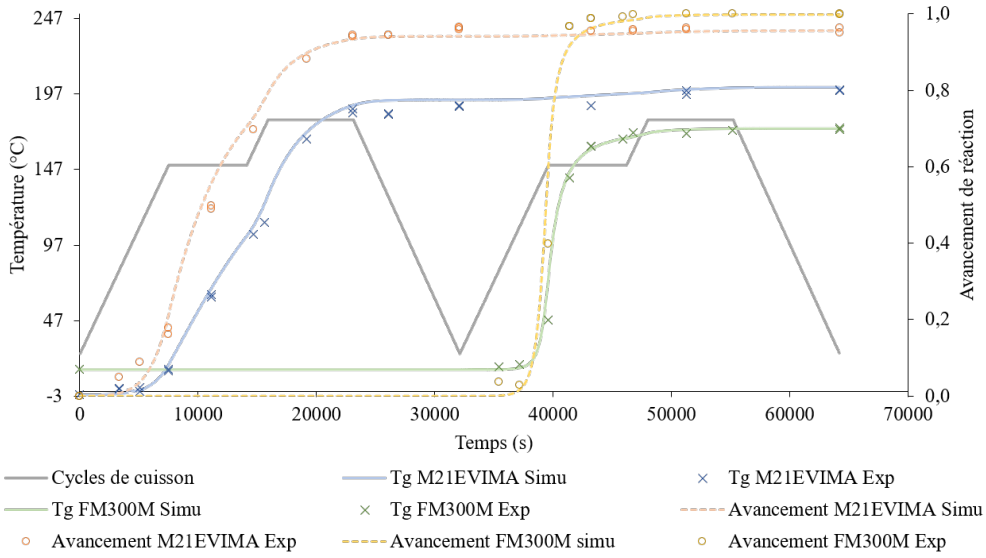


Figure 3.11 – Comparaison entre la simulation et les mesures expérimentales des degrés d'avancement de réaction et des températures de transition vitreuse au cours des cycles de cuisson

Les températures de transition vitreuse et les degrés d'avancement de réaction sont mesurés à différentes étapes du cycle de cuisson pour le préimprégné et l'adhésif. Pour cela de nouveaux essais sont effectués en DSC à différents temps d'arrêt de cycle.

Une fois de plus l'enthalpie résiduelle de réaction est mesurée par DSC en balayage dynamique à 10°C/min selon la procédure d'essai détaillée dans la partie 2.2.1. Les données expérimentales obtenues sont ensuite comparées aux résultats des simulations éléments finis comme illustré dans la figure 3.11. La corrélation entre les résultats expérimentaux et la simulation thermocinétique est satisfaisante, aussi bien pour le préimprégné que pour l'adhésif.

Les deux matériaux ont une cinétique assez différente, la colle réticule bien plus rapidement que le préimprégné. En fonction de la méthode d'assemblage utilisée ces différences de cinétique, et donc de niveau de développement des propriétés mécaniques, risquent d'induire des déformations.

3.4 Fabrication et mesures des distorsions post-cuisson des cas génériques

Afin de valider le modèle de cuisson complet trois types de pièces composites ont été fabriquées en autoclave : des plaques, des cornières et des assemblages collés de plaques. Les distorsions de cuisson de chacune des pièces ont ensuite été mesurées après démoulage. L'objectif est d'utiliser ces mesures pour étudier l'influence des différents paramètres influant sur les distorsions de cuisson et pour valider le modèle développé.

3.4.1 Fabrication des cas génériques

3.4.1.1 Gamme de fabrication

La gamme de fabrication utilisée pour cuire les diverses pièces composites étudiées dans cette partie a été fournie par le partenaire industriel du projet. Le montage expérimental utilisé est illustré dans la figure 3.12. Un outillage en Invar est placé sur une plaque en Aluminium (Alu 2017 A - AU4G - T451). L'outillage est traité selon le protocole suivant :

— Nettoyage de moule à l'aide d'acétone et d'un tampon à récurer.

— Application au pinceau de 2 couches de démoulant FREKOTE 700NC, à chaque fois après séchage intégral de la couche précédente.

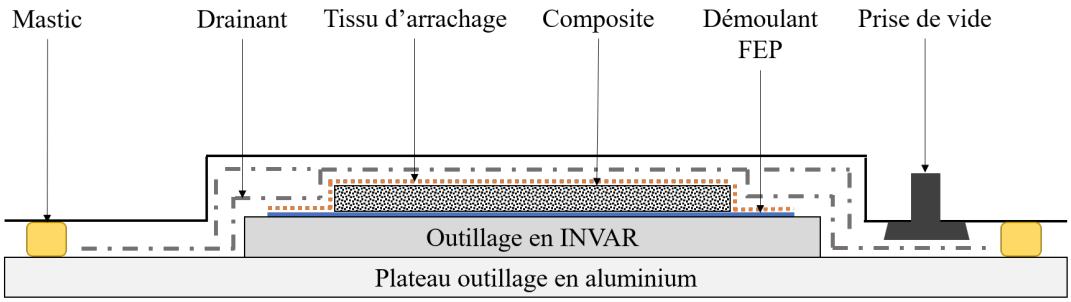


Figure 3.12 – Montage de polymérisation

Le moule est ensuite protégé par un film de démoulant FEP de 25μm. La pièce composite est drapée et précompactée sous vide au moins 15min tous les 5 plis. Le niveau de vide du réseau utilisé pour la compaction varie entre -800 mba et -600 mba. Finalement, le

stratifié placé sur le démoulant est recouvert d'un tissu d'arrachage et de drainant et la bâche à vide de cuisson est installée. Après une dernière compaction d'au moins 24h, le montage de polymérisation est placé dans l'autoclave pour cuisson. Le cycle de cuisson est celui fourni par le partenaire industriel et est effectué sous azote. C'est un cycle bi-palier montant jusqu'à 180°C et jusqu'à une pression de 7 bars.

3.4.1.2 Cas génériques fabriqués

Trois types de cas génériques sont fabriqués afin de valider le modèle : des cornières, des plaques et des assemblages collés de plaques. Chacune des pièces a été fabriquée selon le protocole décrit plus haut.

Cornières

Toutes les cornières fabriquées en autoclave sont cuites sur un moule en Invar. Le moule utilisé dispose de quatre arrêtes où peuvent être drapées les pièces. Tous les angles font 90° mais les rayons varient pour chaque arrête comme illustré dans la figure 3.13. Les cornières peuvent donc être fabriquées avec un rayon de 2 mm, 4 mm, 8 mm ou 20 mm.

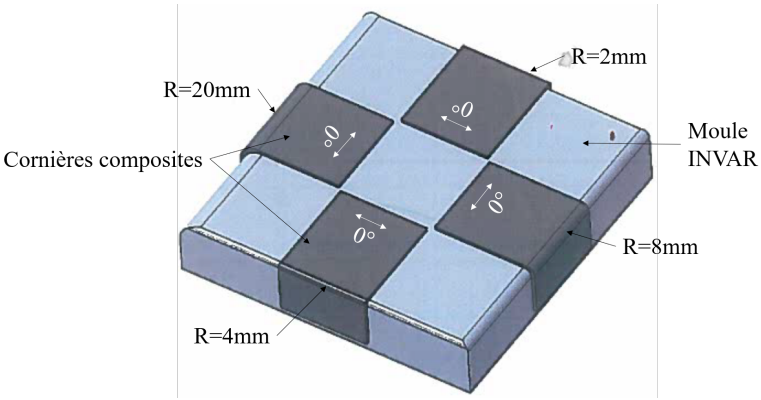


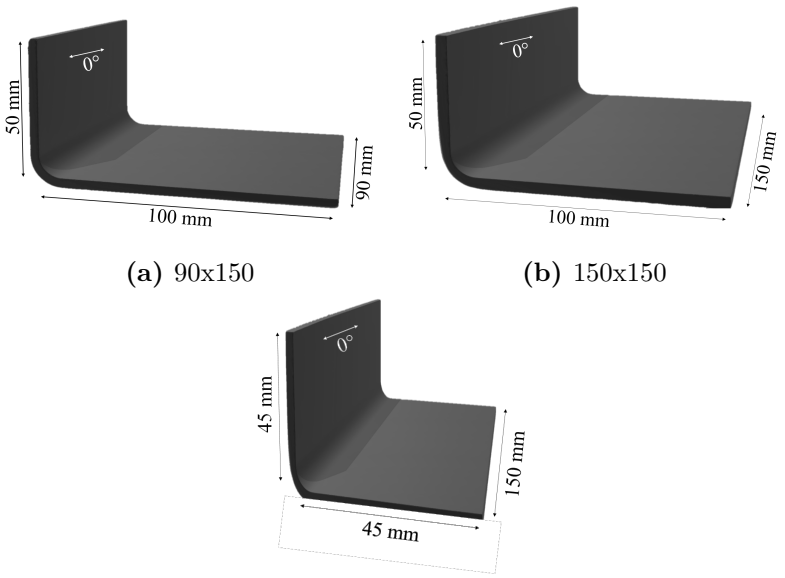
Figure 3.13 – Moule utilisé pour la fabrication des cornières

Les cornières fabriquées à l'Institut Clément Ader sont formées à partir d'un empilement de 20 plis de M21EV/IMA de 150x90 mm comme illustré dans la figure 3.14c. L'ensemble des drapages utilisés sont détaillés dans le tableau 3.8. Dans ce tableau sont également répertoriés les drapages des pièces fabriquées par le partenaire industriel de ce projet. Deux types de géométries ont été utilisées pour ces dernières cornières, un empilement de 20 plis de 150x150 mm comme illustré dans la figure 3.14b et un empilement de 20 plis de 90x150 mm comme illustré dans la figure 3.14a.

Nom	Drapage
Type 0	$[0_{20}]$
Type 90	$[90_{20}]$
Type 45 S	$[+45/-45/+45/-45/+45/-45/+45/-45/+45/-45]_s$
Type 45 A	$[+45/-45]_{10}$

Table 3.8 – Drapages des cornières

La liste complète des cornières fabriquées à l'Institut Clément Ader et par les partenaires est disponible dans le tableau 3.9.



(a) 90x150 **(b)** 150x150

(c) 150x90

Figure 3.14 – Géométrie des cornières fabriquées

Nom	Rayon	Drapage	Géométrie	Moule
Corn-45-R2-A	2mm	Type 45 A	150x90	Invar
Corn-45-R4-A	4mm	Type 45 A	150x90	Invar
Corn-45-R8-A	8mm	Type 45 A	150x90	Invar
Corn-45-R20-A	20mm	Type 45 A	150x90	Invar
Corn-0-R2	2mm	Type 0	150x90	Invar
Corn-0-R4	4mm	Type 0	150x90	Invar
Corn-0-R8	8mm	Type 0	150x90	Invar
Corn-0-R20	20mm	Type 0	150x90	Invar
Corn-45-R2-S	2mm	Type 45 S	150x90	Invar
Corn-45-R4-S	4mm	Type 45 S	150x90	Invar
Corn-45-R8-S	8mm	Type 45 S	150x90	Invar
Corn-45-R20-S	20mm	Type 45 S	150x90	Invar
Pièces fabriquées par le partenaire industriel				
Corn-45-R8-P-1	8mm	Type 45 S	90x150	Invar
Corn-45-R8-P-2	8mm	Type 45 S	90x150	Invar
Corn-0-R8-P-1	8mm	Type 0	150x150	Invar
Corn-0-R8-P-2	8mm	Type 0	150x150	Invar
Corn-90-R8-P-1	8mm	Type 90	150x150	Invar
Corn-90-R8-P-2	8mm	Type 90	150x150	Invar

Table 3.9 – Cornières fabriquées

Plaques

De même, des plaques de M21EV/IMA de 150x150 mm ont été fabriquées en autoclave sur moule en Invar et sur moule en aluminium (Alu 2017 A - AU4G - T451). Encore

une fois ces essais sont complétés par les cas génériques fabriqués par le partenaire industriel.

Nom	**Drapage**	**Géométrie**	**Moule**
Pl-Invar-0-8p	$[0_8]$	150x150	Invar
Pl-Invar-0-20p	$[0_{20}]$	150x150	Invar
Pl-Alu-0-8p	$[0_8]$	150x150	Aluminium
Pl-Invar-asym1	Asym1	150x150	Invar
Pl-Alu-asym1	Asym1	150x150	Aluminium
Pl-Invar-45-8p	$[+45/-45]_{2s}$	150x150	Invar
Pl-Alu-45-8p	$[+45/-45]_{2s}$	150x150	Aluminium
Pièces fabriquées par le partenaire industriel			
Pl-Invar-asym1-P-1	Asym1	500x150	Invar
Pl-Invar-asym1-P-2	Asym1	500x150	Invar
Pl-Invar-asym2-P-1	Asym2	500x150	Invar
Pl-Invar-asym2-P-2	Asym2	500x150	Invar

Table 3.10 – Plaques fabriquées

Les configurations testées permettent d'étudier l'influence du drapage et du moule, qu'il soit en Invar ou en aluminium. L'ensemble des plaques fabriquées est répertorié dans le tableau 3.10.

Les drapages nommés "Asym1" et "Asym2" dans le tableau 3.10 correspondent en fait au même empilement de plis. C'est la face en contact avec le moule qui varie entre les deux dénominations de drapage, permettant ainsi d'analyser son influence sur les distorsions finales. Ainsi "Asym1" correspond au drapage $[-45_2/45_2/-45_2/90_2/45_4/-45_2/0_2/45_2/-45_2]$ et "Asym2" au drapage $[-45_2/45_2/0_2/-45_2/45_4/90_2/-45_2/45_2/-45_2]$.

Assemblages

Des plaques de M21EV/IMA sont également collées et cuites en autoclave afin d'étudier l'impact de l'adhésif FM300-M et des différents procédés d'assemblage sur les distorsions finales des pièces. Les plaques sont assemblées par co-cuisson, co-collage et collage secondaire. Toutes les plaques et les films de colle assemblés à l'Institut Clément Ader ont des dimensions de 150x150 mm. Une fois de plus l'influence du moule est étudiée en comparant les pièces cuites sur le moule en Invar et celles cuites sur le moule en aluminium. Des assemblages co-collés sont également effectués sans film de colle et avec un et deux films de FM300-M afin d'étudier l'influence de l'adhésif sur les distorsions.

Nom	**Drapage**
Collage-0-4/4	$[0_4]$/colle/$[0_4]$
Collage-0-6/2	$[0_6]$/colle/$[0_2]$
Collage-45-4/4	$[+45/-45]_2$/colle/$[-45/+45]_2$
Collage-45-6/2	$[+45/-45/+45/-45/-45/+45]$/colle/$[-45/+45]$
Collage-45-2/6	$[+45/-45]$/colle/$[+45/-45/-45/+45/-45/+45]$

Table 3.11 – Drapages de co-cuisson

Nom	Collage	Drapage	Moule
Cocure-Invar-0-4/4	Co-cuisson	Collage-0-4/4	Invar
Cocure-Invar-0-6/2	Co-cuisson	Collage-0-6/2	Invar
Cocure-Invar-45-4/4	Co-cuisson	Collage-45-4/4	Invar
Cocure-Invar-45-6/2	Co-cuisson	Collage-45-6/2	Invar
Cocure-Alu-45-4/4	Co-cuisson	Collage-45-4/4	Aluminium
Cocure-Alu-45-6/2	Co-cuisson	Collage-45-6/2	Aluminium
Cocure-Invar-45-2/6	Co-cuisson	Collage-45-2/6	Invar
Cocure-Alu-45-2/6	Co-cuisson	Collage-45-2/6	Aluminium
Cobond-Invar-0-20-1c	Co-collage	$[0]_{20}$/colle/$[0]_{20}$	Invar
Cobond-Invar-0-20-2c	Co-collage	$[0]_{20}$/2colles/$[0]_{20}$	Invar
Cobond-Invar-0-20-0c	Co-collage	$[0]_{20}$/$[0]_{20}$	Invar
Cocure-Invar-0-20	Co-cuisson	$[0]_{20}$/colle/$[0]_{20}$	Invar
Cosec-Invar-0-20	Collage secondaire	$[0]_{20}$/colle/$[0]_{20}$	Invar

Table 3.12 – Assemblages collés fabriqués

Les drapages utilisés sont détaillés dans le tableau 3.11 et les différents assemblages fabriqués à l'Institut Clément Ader sont récapitulés dans le tableau 3.12.

3.4.2 Mesures des déformations

Afin de mesurer les distorsions post-cuisson des cas génériques fabriqués, différentes méthodes de mesure sont testées. Les méthodes disponibles à l'Institut Clément Ader sont : le palpeur tridimensionnel, le scanner 3D et la mesure de forme par stéréo-corrélation d'images à partir d'un mouchetis. Les premières éprouvettes mesurées ont été soumises aux trois types de mesure. La variabilité des distorsions obtenues en fonction de chaque méthode de mesure a donc été analysée afin de déterminer la technique la plus adaptée aux mesures des distorsions.

3.4.2.1 Palpeur tridimensionnel

La première méthode testée est la mesure par machine à mesurer tridimensionnelle TRI-MESURES MC1200/N°224. Un palpeur indexable vient au contact des pièces étudiées et fournit les coordonnées de chaque point de contact. Le nuage de points obtenu peut ainsi être utilisé pour faire une cartographie de la pièce.

Pour les cornières, le plan de chaque aile a fait l'objet de 33 points de mesure. A partir des coordonnées de ces points l'angle moyen entre les deux plans peut être obtenu. En calculant la différence entre l'angle initial de 90° et l'angle obtenu à partir des mesures du palpeur, le spring-in peut être calculé.

Les plaques et les assemblages de plaques ont, elles, été cartographiées par 99 points de mesure chacune. Les bords n'ont pas été mesurés à cause de la présence des points d'accroche dans ces zones. Un carré intérieur de 120 mm de côté constitue donc la zone d'étude du plan. Le gauchissement de cette zone est obtenu en calculant la flèche maximale. Le type de cartographie de plaque résultant de ces mesures est illustré dans la figure 3.15, il s'agit ici d'une plaque au drapage asymétrique cuite sur un moule en Invar ("Pl-Invar-asym1).

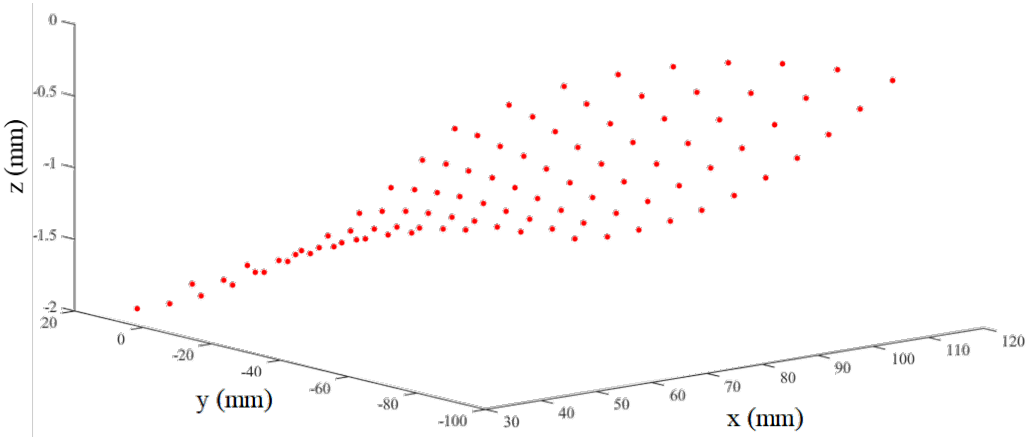


Figure 3.15 – Nuage de points obtenu pour la plaque Pl-Invar-asym1

Cette méthode présente cependant de multiples inconvénients. Tout d'abord, elle ne fournit pas une cartographie complète des pièces, le nombre de points est limité et ne prend pas en compte la totalité de la géométrie. De plus, cette méthode est une méthode de mesure par contact, la force mécanique appliquée par le palpeur risque de contraindre les pièces et de fausser les mesures, en particulier pour les plaques fines. Des méthodes de mesure sans contact seraient donc probablement préférables. Finalement, la précision d'une telle machine est limitée puisqu'elle possède une erreur de mesure de ± 3 μm.

3.4.2.2 Scanner 3D

La première méthode de mesure sans contact utilisée est un scanner 3D Metrascan210. Les pièces sont placées sur un socle en marbre et digitalisées sans contact. Une calibration de l'espace de travail est effectuée à l'aide d'un banc de deux caméras et par détection de plots magnétiques placés sur le support de mesure. Une calibration du bras de mesure est également faite par ajustement de la puissance des faisceaux laser et minimisation des signaux parasites liés à la diffraction.

Lors de la mesure des plaques, la face mesurée est la face côté moule qui présente moins de rugosité et fournit donc une meilleure qualité de mesure. De même, ce sont les surfaces intérieures des cornières qui étaient en contact avec le moule qui sont scannées.

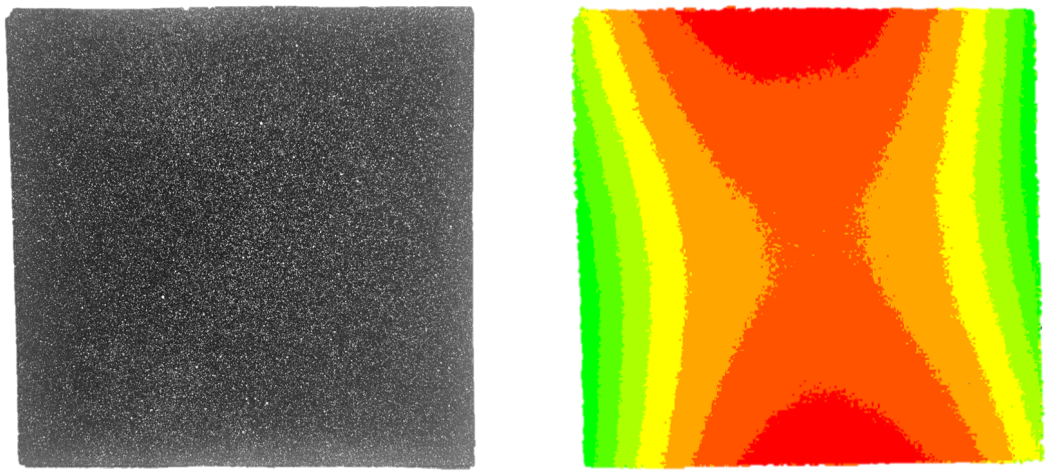
Cette méthode fournit des résultats très satisfaisants. Cependant, de nombreux d'artefacts comme la diffraction en bord de plaque ou encore des effets de brillance ou des irrégularités de surface parasitent parfois les mesures et complexifient le post-traitement des résultats. Les résultats obtenus après post-traitement sont parfois faiblement reproductifs, en particulier pour les plaques fines ou les cornières.

3.4.2.3 Mesure de forme par stéréo-corrélation

Afin de compléter l'analyse des distorsions, les pièces ont finalement été mesurées par mesure de forme par stéréo-corrélation d'images à partir d'un mouchetis.

Le mouchetis est peint sur la surface côté moule aussi bien pour les plaques que pour les cornières, comme illustré dans la figure 3.16a. La mesure de forme par stéréo-corrélation

est ensuite effectuée par deux caméras Pike F-505B/F505-C d'Allied Vision. Le profil tridimensionnel du spécimen étudié est reconstruit à l'aide du logiciel VIC3D. Le type de résultats obtenus est illustré dans la figure 3.16.



(a) Mouchetis **(b)** Analyse surface reconstruite

Figure 3.16 – Mesure de forme d'une plaque unidirectionnelle de 8 plis cuite sur un moule en aluminium (Pl-Alu-8p)

Ce type de mesure s'est révélé être plus simple en termes de mise en œuvre, de post-traitement et de reproductibilité que le scanner 3D.

3.4.2.4 Comparaison des trois méthodes de mesure

Les résultats obtenus en utilisant les trois méthodes de mesure sont donc finalement comparés. Les mesures du gauchissement des plaques sont disponibles dans la figure 3.17 et les mesures du spring-in des cornières dans la figure 3.18. Le gauchissement est obtenu en mesurant la flèche maximale due à la distorsion des plaques et le spring-in correspond à la réduction d'angle moyenne sur l'ensemble de la cornière.

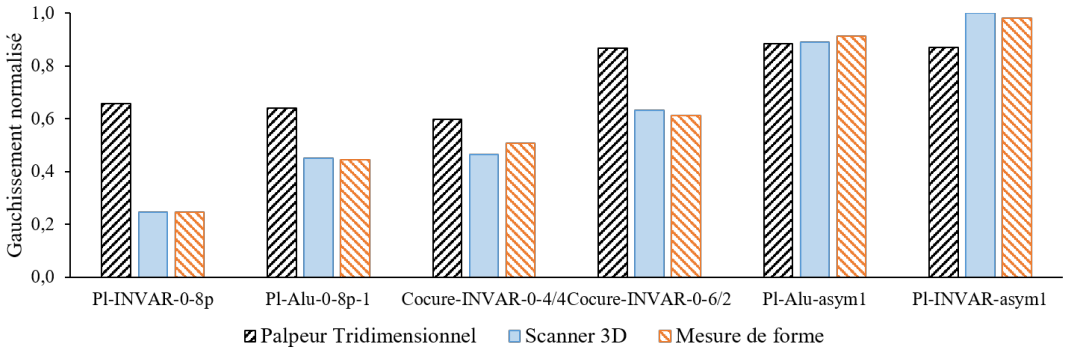


Figure 3.17 – Comparaison des différentes méthodes de mesure du gauchissement des plaques

Comme suspecté, les mesures par machine à mesurer tridimensionnelle fournissent des résultats peu satisfaisants pour les plaques fines. En effet, la faible rigidité de celles-ci

ne permet pas de soutenir la contrainte mécanique appliquée par le palpeur. La flèche est donc exacerbée par la mesure et les distorsions sont largement surestimées. Les plaques de 20 plis, plus rigides, permettent d'obtenir des résultats plus cohérents. Le même type de problématique est observé sur les cornières. Les mesures s'effectuant sur la surface extérieure de la cornière, le palpeur vient probablement légèrement refermer l'angle mesuré, surestimant ainsi le spring-in calculé. Cependant, les cornières étant épaisses, les résultats restent assez proches des mesures obtenues par scanner 3D et par stéréo-corrélation.

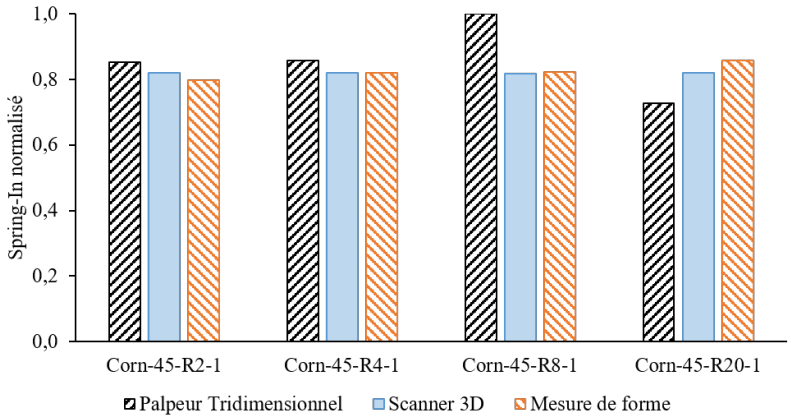


Figure 3.18 – Comparaison des différentes méthodes de mesure du spring-in des cornières

Les résultats obtenus par scanner 3D et mesures de forme sont proches et cohérents. La mesure de forme par stéréo-corrélation a cependant été privilégiée pour le reste de l'étude car, pour une même qualité de mesure, elle permet un post-traitement des résultats bien plus rapide et plus répétable.

3.5 Étude des mesures de distorsions et validation du modèle

Les distorsions de cuisson ont donc été mesurées pour chaque pièce par stéréo-corrélation d'images. Les résultats obtenus vont permettre d'analyser l'influence de certains des paramètres responsables des déformations de cuisson et de valider le modèle.

3.5.1 Mesures des distorsions et validation de la modélisation des pièces de type plaques

3.5.1.1 Bilan et analyse des mesures de distorsions des plaques

L'ensemble des mesures de gauchissement par mesure de forme des plaques est détaillé dans le tableau 3.13. Il est obtenu en mesurant la flèche maximale sur la surface plane en contact avec le moule. Les distorsions les plus importantes sont, de manière cohérente, observées sur les plaques aux drapages asymétriques. Des variations de déformation apparaissent également sur les plaques parfaitement équilibrées, illustrant bien l'influence du moule sur les déformations de cuisson.

Nom	Drapage	Géométrie (mm)	Moule	Gauchissement Normalisé
Pl-Invar-0-8p	$[0_8]$	150x150	Invar	0,035
Pl-Invar-0-20p	$[0_{20}]$	150x150	Invar	0,029
Pl-Alu-0-8p	$[0_8]$	150x150	Alu	0,064
Pl-Invar-asym1	Asym1	150x150	Invar	0,140
Pl-Alu-asym1	Asym1	150x150	Alu	0,130
Pl-Invar-45-8p	$[+45/-45]_{2s}$	150x150	Invar	0,018
Pl-Alu-45-8p	$[+45/-45]_{2s}$	150x150	Alu	0,035
Pièces fabriquées par le partenaire industriel				
Pl-Invar-asym1-P-1	Asym1	500x150	Invar	0,890
Pl-Invar-asym1-P-2	Asym1	500x150	Invar	0,804
Pl-Invar-asym2-P-1	Asym2	500x150	Invar	1,000
Pl-Invar-asym2-P-2	Asym2	500x150	Invar	0,738

Table 3.13 – Gauchissement des plaques

L'aluminium et l'Invar ayant des coefficients de dilatation thermique très différents, les distorsions obtenues pour un même drapage varient selon la nature du moule utilisé. La comparaison des gauchissements mesurés selon le type de moule est illustrée dans la figure 3.19.

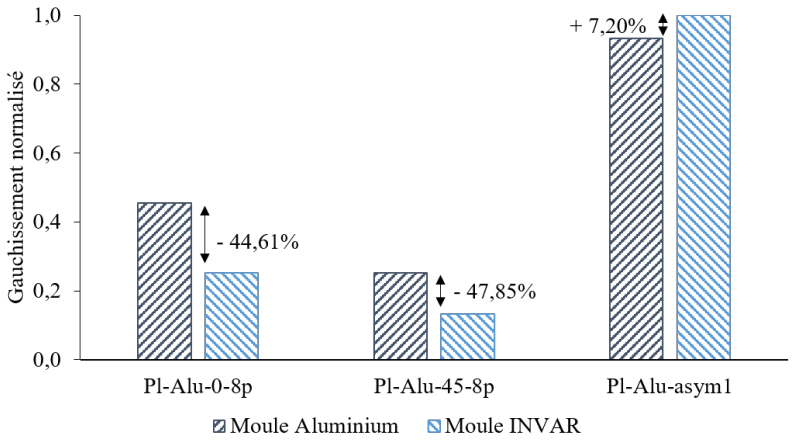


Figure 3.19 – Influence du moule sur le gauchissement des plaques

Comme attendu, le moule en aluminium induit de plus grande distorsions que le moule en Invar pour les plaques au dragage équilibré. En effet, le moule en aluminium, subissant une plus forte dilatation thermique et étant la principale source de distorsions pour ce type de drapage, va induire un gradient de contraintes plus important dans l'épaisseur du stratifié et donc une plus grande distorsion. L'utilisation d'un moule en Invar permet de réduire de 44,61% les distorsions finale de la pièce dans le cas d'un drapage $[0_8]$ et de 47,85% dans le cas d'un drapage $[+45/-45]_{2s}$. Cependant, dans le cas du drapage asymétrique, l'interaction avec le moule a une action opposée aux contraintes induites par la dissymétrie de la plaque. L'utilisation du moule en Invar augmente alors les

distorsions finales de la pièce. L'influence de l'outillage est cependant moindre que pour les deux précédents cas puisque la pièce est plus épaisse.

Les résultats présentés ici ne vont pas être utilisés lors de la validation du modèle puisque, pour le moment, le modèle de cuisson ignore les interactions avec le moule. Cependant, ces valeurs pourront être utilisées lors d'enrichissements futurs du modèle.

3.5.1.2 Simulations des distorsions de cuisson des plaques et validation du modèle

Les cuissons des plaques asymétriques mesurées sont donc simulées. Les éléments utilisés sont des éléments briques quadratiques C3D20T à 20 noeuds et couplés thermiquement et la pièce est maillée dans l'épaisseur avec un élément par pli. Le calcul est divisé en deux step, le premier step simule la cuisson de la plaque et le deuxième step son démoulage.

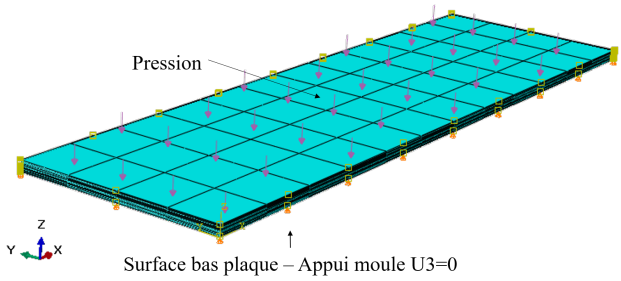


Figure 3.20 – Modélisation et maillage de la plaque asymétrique

Au cours du premier step, les déplacements de la surface de la plaque en contact avec le moule sont bloqués selon l'axe z (U3 = 0). Le cycle de pression est appliqué sur la surface supérieure de la plaque comme illustré dans la figure 3.20 et le cycle en température est appliqué sur toutes les surfaces extérieures de la plaque. Lors du démoulage la pression est relâchée et les déplacements selon l'axe z autorisés. Les contraintes développées au cours du cycle forcent la pièce à se déformer et les distorsions finales sont obtenues.

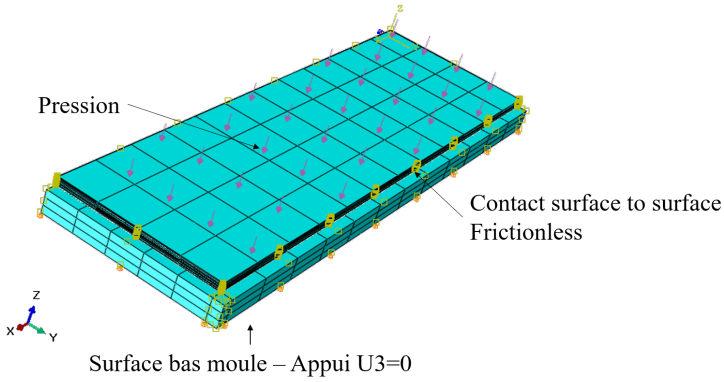


Figure 3.21 – Modélisation et maillage de la plaque asymétrique et de son outillage

Les simulations ont également été effectuées en modélisant le moule en Invar avec un contact sans friction entre le moule et la plaque comme illustré dans la figure 3.21. Le

moule est alors retiré dans le step de démoulage afin d'obtenir les distorsions finales de la pièce. Dans les travaux futurs qui consisteront à rajouter l'influence du moule, les conditions en friction devront être modifiées afin de décrire le comportement de l'interface moule/pièce. Sans friction les résultats obtenus par la simulations sont équivalents à ceux calculés sans la modélisation du moule. Les distorsions varient de 0,28% entre les deux types de simulation. Tant que l'interface n'est pas proprement caractérisée la modélisation du moule n'est donc pas utile. Ces observations permettront d'éviter une modélisation de l'outillage, lourde en temps de calculs, pour la validation future du modèle sur des pièces de grandes dimensions.

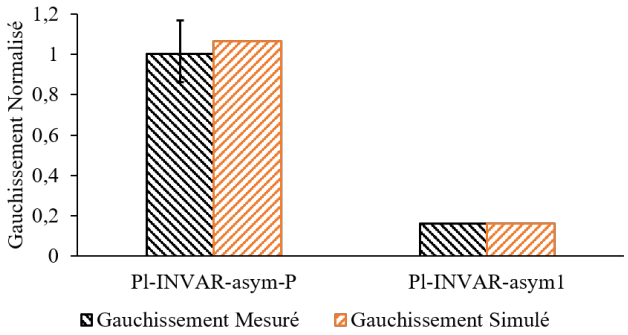
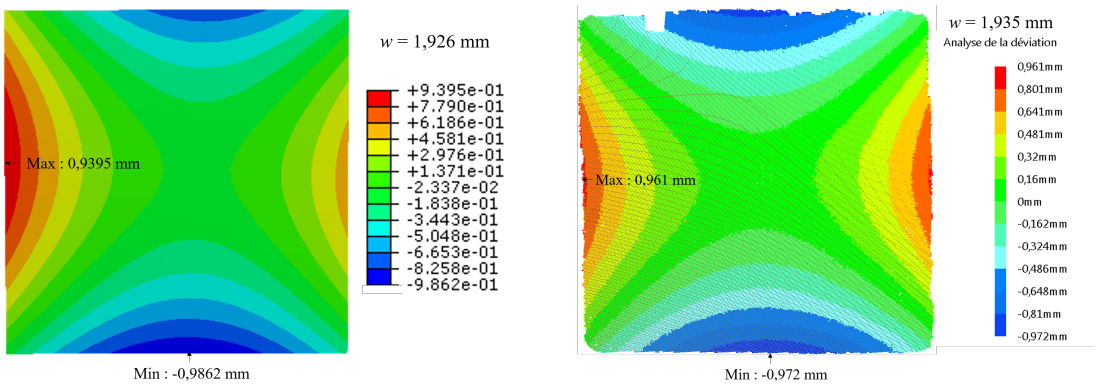


Figure 3.22 – Comparaison entre le gauchissement mesuré expérimentalement et le gauchissement simulé pour chaque type de plaques

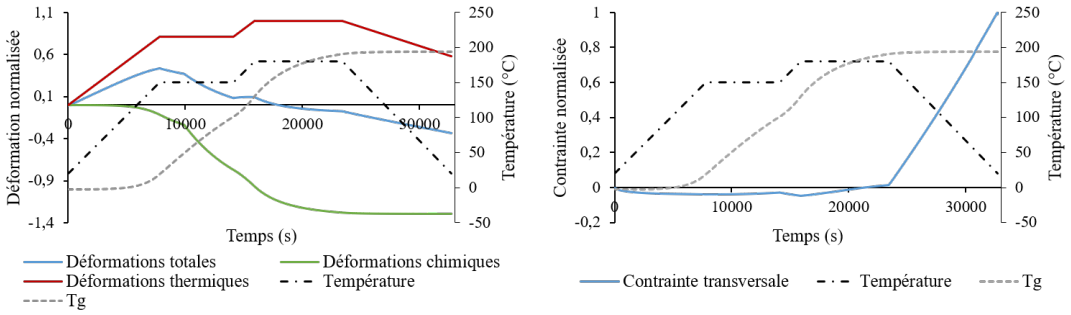
La comparaison entre les résultats des simulations et les mesures expérimentales sont disponibles dans la figure 3.22. Les gauchissements obtenus sont en adéquation avec les valeurs mesurées expérimentalement. Le profil de déformation est également cohérent comme l'illustre la figure 3.23.



(a) Simulation **(b)** Stéréo-corrélation

Figure 3.23 – Comparaison entre la distorsion mesurée expérimentalement et la distorsion simulée pour une plaque asymétrique 150x150 mm (Pl-Invar-asym1)

Le développement des contraintes et des déformations simulées au cours de la cuisson d'une plaque asymétrique de 150x150 mm (Pl-Invar-asym1) est illustré dans la figure 3.24. Comme attendu la plupart des contraintes se développent après gélification du matériau. Les déformations thermiques et chimiques sont illustrées dans la figure 3.24a.



(a) Déformations dans l'épaisseur **(b)** Contraintes transverses planes

Figure 3.24 – Développement des contraintes et des déformations dans la plaque asymétrique 150x150 mm (Pl-Invar-asym1)

Afin d'estimer l'intérêt d'un tel modèle par rapport à une modélisation purement thermoélastique du refroidissement de la pièce, les deux types de simulations ont été effectués. Les conditions limites et le maillage de la pièce restent les même si ce n'est que dans le cas de la modélisation thermoélastique seul le refroidissement est simulé. Alors que le modèle développé fournit une erreur relative de 1% pour la plaque Pl-Invar-asym1, le modèle thermoélastique surestime les distorsions finales de la pièce de plus de 7% par rapport aux mesures expérimentales. Cet écart est donc significatif, même pour des pièces de petites dimensions.

3.5.2 Mesures des distorsions et validation de la modélisation des pièces de type cornières

3.5.2.1 Bilan et analyse des mesures de distorsions des cornières

L'ensemble des mesures du spring-in par stéréo-corrélation d'images des cornières est détaillé dans le tableau 3.14. Pour rappel, il est obtenu en calculant la réduction d'angle entre les plans moyens de chaque aile des cornières. Les mesures de forme ont été effectuées sur les surfaces internes des cornières.

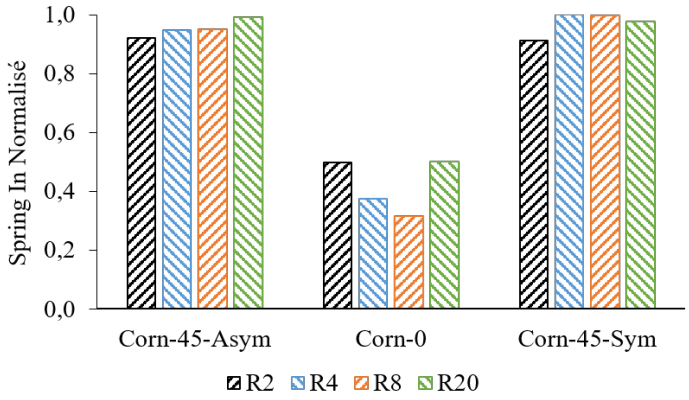


Figure 3.25 – Influence du rayon pour les différents types de cornières

En comparant les distorsions en fonction du rayon des angles des cornières, comme illustré dans la figure 3.25, il apparait que celui-ci n'a pas d'influence notable sur les déformations de cuisson, du moins pour les angles de 90°. Ces résultats sont en adéquations avec les mesures faites par Kappel et al. [50] sur des cornières de 90°.

Nom	**Rayon (mm)**	**Drapage**	**Géométrie (mm)**	**Spring-In Normalisé**
Corn-45-R2-A	2	Type 45 A	150x90	0,921
Corn-45-R4-A	4	Type 45 A	150x90	0,946
Corn-45-R8-A	8	Type 45 A	150x90	0,950
Corn-45-R20-A	20	Type 45 A	150x90	0,991
Corn-0-R2	2	Type 0	150x90	0,498
Corn-0-R4	4	Type 0	150x90	0,374
Corn-0-R8	8	Type 0	150x90	0,317
Corn-0-R20	20	Type 0	150x90	0,501
Corn-45-R2-S	2	Type 45 S	150x90	0,912
Corn-45-R4-S	4	Type 45 S	150x90	1,000
Corn-45-R8-S	8	Type 45 S	150x90	0,996
Corn-45-R20-S	20	Type 45 S	150x90	0,977
Pièces fabriquées par le partenaire industriel				
Corn-45-R8-P-1	8	Type 45 S	90x150	0,795
Corn-45-R8-P-2	8	Type 45 S	90x150	0,823
Corn-0-R8-P-1	8	Type 0	150x150	0,296
Corn-0-R8-P-2	8	Type 0	150x150	0,225
Corn-90-R8-P-1	8	Type 90	150x150	0,609
Corn-90-R8-P-2	8	Type 90	150x150	0,607

Table 3.14 – Spring-In des cornières

3.5.2.2 Simulations des distorsions de cuisson des cornières et validation du modèle

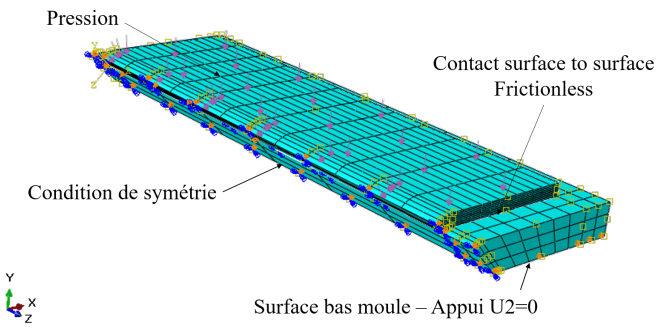


Figure 3.26 – Maillage et modélisation des cornières

La modélisation des cornières est assez similaire à celles des plaques. Le maillage est également effectué avec des éléments briques quadratiques C3D20T et l'épaisseur du stratifié est maillée avec un élément par pli. L'outillage est modélisé mais le contact permet à la pièce de glisser sans friction sur le moule. Les conditions de symétrie sont

exploitées, quand la géométrie des cornières le permet, pour ne simuler qu'une moitié de la pièce. L'ensemble est illustré dans la figure 3.26.

La comparaison entre les mesures expérimentales et les simulations est illustrée dans la figure 3.27. Les simulations fournissent des résultats satisfaisants, celles-ci ont tout de même tendance à sous estimer le spring-in des cornières avec des drapages à ±45°. L'erreur relative minimale obtenue pour les simulations de spring-in par rapport aux mesures expérimentales est de 1% et elle est obtenue pour les cornières de type $[0_{20}]$, tandis que l'erreur relative maximale est obtenue pour les cornières Corn-45-R8-P et s'élève à 12%.

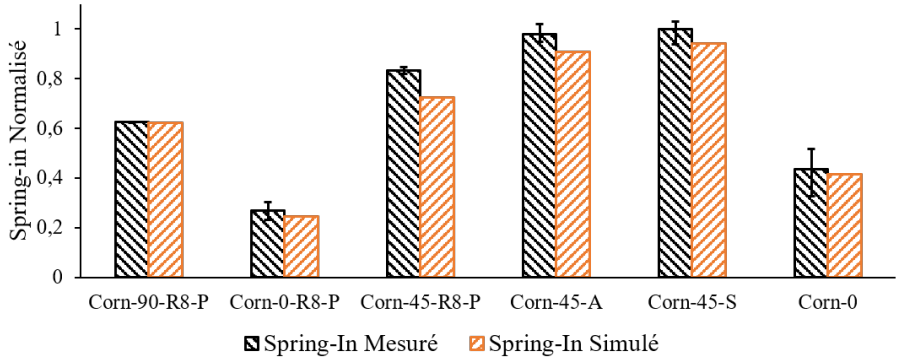


Figure 3.27 – Comparaison entre le spring-in mesuré expérimentalement et le spring-in simulé pour chaque type de cornières

3.5.3 Mesures des distorsions et problématique des assemblages collés

L'ensemble des mesures de gauchissement par mesure de forme des assemblages de plaques est détaillé dans le tableau 3.15. Il est obtenu en calculant la flèche maximale sur la surface plane coté moule.

Nom	**Drapage**	**Moule**	**Gauchissement Normalisé**
Cocure-Invar-0-4/4	Collage-0-4/4	Invar	0,783
Cocure-Invar-0-6/2	Collage-0-6/2	Invar	0,950
Cocure-Invar-45-4/4	Collage-45-4/4	Invar	0,774
Cocure-Invar-45-2/6	Collage-45-2/6	Invar	0,359
Cocure-Alu-45-4/4	Collage-45-4/4	Aluminium	0,936
Cocure-Alu-45-2/6	Collage-45-2/6	Aluminium	0,439
Cobond-Invar-0-20-1c	$[0_{20}]$/colle/$[0_{20}]$	Invar	0,508
Cobond-Invar-0-20-2c	$[0_{20}]$/2colles/$[0_{20}]$	Invar	0,411
Cobond-Invar-0-20-0c	$[0_{20}]$/$[0_{20}]$	Invar	1,000
Cocure-Invar-0-20	$[0_{20}]$/colle/$[0_{20}]$	Invar	0,316
Cosec-Invar-0-20	$[0_{20}]$/colle/$[0_{20}]$	Invar	0,396

Table 3.15 – Gauchissement des assemblages collés

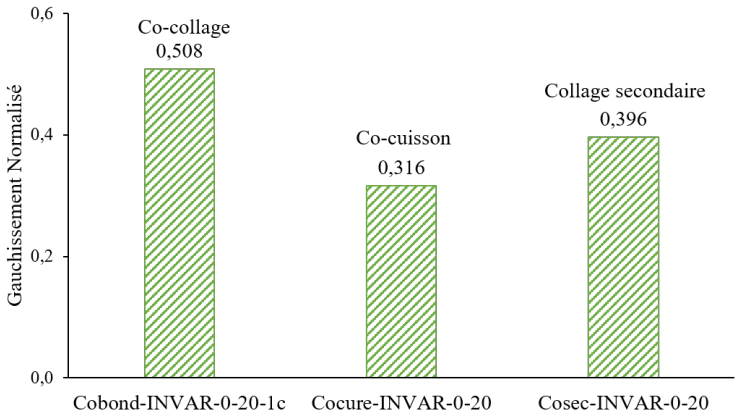


Figure 3.28 – Influence de la méthode d'assemblage sur le gauchissement final

Plusieurs observations peuvent être faites à partir de ces résultats. La comparaison des distorsions de cuisson obtenues en fonction des méthodes d'assemblage que sont la co-cuisson, le co-collage et le collage secondaire est illustrée dans la figure 3.28. Chaque assemblage a été effectué entre deux plaques unidirectionnelles de 20 plis $[0_{20}]$. Les trois plaques cuites qui ont été utilisées pour le co-collage et le collage secondaire ont été cuites sur un moule Invar au cours d'un même cycle de cuisson. Finalement les trois assemblages ont également été effectués sur un moule en Invar au cours d'un même cycle de cuisson. Dans le cas du co-collage, la plaque déjà cuite est systématiquement placée en dessous lors de l'assemblage, donc côté moule. La méthode induisant le plus grand gauchissement est le co-collage. Le collage secondaire induit un gauchissement bien inférieur et c'est finalement la co-cuisson qui voit apparaitre le moins de distorsions.

En s'intéressant plus particulièrement au cas du co-collage les essais effectués permettent d'étudier l'influence de la colle. La figure 3.29 compare le gauchissement obtenu avec un, deux ou sans aucun film de colle. Il apparait que plus le nombre de films de colle augmente, plus les distorsions diminuent.

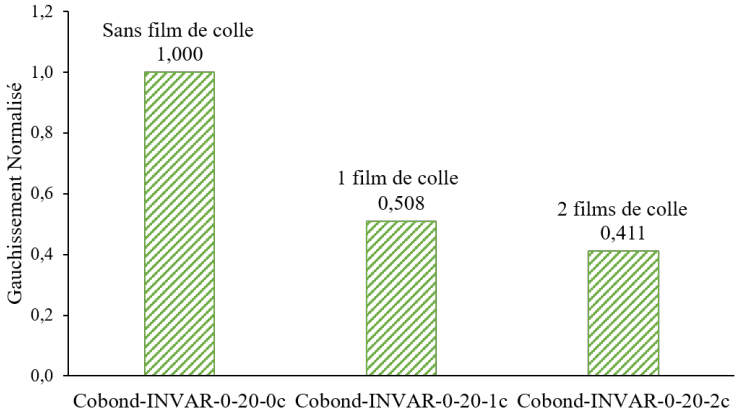


Figure 3.29 – Influence du nombre de films de colle sur le gauchissement d'assemblages co-collés

Finalement, la figure 3.30 compare les gauchissements obtenus pour les éprouvettes co-cuites de 8 plis. Les résultats sont assez surprenants, en particulier pour les éprouvettes 4/4. Celles-ci présentent un gauchissement important, inattendu pour des pièces symétriques. Ces résultats ne peuvent se justifier avec le travail de caractérisation effectué jusqu'à maintenant et ne pourront donc pas être concordants avec le modèle développé. Une étude plus approfondie de la colle va donc être nécessaire, elle fera l'objet du prochain chapitre.

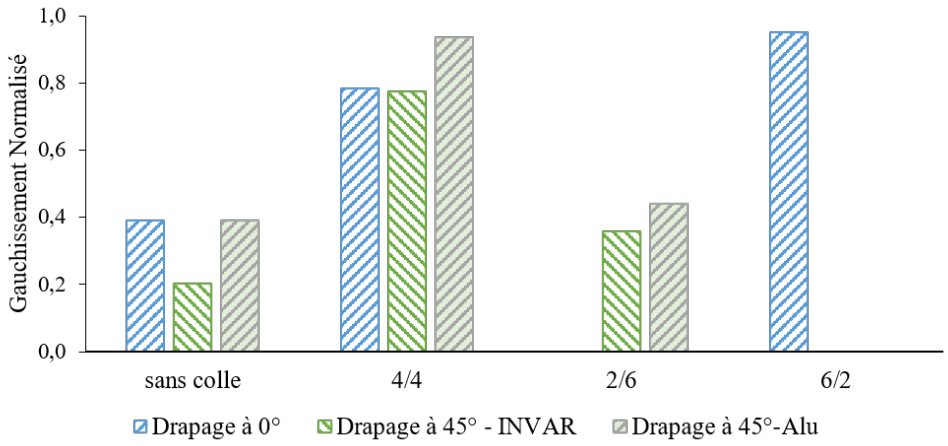


Figure 3.30 – Comparaison du gauchissement obtenu pour différents drapages co-cuits

Conclusion

Le modèle de cuisson développé permet de simuler les déformations de cuisson des pièces composites à base de péimprégné M21EV/IMA avec justesse. L'interaction avec l'outillage n'est cependant pas modélisée pour le moment, bien que son influence puisse être observée expérimentalement. L'utilisation de moules en Invar permet de limiter l'impact de cette interaction sur les distorsions finales des pièces.

L'étude du film de colle et des déformations des assemblages collés a révélé un comportement de l'adhésif plus complexe qu'attendu. Ils confirment cependant que ces films de colle ont une influence sur les déformations et qu'ils ne peuvent donc pas être ignorés. Une étude plus approfondie de ces assemblages va donc être effectuée afin de comprendre plus précisément les différents phénomènes impliqués.

Chapitre

4

Étude approfondie des liaisons collées

Introduction . . . 108
4.1 Étude de la co-cuisson des plaques fines . . . 108
4.1.1 Étude par tomographie des plaques co-cuites . . . 108
4.1.2 Influence de la pression sur le flux de colle et les déformations . . . 109
4.2 Influence des différentes méthodes d'assemblages collés sur les distorsions 110
4.2.1 Profils de distorsions . . . 110
4.2.2 Simulation du co-collage . . . 111
4.2.3 Étude des interfaces de collage . . . 113
4.3 Influence du film de colle sur les déformations des pièces co-collées . . . 115
4.4 Suivi des déformations par fibres optiques à réseaux de Bragg . . . 116
4.4.1 Fabrication et mesure des déformations de cuisson par FBG . . . 116
4.4.1.1 Protocole expérimental . . . 116
4.4.1.2 Assemblages instrumentés . . . 118
4.4.2 Mesures des déformations de cuisson dans un assemblage co-collé avec deux films de colle . . . 120
4.4.2.1 Mesures en bord d'assemblage . . . 122
4.4.2.2 Mesures en quart d'assemblage . . . 124
4.4.2.3 Mesures en milieu d'assemblage . . . 125
4.4.2.4 Comportement post-cuisson et coefficients de dilatation thermique . . . 127
4.4.3 Mesures des déformations de cuisson dans un assemblage co-collé sans film de colle . . . 129
4.4.3.1 Mesures en bord d'assemblage . . . 131
4.4.3.2 Mesures en milieu d'assemblage . . . 133
4.4.3.3 Mesures en quart d'assemblage . . . 134
4.4.4 Comparaison du développement des déformations mesurées au sein des assemblages co-collés . . . 135

Conclusion 137

Introduction

La cuisson des pièces composites en autoclave a fait l'objet de nombreux travaux de recherche. En s'appuyant sur ces travaux préalables et grâce au travail de caractérisation et de modélisation présenté dans les chapitres précédents, un outil de simulation robuste de prévision des distorsions de cuisson des composites a pu être mis en place.

Cependant, les pièces assemblées par collage présentent un comportement complexe peu étudié dans la littérature. Les résultats des mesures post-cuisson des distorsions ont montré que la colle, souvent ignorée, a une influence non négligeable sur les déformations de cuisson. Ce dernier chapitre présente donc une étude approfondie des assemblages collés.

Dans un premier temps, une étude des phénomènes impliqués au cours de l'assemblage de plaques fines a été effectuée. Les différents phénomènes impactant les déformations sont étudiés et l'interface colle-composite est analysée à l'aide d'images par tomographie. L'influence de la méthode d'assemblage sur les déformations de cuisson est ensuite étudiée ainsi que l'impact du nombre de films de colle utilisés. Enfin, des assemblages co-collées avec et sans colle ont été instrumentés avec des fibres optiques à réseaux de Bragg afin d'avoir un suivi in-situ des déformations tout au long de la cuisson.

4.1 Étude de la co-cuisson des plaques fines

Les résultats les plus surprenants obtenus pour les assemblages collés au cours du chapitre précédent sont les distorsions mesurées sur les plaques fines co-cuites. En effet, des distorsions importantes sont observées, et ce même lorsque l'assemblage est parfaitement équilibré. Ces assemblages équilibrés présentent même des gauchissements plus importants que les assemblages 2/6, ce qui est inattendu.

En observant les plaques cuites à l'œil nu l'état de la surface supérieure (côté sac lors de la cuisson) présente certaines particularités. En effet, des tâches sont observables qui pourraient faire penser à une migration de colle. Afin de mieux comprendre les phénomènes impliqués les plaques ont été étudiées par tomographie et microscopie.

4.1.1 Étude par tomographie des plaques co-cuites

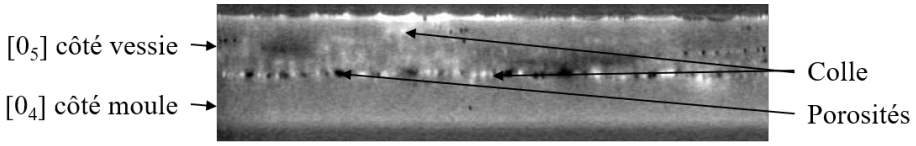


Figure 4.1 – Image par tomographie d'un assemblages co-cuit [0_4]-colle-[0_5] direction X (face aux fibres)

Des images par tomographie ont été effectuées sur les plaques fines co-cuites [0_4]-colle-[0_5]. Les résultats obtenus dans la direction face aux fibres (direction X) et parallèle aux fibres (direction Y) sont illustrées dans les figures 4.1 et 4.2.

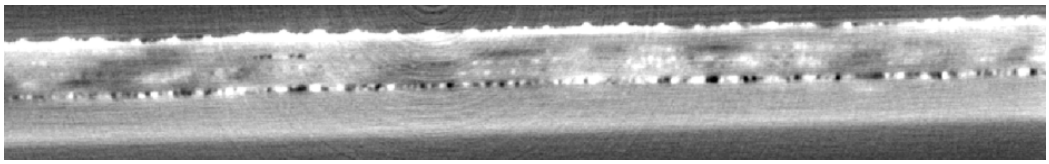


Figure 4.2 – Image par tomographie d'un assemblages co-cuit $[0_4]$-colle-$[0_5]$ direction Y (parallèle aux fibres)

Il apparait dans ces images que la colle s'infiltre en effet entre les fibres de carbone. Le film adhésif, en migrant, génère des porosités dans la plaque supérieure que la colle remplit partiellement. Les agglomérats de colle visibles sur la surface supérieure de la plaque cuite peuvent également être observés sur les images obtenues par tomographie. La migration de la colle s'effectue principalement vers la plaque côté sac. Les plaques obtenues deviennent donc asymétriques et la plupart des propriétés matériaux, dont les propriétés mécaniques du stratifié, vont en être affectées. Des images ont également été effectuées au microscope optique, le film de colle ainsi que sa migration peuvent également y être observés, comme illustré dans la figure 4.3.

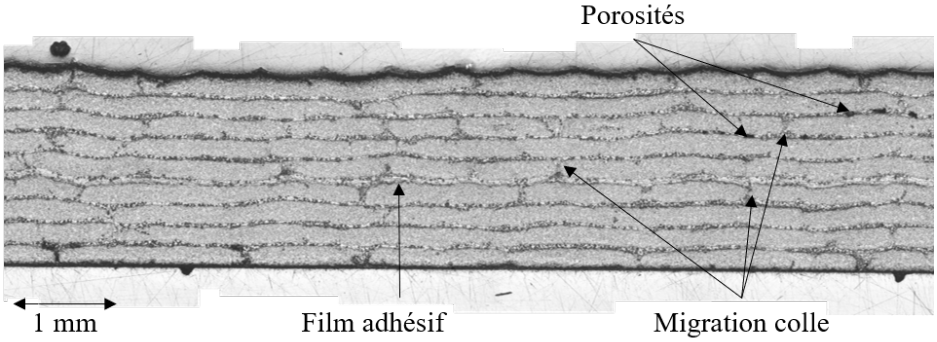


Figure 4.3 – Image par microscopie optique d'un assemblages co-cuit $[0_4]$-colle-$[0_5]$ direction X (face aux fibres)

4.1.2 Influence de la pression sur le flux de colle et les déformations

Cette migration de colle doit être intimement liée aux conditions de pression appliquées au cours du cycle. Pour confirmer cela, des plaques ont été fabriquées sous vide en étuve. La comparaison des mesures expérimentales obtenues pour des plaque co-cuites en étuve et en autoclave au drapage "Collage-45-4/4" et "Collage-45-2/6" (voir partie 3.4.1) est illustrée dans la figure 4.4.

Les mesures de gauchissement effectuées sur les assemblages équilibrés cuits en étuve sont bien plus basses. La dissymétrie générée par le film de colle est donc probablement plus faible. Cette diminution de la migration de colle est vérifiée par microscopie optique sur des éprouvettes "Collage-45-4/4" comme illustré dans la figure 4.5. Évidement, la plaque cuite en étuve présente une forte porosité, mais la migration de la colle semble moins visible et la pièce garde donc une meilleure symétrie de propriétés.

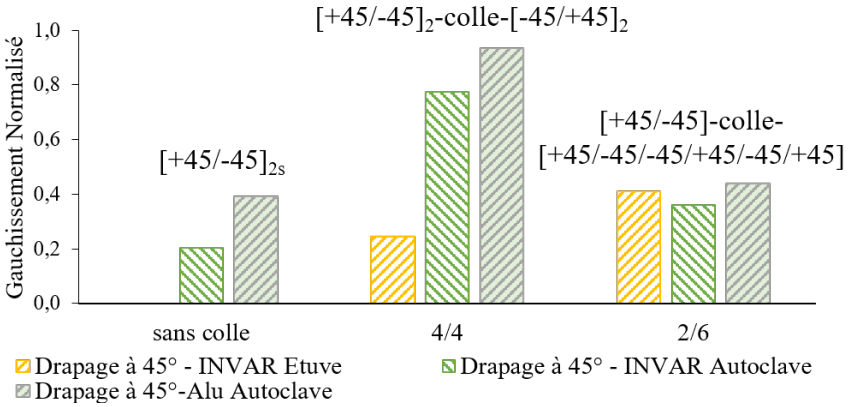
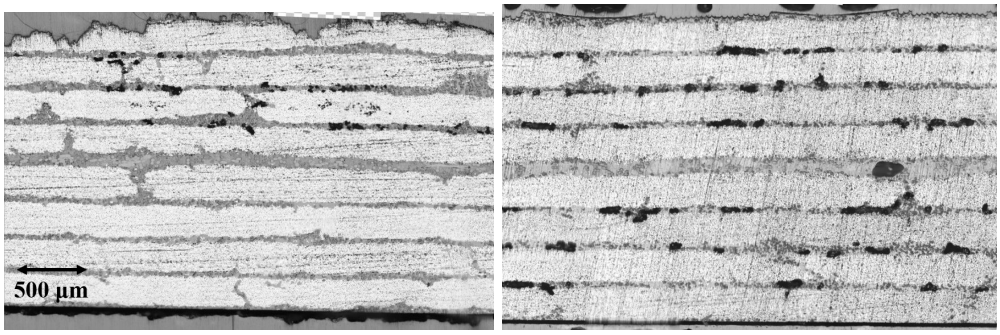


Figure 4.4 – Comparaison des gauchissements mesurés en fonction de la méthode de cuisson utilisée pour les plaques fines co-cuites



(a) Autoclave **(b)** Etuve

Figure 4.5 – Images par microscopie optique des plaques co-cuites en étuve et en autoclave

4.2 Influence des différentes méthodes d'assemblages collés sur les distorsions

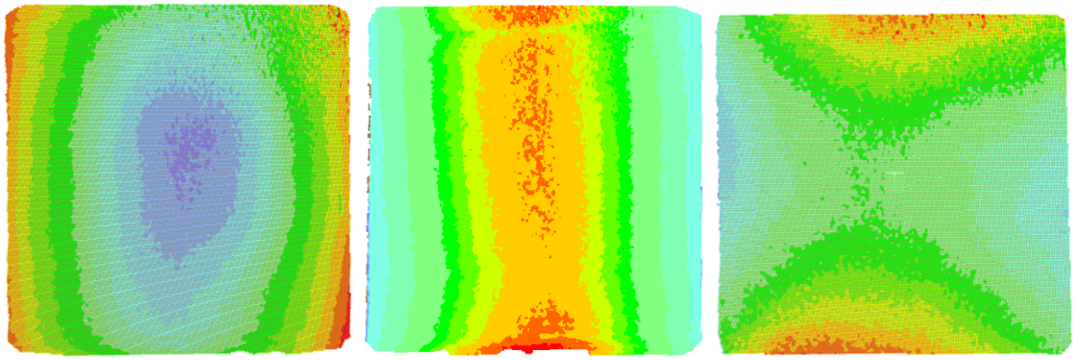
4.2.1 Profils de distorsions

Ces premières observations permettent d'expliquer une partie des mesures effectuées au cours du chapitre précédent. Il a également été vu que les distorsions de cuisson varient entre chaque type d'assemblage. La co-cuisson fournit les distorsions les plus basses, le collage secondaire présente des distorsions à peine supérieures à celles de la co-cuisson et, finalement, les assemblages par co-collage présentent des distorsions supérieures aux deux autres méthodes de collage.

Les profils de déformations mesurés pour chaque type d'assemblage sont illustrés dans la figure 4.6. Au vu de ces profils, chacun des assemblages génère des distorsions pour des raisons différentes. Le cas du collage secondaire est le plus simple, les déformations sont celles induites par l'interaction pièce/outillage des plaques cuites de 20 plis qui sont

utilisées pour l'assemblage. De fait, le profil de distorsions correspond à celui observé sur les plaques $[0_{20}]$ cuites sur les moules en Invar.

Pour la co-cuisson, sur une épaisseur de 40 plis l'influence de l'outillage est négligeable. C'est donc probablement la légère dissymétrie de propriétés induites par la migration de la colle qui induit les déformations. Le profil de distorsion illustré dans la figure 4.6a correspond à celui observé pour les assemblages équilibrés co-cuits de plaques fines. On voit ici que pour des pièces épaisses la migration est tout de même bien moins impactante que pour les pièces co-cuites fines étudiées précédemment.



(a) Co-cuisson **(b)** Co-collage **(c)** Collage Secondaire

Figure 4.6 – Profils de distorsions des différents types d'assemblages obtenus par stéréocorrélation

Finalement, dans le cas du co-collage c'est la dissymétrie générée par la différence de comportement entre le préimprégné cuit et le préimprégné cru qui génère la majorité des contraintes et des déformations. Afin de comprendre plus précisément les phénomènes qui entrent en jeu et de vérifier la validité du modèle le cas de co-collage est simulé.

4.2.2 Simulation du co-collage

Les éléments utilisés sont des éléments briques quadratiques C3D20T à 20 nœuds et couplés thermiquement et chaque pièce est maillée dans l'épaisseur avec un élément par pli de préimprégné et deux éléments par pli de colle. Les plaques étant unidirectionnelles et de dimensions 150 x 150 mm, seul un quart de la géométrie de la pièce est modélisée et les conditions de symétrie adaptées sont utilisées. Le cycle de température est appliqué aux surfaces extérieures des pièces subissant la cuisson, les déplacements de la surface en contact avec le moule sont bloqués selon l'axe z (U3 = 0) et la pression est appliquée sur la surface supérieure comme illustré dans la figure 4.7.

Deux types de modèle sont testés, une modélisation complète avec 3 steps et une simplifiée avec 2 steps. Dans le cas de la modélisation complète, les trois steps sont les suivants : un premier step de cuisson de la plaque inférieure, un deuxième step pour le co-collage de la plaque crue sur la plaque cuite à l'aide d'un film de colle et un dernier step de démoulage. Les résultats de cette modélisation sont comparés avec un modèle simplifié où le calcul est divisé en deux steps. Les conditions initiales des variables d'état de la plaque inférieure sont fixées de sorte à ce qu'elles correspondent à l'état cuit du matériau (degré d'avancement de réaction et température de transition vitreuse) et celles de la plaque supérieure et de l'adhésif correspondent aux propriétés initiales à

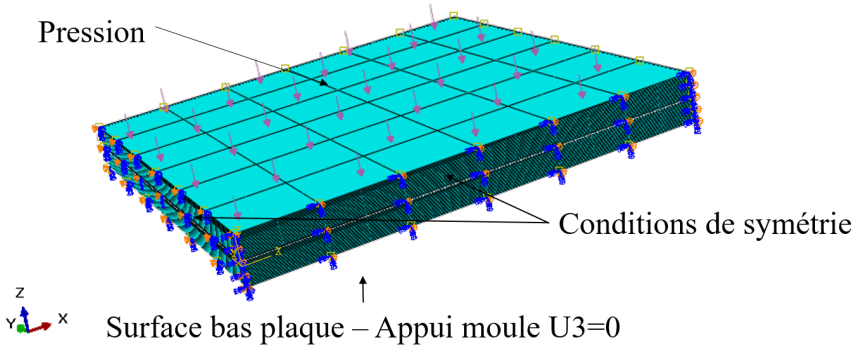
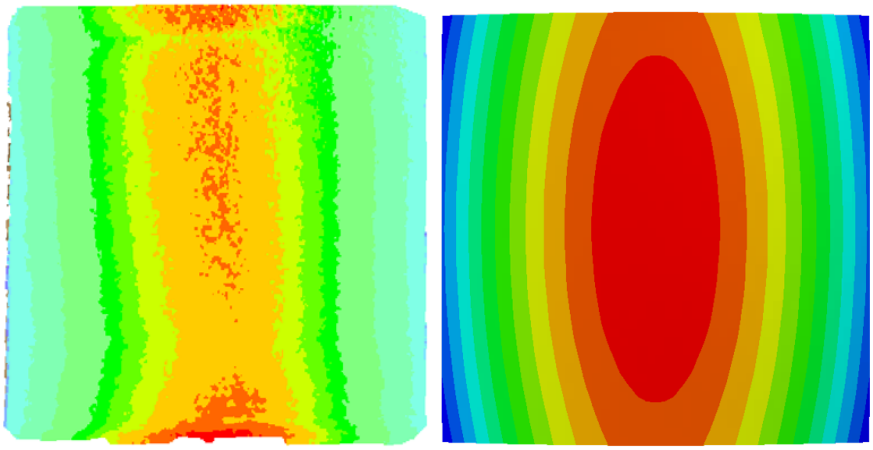


Figure 4.7 – Conditions limites utilisées pour la simulation du co-collage de deux plaques de 20 plis

l'état cru. Le premier step simule donc directement l'étape de co-collage et le deuxième step le démoulage. Les distorsions obtenues en après démoulage pour les deux types de modèles ont un écart relatif de moins de 1%. La méthode de simulation simplifiée, qui permet un gain important en temps de calcul, est donc conservée pour le reste de l'étude.

Les distorsions obtenues par la simulation sont comparées dans la figure 4.8. Le profil des distorsions correspond globalement et l'erreur relative entre le gauchissement maximal obtenu par simulation et les mesures expérimentales est de 10%. Le modèle développé prédit donc plus correctement les distorsions des assemblages épais. Il semblerait donc que la migration de la colle ait bien une influence moins marquée pour les pièces épaisses.



(a) Mesures **(b)** Simulation

Figure 4.8 – Comparaison entre la simulation et la mesure du profil de distorsions d'une plaque co-collée sans film de colle

Les principales sources de déformations sont les différences de comportement entre la pièce cuite et la pièce crue. L'évolution des degrés d'avancement de réaction et des températures de transition vitreuse au cours du co-collage est rappelée dans la figure 4.9. Au cours du deuxième cycle de cuisson, le stratifié cuit reste à l'état vitreux tandis que le

stratifié cru traverse différents états physico-chimiques. En particulier, il va être sujet au retrait chimique et, au cours de la deuxième rampe de chauffe, son état caoutchoutique lui fournira un *CTE* plus élevé que celui du stratifié réticulé vitreux.

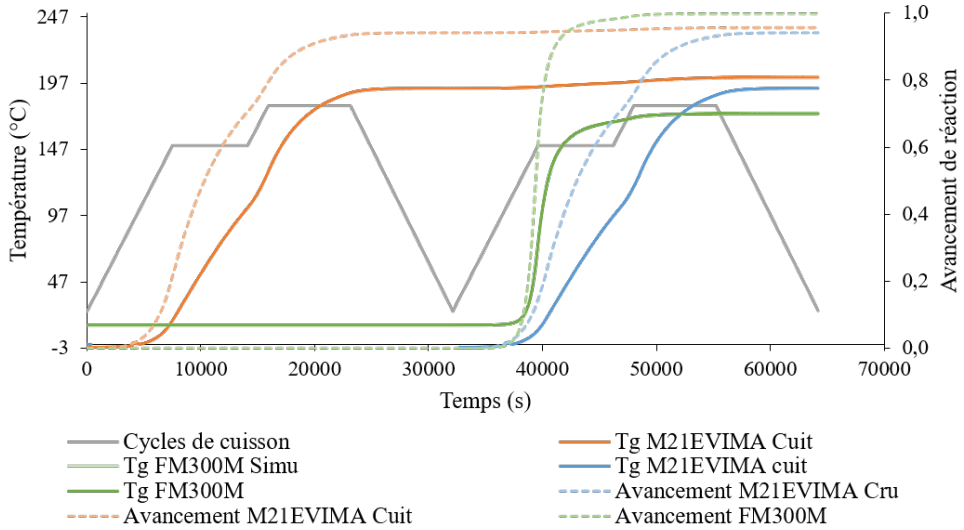


Figure 4.9 – Cinétique de cuisson lors d'un assemblage par co-collage

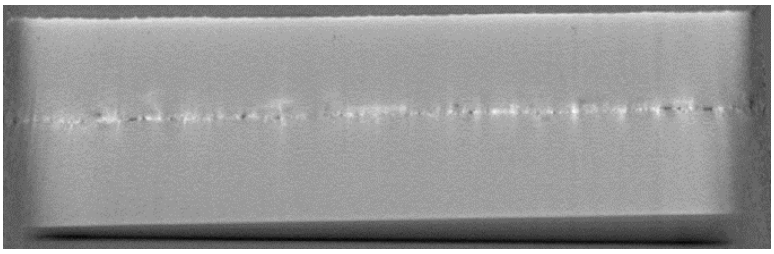
4.2.3 Étude des interfaces de collage

Afin d'avoir des informations plus précises sur les interfaces colle/composites générées au cours de ces assemblages, des images par tomographie sont effectuées sur les trois types de collage comme illustré dans la figure 4.10.

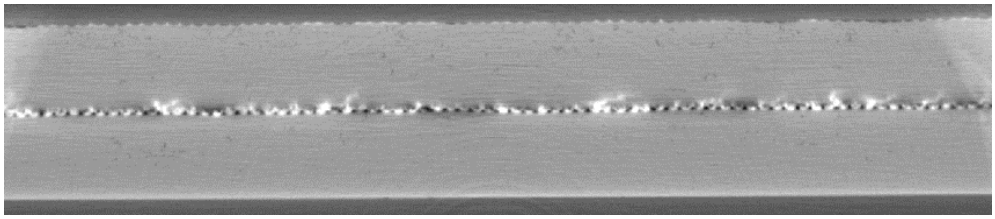
Différents phénomènes peuvent être observés. Tout d'abord, lors de la co-cuisson l'effet de migration de la colle semble mieux réparti au sein de l'assemblage que lors de l'étude des assemblages de plaques fines. La migration n'est visible que dans les premiers plis en contact avec la colle et semble avoir lieu à la fois dans la plaque supérieure et inférieure. La colle semble donc bien avoir une influence moins importante que pour les plaques fines vues dans la partie précédente. De fait, la plaque co-cuite présente le gauchissement après démoulage le plus bas parmi les trois types d'assemblage.

Les interfaces paraissent plus chaotiques pour les plaques assemblées par co-collage et par collage secondaire. Des porosités apparaissent au sein de la colle avec un motif régulier qui est celui du tissu d'arrachage. Il est visible du côté de la plaque cuite pour l'assemblage co-collé et des deux côtés pour l'assemblage par collage secondaire. De plus, pour les plaques co-collées la migration de colle ne s'effectue que du côté de la plaque crue, mais de manière plus conséquente que lors de la co-cuisson puisque la colle n'a que cette voie de migration.

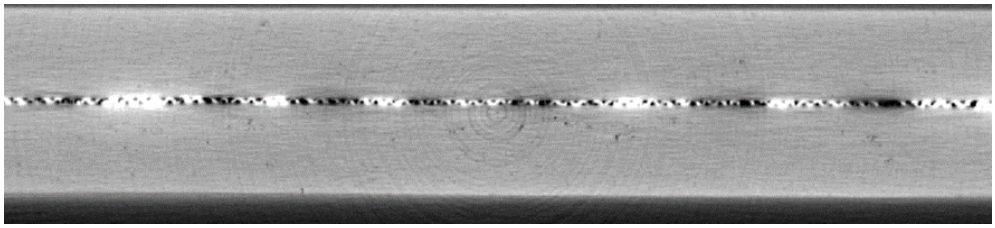
Afin de s'assurer que ces observations ne sont pas dues à des défauts de fabrication liés aux conditions de cuisson appliquées, des plaques co-collées fournies par le partenaire industriel du projet sont également étudiées au tomographe. L'image obtenue est illustrée dans la figure 4.11. On retrouve bien les motifs de tissu d'arrachage au niveau de l'interface colle/composite et la migration de la colle dans la plaque supérieure crue.



(a) Co-cuisson



(b) Co-collage



(c) Collage Secondaire

Figure 4.10 – Images par tomographie des différents types d'assemblages

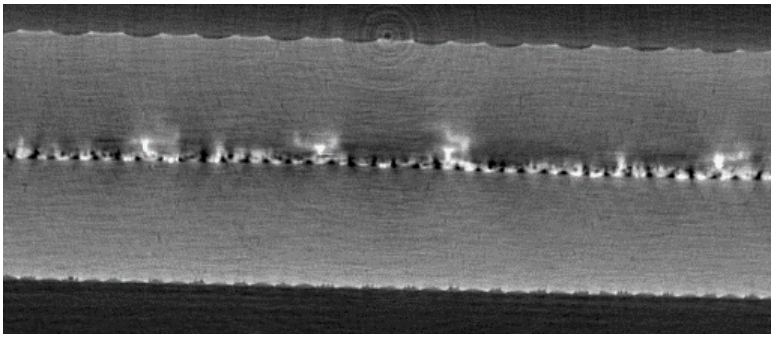


Figure 4.11 – Images par tomographie d'une plaque co-collée industrielle

Pour les assemblages des plaques de 20 plis, ces conditions d'interface et cette migration de la colle ne semblent pas avoir un impact majeur sur les distorsions. En effet, le modèle développé qui ne prend pas en compte ces phénomènes permet de prédire assez justement les déformations de cuisson. Cependant, comme vu dans le cas des co-cuissons de plaques fines, ces phénomènes risquent d'avoir des impacts plus importants en fonction du type de drapage utilisé.

4.3 Influence du film de colle sur les déformations des pièces co-collées

L'influence du film de colle sur les déformations de cuisson des plaques co-collées va maintenant être étudiée plus précisément.

Il a été vu dans le chapitre précédent que les distorsions de cuisson diminuaient avec le nombre de films de colle. En effet, la principale source de distorsions de la plaque provient de la différence entre les propriétés du matériau cru et du matériau cuit. La colle, moins rigide, permet de mieux répartir le gradient de déformation entre les deux plaques et réduit ainsi les distorsions.

Afin de mieux cerner les phénomènes qui entrent en jeu et de vérifier la validité du modèle de cuisson sur le co-collage des pièces épaisses, les diverses plaques co-collées sont modélisées.

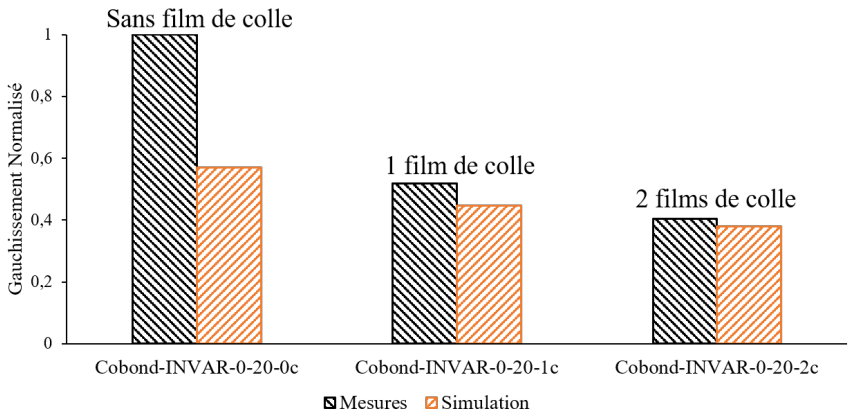
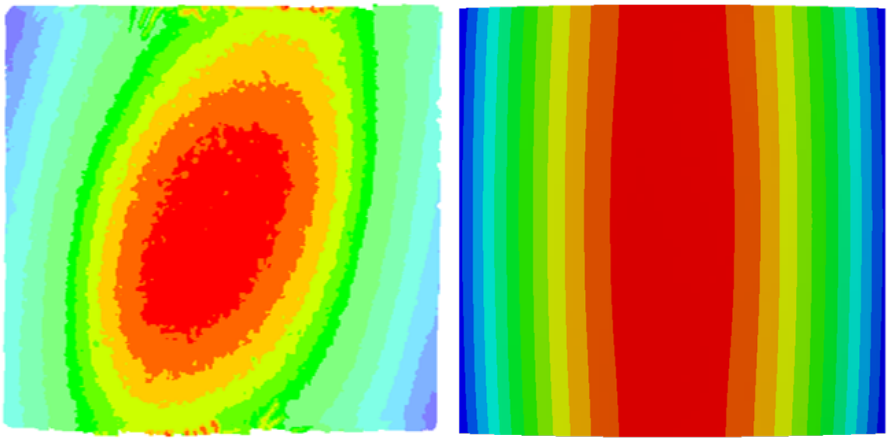


Figure 4.12 – Comparaison entre les mesures expérimentales et les simulations des gauchissements post-cuisson des pièces co-collées

La simulation des assemblages co-collés est effectuée comme définit dans la partie 4.2.2. La méthode de modélisation simplifiée à deux steps est utilisée. Chaque pli de colle est modélisé avec deux éléments dans l'épaisseur. La comparaison entre les mesures de gauchissement et les simulations est illustrée dans la figure 4.12. Comme vu précédemment, la modélisation du co-collage avec un film de colle fournit une erreur relative de 10 %. La modélisation du co-collage avec deux films de colle permet, elle, d'obtenir une erreur relative de 6% avec les mesures expérimentales.

Si la modélisation fournit des résultats satisfaisants pour les co-collage avec films de colle, elle sous-estime largement les distorsions obtenues sans film de colle. Ce phénomène s'explique en observant le profil des distorsions mesurées illustré dans la figure 4.13a. Sans film de colle pour les maintenir et avec la mise en pression lors de la cuisson autoclave, les plaques semblent avoir tendance à glisser au niveau de l'interface plaque crue/plaque cuite, engendrant une dissymétrie d'empilement. Des essais supplémentaires seraient nécessaires pour déterminer plus précisément si ce phénomène est très récurent, lié à des problèmes de drapage ou encore de mise en pression des pièces. Le modèle ne prend évidement pas en compte ce facteur de déformations et sous-estime donc les distorsions de cuisson comme illustré dans la figure 4.12.



(a) Mesures **(b)** Simulation

Figure 4.13 – Comparaison entre la simulation et la mesure du profil de distorsions d'une plaque co-collée sans film de colle

4.4 Suivi des déformations par fibres optiques à réseaux de Bragg

Les mesures effectuées jusqu'ici ne permettent d'obtenir que les distorsions des pièces après cuisson et démoulage. Afin de comprendre plus précisément l'évolution des déformations au cours de la cuisson, il est nécessaire d'effectuer des mesures in-situ durant de cycle de fabrication. La méthode de mesure choisie pour cela est le suivi des déformations par fibres optiques à réseaux de Bragg, notées FBG, et présentées dans la partie 1.4.4.

4.4.1 Fabrication et mesure des déformations de cuisson par FBG

4.4.1.1 Protocole expérimental

Le protocole expérimental mis en place pour permettre le suivi des déformations de cuisson en autoclave par FBG s'appuie grandement sur le travail de thèse effectué par M. Mulle [66].

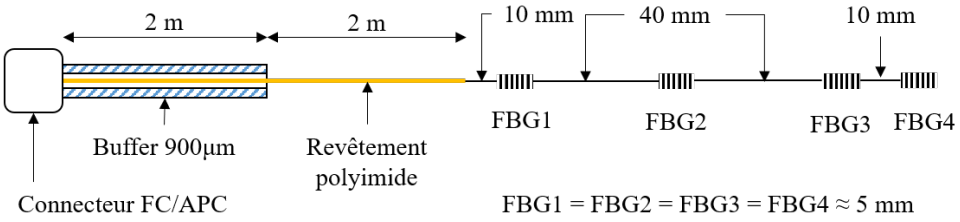


Figure 4.14 – Configuration des fibres optiques produites par iXblue

Les fibres optiques utilisées sont produites par iXblue Photonics. Chaque fibre optique est engravée de quatre réseaux de Bragg comme illustré dans la figure 4.14. Afin d'assurer

un contact direct entre le matériau et la fibre, la partie de la fibre optique placée au sein du composite est complètement dénudée. Cette partie dénudée est extrêmement fragile et doit être manipulée avec la plus grande précaution. Le reste de la fibre est protégé par un revêtement polyimide. Une grande longueur de fibre a été demandée afin de permettre la sortie de l'autoclave et l'accès à l'interrogateur de longueurs d'onde. Les deux derniers mètres de fibres sont situés hors de l'autoclave et sont protégés par un buffer de 900 μm, ce buffer n'est pas utilisé dans l'enceinte de l'autoclave car il ne tient pas en température. Finalement, les fibres sont équipées de connecteurs FC/APC permettant le branchement sur l'interrogateur de longueurs d'onde Si425 produit par MicronOptics.

L'instrumentation en autoclave de pièces par fibres optiques présente plusieurs difficultés, les deux principales étant l'étanchéité de l'autoclave et la tenue des fibres à la mise en pression. Le montage expérimental utilisé est illustré dans la figure 4.15. Afin de protéger la fibre dans l'enceinte de l'autoclave, celle-ci est passée dans une gaine en Téflon qui recouvre la totalité de la FO, exceptée la partie placée dans le composite. Lors de la mise en pression de l'autoclave le moindre angle un peu trop abrupt peut être fatal à la FO. Des rampes sont donc découpées dans des plaques en mosite afin d'accompagner les descentes des FO dès leur sortie des assemblages composites et jusqu'au plateau outillage.

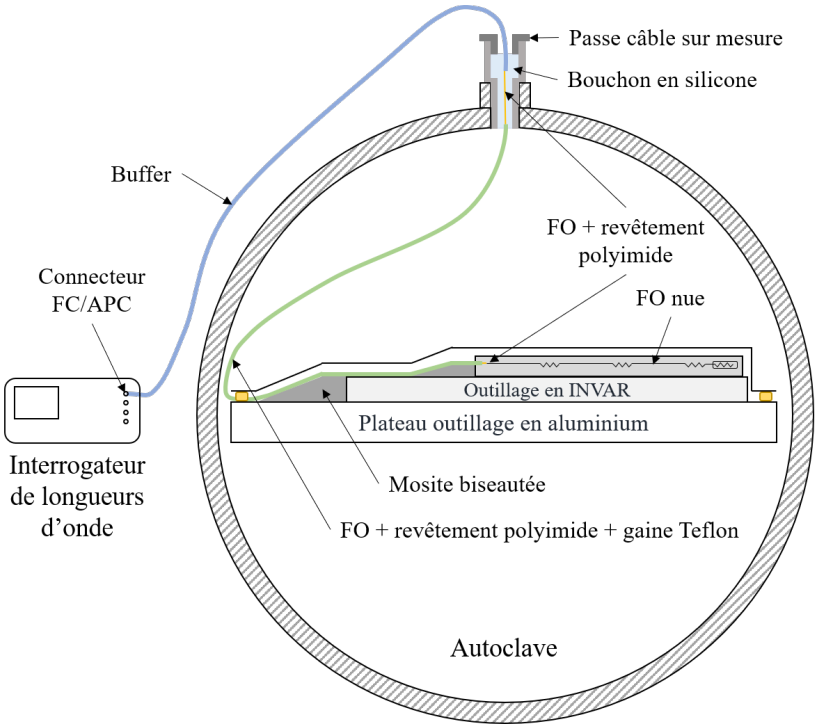


Figure 4.15 – Instrumentation fibres optiques en autoclave

Un passe câble étanche mis au point au cours de la thèse de M. Mulle est utilisé pour permettre l'entrée des FO dans l'autoclave. Un bouchon de silicone Bluesil RTV 3428 est coulé dans le passe câble autour des fibres et, après séchage, est compressé par un système de vis creuse comme illustré dans la figure 4.16. Afin d'éviter toute fuite par les gaines de protection seul un centimètre de la gaine en Téflon et du buffer sont inclus

dans le bouchon en silicone, le reste de la fibre dans le silicone entre les deux gaines n'est protégé que par le revêtement polyimide.

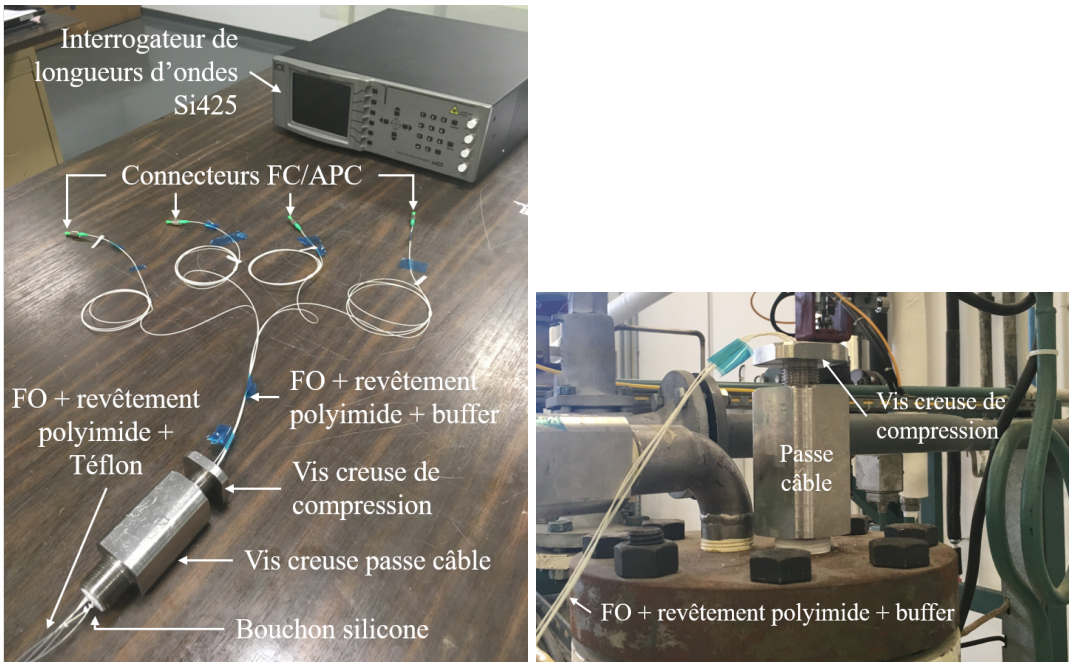
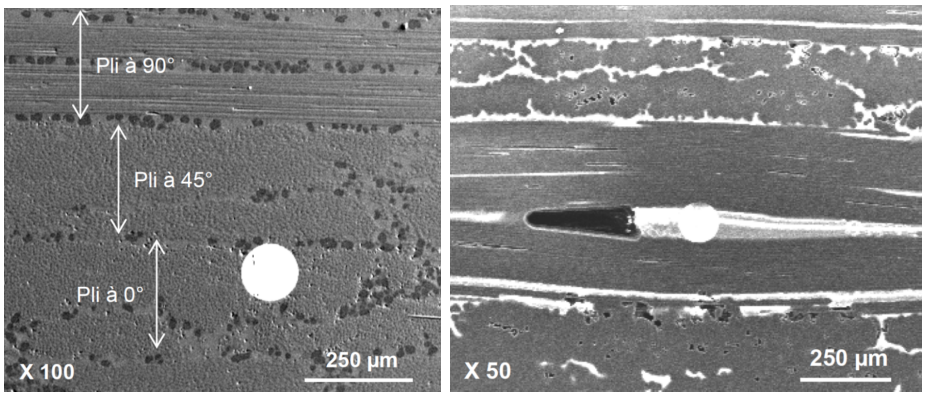


Figure 4.16 – Passe câble pour FO

4.4.1.2 Assemblages instrumentés

L'objectif de ce suivi des déformations est d'obtenir une meilleure compréhension de l'influence de l'adhésif sur les déformations de cuisson. L'idée est donc de comparer les gradients de déformations qui se développent dans l'épaisseur et dans le plan de deux types d'éprouvettes co-collées, une avec et une sans film de colle.



(a) FO parallèle aux fibres **(b)** FO perpendiculaire aux fibres

Figure 4.17 – Images MEB de FO dénudées insérées parallèlement et perpendiculairement aux fibres dans un composite M21/T700 provenant des travaux de thèse de M. Mulle [66]

Les FO doivent être placées parallèlement aux fibres de carbone du préimprégné. En effet, d'après les travaux de M. Mulle [66], les FO positionnées perpendiculairement aux fibres de carbone causent l'apparition d'une accumulation de résine en forme d'œil ainsi qu'un manque de matière comme illustré dans la figure 4.17b. Ces phénomènes ne sont pas visibles lorsque la FO est positionnée parallèlement aux fibres, elle semble être parfaitement incluse dans le matériau comme le montre l'image MEB de la figure 4.17a.

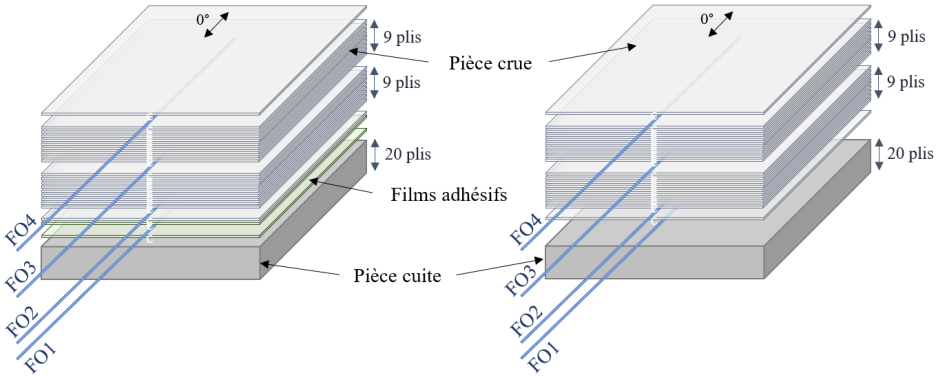


Figure 4.18 – Positionnement des fibres optiques au sein des assemblages

Il a donc été décidé d'instrumenter un assemblage par co-collage de deux plaques unidirectionnelles de 20 plis [0_{20}] de M21EV/IMA. L'instrumentation des deux assemblages est illustrée dans la figure 4.18. Trois fibres sont placées dans le composite cru ; entre le premier et le deuxième pli, au milieu de la plaque entre le dixième et le onzième pli et finalement entre l'avant dernier et le dernier pli. La quatrième FO est placée soit entre les deux plis de colle soit entre la plaque crue et la plaque cuite en fonction de la configuration d'assemblage considérée.

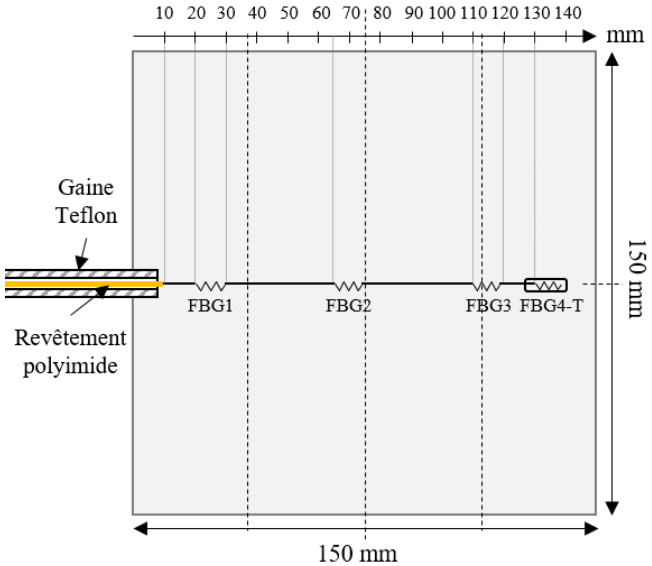


Figure 4.19 – Positionnement des réseaux de Bragg au sein des assemblages

Cette configuration permet de mesurer les gradients dans l'épaisseur de la plaque crue et de la colle. De plus, chaque FO est équipée de quatre réseaux de Bragg qui permettent

de mesurer le gradient des déformations dans le plan. Les réseaux sont positionnés de manière à mesurer les déformations en bord de pièce avec FBG1, en milieu de pièce avec FBG2 et en quart de pièce avec FBG3. Le réseau FBG4-T est encapsulé afin de servir de référence pour soustraire l'effet de la température sur la FO. Ce dernier réseau permet donc également de mesurer la température au sein de la pièce. La position exacte des réseaux est illustrée dans la figure 4.19.

4.4.2 Mesures des déformations de cuisson dans un assemblage co-collé avec deux films de colle

Deux plaques unidirectionnelles de 20 plis $[0_{20}]$ ont donc été instrumentées de FO et co-collées en autoclave à l'aide de deux films de colle. Malheureusement, à cause d'un incident de manipulation, la fibre optique entre l'avant dernier et le dernier pli n'a pu mesurer les déformations qu'avec un unique réseau de Bragg placé en bord de pièce.

Dans un premier temps, le bon fonctionnement des réseaux de Bragg encapsulés (FBG4-T) est vérifié. Ceux-ci ne mesurent que les déformations de la FO dues aux variations de température. En appliquant l'équation 4.4.1 il est possible de calculer la température au sein de la plaque.

$$T = T_i + \Delta T = T_i + \frac{\Delta\lambda_{B4}}{\lambda_{B40} \cdot a} \tag{4.4.1}$$

Avec a le coefficient thermo-élasto-optique de la fibre, λ_{B4-T} la longueur d'onde du réseau de Bragg de FBG4-T encapsulé pour chaque FO et λ_{B40-T} sa longueur d'onde initiale.

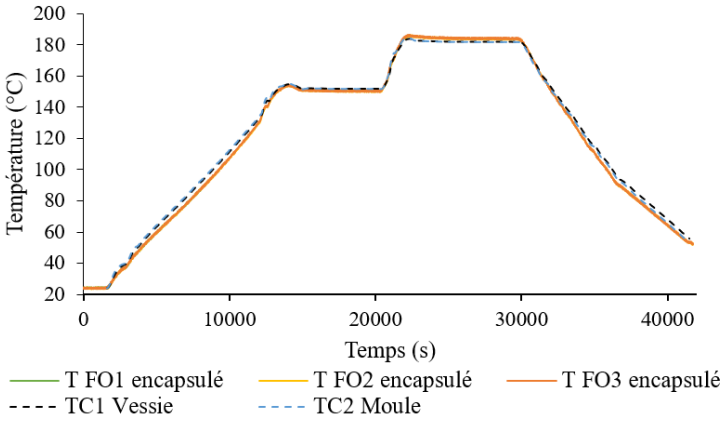
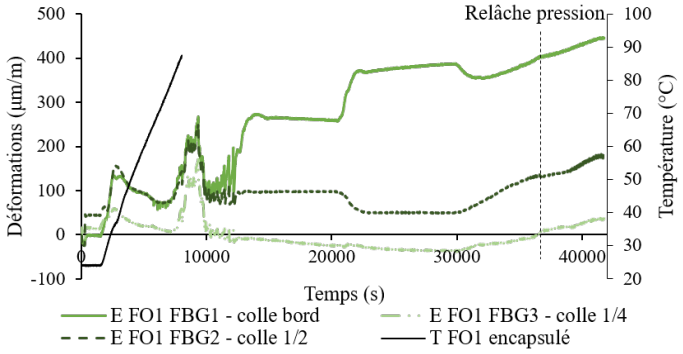


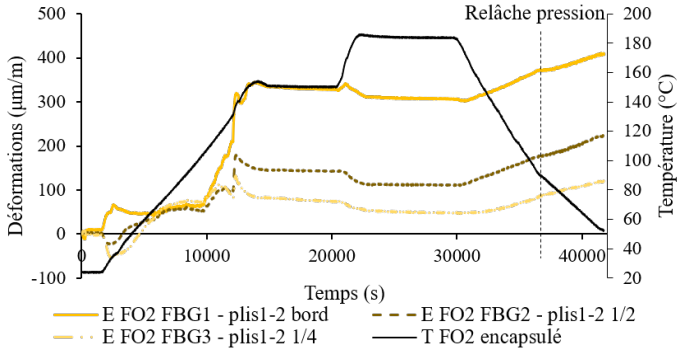
Figure 4.20 – Mesures de température au cours du co-collage avec film de colle par TC et FBG4-T encapsulés

Les mesures de température effectuées par les FBG4-T sont comparées avec les mesures de température obtenues par les thermocouples positionnés sur le sac à vide et sur le moule au cours de cuisson, comme illustré dans la figure 4.20. Les mesures sont cohérentes, l'encapsulage des réseaux a donc tenu et les déformations de cuisson peuvent être calculées en soustrayant l'effet thermique aux mesures effectuées par les réseaux de Bragg nus. Notons que le réseau encapsulé de la FO1 a été rompu en fin de chauffe,

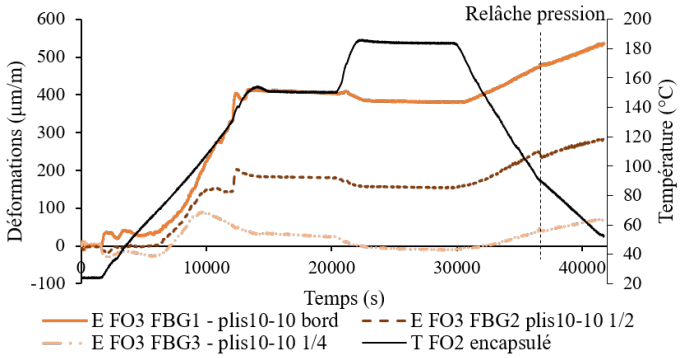
cependant les mesures effectuées sont suffisantes pour extraire le coefficient a et la température subie par la FO1 peut être supposée égale à la température mesurée par la FO2 située deux plis au-dessus.



(a) FO1 - Colle



(b) FO2 - plis 1-2



(c) FO3 - plis 10-11

Figure 4.21 – Comparaison des mesures de déformations par FBG pour chaque FO

La figure 4.21a illustre le développement des déformations mesurées par l'ensemble des réseaux de la FO1 placée entre les deux films de colle, la figure 4.21b le développement des déformations mesurées par l'ensemble des réseaux de la FO2 positionnée entre le 1er et le 2ème pli du stratifié cru, et la figure 4.21c le développement des déformations mesurées par l'ensemble des réseaux de la FO3 positionnée entre le 10ème et le 11ème plis

du stratifié cru. La FO4 positionnée entre le 19ème et le 20ème pli du stratifié cru n'est équipée que d'un unique réseau de Bragg BG1 positionné en bord de plaque à cause d'un incident de manipulation des FO. Pour rappel, les réseaux BG1 sont positionnés en bord de pli, les réseaux BG2 au centre des plis et les réseaux BG3 en quart de pli (voir figure 4.19).

De nombreuses observations peuvent être faites sur ces mesures. La première remarque est que les déformations au sein des plis de colle mesurées par la FO1 sont extrêmement dépendantes de la position des réseaux. Le développement des gradients de déformation dans l'épaisseur de l'assemblage va donc être analysé pour chaque position de réseaux de Bragg.

Notons également que, en observant l'ensemble des mesures de déformation au sein de la colle, le signal mesuré par la FO1 est fortement perturbé pour chaque réseau en début de cycle. Cette perturbation peut être due à la migration de la colle et aux phénomènes de bullage observés au cours du travail de caractérisation présenté dans le Chapitre 2.

4.4.2.1 Mesures en bord d'assemblage

Dans un premier temps, l'évolution des déformations en bord d'assemblage va être étudiée. Ces mesures sont effectuées par les réseaux BG1 de chaque fibre optique et l'ensemble des mesures de ces réseaux est illustré dans la figure 4.22. Il est déjà possible d'observer que la colle en bord de pièce arrive à se dilater thermiquement et à conserver son comportement propre jusqu'à la phase de refroidissement où le comportement des fibres de carbone occasionne une contraction thermique importante.

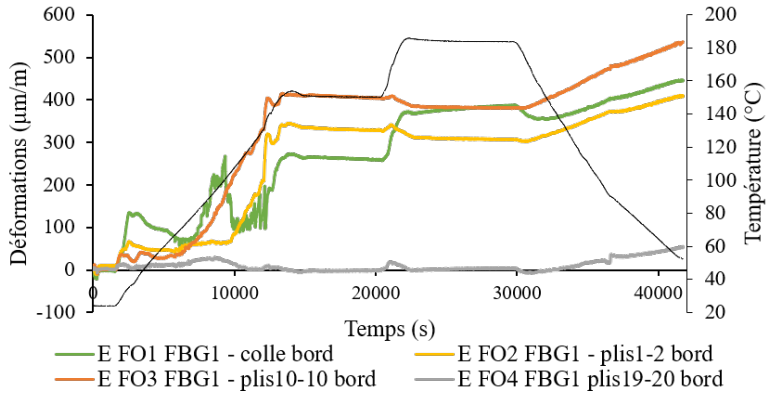


Figure 4.22 – Mesures des déformations par FBG en bord de pièce en fonction du temps

Afin de faciliter l'analyse des déformations, les mesures avant gélification des matériaux sont supprimées et les déformations sont remises à 0 au niveau du point de gel de la colle, c'est à dire en début du premier palier isotherme. Bien que le préimprégné cru n'ait pas encore atteint son point de gel à cet instant du cycle, les mesures paraissent stables et l'hypothèse a été faite que la continuité du déplacement entre les FO et le préimprégné est déjà atteinte. Les mesures obtenues sont illustrées dans la figure 4.23. Pour permettre une meilleure compréhension des différents phénomènes impliqués, les déformations remises à 0 sont également tracées en fonction de la température, comme illustré dans la figure 4.24.

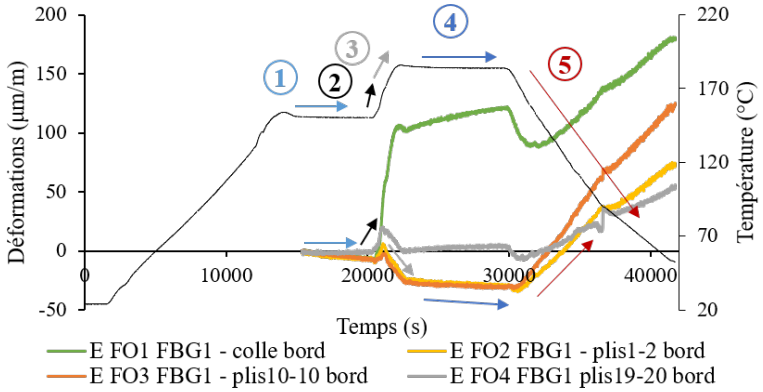
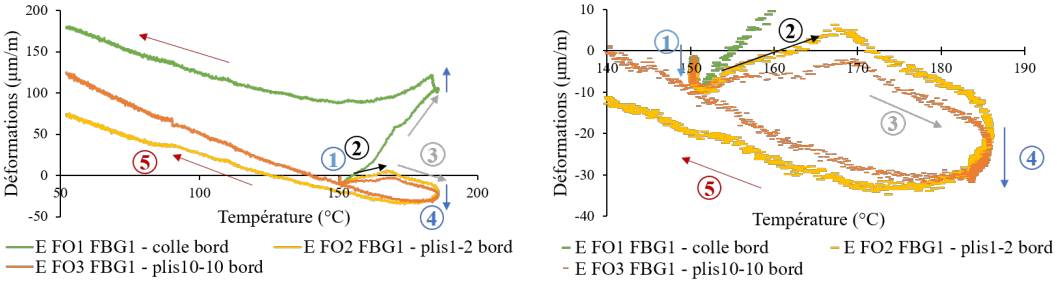


Figure 4.23 – Mesures des déformations par FBG en bord d'assemblage en fonction du temps après remise à 0



(a) Cycle complet **(b)** Grossissement hautes températures

Figure 4.24 – Comparaison des mesures de déformations par FBG en bord d'assemblage en fonction de la température après remise à 0

Les mesures remises à 0 commencent donc avec le premier palier isotherme (zone 1) au cours duquel un léger retrait chimique est observable dans la colle. Le retrait chimique entraine également une diminution des déformations dans le préimprégné. La deuxième rampe de chauffe démarre ensuite (zone 2 et 3) et, tandis que la colle se dilate thermiquement, le préimprégné se contracte dans la direction longitudinale aux fibres de carbone. L'évolution des déformations au cours de cette chauffe peut être divisée en deux zones ; la zone 2 où la dilatation thermique de l'adhésif domine et entraine un gradient de déformations dans la FO2 et 3 et la zone 3 où la contraction thermique des fibres de carbone reprend le dessus au sein du stratifié. Le passage de la zone 2 à 3 correspond au dépassement de la température de transition vitreuse de la colle par la température du cycle de cuisson. La dilatation thermique de la colle mesurée par la FO1 augmente d'ailleurs avec le passage à l'état caoutchoutique. Ce passage de la T_g s'accompagne aussi d'une diminution des propriétés mécaniques de la colle ce qui peut expliquer le changement de comportement au sein du stratifié. Au cours du deuxième palier isotherme (zone 4), la colle entièrement réticulée ne présente pas de retrait chimique et ses déformations augmentent légèrement, probablement à cause d'un phénomène de relaxation. Finalement le refroidissement commence (zone 5), la

colle subit une contraction thermique en début de rampe qui entraine un gradient de déformations au sein du préimprégné, puis la dilatation thermique des fibres de carbone prend le dessus et entraine la colle.

Le comportement de la FO4 entre les plis 19 et 20 en bord de pièce laisse supposer qu'elle est influencée par le comportement de la colle, vu sa position éloignée du film on peut faire l'hypothèse qu'elle est incluse dans l'une des zones de migration de la colle.

4.4.2.2 Mesures en quart d'assemblage

Les déformations mesurées au quart de l'assemblage par les réseaux BG3 sont illustrées dans la figure 4.25. Les réseaux BG3 positionnés en quart de pièces mesurent un comportement intermédiaire entre les observations effectuées au centre et au bord de la pièce. Le comportement du film de colle se rapproche de celui du préimprégné cru, il n'est pas libre de se dilater thermiquement et suit partiellement les contractions thermiques des fibres de carbone.

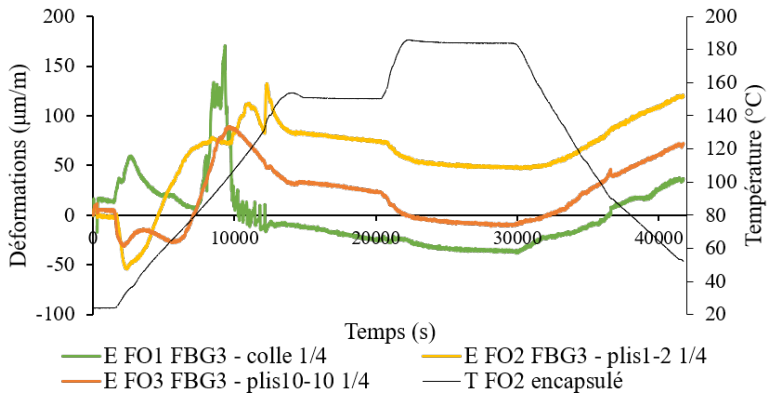


Figure 4.25 – Mesures des déformations par FBG en quart de pièce en fonction du temps

Comme précédemment, afin de faciliter l'analyse des gradients de déformations, celles-ci sont remises à 0 au niveau du point de gel de la colle, c'est à dire en début du premier palier isotherme. Les résultats sont illustrés dans la figure 4.26. De même, les variations de déformations sont tracées en fonction de la température dans la figure 4.27 afin de faciliter l'analyse des phénomènes entrant en jeu.

Le retrait chimique occasionné par la réticulation de l'adhésif est visible durant le premier palier isotherme (zone 1) puis les déformations au sein de la colle se stabilisent. Le comportement de la colle génère un gradient des déformations dans l'épaisseur du stratifié cru. Lors de la seconde rampe de chauffe (zone 2) les plis du préimprégné cru se contractent. Le préimprégné cru est à l'état caoutchoutique et le préimprégné cuit est à l'état vitreux. La contraction thermique est donc plus conséquente dans le stratifié cru, un gradient de déformations apparait donc dans l'épaisseur du stratifié, plus les BG sont proches du stratifié cuit moins la contraction thermique est importante. Durant le second palier (zone3), il y a de nouveau un léger retrait chimique. Finalement, au cours du refroidissement (zone 4) le préimprégné se contracte thermiquement. Les deux stratifiés atteignent l'état cuit, leurs CTE sont les mêmes et les contractions thermiques deviennent donc équivalentes dans toute l'épaisseur du stratifié.

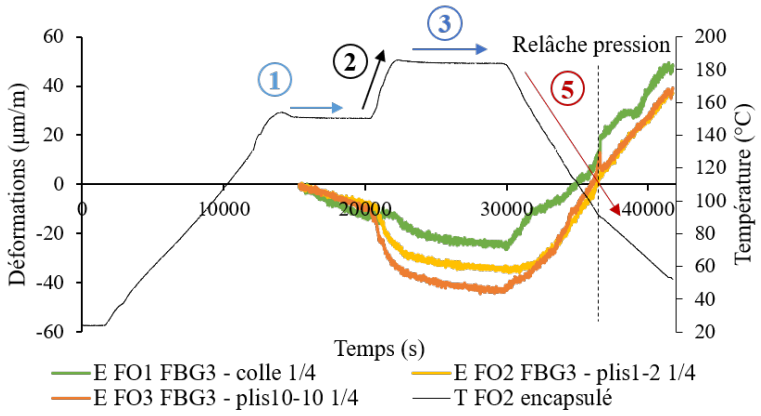
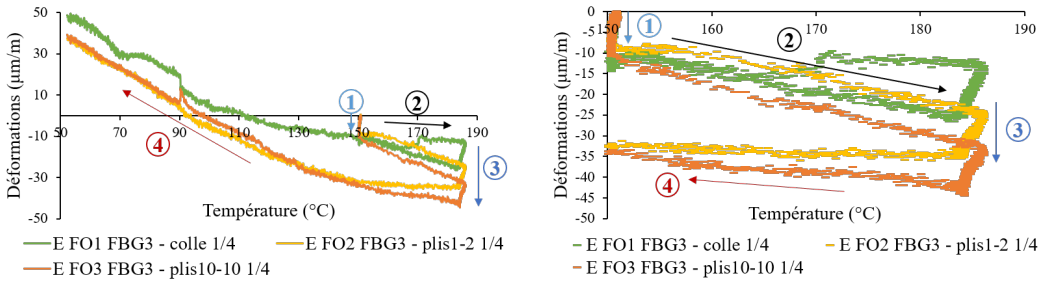


Figure 4.26 – Mesures des déformations par FBG en quart d'assemblage en fonction du temps après remise à 0



(a) Cycle complet **(b)** Grossissement hautes températures

Figure 4.27 – Comparaison des mesures de déformations par FBG en quart d'assemblage en fonction de la température après remise à 0

4.4.2.3 Mesures en milieu d'assemblage

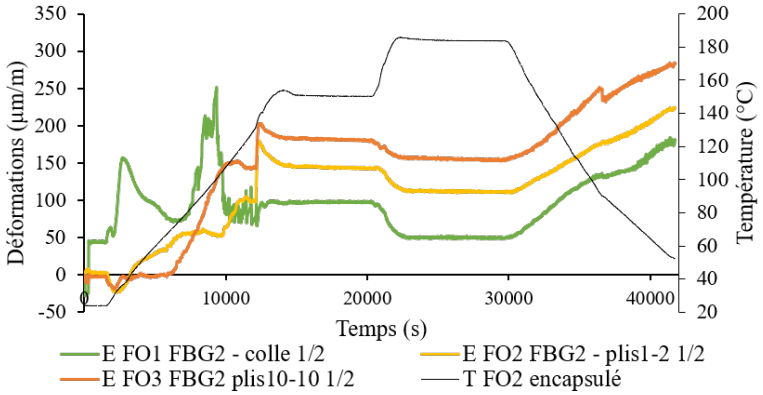


Figure 4.28 – Mesures des déformations par FBG au centre de la pièce

Les déformations mesurées au centre de l'assemblage par les réseaux BG2 sont illustrés dans la figure 4.28 et diffèrent des observations en bord et en quart d'assemblage. La colle présente un comportement qui semble proche de celui du préimprégné cuit dans la direction des fibres de carbone. Dans cette zone de l'assemblage positionnée en cœur de pièce, la colle est fortement influencée par les stratifiés composites qui l'enserrent.

Comme précédemment, afin de faciliter l'analyse des gradients de déformations, les déformations sont remises à 0 au niveau du point de gel de la colle, c'est à dire en début du premier palier isotherme. Les résultats sont illustrés dans la figure 4.29. Une fois de plus les déformations remises à 0 sont également tracées en fonction de la température, comme illustré dans la figure 4.30, afin de faciliter l'analyse des phénomènes impliqués.

Le gradient observé est l'opposé de celui mesuré en quart de pièce. La contraction de la colle génère alors un gradient de déformations dans l'épaisseur du stratifié. Lors du deuxième palier et du refroidissement (zone 3 et 4), il y a très peu de retrait chimique et la contraction thermique suit le comportement vitreux du préimprégné.

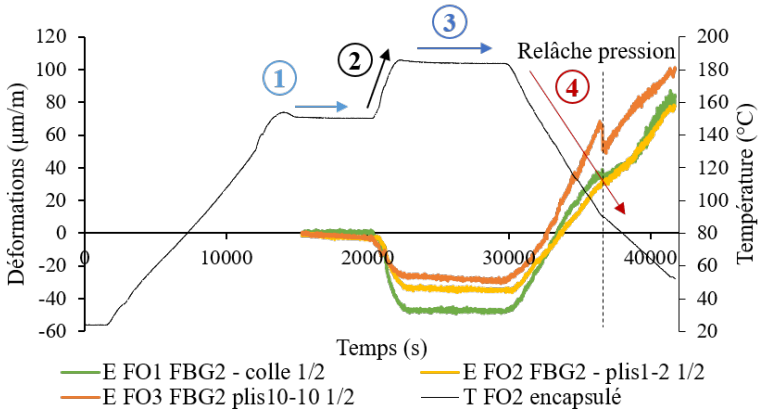
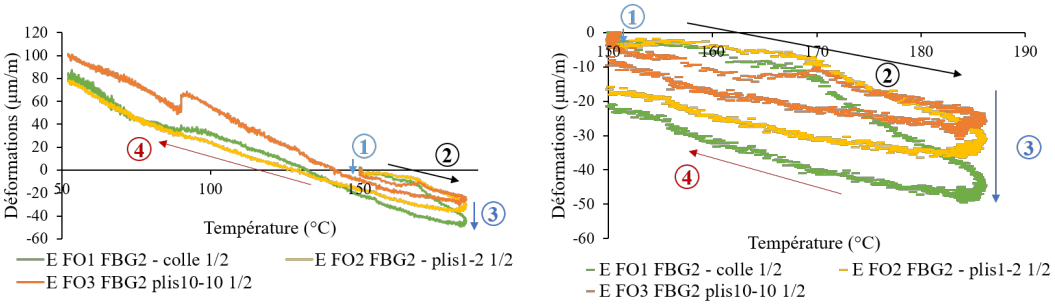


Figure 4.29 – Mesures des déformations par FBG en milieu d'assemblage en fonction du temps après remise à 0

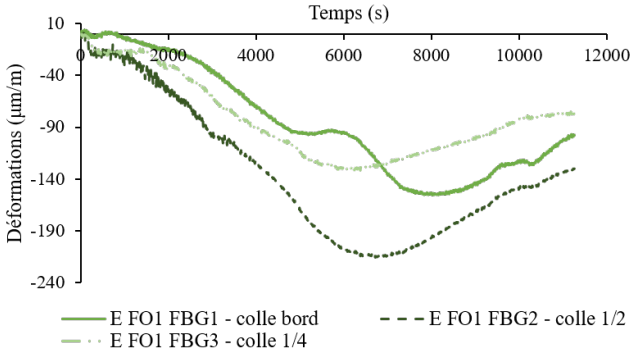


(a) Cycle complet **(b)** Grossissement hautes températures

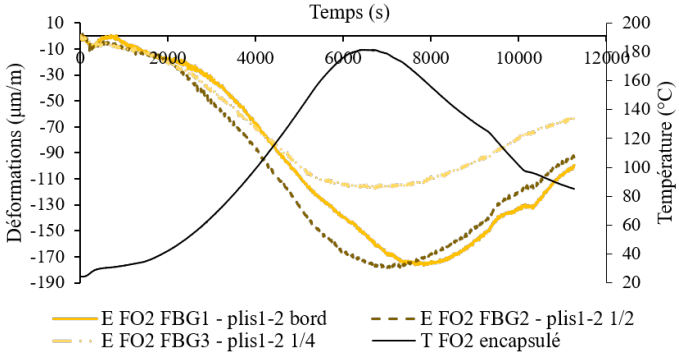
Figure 4.30 – Comparaison des mesures de déformations par FBG en milieu d'assemblage en fonction de la température après remise à 0

4.4.2.4 Comportement post-cuisson et coefficients de dilatation thermique

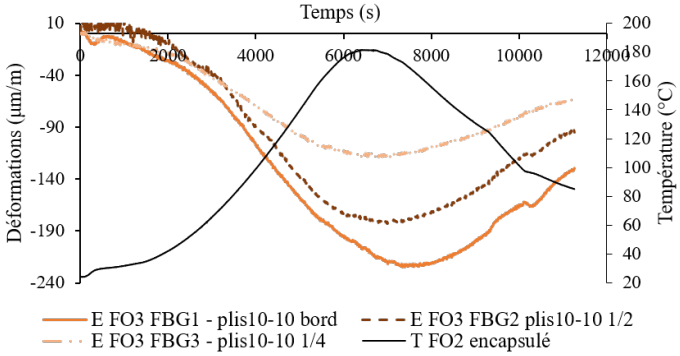
Après cuisson en autoclave, l'assemblage a été démoulé et soumis à une rampe de chauffe allant de 20°C à 190°C à une vitesse de 2°C/min. Les mesures par FBG permettent de d'étudier le comportement en température post-cuisson et de comparer les résultats obtenus aux mesures faites par TMA sur des éprouvettes cuites (voir Chapitre 2). Les résultats obtenus pour chaque FO sont illustrés dans la figure 4.31.



(a) FO1 - Colle



(b) FO2 - plis 1-2



(c) FO3 - plis 10-11

Figure 4.31 – Comparaison des mesures de déformations par FBG pour chaque FO lors d'une rampe post-cuisson

Les changements du comportement de la colle entre le bord et le centre des films adhésifs sont une fois de plus visibles. Des gradients sont également observables dans les plans des plis 1-2 et 10-11. Une fois de plus, les variations de déformations sont tracées en fonction de la température.

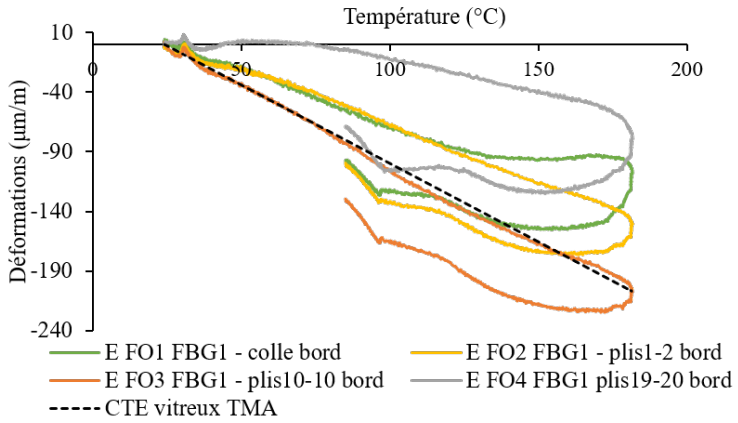


Figure 4.32 – Mesures des déformations en fonction de la température par FBG en bord d'assemblage lors d'une rampe post-cuisson

La comparaison des déformations en bord de plaque est illustrée dans la figure 4.32. Les gradients observés au cours du cycle sont retrouvés au cours de cette rampe post-cuisson. L'adhésif présente un comportement intermédiaire entre la contraction thermique du preimprégné adjacent et sa propre dilatation thermique. Un changement de pente est observable à l'approche du passage de la température de transition vitreuse de l'adhésif ; le CTE caoutchoutique étant plus élevé que le CTE vitreux la dilatation thermique de l'adhésif prend le dessus sur la contraction thermique des stratifiés. Les coefficients de dilatation associés aux contractions thermiques mesurées par les réseaux peuvent être calculés. Les coefficients obtenus entre les plis 10 et 11 correspondent à 98% du CTE^{vitr} mesuré par TMA et ceux mesurés entre les plis 1 et 2 et au niveau des films de colle avant le passage de la T_g correspondent à 74% du CTE^{vitr}. La colle limite donc les déformations thermiques du stratifié.

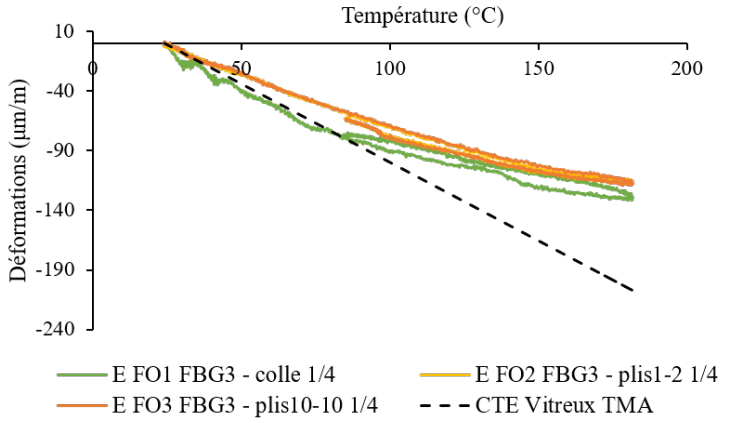


Figure 4.33 – Mesures des déformations en fonction de la température par FBG en quart d'assemblage lors d'une rampe post-cuisson

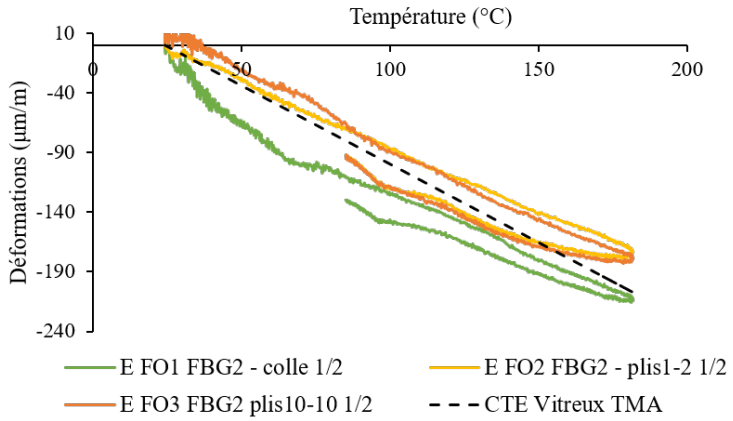


Figure 4.34 – Mesures des déformations en fonction de la température par FBG en milieu d'assemblage lors d'une rampe post-cuisson

Les figures 4.33 et 4.34 illustrent l'évolution des déformations en milieu et en quart de plaque en fonction de la température. Cette fois-ci les déformations mesurées entre les plis 1 et 2 et les plis 10 et 11 sont très proches. Par contre les déformations mesurées s'éloignent des CTE^{vitr} mesurés par TMA, en particulier pour les déformations observées par les réseaux en quart de pièce. Le film adhésif a toujours une contraction plus importante que le stratifié. Cela confirme les mesures obtenues au cours du cycle en milieu de plaque (voir figure 4.29) où la contraction du film de colle au cours des rampes thermiques était plus importante que celle du stratifié.

4.4.3 Mesures des déformations de cuisson dans un assemblage co-collé sans film de colle

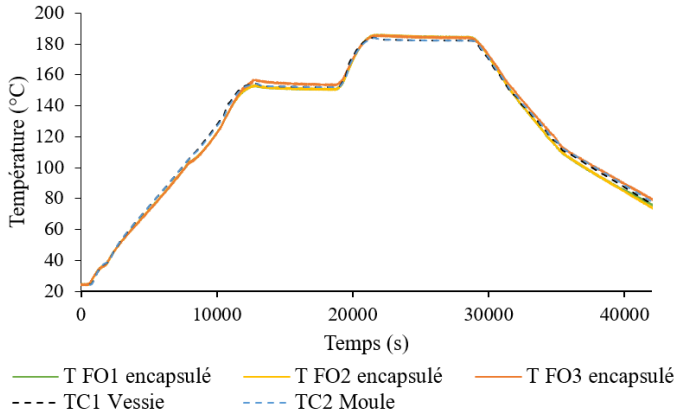
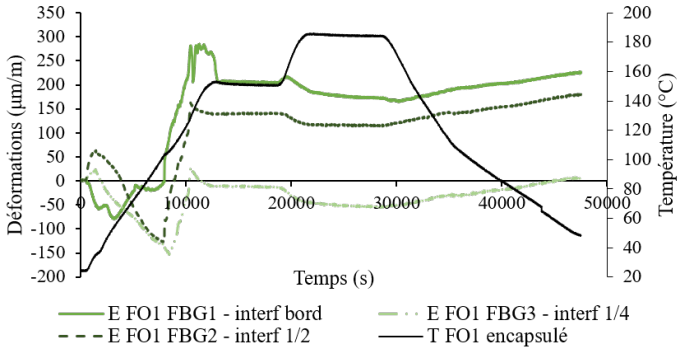


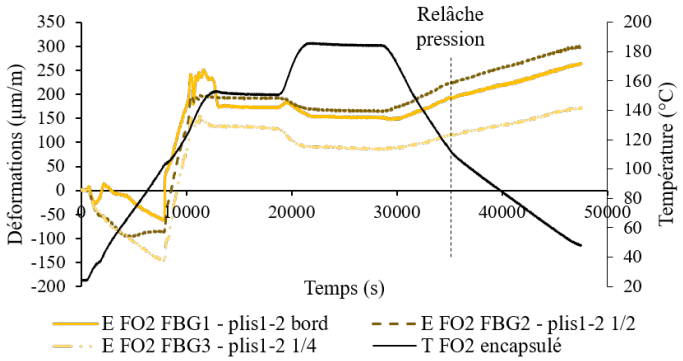
Figure 4.35 – Mesures de température au cours du co-collage sans film de colle par TC et FBG4-T encapsulés

L'assemblage co-collé instrumenté sans adhésif va maintenant être étudié. Une fois de plus le bon fonctionnement des réseaux encapsulés est vérifié en comparant les mesures

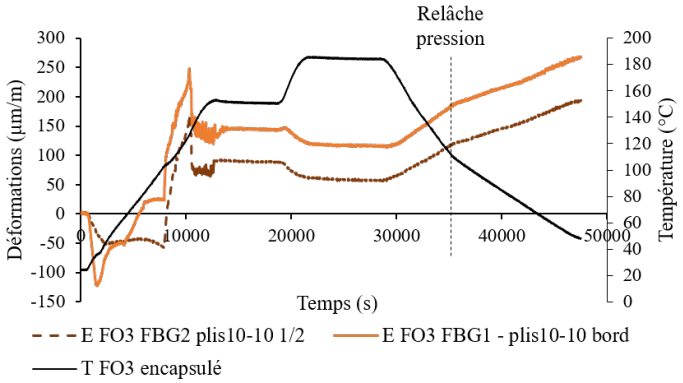
de température obtenues par les FBG4-T à celles mesurées par les thermocouples au cours du cycle autoclave, comme illustré dans la figure 4.35.



(a) FO1 - Interface



(b) FO2 - plis 1-2



(c) FO3 - plis 10-11

Figure 4.36 – Comparaison des mesures de déformations par FBG pour chaque FO pour le co-collage sans film

La figure 4.36a illustre le développement des déformations mesurées par l'ensemble des réseaux de la FO1 placée directement entre le stratifié cuit et le stratifie cru, la figure 4.36b le développement des déformations mesurées par l'ensemble des réseaux de la FO2 positionnée entre le 1er et le 2ème pli, et la figure 4.36c le développement des déformations mesurées par l'ensemble des réseaux de la FO3 positionnée entre le 10ème et le 11ème pli du stratifié cru. L'acquisition des mesures de la fibre optique placée entre

l'avant dernier et le dernier pli a été partielle et seuls les résultats clairsemés obtenus au niveau du réseau BG2 ont pu être exploités. De même, le BG3 de la FO3 était défaillant et n'a donc pas été exploité.

Les déformations devraient, dans ce cas d'assemblage, ne dépendre que des propriétés du préimprégné cuit et cru. Cependant, le comportement des déformations mesurées à l'interface laisse à penser que cette zone se charge en résine. En effet, au cours du deuxième palier isotherme, un retrait chimique notable est observé et la dilatation thermique au cours du refroidissement est fortement atténuée par rapport au reste du stratifié. Afin de vérifier cela, des images de l'interface ont été effectuées au microscope optique comme illustré dans la figure 4.37. On observe bien une accumulation de résine au niveau de l'interface qui est donc susceptible d'influer sur les déformations mesurées par la fibre optique.

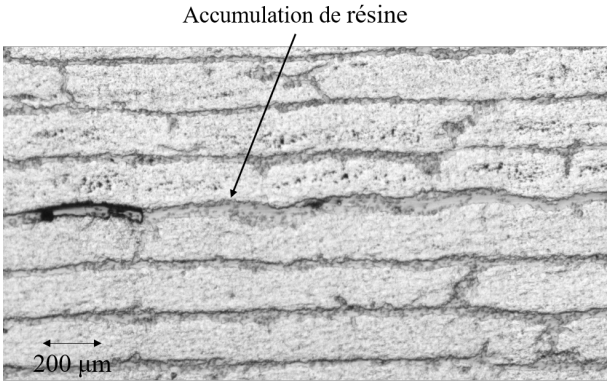


Figure 4.37 – Image par microscopie optique de l'interface plaque cuite/plaque crue lors d'un co-collage sans film adhésif

4.4.3.1 Mesures en bord d'assemblage

La figure 4.38 illustre le développement des déformations dans l'épaisseur de l'assemblage mesurées par chaque FO en bord de pièce.

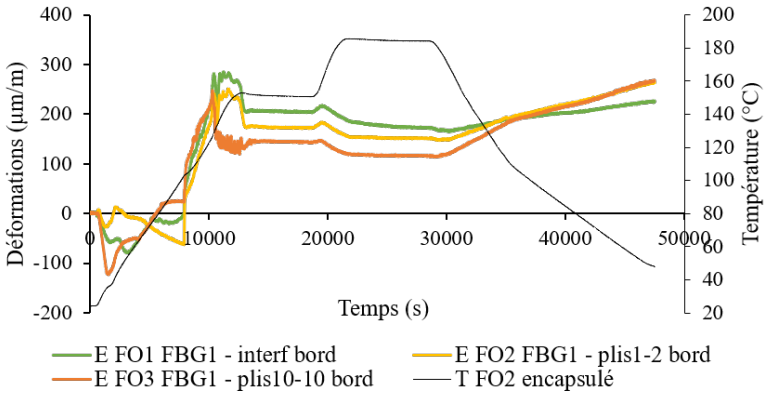


Figure 4.38 – Mesures des déformations par FBG en bord d'assemblage sans colle en fonction du temps

Comme vu précédemment, afin de faciliter l'analyse des déformations, celles-ci sont remises à 0 au début du premier palier isotherme. Les mesures obtenues sont illustrées dans la figure 4.39. Pour permettre une meilleure compréhension des différents phénomènes impliqués, les déformations remises à 0 sont également tracées en fonction de la température, comme illustré dans la figure 4.40.

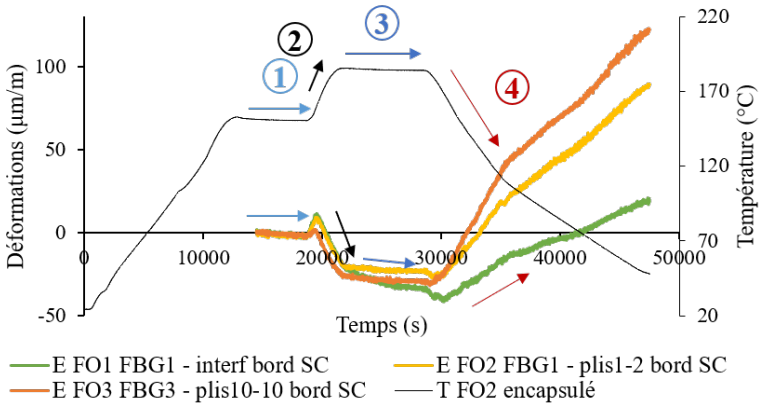


Figure 4.39 – Mesures des déformations par FBG en bord d'assemblage sans colle en fonction du temps après remise à 0

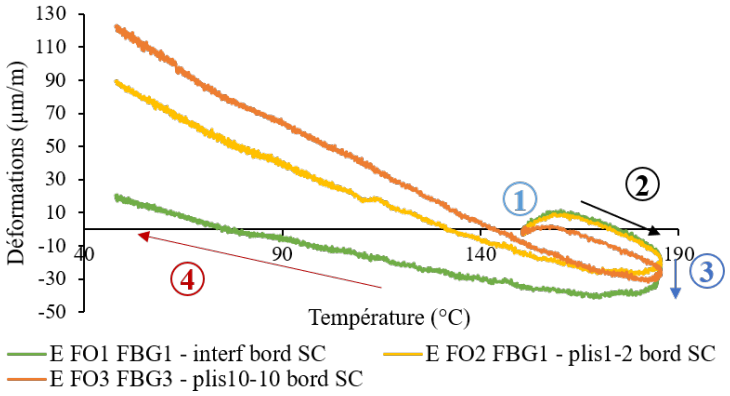


Figure 4.40 – Mesures des déformations par FBG en bord d'assemblage sans colle en fonction de la température après remise à 0

Le premier phénomène notable pour ces mesures en bord de pièce a lieu au cours de la deuxième rampe de chauffe (zone 2). Une légère dilatation thermique est observable au niveau de l'interface, celle-ci entraine un gradient de déformation dans l'épaisseur du stratifié. Rapidement après le début de cette rampe thermique, la contraction thermique des stratifiés dans la direction longitudinale aux fibres prend le dessus. Comme vu précédemment, la contraction thermique du stratifié cru caoutchoutique est plus importante que celle du stratifié cuit. Ainsi, plus les mesures sont effectuées loin de l'interface avec le stratifié cuit, plus la contraction thermique est importante. Au cours du palier isotherme (zone 3) un retrait chimique notable a lieu à l'interface qui confirme l'idée que cette zone est plus riche en résine. Finalement, au cours du refroidissement, la

diminution de la contraction thermique à l'interface entre les deux stratifiés occasionne un gradient de déformations dans l'épaisseur du stratifié cru.

4.4.3.2 Mesures en milieu d'assemblage

La figure 4.41 illustre le développement des déformations dans l'épaisseur de l'assemblage mesurées par chaque FO en milieu de pièce.

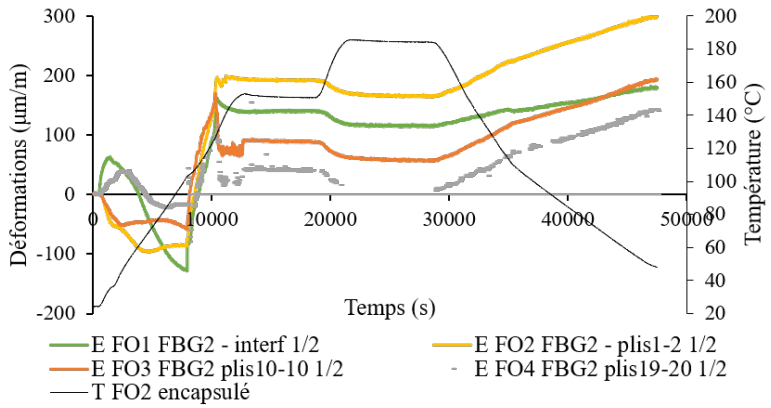


Figure 4.41 – Mesures des déformations par FBG en milieu d'assemblage sans colle en fonction du temps

Encore une fois, afin de faciliter l'analyse des déformations, les déformations sont remises à 0 au début du premier palier isotherme. Les mesures obtenues sont illustrées dans la figure 4.42. Pour permettre une meilleure compréhension des différents phénomènes impliqués les déformations remises à 0 sont également tracées en fonction de la température, comme illustré dans la figure 4.43.

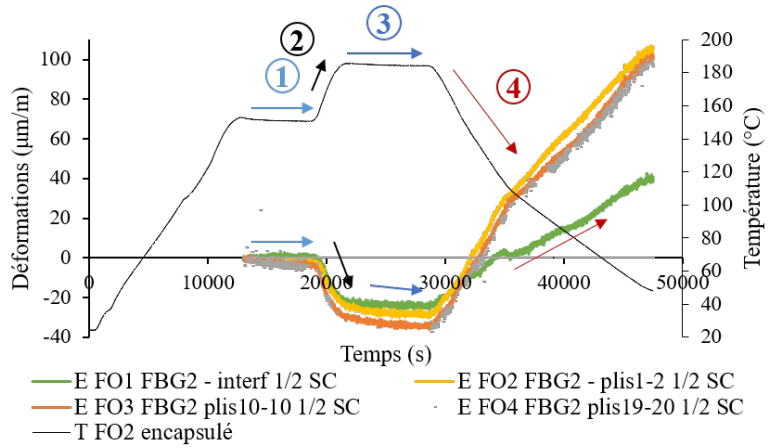


Figure 4.42 – Mesures des déformations par FBG en milieu d'assemblage sans colle en fonction du temps après remise à 0

Cette fois-ci, l'interface ne subit pas un retrait chimique important. Au cours du premier palier isotherme (zone 1) c'est le léger retrait chimique du stratifié cru qui induit un gradient de déformation, plus le réseau est proche du stratifié cuit entièrement

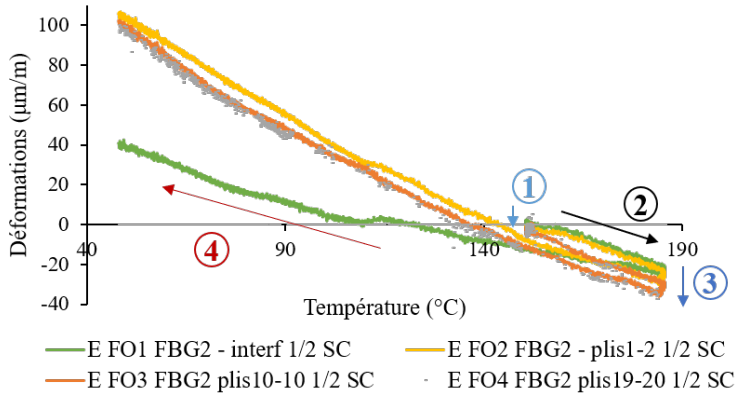


Figure 4.43 – Mesures des déformations par FBG en milieu d'assemblage sans colle en fonction de la température après remise à 0

réticulé, moins les déformations occasionnées par le retrait chimique sont importantes. Au cours de la deuxième rampe de chauffe (zone 2) l'effet de la contraction thermique caoutchoutique du stratifié cru est de nouveau observable, celui-ci accentue le gradient déjà initié au cours du premier palier. Au cours du deuxième palier isotherme (zone 3) l'effet du retrait chimique s'accentue. Finalement, le refroidissement commence (zone 4), les stratifiés sont alors tous les deux des matériaux cuits vitreux, leurs CTE sont les mêmes. L'interface présente une fois de plus une contraction thermique atténuée par rapport aux mesures effectuées dans les stratifiés.

4.4.3.3 Mesures en quart d'assemblage

La figure 4.44 illustre le développement des déformations dans l'épaisseur de l'assemblage mesurées par chaque FO en quart de pièce. Comme vu plus haut, à cause de divers incidents seuls les réseaux de la FO1 et 2 sont ici exploitables.

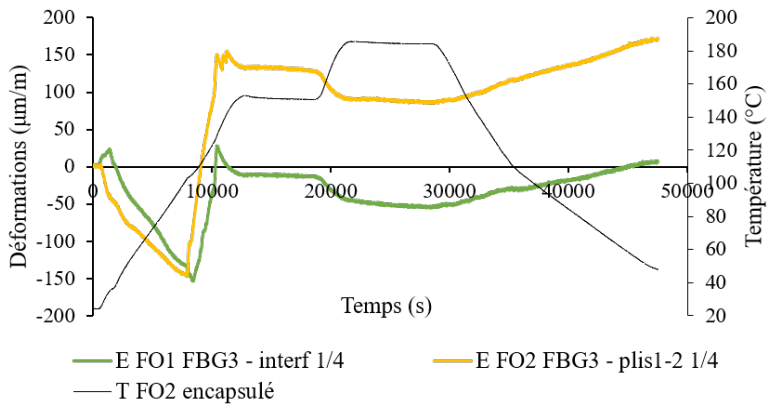


Figure 4.44 – Mesures des déformations par FBG en quart d'assemblage sans colle en fonction du temps

Encore une fois, afin de faciliter l'analyse des déformations, celles-ci sont remises à 0 au début du premier palier isotherme. Les mesures obtenues sont illustrées dans la figure 4.45. Pour permettre une meilleure compréhension des différents phénomènes impliqués les déformations remises à 0 sont également tracées en fonction de la température, comme illustré dans la figure 4.46.

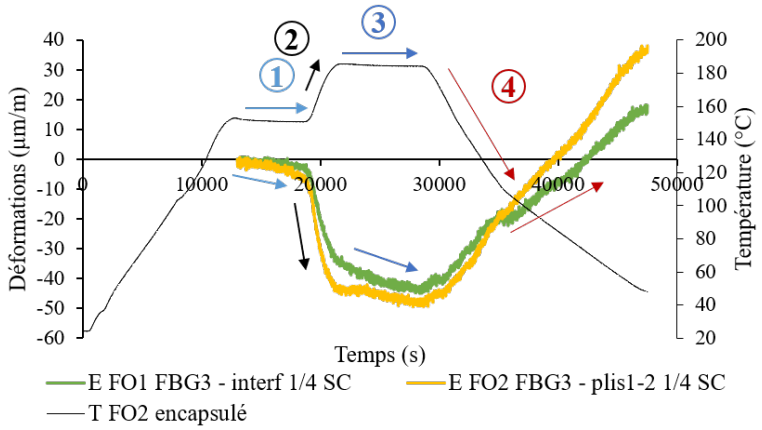


Figure 4.45 – Mesures des déformations par FBG en quart d'assemblage sans colle en fonction du temps après remise à 0

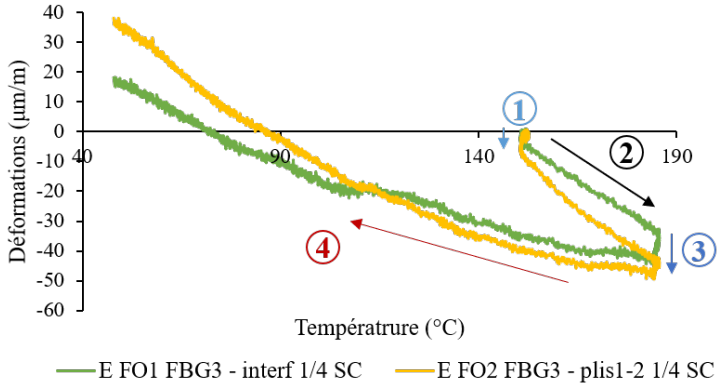
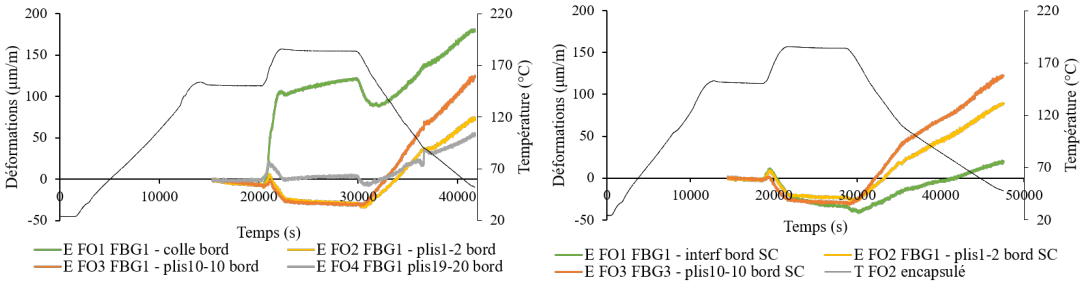


Figure 4.46 – Mesures des déformations par FBG en quart d'assemblage sans colle en fonction de la température après remise à 0

L'évolution des déformations en quart de pièce suit les mêmes phénomènes qu'en milieu de pièce. Ces phénomènes sont cependant exacerbés et occasionnent des gradients de déformations plus importants. Cette augmentation des déformations en quart de pièce est en accord avec la simulation.

4.4.4 Comparaison du développement des déformations mesurées au sein des assemblages co-collés

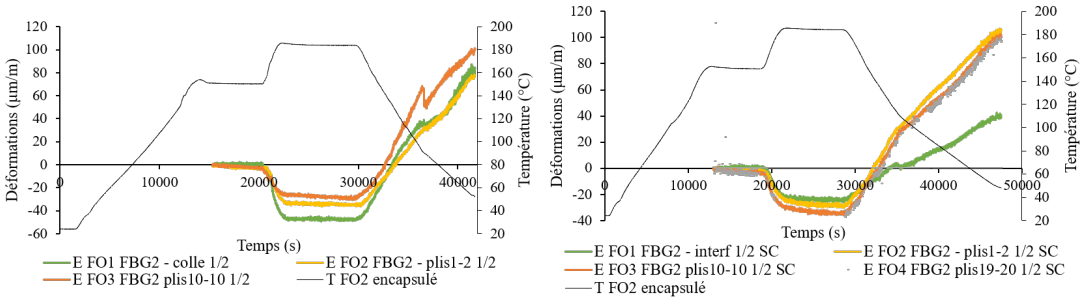
Les résultats des mesures de déformations vont à présent être comparés entre l'assemblage avec et sans film de colle. Afin de faciliter la comparaison, ce travail est effectué sur les déformations remises à 0 au début du premier palier isotherme.



(a) Avec colle **(b)** Sans colle

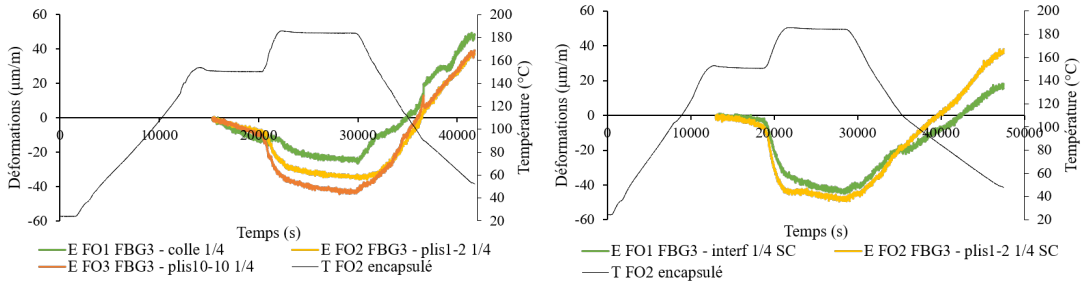
Figure 4.47 – Comparaison des mesures de déformations par FBG en bord de pièce en fonction du temps

En bord de pièces les deux types d'assemblages sont influencés par la résine présente à l'interface, que ce soit la colle ou le surplus de M21EV. Des gradients de déformations sont donc visibles pour les deux types de co-collages, en particulier au cours du refroidissement.



(a) Avec colle **(b)** Sans colle

Figure 4.48 – Comparaison des mesures de déformations par FBG au centre de la pièce en fonction du temps



(a) Avec colle **(b)** Sans colle

Figure 4.49 – Comparaison des mesures de déformations par FBG en quart de pièce en fonction du temps

Les gradients de déformations dans l'épaisseur des assemblages au centre des pièces sont différents entre le cas avec et sans film de colle, comme l'illustre la figure 4.48.

Sans film de colle, le coefficient de dilatation thermique du stratifié cru à l'état caoutchoutique étant supérieur à celui du stratifié réticulé à l'état vitreux, les plis les plus éloignés de l'interface se contractent plus au cours de la deuxième rampe de chauffe. C'est un phénomène qui est retranscrit dans la simulation ; il est très faible en bord de pièce, il commence à être significatif en milieu de pièce mais c'est en quart de pièce qu'il est le plus impactant.

Dans le cas de l'assemblage avec film de colle, on retrouve en quart de pièce et en bord de pièce des comportements en déformation à peu près équivalents au cours de cette deuxième rampe de chauffe. Cependant, les gradients de déformations générés en cœur de pièce sont très différents, en effet dans le cas d'un co-collage avec adhésif, la contraction au cours de la rampe thermique augmente en s'approchant de l'interface.

Ces mesures de déformations montrent bien que la colle a une influence sur les développements des déformations au cours de la cuisson. Elles mettent en évidence de nombreux phénomènes dont une partie ne sont malheureusement pas pris en compte pas le modèle développé.

Conclusion

Ce dernier chapitre a permis de mettre en avant le comportement complexe des assemblages collés. Le film adhésif a bien un impact direct sur les déformations de cuisson et ne peut pas être ignoré.

Le modèle développé, bien qu'il parvienne dans certaines configurations à fournir des résultats satisfaisants, ne permet pas de capter l'ensemble des phénomènes qui entrent en jeu. En particulier, les effets de migration de la colle, de glissement inter-plaques ou encore d'accumulation de résine à aux interfaces ne sont pas pris en compte avec le modèle actuel.

Ce chapitre fournit néanmoins de nombreuses données expérimentales qui pourront être exploitées afin d'améliorer ce modèle. Les études des différentes interfaces de collage, de l'influence des méthodes d'assemblages et du nombre de films adhésifs utilisés ont permis de mettre en avant certains des facteurs influant sur les déformations de cuisson. Le suivi in-situ des déformations permet lui de comprendre un peu mieux les phénomènes impliqués au cours de ces assemblages. Les nombreuses données obtenues au cours de ces mesures par fibres optiques à réseaux de Bragg pourront, dans le futur, être analysées plus profondément afin d'enrichir notre compréhension du comportement des assemblages collés en cours de cuisson.

Conclusion générale et perspectives

Le travail de thèse présenté dans ce manuscrit a été consacré à l'étude des déformations de cuisson des pièces composites à matrice thermodurcissable co-collées en autoclave. L'objectif était donc de développer un outil de simulation des distorsions de cuisson adapté à ces structures. Les matériaux utilisés pour cette étude ont été déterminés par le contexte industriel de la thèse, il s'agissait donc du préimprégné M21EV/IMA et de l'adhésif FM300-M.

L'étude bibliographique menée au cours du Chapitre 1 a mis en évidence que les phénomènes responsables des déformations de cuisson étaient multi-physiques et complexes. Leur prédiction par la simulation s'accompagne d'un travail important de caractérisation des propriétés matériaux au cours de leur cuisson. Les comportements matériaux clefs pour la mise en place d'un outil de simulation sont liés à la thermocinétique des résines, aux changements de phases physicochimiques associées, aux propriétés thermochimiques responsables de la dilatation thermique et du retrait chimique des matériaux et finalement, au développement des propriétés thermomécaniques au cours de la cuisson. C'est donc un travail de caractérisation lourd qui demande la mise en place d'essais adaptés afin de décorréler l'influence de chaque phénomène.

Cette étude bibliographique a également permis de remarquer que, si les déformations de cuisson en autoclave des préimprégnés avaient fait l'objet de nombreuses recherches, l'influence de l'adhésif sur les assemblages collés en autoclave restait peu étudiée. Un certain nombre d'études ont néanmoins été effectuées sur des assemblages hors autoclave, celles-ci semblaient indiquer que la colle risquait d'avoir une influence non négligeable sur les distorsions de cuisson.

Ainsi, la seconde étape de ce travail a été la caractérisation des principaux phénomènes influant sur les déformations de cuisson du préimprégné et de la colle. Ce travail de caractérisation s'est donc concentré sur le comportement thermocinétique des matériaux, leurs transitions de phase, leurs propriétés thermomécaniques et leurs déformations thermiques et chimiques. Diverses méthodologies d'essais ont été mises en place afin de suivre l'évolution des comportements matériaux au cours de la réticulation des résines. Les comportements thermocinétiques, thermochimiques et thermomécaniques ont été

caractérisés pour les deux matériaux considérés. Des choix ont dû être effectués afin de ne pas alourdir le travail de caractérisation et le modèle à implémenter. En particulier, afin d'éviter un modèle viscoélastique lourd, les comportements thermomécaniques des matériaux ont été décrits à l'aide d'un modèle CHILE modifié.

Ce travail de caractérisation a montré que l'adhésif et le préimprégné ont des comportements très différents qui risquent d'avoir une influence sur les distorsions de cuisson. De plus, le préimprégné M21EV/IMA présente un comportement orthotrope sans aucune isotropie transverse ; les propriétés du matériau dans l'épaisseur sont très différentes de celles mesurées dans la direction transverse aux fibres de carbone dans le plan de drapage.

En s'appuyant sur le travail de caractérisation présenté dans le Chapitre 2, le modèle de simulation des distorsions de cuisson FEA a pu être implémenté. Sa mise en place a été décrite dans le Chapitre 3. Celle-ci est basée sur deux principaux modules : un module thermocinétique et un module contraintes et déformations constitué d'un modèle constitutif mécanique et du calcul des déformations thermochimiques.

Le modèle est validé grâce à des mesures de distorsions effectuées par mesure de forme par stéréo-corrélation d'images sur des plaques et des cornières de petites dimensions fabriquées en autoclave. L'outil de simulation développé permet de prédire les distorsions des pièces composites après démoulage avec une précision très satisfaisante. Le modèle de cuisson développé permet de simuler les déformations de cuisson des pièces composites à base de péimprégné M21EV/IMA avec justesse. L'interaction avec l'outillage n'est cependant pas modélisée pour le moment, bien que son influence puisse être observée expérimentalement. L'utilisation de moules en Invar permet de limiter l'impact de cette interaction sur les distorsions finales des pièces. Au vu du coût particulièrement élevé des moules en Invar il serait très intéressant d'enrichir ce modèle afin de pouvoir anticiper les distorsions dues à l'outillage. Ceci permettrait d'utiliser des moules moins couteux comme des moules en aluminium. Un certain nombre d'essais comparant l'influence des différents types d'outillages ont été effectués dans cette optique et pourront être réutilisés pour des travaux futurs.

Des essais sur des assemblages collés ont également été effectués en confrontés au modèle. L'étude du film de colle et des déformations des assemblages collés ont révélé un comportement plus complexe qu'attendu. Le modèle développé n'est à l'évidence pas capable de retranscrire l'ensemble des phénomènes impliqués. Ces premières mesures sur des assemblages collés confirment cependant que les films adhésifs ont une influence sur les déformations et qu'ils ne peuvent donc pas être ignorés.

Le dernier chapitre est donc consacré à l'étude de ces assemblages et de l'influence de l'adhésif. Le modèle développé, bien qu'il parvienne dans certaines configurations à fournir des résultats satisfaisants, ne permet pas de capter l'ensemble des phénomènes qui entrent en jeu. En particulier, les mesures effectuées ainsi que les images par tomographie des assemblages collés ont mis en avant des phénomènes de migration de la colle qui ne sont pas pris en compte avec le modèle actuel.

Ce Chapitre 4 fournit néanmoins de nombreuses données expérimentales qui pourront être exploitées afin d'améliorer le modèle de cuisson actuel. En particulier, des mesures de suivi in-situ des déformations de cuisson ont été effectuées en autoclave à l'aide fibres optiques à réseaux de Bragg. Elles permettent de comparer le développement des déformations au sein d'assemblages co-collés avec ou sans film adhésif. Ces mesures

confirment l'impact de l'adhésif sur les déformations de cuisson. Elles montrent également qu'un certain nombre de phénomènes ne sont pas pris en compte par le modèle développé. Ces mesures permettent néanmoins une meilleure compréhension du développement des déformations au cours de la cuisson. Elles fournissent des bases solides pour des travaux futurs d'enrichissement du modèle.

Les perspectives sont donc assez nombreuses puisque, pour prendre en considération l'ensembles des phénomènes que entrent en jeu a cours de la cuisson des assemblages collés, le modèle doit être amélioré. L'identification de la portée de la migration de la colle ainsi que de son impact précis que les propriétés des plis de préimprégné impactés permettrait une amélioration certaine du modèle, en particulier pour la simulation des assemblages collés de stratifiés de préimprégnés crus fins. Une comparaison pourrait également être effectuée avec les autres films de colle disponibles sur le marché, il serait ainsi possible de déterminer quel est le film le moins impactant sur les déformations de cuisson.

Il serait également très intéressant, comme évoqué précédemment, de prendre en compte les interactions avec l'outillage au cours de la cuisson des pièces en autoclave. Cela permettrait, évidement, d'améliorer la précision du modèle mais surtout de passer à des moules en aluminium, ces derniers sont plus impactants sur les distorsions de cuisson mais bien moins coûteux que les moules en Invar.

Finalement, le modèle doit être validé sur des pièces de plus grandes dimensions. Il faudrait, dans un premier temps, effectuer une validation sur des éprouvettes de type stringer foot specimen, avec un raidisseur collé sur une plaque, et enfin, dans un second temps, sur des pièces de taille industrielle comme des panneaux auto-raidis. La validation du modèle sur des cas génériques aux dimensions réduites n'est pas suffisante pour confirmer la robustesse de l'outil de simulation sur des pièces industrielles de structure primaire.

Table des figures

1.1 Microscopies et morphologies de rupture pour des préimprégnés chargés ou non en particules thermoplastiques 6

1.2 Procédé d'infusion VBRI [64] 8

1.3 Montage autoclave [40] 8

1.4 Les différentes méthodes d'assemblages par collages 9

1.5 Développement des propriétés matériaux au cours d'un cycle de cuisson à 2 paliers [5] 9

1.6 Distorsions induites par le différentiel de dilatation thermique lors du refroidissement 11

1.7 Spring-in d'une pièce en L [34] 12

1.8 Action des contraintes dans les plis internes et externes d'une zone courbe [107] 13

1.9 Réticulation de la résine [29] (a) solution de monomère en début de réaction, (b) début de la gélification (c) fin de la gélification (d) polymère réticulé en fin de la vitrification 13

1.10 Analyse "Shear-Lag" [5, 108] 15

1.11 Influence des dimensions de plaques sur la distorsion [102] 16

1.12 Interaction outillage/pièces [5] 17

1.13 Evolution de la viscosité de la résine durant un cycle d'autoclave classique [74] 18

1.14 Exemples de défauts causés par le flux de résine [41] 18

1.15 Gradient de taux volumique de fibre [5] 19

1.16 Effets d'angle lors de la consolidation [5, 37] 19

1.17 Modèle de Maxwell Généralisé [17] 24
1.18 Modèles de développement élastiques développés par Bogetti et Gillespie et Johnston [46] 26
1.19 Modèles CHILE 27
1.20 Types d'appareillages DSC existants [32] 29
1.21 Appareil de mesure TMA type [60] 30
1.22 Réponse à une sollicitation sinusoïdale pour des matériaux purement élastiques, purement visqueux et viscoélastiques [60] 31
1.23 Mesures de retrait chimique par TMA sur un adhésif [109] 32
1.24 Mesure du retrait chimique par DSP [3] 33
1.25 Méthode de mesure in-situ dans l'épaisseur de stratifié de Garstka et al. [29] 34
1.26 Déformation mesurée dans l'épaisseur d'un stratifié [29] 34
1.27 Mesures des déformations de cuisson à l'aide de PvT GNOMIX [92] et PvT-HADDOC [79] 35
1.28 Mesure à l'aide d'un rhéométre du module dynamique de cisaillement du préimprégné AS4/3501-6 durant cuisson [13] 36
1.29 Mesure et simulation des propriétés mécanique d'un préimprégné AS4 / 8556 durant cuisson [21] 36
1.30 Mesure du module de Young durant la cuisson d'un adhésif FM300 par DMA [14] 37
1.31 Outillage de mesure des contraintes de cisaillement aux interfaces [22] . 37
1.32 Fibre optique [23] 38
1.33 FBG encapsulé [65] 40

2.1 Méthodologie de caractérisation des comportements matériaux durant cuisson 44
2.2 Coupe dans l'épaisseur d'un stratifié unidirectionnel M21EV/IMA observée au microscope optique 45
2.3 Mesure par TGA de la perte de masse occasionnée par la calcination de la résine 46
2.4 Film de FM300-M cru observé au microscope optique 47
2.5 Mesures de l'enthalpie totale de réaction du préimprégné par (a)MDSC et (b)DSC 48
2.6 Mesure de l'enthalpie totale de réaction de la FM300-M par DSC en balayage dynamique à 10°C/min 49
2.7 Observation de la température de fusion du mat polyester de la FM300-M par DSC en balayage dynamique à 10°C/min après une isotherme de 180°C 49

2.8 Évolution du degré d'avancement maximal de réticulation du préimprégné M21EV/IMA et de l'adhésif FM300-M 50

2.9 Identification des paramètres de la loi de Kamal Sourour modifiée 51

2.10 Comparaison entre les mesures DSC et la simulation de l'évolution de l'avancement de réaction du M21EV/IMA 52

2.11 Comparaison entre les mesures DSC et la simulation de l'évolution de l'avancement de réaction de la FM300-M 53

2.12 Evolution du Cp mesuré par MDSC sur la FM300-M crue 54

2.13 Evolution du Cp mesuré par MDSC sur la FM300M cuite 54

2.14 Evolution du Cp mesuré par MDSC sur le préimprégné cru 55

2.15 Evolution du Cp mesuré par MDSC sur le préimprégné cuit 55

2.16 Évolution de la conductivité en fonction de la température pour de le préimprégné 56

2.17 Évolution de la conductivité en fonction de la température pour de l'adhésif 57

2.18 Identification des paramètres de la loi de Di Benedetto pour le préimprégné et la colle 58

2.19 Dégradation du préimprégné M21EV/IMA mesurée par TGA pour une rampe de 20°C/min 59

2.20 Dégradation du préimprégné M21EV/IMA mesurée par TGA pour une rampe de 100°C/min 59

2.21 Dégradation de l'adhésif FM300-M 60

2.22 Déformation mesurée par TMA au cours d'une isotherme de 150 °C dans l'épaisseur d'un stratifié M21EV/IMA 61

2.23 Déformation dans l'épaisseur d'un stratifié M21EV/IMA mesurée par TMA au cours d'un cycle de cuisson 62

2.24 Mesure de la dilatation thermique sur éprouvette cuite de M21EV/IMA selon chaque direction de pli 63

2.25 Suivi des déformations par FBG : montage expérimental 63

2.26 Suivi des déformations du FM300-M par FBG 64

2.27 Mesure de la dilatation thermique sur éprouvette cuite de FM300-M . . 65

2.28 Mesures par DMA de l'évolution des modules de traction des éprouvettes M21EV/IMA cuites en fonction de T^* 67

2.29 Comparaison entre $G_{12}(T^*)$ et $E_{22}(T^*)$ normalisés mesurés par DMA en post-cuisson 68

2.30 Comparaison entre les mesures expérimentales et les modèles CHILE identifiés pour décrire le comportement du module de cisaillement du préimprégné M21EV/IMA 69

2.31 Les trois domaines du comportement thermomécanique observables pour le préimprégné 69

2.32 Comparaison entre les mesures DMA du module de cisaillement du préimprégné et les différents modèle CHILE identifiés 70

2.33 Suivi de l'évolution du module en compression par DMA au cours d'un cycle de cuisson pour le préimprégné 70

2.34 Evolution du module élastique en traction de l'adhésif FM300-M en fonction de T^* mesuré par DMA 72

2.35 Mesure DMA en traction au cours de la cuisson de la FM300-M et comparaison avec le modèle développé 73

2.36 Suivi de l'évolution du module en compression par DMA au cours d'un cycle de cuisson pour l'adhésif 73

3.1 Structure générale du modèle de cuisson 77

3.2 Conditions limites utilisées pour la simulation de cuisson de la plaque épaisse 80

3.3 Évolution de la température au cours du cycle de cuisson 81

3.4 Conditions limites et maillage utilisés pour l'étude de sensibilité 85

3.5 Évolution du module de cisaillement G_{12} et modèle CHILE modifié au cours de la réticulation 85

3.6 Résultats obtenus pour chaque facteur de contrôle 86

3.7 Variations des résultats des simulations en fonction du niveau de variation appliqué pour chaque facteur de contrôle 87

3.8 Instrumentation du stratifié de 200 plis 88

3.9 Simulation de la cuisson d'une plaque épaisse lors de l'overshoot du premier palier isotherme 88

3.10 Comparaison entre le suivi thermique du TC 100-101 C et la simulation de cuisson en cœur de pièce épaisse 89

3.11 Comparaison entre la simulation et les mesures expérimentales des degrés d'avancement de réaction et des températures de transition vitreuse au cours des cycles de cuisson 89

3.12 Montage de polymérisation 90

3.13 Moule utilisé pour la fabrication des cornières 91

3.14 Géométrie des cornières fabriquées 92

3.15 Nuage de points obtenu pour la plaque Pl-Invar-asym1 95

3.16 Mesure de forme d'une plaque unidirectionnelle de 8 plis cuite sur un moule en aluminium (Pl-Alu-8p) 96

3.17 Comparaison des différentes méthodes de mesure du gauchissement des plaques 96

3.18 Comparaison des différentes méthodes de mesure du spring-in des cornières 97
3.19 Influence du moule sur le gauchissement des plaques 98
3.20 Modélisation et maillage de la plaque asymétrique 99
3.21 Modélisation et maillage de la plaque asymétrique et de son outillage . . 99
3.22 Comparaison entre le gauchissement mesuré expérimentalement et le gauchissement simulé pour chaque type de plaques 100
3.23 Comparaison entre la distorsion mesurée expérimentalement et la distorsion simulée pour une plaque asymétrique 150x150 mm (Pl-Invar-asym1) 100
3.24 Développement des contraintes et des déformations dans la plaque asymétrique 150x150 mm (Pl-Invar-asym1) 101
3.25 Influence du rayon pour les différents types de cornières 101
3.26 Maillage et modélisation des cornières 102
3.27 Comparaison entre le spring-in mesuré expérimentalement et le spring-in simulé pour chaque type de cornières 103
3.28 Influence de la méthode d'assemblage sur le gauchissement final 104
3.29 Influence du nombre de films de colle sur le gauchissement d'assemblages co-collés 104
3.30 Comparaison du gauchissement obtenu pour différents drapages co-cuits 105

4.1 Image par tomographie d'un assemblages co-cuit $[0_4]$-colle-$[0_5]$ direction X (face aux fibres) 108
4.2 Image par tomographie d'un assemblages co-cuit $[0_4]$-colle-$[0_5]$ direction Y (parallèle aux fibres) 109
4.3 Image par microscopie optique d'un assemblages co-cuit $[0_4]$-colle-$[0_5]$ direction X (face aux fibres) 109
4.4 Comparaison des gauchissements mesurés en fonction de la méthode de cuisson utilisée pour les plaques fines co-cuites 110
4.5 Images par microscopie optique des plaques co-cuites en étuve et en autoclave 110
4.6 Profils de distorsions des différents types d'assemblages obtenus par stéréocorrélation 111
4.7 Conditions limites utilisées pour la simulation du co-collage de deux plaques de 20 plis 112
4.8 Comparaison entre la simulation et la mesure du profil de distorsions d'une plaque co-collée sans film de colle 112
4.9 Cinétique de cuisson lors d'un assemblage par co-collage 113
4.10 Images par tomographie des différents types d'assemblages 114
4.11 Images par tomographie d'une plaque co-collée industrielle 114

4.12 Comparaison entre les mesures expérimentales et les simulations des gauchissements post-cuisson des pièces co-collées 115

4.13 Comparaison entre la simulation et la mesure du profil de distorsions d'une plaque co-collée sans film de colle 116

4.14 Configuration des fibres optiques produites par iXblue 116

4.15 Instrumentation fibres optiques en autoclave 117

4.16 Passe câble pour FO 118

4.17 Images MEB de FO dénudées insérées parallèlement et perpendiculairement aux fibres dans un composite M21/T700 provenant des travaux de thèse de M. Mulle [66] 118

4.18 Positionnement des fibres optiques au sein des assemblages 119

4.19 Positionnement des réseaux de Bragg au sein des assemblages 119

4.20 Mesures de température au cours du co-collage avec film de colle par TC et FBG4-T encapsulés 120

4.21 Comparaison des mesures de déformations par FBG pour chaque FO . . 121

4.22 Mesures des déformations par FBG en bord de pièce en fonction du temps 122

4.23 Mesures des déformations par FBG en bord d'assemblage en fonction du temps après remise à 0 123

4.24 Comparaison des mesures de déformations par FBG en bord d'assemblage en fonction de la température après remise à 0 123

4.25 Mesures des déformations par FBG en quart de pièce en fonction du temps 124

4.26 Mesures des déformations par FBG en quart d'assemblage en fonction du temps après remise à 0 125

4.27 Comparaison des mesures de déformations par FBG en quart d'assemblage en fonction de la température après remise à 0 125

4.28 Mesures des déformations par FBG au centre de la pièce 125

4.29 Mesures des déformations par FBG en milieu d'assemblage en fonction du temps après remise à 0 126

4.30 Comparaison des mesures de déformations par FBG en milieu d'assemblage en fonction de la température après remise à 0 126

4.31 Comparaison des mesures de déformations par FBG pour chaque FO lors d'une rampe post-cuisson 127

4.32 Mesures des déformations en fonction de la température par FBG en bord d'assemblage lors d'une rampe post-cuisson 128

4.33 Mesures des déformations en fonction de la température par FBG en quart d'assemblage lors d'une rampe post-cuisson 128

4.34 Mesures des déformations en fonction de la température par FBG en milieu d'assemblage lors d'une rampe post-cuisson 129

4.35 Mesures de température au cours du co-collage sans film de colle par TC et FBG4-T encapsulés 129

4.36 Comparaison des mesures de déformations par FBG pour chaque FO pour le co-collage sans film 130

4.37 Image par microscopie optique de l'interface plaque cuite/plaque crue lors d'un co-collage sans film adhésif 131

4.38 Mesures des déformations par FBG en bord d'assemblage sans colle en fonction du temps 131

4.39 Mesures des déformations par FBG en bord d'assemblage sans colle en fonction du temps après remise à 0 132

4.40 Mesures des déformations par FBG en bord d'assemblage sans colle en fonction de la température après remise à 0 132

4.41 Mesures des déformations par FBG en milieu d'assemblage sans colle en fonction du temps 133

4.42 Mesures des déformations par FBG en milieu d'assemblage sans colle en fonction du temps après remise à 0 133

4.43 Mesures des déformations par FBG en milieu d'assemblage sans colle en fonction de la température après remise à 0 134

4.44 Mesures des déformations par FBG en quart d'assemblage sans colle en fonction du temps 134

4.45 Mesures des déformations par FBG en quart d'assemblage sans colle en fonction du temps après remise à 0 135

4.46 Mesures des déformations par FBG en quart d'assemblage sans colle en fonction de la température après remise à 0 135

4.47 Comparaison des mesures de déformations par FBG en bord de pièce en fonction du temps 136

4.48 Comparaison des mesures de déformations par FBG au centre de la pièce en fonction du temps 136

4.49 Comparaison des mesures de déformations par FBG en quart de pièce en fonction du temps 136

Liste des tableaux

2.1 Propriétés générales des fibres IMA [42] 45
2.2 Propriétés générales du préimprégné M21EV/IMA [38] 46
2.3 Propriétés générales de l'adhésif structural FM300-M [26] 47
2.4 Bilan de l'identification des propriétés thermomécaniques du M21EV/IMA 71

3.1 Liste des variables d'état calculées par le module thermocinétique 78
3.2 Influence du maillage et de l'incrément de temps sur la simulation thermocinétique de la cuisson d'une plaque de 200 plis 81
3.3 Étude de la sensibilité du modèle : conductivité thermique 82
3.4 Étude de la sensibilité du modèle : capacité calorifique 83
3.5 Étude de la sensibilité du modèle : avancement maximal 84
3.6 Étude de la sensibilité du modèle : taux volumique de résine 84
3.7 Étude de l'influence du temps de sortie du préimprégné 84
3.8 Drapages des cornières 91
3.9 Cornières fabriquées 92
3.10 Plaques fabriquées 93
3.11 Drapages de co-cuisson 93
3.12 Assemblages collés fabriqués 94
3.13 Gauchissement des plaques 98
3.14 Spring-In des cornières 102
3.15 Gauchissement des assemblages collés 103

Listes des symboles

Propriétés générales 153
Déformations et contraintes 153
Propriétés thermochimiques 154
Propriétés thermocinétiques 154
Propriétés mécaniques 155
Fibres optiques à réseaux de Bragg 155

Propriétés générales

M_m	%	Taux massique de matrice	46
ρ	$kg \cdot m^{-3}$	Masse volumique	56
ρ_c	$kg \cdot m^{-3}$	Masse volumique du composite	22
ρ_m	$kg \cdot m^{-3}$	Masse volumique de la matrice	22
V_m	%	Taux volumique de matrice	22

Déformations et contraintes

ε^{chim}	-	Déformations chimiques	79
ε^{meca}	-	Déformations mécaniques	79
ε^{therm}	-	Déformations thermiques	79
ε^{tc}	-	Déformations thermochimiques	79
C_{ijkl}	MPa	Composantes du tenseur des rigidités	79
$\Delta\varphi$	°	Variation angulaire due au spring-in	12

φ	$^\circ$	Angle initial de la pièce	12
ε_R^{chem}	-	Déformations chimiques dans l'épaisseur du stratifié	14
$\varepsilon_\theta^{chem}$	-	Déformations chimiques dans le plan du stratifié	14
ε_R^{therm}	-	Déformations thermiques dans l'épaisseur du stratifié	12
$\varepsilon_\theta^{therm}$	-	Déformations thermiques dans le plan du stratifié	12

Propriétés thermochimiques

CCS	-	Coefficient of Chemical Shrinkage – Coefficient de retrait chimique	60–62, 64, 79, 85
CTE	-	Coefficient of Thermal Expension – Coefficient de dilatation thermique	11, 15, 20, 60–62, 64, 65, 79, 85, 112, 124, 128, 133
CTE_R	-	Coefficient de dilatation thermique dans l'épaisseur du stratifié	12, 14
CTE_θ	-	Coefficient de dilatation thermique dans le plan du stratifié	12

Propriétés thermocinétiques

α	-	Degré d'avancement de réaction	22, 24, 29, 78, 79
$d\alpha/dt$	s^{-1}	Vitesse d'avancement de réaction	78
α_{gel}	-	Degré d'avancement au point de gel	9, 23, 26, 57, 58, 61
α_{max}	-	Degré d'avancement maximal de réaction	23, 50
λ	$W \cdot m^{-1} \cdot {}^\circ C^{-1}$	Conductivité thermique	22, 56
λ_{cru}	$W \cdot m^{-1} \cdot {}^\circ C^{-1}$	Conductivité thermique avec une résine non réticulée	56
λ_{cuit}	$W \cdot m^{-1} \cdot {}^\circ C^{-1}$	Conductivité thermique avec une résine complètement réticulée	56
Cp	$J \cdot kg^{-1} \cdot {}^\circ C^{-1}$	Capacité calorifique	22, 53–56
Cp_{cru}	$J \cdot kg^{-1} \cdot {}^\circ C^{-1}$	Capacité calorifique avec une résine non réticulée	53
Cp_{cuit}	$J \cdot kg^{-1} \cdot {}^\circ C^{-1}$	Capacité calorifique avec une résine complètement réticulée	53
a	$m^2 \cdot s^{-1}$	Diffusivité thermique	56
ΔT	$^\circ C$	Gradient de température	12, 14, 15, 79
ΔH_{tot}	$J \cdot kg^{-1}$	Enthalpie totale de réaction	22, 29, 50

ΔH_{res}	$J \cdot kg^{-1}$	Enthalpie résiduelle de réaction 50
Φ	W	Flux thermique 53, 78
A_i	-	Facteur pré-exponentiel de la loi de Kamal Sourour modifiée 23, 50, 51
E_{a_i}	$J \cdot mol^{-1}$	Énergie d'activation 23, 50, 51
m	-	Ordre partiel de réaction m 23, 50, 51
n	-	Ordre partiel de réaction n 23, 50, 51
λ_{T_g}		Rapport des mobilités de chaînes de la loi de Di Benedetto symbol 23, 58
T_g	$°C$	Température de transition vitreuse 10, 23, 54, 58, 78, 122, 128
T_{g0}	$°C$	Température de transition vitreuse à l'état non réticulé 23, 48, 54, 58, 77
$T_{g\infty}$	$°C$	Température de transition vitreuse à l'état complètement réticulé 23, 58

Propriétés mécaniques

E_1, E_2, E_3, E_4, A, K, T^*_{C1}, T^*_{C2}, T^*_{C3} et T^*_{C4}	-	Constantes du modèle CHILE modifié développé par Khoun et Baran 27, 66
T^*	$°C$	Différentiel entre la température de la résine et la transition vitreuse instantanée ... 27, 66–68, 72, 145, 146

Fibres optiques à réseaux de Bragg

a	-	Coefficient thermo-élasto-optique 39, 64, 120
b	-	Coefficient photo-élastique 39, 64

Acronymes

BG Bragg Grating - Réseau de Bragg 39, 124

CHILE Cure Hardening Instantaneous Linear Elastic 25, 26, 65, 66, 68–70, 72, 73, 85, 139, 145

DMA Dynamic Mechanical Analysis – Analyse Mécanique Dynamique . . . 31, 35, 36, 66–73, 145, 146

DSC Differential Scanning Calorimetry – Calorimétrie Différentielle à Balayage 29, 48, 58, 89, 144

DSP Dynamic Speckle Pattern global analysis 32

FBG Fibre Bragg Grating – Fibre Optique à Réseau de Bragg 38, 39, 63, 65, 115, 116, 120, 122, 124, 126–129, 131–136, 148, 149

FEA Finite Element Analysis – Analyse par Éléments Finis 21, 22, 40, 140

FO Fibre Optique 38, 39, 64, 117–122, 126, 127, 129, 131, 133, 134, 148

LCM Liquid Composite Moulding – Procédés par Voie Humide 7

LFA Laser Flash Analysis – Méthode Flash 30, 55

MDSC Modulated Differential Scanning Calorimetry – Calorimétrie Différentielle à Balayage Modulée en Température 48, 49, 53, 55, 144

RTM Resin Transfert Moulding – Moulage par Injection à Basse Pression de Résine Liquide 7

TC Thermocouple 87, 89, 120, 129, 146, 148

TGA Thermo-Gravimetric Analysis – Analyse Thermogravimétrique 30

TMA Thermo-Mechanical Analysis – Analyse Thermo-Mécanique 14, 30, 33, 35, 60, 62, 63, 65, 126, 128, 145

VARIM Vacuum Assisted Resin Infusion Moulding 7

VBRI Vacuum Bag Resin Infusion 7, 143

Bibliographie

[1] Y. Abou Msallem, F. Jacquemin, N. Boyard, A. Poitou, D. Delaunay et S. Chatel. « Material characterization and residual stresses simulation during the manufacturing process of epoxy matrix composites ». en. In : *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 41.1 (jan. 2010), p. 108-115 (cf. p. 22, 23, 36, 54, 57).

[2] Carolyne Albert et Göran Fernlund. « Spring-in and warpage of angled composite laminates ». In : *Composites Science and Technology* 62.14 (2002), p. 1895-1912 (cf. p. 14, 17).

[3] Gustavo F. Arenas, Marcelo N. Guzmán, Claudia Vallo, Ricardo Duchowicz et Marcelo Trivi. « Measurement of shrinkage during photopolymerization of methacrylate resins by interferometric techniques: Local and global analyses ». en. In : *Polymer Testing* 50 (avr. 2016), p. 262-269 (cf. p. 32, 33).

[4] Ismet Baran. « Modelling the Pultrusion Process of Off Shore Wind Turbine Blades ». Ph. D. thesis - Mechanical Engineering. Technical University of Denmark, mai 2014 (cf. p. 66).

[5] Ismet Baran, Kenan Cinar, Nuri Ersoy, Remko Akkerman et Jesper H. Hattel. « A Review on the Mechanical Modeling of Composite Manufacturing Processes ». en. In : *Archives of Computational Methods in Engineering* 24.2 (avr. 2017), p. 365-395 (cf. p. 9, 10, 15-19, 23, 25, 26, 57).

[6] Ismet Baran, Cem C. Tutum, Michael W. Nielsen et Jesper H. Hattel. « Process induced residual stresses and distortions in pultrusion ». en. In : *Composites Part B: Engineering* 51 (août 2013), p. 148-161 (cf. p. 27).

[7] François Berbain et Alain Chevalier. « Mise en œuvre des composites - Méthodes et matériels ». fr. In : *Techniques de L'Ingénieur*. Matériaux Plaqtiques et Composites A3720 (1997), p. 37 (cf. p. 8, 9).

[8] Bryan Bilyeu, Witold Brostow et Kevin P. Menard. « Epoxy thermosets and their applications. III. Kinetic equations and models ». In : *Journal of materials education* 23.4-6 (2001), p. 189-204 (cf. p. 10).

[9] Travis A. Bogetti et John W. Gillespie Jr. « Two-Dimensional Cure Simulation of Thick Thermosetting Composites ». In : *Journal of Composite Materials* 25 (mar. 1991) (cf. p. 16).

[10] Travis A. Bogetti et John W. Gillespie Jr. « Process-induced stress and deformation in thick-section thermoset composite laminates ». In : *Journal of Composite Materials* 26.5 (1992), p. 626-660 (cf. p. 16, 26).

[11] J. Cape et G. W. Lehman. « Temperature and finite pulse-time effects in the flash method for measuring thermal diffusivity ». In : *Journal of Applied Physics* 34.7 (1963), p. 1909-1913 (cf. p. 30).

[12] K. Çinar, N. B. Ersoy et F. E. Öz. « 3d Process Modelling for Distortions in Manufacturing of Polymer Composite Materials ». In : *ECCM15 - 15th European Conference on Composite Materials* (2012) (cf. p. 28).

[13] A. S. Crasto et R. Y. Kim. « On the determination of residual stresses in fiber-reinforced thermoset composites ». In : *Journal of Reinforced Plastics and Composites* 12 (mai 1993), p. 545-558 (cf. p. 35, 36).

[14] Tomer Curiel et Göran Fernlund. « Deformation and stress build-up in bi-material beam specimens with a curing FM300 adhesive interlayer ». en. In : *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 39.2 (fév. 2008), p. 252-261 (cf. p. 21, 27, 37, 65).

[15] Jianfeng Dai, Shangbin Xi et Dongna Li. « Numerical Analysis of Curing Residual Stress and Deformation in Thermosetting Composite Laminates with Comparison between Different Constitutive Models ». en. In : *Materials* 12.4 (fév. 2019), p. 572 (cf. p. 27).

[16] A. T. DiBenedetto. « Prediction of the glass transition temperature of polymers: A model based on the principle of corresponding states ». en. In : *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics* 25.9 (sept. 1987), p. 1949-1969 (cf. p. 23, 58).

[17] Anxin Ding, Shuxin Li, Jihui Wang, Aiqing Ni et Lei Zu. « A new path-dependent constitutive model predicting cure-induced distortions in composite structures ». In : *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 95 (avr. 2017), p. 183-196 (cf. p. 24, 25).

[18] Anxin Ding, Shuxin Li, Jihui Wang et Lei Zu. « A three-dimensional thermo-viscoelastic analysis of process-induced residual stress in composite laminates ». en. In : *Composite Structures* 129 (oct. 2015), p. 60-69 (cf. p. 26).

[19] D Djokic, A Johnston, A Rogers, P Lee-Sullivan et N Mrad. « Residual stress development during the composite patch bonding process: measurement and modeling ». en. In : *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 33.2 (fév. 2002), p. 277-288 (cf. p. 20, 21).

[20] Chensong Dong. « A parametric study on the process-induced deformation of composite T-stiffener structures ». en. In : *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 41.4 (avr. 2010), p. 515-520 (cf. p. 21).

[21] Nuri Ersoy, Tomasz Garstka, Kevin Potter, Michael R. Wisnom, David Porter, Martin Clegg et Graeme Stringer. « Development of the properties of a carbon fibre reinforced thermosetting composite through cure ». en. In : *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 41.3 (mar. 2010), p. 401-409 (cf. p. 36, 38).

[22] Nuri Ersoy, Kevin Potter, Michael R. Wisnom et Martin J. Clegg. « An experimental method to study the frictional processes during composites manufacturing ». en. In : *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 36.11 (nov. 2005), p. 1536-1544 (cf. p. 16, 17, 37).

[23] Pierre Ferdinand. « Capteurs à fibres optiques à réseaux de Bragg ». In : *Techniques de l'ingénieur CND : méthodes surfaciques* (1999) (cf. p. 38).

[24] G. Fernlund, N. Rahman, R. Courdji, M. Bresslauer, A. Poursartip, K. Willden et K. Nelson. « Experimental and numerical study of the effect of cure cycle, tool surface, geometry, and lay-up on the dimensional fidelity of autoclave-processed composite parts ». In : *Composites part A: applied science and manufacturing* 33.3 (2002), p. 341-351 (cf. p. 20, 28, 38).

[25] M. Fiorina, A. Seman, B. Castanie, K.M. Ali, C. Schwob et L. Mezeix. « Spring-in prediction for carbon/epoxy aerospace composite structure ». en. In : *Composite Structures* (fév. 2017) (cf. p. 28).

[26] *FM 300 Epoxy Film Adhesive - Technical Data Sheet*. 2013 (cf. p. 46, 47).

[27] H. Fuchs, K. D. Fernholz et P. Deslauriers. « Predicted and Measured Bond-Line Read-Through Response in Composite Automotive Body Panels Subjected to Elevated Temperature Cure ». en. In : *The Journal of Adhesion* 86.10 (oct. 2010), p. 982-1011 (cf. p. 21).

[28] Feng Gao, Guiquiong Jiao, Zhixian Lu et Rongchang Ning. « Mode II Delamination and Damage Resistance of Carbon/Epoxy Composite Laminates Interleaved with Thermoplastic Particles ». In : *Journal of Composite Materials* 41.1 (2005), p. 111-123 (cf. p. 6).

[29] Tomasz Garstka, N. Ersoy, K.D. Potter et M.R. Wisnom. « In situ measurements of through-the-thickness strains during processing of AS4/8552 composite ». en. In : *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 38.12 (déc. 2007), p. 2517-2526 (cf. p. 13, 33, 34, 37).

[30] Daniel Gay. *Matériaux Composites*. Français. 3ème édition revue et augmentée. Collection Mécanique et Matériaux. Hermès, 1991 (cf. p. 5).

[31] A Goren et C Atas. « Manufacturing of polymer matrix composites using vacuum assisted resin infusion molding ». en. In : (), p. 4 (cf. p. 7).

[32] Jean GRENET et Bernard LEGENDRE. « Analyse calorimétrique différentielle à balayage (DSC) ». fr. In : *Techniques de l'ingénieur Mesures - Analyses* (), p. 33 (cf. p. 10, 29).

[33] Jean Grenet et Bernard Legendre. « Analyse calorimétrique différentielle à balayage à température modulée (DSC-TM) ». fr. In : *Techniques de l'ingénieur Mesures - Analyses* (2011), p. 19 (cf. p. 30).

[34] Fabian Groh, Erik Kappel, Christian Hühne et Wojciech Brymerski. « Experimental Investigation of Process Induced Deformations of Automotive Composites with Focus on Fast Curing Epoxy Resins ». In : *ICCM*. Copenhagen, 2015 (cf. p. 12, 21).

[35] Akira Hamamoto et M. W. Hyer. « Non-linear temperature-curvature relationships for unsymmetric graphite-epoxy laminates ». In : *International Journal of Solids and Structures* 23.7 (1987), p. 919-935 (cf. p. 13).

[36] Margit Harsch, József Karger-Kocsis et Florian Herzog. « Monitoring of cure-induced strain of an epoxy resin by fiber Bragg grating sensor ». en. In : *Journal of Applied Polymer Science* 107.2 (jan. 2008), p. 719-725 (cf. p. 38).

[37] M.H. Hassan, A.R. Othman et S. Kamaruddin. « A review on the manufacturing defects of complex-shaped laminate in aircraft composite structures ». In : *The International Journal of Advanced Manufacturing Technology* (2017), p. 1-14 (cf. p. 18, 19).

[38] *Hexply M21 Epoxy Matrix - Product Data* (cf. p. 46).

[39] Haixiao Hu, Shuxin Li, Jihui Wang, Lei Zu, Dongfeng Cao et Yucheng Zhong. « Monitoring the gelation and effective chemical shrinkage of composite curing process with a novel FBG approach ». en. In : *Composite Structures* 176 (sept. 2017), p. 187-194 (cf. p. 16).

[40] P. Hubert, G. Fernlund et A. Poursartip. « Autoclave processing for composites ». en. In : *Manufacturing Techniques for Polymer Matrix Composites (PMCs)*. Elsevier, 2012, p. 414-434 (cf. p. 8).

[41] Pascal Hubert et Anoush Poursartip. « A Review of Flow and Compaction Modelling Relevant to Thermoset Matrix Laminate Processing ». In : *Journal of Reinforced Plastics and Composites* 17.4/1998 (1998) (cf. p. 18).

[42] *IMA HexTow - DataSheet* (cf. p. 45).

[43] J. Jakobsen, M. Jensen et J.H. Andreasen. « Thermo-mechanical characterisation of in-plane properties for CSM E-glass epoxy polymer composite materials – Part 2: Young's modulus ». en. In : *Polymer Testing* 32.8 (déc. 2013), p. 1417-1422 (cf. p. 36).

[44] C.H. Jenkins. « Chapter 3. Viscoelastic Response of Composites ». In : *Manual On Experimental Methods of Mechanical Testing of Composites*. 2e éd. C. H. Jenkins, p. 15-22 (cf. p. 24, 25).

[45] Andrew Johnston. « An Integrated Model of the Development of Process-Induced Deformation in Autoclave Processing of Composite Structures ». English. Ph. D. thesis. The University of New Brunswick, 1997 (cf. p. 16, 26, 35).

[46] Andrew Johnston, Reza Vaziri et Anoush Poursartip. « A Plane Strain Model for Process-Induced Deformation of Laminated Composite Structures ». In : *Journal of Composite Materials* 35.16 (jan. 2001), p. 1435-1469 (cf. p. 26, 28, 65).

[47] F.S. Jumbo, I.A. Ashcroft, A.D. Crocombe et M.M. Abdel Wahab. « Thermal residual stress analysis of epoxy bi-material laminates and bonded joints ». In : *International Journal of Adhesion and Adhesives* 30.7 (oct. 2010), p. 523-538 (cf. p. 21).

[48] M. R. Kamal et S. Sourour. « Kinetics and thermal characterization of thermoset cure ». In : *Polymer Engineering & Science* 13.1 (1973), p. 59-64 (cf. p. 23).

[49] Erik Kappel, Daniel Stefaniak et Göran Fernlund. « Predicting process-induced distortions in composite manufacturing – A pheno-numerical simulation strategy ». en. In : *Composite Structures* 120 (fév. 2015), p. 98-106 (cf. p. 28).

[50] Erik Kappel, Daniel Stefaniak et Christian Hühne. « Semi-Analytical Spring-in Analysis to Counteract Cfrp Manufacturing Deformations by Tool Compensation ». In : *28th International Congress of the Aeronautical Sciences*. 2012 (cf. p. 102).

[51] Erik Kappel, Daniel Stefaniak et Christian Hühne. « About the Spring-In Phenomenon: Quantifying the Effects of Thermal Expansion and Chemical Shrinkage ». In : *Adaptive, tolerant and efficient composite structures*. Sous la dir. de Martin Wiedemann et Michael Sinapius. Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, 2013, p. 275-283 (cf. p. 14, 20).

[52] Loleï Khoun. « Process-Induced Stresses and Deformations in Woven Composites Manufactured by Resin Transfer Moulding ». en. Ph. D. thesis - Mechanical Engineering. Montréal : McGill University, juil. 2009 (cf. p. 27, 32, 65).

[53] Hak Sung Kim, Sang Wook Park et Dai Gil Lee. « Smart cure cycle with cooling and reheating for co-cure bonded steel/carbon epoxy composite hybrid structures for reducing thermal residual stress ». en. In : *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 37.10 (oct. 2006), p. 1708-1721 (cf. p. 21).

[54] O Klinkova, S Drapier et J M Bergheau. « Simulation des contraintes résiduelles dans les structures composites : déformée après cuisson et usinage. » fr. In : *19ème Congrès Français de Mécanique*. 2009, p. 7 (cf. p. 60).

[55] Yohann Ledru. « Etude de la porosité dans les matériaux composites stratifiés aéronautiques ». Ph. D. thesis - Génie Mécanique, Mécanique et matériaux. Univerté de Toulouse, 2009 (cf. p. 23, 57).

[56] Jun Li, Xuefeng Yao, Yinghua Liu, Zhangzhi Cen, Zhejun Kou et Di Dai. « A study of the integrated composite material structures under different fabrication processing ». en. In : *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 40.4 (avr. 2009), p. 455-462 (cf. p. 21, 25).

[57] Jun Li, XueFeng Yao, YingHua Liu, ZhangZhi Cen, ZheJun Kou, XiaoCai Hu et Di Dai. « Thermo-viscoelastic analysis of the integrated T-shaped composite structures ». en. In : *Composites Science and Technology* 70.10 (sept. 2010), p. 1497-1503 (cf. p. 20).

[58] Christoph Liebl, Michael Johlitz, Bülent Yagimli et Alexander Lion. « Three-dimensional chemo-thermomechanically coupled simulation of curing adhesives including viscoplasticity and chemical shrinkage ». en. In : *Computational Mechanics* 49.5 (mai 2012), p. 603-615 (cf. p. 21).

[59] J. Magnus Svanberg et J. Anders Holmberg. « Prediction of shape distortions Part I. FE-implementation of a path dependent constitutive model ». en. In : *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 35.6 (juin 2004), p. 711-721 (cf. p. 25, 26).

[60] Joseph D. Menczel et R. Bruce Prime, éd. *Thermal analysis of polymers: fundamentals and applications*. en. Hoboken, N.J : John Wiley, 2009 (cf. p. 29-31).

[61] L. Mezeix, A. Seman, M.N.M. Nasir, Y. Aminanda, A. Rivai, B. Castanié, P. Olivier et K.M. Ali. « Spring-back simulation of unidirectional carbon/epoxy flat laminate composite manufactured through autoclave process ». en. In : *Composite Structures* 124 (juin 2015), p. 196-205 (cf. p. 16, 19, 28).

[62] Shu Minakuchi, Shoma Niwa, Kazunori Takagaki et Nobuo Takeda. « Composite cure simulation scheme fully integrating internal strain measurement ». en. In : *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 84 (mai 2016), p. 53-63 (cf. p. 38).

[63] Shu Minakuchi, Keiichiro Sawaguchi, Kazunori Takagaki, Shoma Niwa et Nobuo Takeda. « Effect of inter-laminar toughened layers on process-induced strain and deformation of L-shaped composites ». en. In : *Advanced Composite Materials* (fév. 2019), p. 1-17 (cf. p. 38).

[64] Adrian P. Mouritz. « Manufacturing of fibre–polymer composite materials ». en. In : *Introduction to Aerospace Materials*. Woodhead Publishing Limited, 2012, p. 303-337 (cf. p. 7, 8).

[65] M. Mulle, F. Collombet, P. Olivier et Y.-H. Grunevald. « Assessment of cure residual strains through the thickness of carbon–epoxy laminates using FBGs, Part I: Elementary specimen ». en. In : *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 40.1 (jan. 2009), p. 94-104 (cf. p. 38, 40).

[66] Matthieu Mulle. « Éprouvettes Technologiques Instrumentées À Coeur Par Réseau De Bragg Pour L'analyse Du Matériau Composite Dans La Structure ». Ph. D. thesis - Génie Mécanique. Toulouse : Université Paul Sabatier - Toulouse III, juin 2007 (cf. p. 38-40, 63, 116, 118, 119).

[67] Yasir Nawab. « Characterization and modelling of cure dependant properties of thermoset composites - Application to the simulation of residual stresses. » Ph. D. thesis - Génie Mécanique. Saint Nazaire - CRTT : Université de Nantes, juil. 2012 (cf. p. 35, 36, 54, 60).

[68] Yasir Nawab, Salma Shahid, Nicolas Boyard et Frédéric Jacquemin. « Chemical shrinkage characterization techniques for thermoset resins and associated composites ». en. In : *Journal of Materials Science* 48.16 (août 2013), p. 5387-5409 (cf. p. 32).

[69] R.H. Nelson et D.C. Cairns. « Prediction of Dimensional Changes in Composites Laminates During Cure ». In : *34th international SAMPES Symposium*. 1989 (cf. p. 12).

[70] Lawrence E. Nielsen. « Cross-Linking–Effect on Physical Properties of Polymers ». en. In : *Journal of Macromolecular Science, Part C* 3.1 (jan. 1969), p. 69-103 (cf. p. 23, 58).

[71] Michael Wenani Nielsen, Jacob Wittrup Schmidt, Jesper Henri Hattel, Tom Løgstrup Andersen et Christen Malte Markussen. « *In situ* measurement using FBGs of process-induced strains during curing of thick glass/epoxy laminate plate: experimental results and numerical modelling: *In situ* process-induced strains during curing of thick laminate ». en. In : *Wind Energy* (sept. 2012), n/a-n/a (cf. p. 38).

[72] Philippe Olivier. « Chap 5.2 : Polymer matrix composites ». In : *Handbook on residual stresses*. T. 1. Jian Lu, 2005, p. 229-259 (cf. p. 14, 35).

[73] Philippe A. Olivier. « A note upon the development of residual curing strains in carbon/epoxy laminates. Study by thermomechanical analysis ». en. In : *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 37.4 (avr. 2006), p. 602-616 (cf. p. 14, 32).

[74] Philippe A. Olivier. *Cours d'Élaboration des matériaux composites : procédés et simulations associées*. INSA-ICA, 2016 (cf. p. 18).

[75] Christophe Paris. « Étude et modélisation de la polymérisation dynamique de composites à matrice thermodurcissable ». Ph. D. thesis. INPT, 2011 (cf. p. 6, 23, 47, 48, 54, 57, 77).

[76] J. P. Pascault et R. J. J. Williams. « Glass Transition Temperature Versus Conversion Remationships For Thermosetting Polymers ». In : *Journal of Polymer Science : Part B* 28.1 (jan. 1990), p. 85-95 (cf. p. 23, 58).

[77] J. P. Pascault et R. J. J. Williams. « Relationships between glass transition temperature and conversion ». In : *Polymer Bulletin* 24.1 (1990), p. 115-121 (cf. p. 23, 58).

[78] Kshitish A. Patankar, David A. Dillard et Kedzie D. Fernholdz. « Characterizing the constitutive properties and developing a stress model for adhesive bond-line readout ». In : *International Journal of Adhesion and Adhesives* 40 (juin 2012), p. 149-157 (cf. p. 21).

[79] Mael Péron, Romain Cardinaud, Nicolas Lefèvre, Julien Aubril, Vincent Sobotka, Nicolas Boyard et Steven Le Corre. « PvT-HADDOC: A multi-axial strain analyzer and cure monitoring device for thermoset composites characterization during manufacturing ». en. In : *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 101 (oct. 2017), p. 129-142 (cf. p. 35).

[80] K. D. Potter. « Understanding the origins of defects and variability in composites manufacture ». In : *International Conference on Composite Materials (ICCM)-17, Edinburgh, UK*. 2009 (cf. p. 18).

[81] K. D. Potter, M. Campbell, C. Langer et M. R. Wisnom. « The generation of geometrical deformations due to tool/part interaction in the manufacture of composite components ». In : *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*. 7th International Conference on the Deformation and Fracture of Composites (DFC-7) 36.2 (fév. 2005), p. 301-308 (cf. p. 17).

[82] Konstantin Priesnitz, Jos Sinke et Rinze Benedictus. « Influence of the temperature cycle on local distortions in car panels caused by hot curing epoxies ». en. In : *International Journal of Adhesion and Adhesives* 50 (avr. 2014), p. 216-222 (cf. p. 20, 21).

[83] Konstantin Priesnitz, Jos Sinke et Rinze Benedictus. « On the simulation of panel distortions due to hot curing adhesives ». en. In : *International Journal of Solids and Structures* 51.13 (juin 2014), p. 2470-2478 (cf. p. 20, 21).

[84] D. W. Radford et R. J. Diefendorf. « Shape instabilities in composites resulting from laminate anisotropy ». In : *Journal of Reinforced Plastics and Composites* 12.1 (1993), p. 58-75 (cf. p. 14).

[85] Donald W. Radford. « Volume fraction gradient induced warpage in curved composite plates ». In : *Composites engineering* 5.7 (1995), p. 923929-927934 (cf. p. 17).

[86] D. Ratna. « Thermal properties of thermosets ». en. In : *Thermosets*. Elsevier, 2012, p. 62-91 (cf. p. 5, 6).

[87] Mike Reading et Hourston Douglas J. *Modulated temperature differential scanning calorimetry: theoretical and practical applications in polymer characterisation*. Springer Science & Business Media. T. 6. 2006 (cf. p. 30).

[88] Laurent Robert et Gilles Dusserre. « Assessment of thermoset cure-induced strains by fiber bragg grating sensor ». en. In : *Polymer Engineering & Science* 54.7 (juil. 2014), p. 1585-1594 (cf. p. 38).

[89] Edu Ruiz et Francois Trochu. « Thermomechanical Properties during Cure of Glass-Polyester RTM Composites: Elastic and Viscoelastic Modeling ». en. In : *Journal of Composite Materials* 39.10 (mai 2005), p. 881-916 (cf. p. 36).

[90] Edu Ruiz et François Trochu. « Numerical analysis of cure temperature and internal stresses in thin and thick RTM parts ». en. In : *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 36.6 (juin 2005), p. 806-826 (cf. p. 16, 36).

[91] Rachid Sabre. « Plans d'expériences - Méthode de Taguchi ». fr. In : *Techniques de L'Ingénieur Procédés chimie* (2007), p. 17 (cf. p. 86).

[92] M. Sadeghinia, K.M.B. Jansen et L.J. Ernst. « Characterization and modeling the thermo-mechanical cure-dependent properties of epoxy molding compound ». en. In : *International Journal of Adhesion and Adhesives* 32 (jan. 2012), p. 82-88 (cf. p. 35).

[93] Darshil U. Shah et Peter J. Schubel. « Evaluation of cure shrinkage measurement techniques for thermosetting resins ». en. In : *Polymer Testing* 29.6 (sept. 2010), p. 629-639 (cf. p. 32).

[94] D. Stefaniak, E. Kappel, T. Spröwitz et C. Hühne. « Experimental identification of process parameters inducing warpage of autoclave-processed CFRP parts ». en. In : *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 43.7 (juil. 2012), p. 1081-1091 (cf. p. 16, 17, 19, 20).

[95] J. Magnus Svanberg et J.A Holmberg. « Experimental Shape Distorsion Balanced Laminates ». In : *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* (2001) (cf. p. 20).

[96] J.M Svanberg et J.A Holmberg. « Prediction of shape distortions. Part II. Experimental validation and analysis of boundary conditions ». en. In : *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 35.6 (juin 2004), p. 723-734 (cf. p. 26).

[97] Kheir Eddine Tarsha Kurdi. « Contraintes résiduelles de cuisson dans les stratifiés composites à finalité aéronautique : intégration du procédé de mise en oeuvre et étude de leur influence sur les caractéristiques mécaniques ». Ph. D. thesis. 2003 (cf. p. 16, 66).

[98] Kheir Eddine Tarsha-Kurdi et Philippe Olivier. « Thermoviscoelastic analysis of residual curing stresses and the influence of autoclave pressure on these stresses in carbon/epoxy laminates ». In : *Composites science and technology* 62.4 (2002), p. 559-565 (cf. p. 20).

[99] G Twigg, Anoush Poursartip et Göran Fernlund. « An experimental method for quantifying tool–part shear interaction during composites processing ». en. In : *Composites Science and Technology* 63.13 (oct. 2003), p. 1985-2002 (cf. p. 16, 17, 38).

[100] Graham Twigg, Anoush Poursartip et Göran Fernlund. « Tool–part interaction in composites processing. Part I: experimental investigation and analytical model ». In : *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 35.1 (jan. 2004), p. 121-133 (cf. p. 16, 17).

[101] Graham Twigg, Anoush Poursartip et Göran Fernlund. « Tool–part interaction in composites processing. Part II: numerical modelling ». In : *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 35.1 (jan. 2004), p. 135-141 (cf. p. 17, 28).

[102] Graham Twigg, Anoush Poursartip et Göran Fernlund. « Tool-part interaction in composites processing ». In : *International Conference on Composite Materials (ICCM)* (cf. p. 16).

[103] Marc Waris, Pierre-Jacques Liotier et Sylvain Drapier. « Effect of the mold on the residual strain field monitored with optical fibers sensors in resin transfer molding processes ». en. In : *Journal of Composite Materials* 48.21 (sept. 2014), p. 2589-2601 (cf. p. 16, 38, 39).

[104] Y. Weitsman. « Residual Thermal Stresses Due to Cool-Down of Epoxy-Resin Composites ». In : *Journal of Applied Mechanics* 46 (1979), p. 563-567 (cf. p. 20).

[105] S. R. White et H. T. Hahn. « Cure cycle optimization for the reduction of processing-induced residual stressses in composite materials ». In : 27.14 (1993), p. 1353-1378 (cf. p. 14, 20).

[106] Scott R. White et Yeong K. Kim. « Process-Induced Residual Stress Analysis of AS4/3501-6 Composite Materials ». In : *Mechanics of Composite Materials and Structures* 5 (1998), p. 153-186 (cf. p. 25).

[107] 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 ». en. In : *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 37.4 (avr. 2006), p. 522-529 (cf. p. 11-14, 38).

[108] Michael R. Wisnom, Kevin D. Potter et Nuri Ersoy. « Shear-lag Analysis of the Effect of Thickness on Spring-in of Curved Composites ». en. In : *Journal of Composite Materials* 41.11 (juin 2007), p. 1311-1324 (cf. p. 14, 15).

[109] H. Yu, S. G. Mhaisalkar et E. H. Wong. « Cure shrinkage measurement of nonconductive adhesives by means of a thermomechanical analyzer ». en. In : *Journal of Electronic Materials* 34.8 (août 2005), p. 1177-1182 (cf. p. 32, 60).

[110] J.T. Zhang, M. Zhang, S.X. Li, M.J. Pavier et D.J. Smith. « Residual stresses created during curing of a polymer matrix composite using a viscoelastic model ». en. In : *Composites Science and Technology* 130 (juin 2016), p. 20-27 (cf. p. 26).

[111] Nima Zobeiry. « Viscoelastic Constitutive Models for Evaluation of Residual Stresses in Thermoset Composites During Cure ». Ph. D. thesis - Civil Engineering. The University of British Columbia, juil. 2006 (cf. p. 26).

Résumé

Simulation des distorsions de cuisson de pièces composites élaborées par co-bonding en autoclave

Les composites stratifiés en fibres de carbone et à matrices thermodurcissables sont, grâce à leurs propriétés spécifiques, des matériaux très performants pour les pièces de structure primaire en aéronautique. Cependant, durant leur élaboration, de nombreux phénomènes multi-physiques conduisent à l'apparition de contraintes et de déformations résiduelles qui impactent la géométrie finale de la pièce. Ces écarts de géométrie sont critiques pour les pièces de grandes dimensions et les assemblages. Il est donc primordial de prédire ces déformations par la simulation.

Le travail effectué au cours de cette thèse s'inscrit au sein du projet MAESTRIA du CORAC porté par la DGAC et dans le cadre d'un partenariat étroit avec Dassault Aviation. La recherche menée s'intéresse plus particulièrement aux assemblages co-collés. Le film de colle époxy utilisé pour ces collages a un comportement propre et risque d'avoir une influence sur les déformations de cuisson des assemblages. La colle, souvent ignorée dans les simulations de cuisson, a donc fait l'objet d'une caractérisation et d'une modélisation propre.

Un effort de caractérisation important est fourni afin d'identifier les lois de comportement associées aux variations des propriétés des matériaux au cours de la cuisson. Une fois les lois de comportement matériaux identifiées, la modélisation FEA est implémentée sous Abaqus via des subroutines utilisateurs FORTRAN. Le modèle a ensuite été confronté à des cas expérimentaux. Des mesures de distorsions de plaques, cornières et assemblages sont effectuées. Si le modèle fourni des résultats très satisfaisants pour les pièces composites, les résultats des mesures sur les assemblages révèlent un comportement de l'adhésif plus complexe qu'attendu et une influence non négligeable du film de colle sur les distorsions.

La dernière partie de ce travail de recherche se concentre donc sur la compréhension et l'étude approfondie du comportement de ce film de colle. Pour ce faire diverses analyses sont effectuées dont des instrumentations d'assemblages collés par fibres optiques à réseaux de Bragg permettant de suivre les déformations in-situ tout au long de la cuisson.

Mots-clés : Distorsions de cuisson, Matériaux composites, Co-bonding, Colle époxy, Fabrication virtuelle

---

Abstract

Simulation of cure distortions of composite parts co-bonded in autoclave

Because of their specific properties, composite laminates made of carbon and thermosetting resins are very efficient materials for primary structural parts in aeronautics. However, during their cure, composite parts are subjected to several multi-physical phenomena, which may cause residual stresses and strains that will impact the final geometry of the part. Those variations of geometry are critical for parts of large dimensions and assemblies. Therefore, a simulation tool is needed to predict the cure strains.

The work conducted during this Ph.D is part of the MAESTRIA project of the CORAC supervised by the DGAC and is undertaken as a part of a strong partnership with Dassault Aviation. In this research work a special interest is given to co-bonded assemblies. The epoxy adhesive film used has its own behaviour and may have an influence on cure strains of assemblies. The adhesive, often ignored in cure simulations, is thus subjected to its own characterization and modelling.

A significant characterization work is done to identify the behaviour laws of materials throughout their cure. Based on this characterization work, a FEA model is implemented on Abaqus using FORTRAN user subroutines. The model is then compared to experimental measurements for validation. Distortion measurements are done on composite plates, corners and assemblies. The model provides accurate results for composite parts, however, the measurements obtained for assemblies revealed an adhesive behavior more complex than expected and a significant influence of the adhesive film on distortions.

Therefore, the last part of this research work focuses on understanding and in-depth studying of the behavior of this adhesive film. To do so, various analyses are carried out, including cure monitoring of co-bonded assemblages by optical fibre grated with Bragg gratings.

Keywords: Cure distortions, Composite materials, Co-bonding, Epoxy adhesive, Virtual manufacturing