



**HAL**  
open science

# Caractérisation et modélisation du comportement électrique de matériaux CFRP pour le suivi de cuisson et la surveillance de structures aéronautiques

Huikangyue Bao

► **To cite this version:**

Huikangyue Bao. Caractérisation et modélisation du comportement électrique de matériaux CFRP pour le suivi de cuisson et la surveillance de structures aéronautiques. Matériaux. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2023. Français. NNT : 2023TOU30320 . tel-04589526

**HAL Id: tel-04589526**

**<https://theses.hal.science/tel-04589526>**

Submitted on 27 May 2024

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

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



# THÈSE

**En vue de l'obtention du  
DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE**

**Délivré par l'Université Toulouse 3 - Paul Sabatier**

---

**Présentée et soutenue par**

**Huikangyu BAO**

Le 14 décembre 2023

**Caractérisation et modélisation du comportement électrique de  
matériaux CFRP pour le suivi de cuisson et la surveillance de  
structures aéronautiques**

---

Ecole doctorale : **MEGEP - Mécanique, Energétique, Génie civil, Procédés**

Spécialité : **Génie mécanique, mécanique des matériaux**

Unité de recherche :  
**ICA - Institut Clément Ader**

Thèse dirigée par  
**Philippe OLIVIER et Philippe MARGUERES**

Jury

Mme Nathalie GODIN, Rapporteur  
M. Frédéric SARRY, Rapporteur  
M. Damien SOULAT, Examineur  
M. Jean-Noël PERIE, Examineur  
M. Philippe OLIVIER, Directeur de thèse  
M. Philippe MARGUERES, Co-directeur de thèse

## Remerciements

Comme l'a dit Lao Tseu, « le plus grand arbre est né d'une graine menue ». La graine semée il y a trois ans est finalement devenue un arbre gigantesque. Comme aucun arbre ne peut pousser sans soleil, je n'aurais pas pu terminer cette thèse sans les personnes chaleureuses et amicales qui font partie de ma vie.

Tout d'abord, je tiens à exprimer ma plus grande reconnaissance à mon co-directeur de thèse, Philippe MARGUERES pour ses conseils scientifiques, son soutien psychosocial et ses encouragements tout au long de mon travail. Je n'oublierai jamais les bons moments que nous avons passé ensemble, que ce soit dans la salle blanche, la chambre noire ou devant l'étuve (et bien sûr avec notre précieux banc). Cette thèse n'aurait pas été possible sans son aide. Mais surtout, Philippe a guidé non seulement mes recherches, mais également le chemin de ma vie. En échangeant des idées avec lui, j'ai redécouvert la vie et la mort, la vraie valeur de l'humanité et mon moi intérieur. Confucius a dit : « Guider les gens dans la bonne direction, enseigner les cours et répondre aux questions, peut être un Enseignant ». Le chemin de la vie est plein de mystères, quelle chance j'ai d'avoir rencontré un véritable guide dans l'un des moments plus cruciaux de ma vie ! Si j'ai l'occasion de devenir un vrai enseignant à l'avenir, ce sera grâce à Philippe, qui m'indique toujours la bonne direction et m'encourage constamment. Merci.

Je tiens à remercier mon directeur de thèse, Philippe OLIVIER pour son encadrement, ses encouragements et ses précieux avis sur l'orientation de mes recherches. Je suis honoré d'avoir été son doctorant et d'avoir progressé sous sa direction. Au cours des trois dernières années, il m'a enseigné non seulement sur les connaissances elles-mêmes, mais également sur la méthodologie de recherche scientifique et l'expérience de l'enseignement supérieur, ce qui m'aidera dans mon futur travail.

Je tiens à exprimer mes sincères remerciements aux membres du jury pour avoir accepté d'évaluer les résultats de mes recherches au cours des trois dernières années. Je remercie la rapporteuse de cette thèse Nathalie GODIN, Maître de conférences-HDR à l'INSA de Lyon, pour l'intérêt qu'elle a porté à mon travail. Je remercie le rapporteur Frédéric SARRY, Professeur à l'Université de Lorraine, pour avoir accepté de faire partie de mon jury. Je lui suis reconnaissant pour son enseignement et ses encouragements lorsque j'étais à Polytech Nancy (ex ESSTIN). Cette expérience extrêmement précieuse a renforcé ma détermination à entrer dans le domaine de la recherche scientifique. Je

remercie Damien SOULAT, Professeur à ENSAIT Roubaix, pour avoir apporté des remarques pertinentes à mon travail. Je remercie Jean-Noël Périe, Maître de conférences-HDR à l'Université Toulouse III – Paul Sabatier, pour son aide appréciée, son soutien indéfectible et ses conseils avisés depuis mon projet de fin d'études.

Ensuite, je tiens à remercier l'équipe d'enseignants du Génie Mécanique et Productique, Techniques Aérospatiales de l'IUT de Toulouse, pour m'avoir soutenu pendant les deux années de DCE (doctorants contractuels en charge d'enseignement). Tout d'abord, je remercie Bernard DOUCHIN pour ses conseils sur les méthodes d'enseignement, son support technique et sa réponse à mon mail de quatre heures du matin. Ensuite, je remercie Laurent Couzeix pour m'avoir guidé à diriger des séances de travaux pratiques. Je n'oublie pas de remercier tous les enseignants de l'IUT qui m'ont aidé : Erik ESTIVALEZES, Pascale MAGAUD, Vincent BLANCHOT, Guilhem COLSON et Charles VAQUER. C'est un grand honneur pour moi de pouvoir apprendre la pédagogie de l'enseignement supérieur à l'IUT de Toulouse.

Je tiens à remercier Nathalie ROCHER GLEIZES pour m'avoir aidé sur les manipulations expérimentales. Elle m'a enseigné un large éventail de connaissances et de compétences. Je remercie également Didier Flandry, ingénieur au Centre Régional d'Innovation et de Transfert de Technologie (CRITT), qui m'a enseigné au début de ma thèse sur les principes généraux et la fabrication des matériaux composites.

Ensuite, je tiens à remercier l'ensemble des doctorants et des stagiaires de l'ICA. Particulièrement, je voudrais remercier mon cher collègue Brayon TRUJILLO HORTUA pour son aide appréciée dans l'analyse thermique et la préparation des échantillons de composite. Je tiens à remercier Dr. Vincent SCHENK pour son aide très précieuse dans la caractérisation des résines à l'aide de rhéomètre. Je remercie également Dr. Ali ROUWANE pour son aimable assistance.

J'aimerais exprimer mon affectueuse gratitude à Dr. Zijiao JIA pour sa gentillesse, sa patience et ses conseils sur mes travaux de recherche scientifique, en particulier dans la thermographie infrarouge. Pour tout cela merci.

Par ailleurs, je remercie également mes amis talentueux et enthousiastes : Dingdong ZHANG, Taiwei XU, Gang HUANG, Zhenhang WU, Lei REN, et Shuli WANG. Leur soutien et leurs encouragements font partie intégrante de ma vie quotidienne.

Je tiens à remercier les deux Professeurs de Polytech Nancy: Madame Florine PORAS

(dit «Magicienne») et Monsieur Eric LANDFRIED. Pendant mes premières années en France, je n'arrivais pas à former les phrases les plus simples en français et chaque séance de cours magistral était un grand défi pour moi. Grâce à leur compréhension profonde et leurs encouragements, je n'ai pas abandonné mes études d'ingénieur. Je me souviens de ce que Monsieur LANDFRIED m'a dit à la fin du premier semestre : « Vos notes ne sont pas les fruits du hasard. Elles sont le résultat d'un travail acharné. »

Ensuite, je voudrais remercier Jian GE, ingénieur en chef de Suntech Power Wuxi, pour m'avoir guidé tout au long de mon premier stage et m'avoir enseigné les principes de base de la fabrication des panneaux photovoltaïques. Je remercie aussi mon ancien collègue Michel FICHET pour notre amitié à travers le temps et l'espace.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude aux deux enseignants du 1<sup>e</sup> lycée à ChongQing, Monsieur Changrong YANG et Monsieur Shungui FANG. Ses précieux conseils sur mes poèmes en vers libre m'ont aidé à entrer dans le monde de la poésie. Bien que je n'aie pas finalement abouti dans le domaine de la poésie chinoise classique, je suis toujours passionné par ce domaine grâce à leurs encouragements. Le chemin pour devenir poète est tellement long et ardu, mais comme l'a dit Yuan QU: « Dussé-je subir neuf fois la mort, je ne regretterais jamais ».

Je tiens à remercier tout particulièrement monsieur Jiarui ZHANG pour son soutien de l'autre côté de la Manche. Je n'oublierai jamais les jours passé ensemble à Dunkerque, à Marseille, à Nice et à Paris (et bien sûr à Qinhuangdao).

Je voudrais remercier monsieur Pilote Sen XU pour son amitié sincère, il m'a soutenu et encouragé tout au long de ces dix années. Je me réjouis de voler avec lui dans le ciel. Je voudrais remercier mon cher ami Feng Zhiyuan de m'avoir écouté et compris. Bien que je sois à l'autre bout du monde, je n'ai jamais oublié notre amitié profonde.

Par la suite, je remercie tous mes plus proches amis Zhang XIAO, Zhiwen LUO, Jiajun WU, Daiqiang YIN, Keda JIANG, Wennan ZHAO, Shangxiong YUAN, Hang XU, Jianrui XU, Peiwei LI, Peizhi XIONG et Wanli CHEN qui m'ont soutenue pendant les moments difficiles et les moments heureux.

Le soutien familial est essentiel à la réalisation de cette thèse. Tout d'abord, je tiens à exprimer mes remerciements les plus sincères à ma mère Xiaohua LIU et à mon père Lijun BAO, tous deux professeurs à l'Institut universitaire de finance et d'économie de Chongqing, pour leur soutien, leur compréhension profonde et leur amour désintéressé.

Autrefois, je n'étais pas doué pour exprimer directement mes émotions, mais maintenant je peux crier à haute voix : je vous aime et je suis fier d'être votre fils.

Je tiens à remercier ma tante Xiaohong LIU et mon oncle Zhihai LI pour s'être occupés de moi et de m'avoir enseigné depuis mon enfance. Je remercie également mon oncle Shijun LIU pour ses conseils importants sur mes choix de vie.

Ensuite, je remercie mes cousins Yiming LI et Yuhan YANG, non seulement pour leur soutien dans la vie, mais aussi pour m'avoir aidé dans la programmation. Je voudrais remercier mes chères cousines Jing ZHAO et Chong WANG pour leurs encouragements.

Une place spéciale est réservée sur la liste de remerciements pour ma charmante cousine Lu LIU. Je t'aime aujourd'hui, demain et pour toujours.

Ici, je suis heureux de pouvoir rendre hommage à ma grand-mère bien-aimée. C'est ton amour désintéressé pour moi qui m'a amené ici. A ce jour, je me souviens encore des comptines que tu m'as apprises lorsque j'étais enfant : « Un taureau devant le temple. Deux hommes portant du bois ».

Finalement, je dois rendre hommage à l'âme de mon grand-père. Je suis à la hauteur de tes attentes et tes phrases resteront toujours gravés dans mon cœur: « être honnête et humble ». Tous les jours de ma vie, ton amour m'accompagne, et je suis heureux.



## Abréviations

AC : courant alternatif.

ADC : convertisseur analogique-numérique (Analog-to-Digital Converter).

AOP : amplificateur opérationnel.

CFRP : Polymère Renforcé de Fibres de Carbone (Carbon Fiber Reinforced Polymer).

DAC : convertisseur numérique-analogique (Digital-to-Analog Converter).

DC : courant continu.

DDS : génération du signal par méthode directe numérique (Direct Digital Synthesis).

DEA : analyse diélectrique (Dielectric Analysis).

DFT : Transformation de Fourier Discrète.

DMA : Dynamique Mécanique Analyse (Dynamical Mechanical Analysis).

DSC : Calorimétrie différentielle à balayage (Differential Scanning Calorimetry).

IC : bus informatique parmi circuits intégrés (Inter-Integrated Circuit).

IE : Impédancemétrie Electrique.

LFB : filtre passe-bas.

PCB : circuit imprimé (Printed Circuit Board).

PF : Point de fin de la réaction.

PG : Point de gélification.

PL : Point de liquéfaction.

PV : Point de vitrification.

PmodIA : analyseur d'impédance électrique en P-mod communication.

R-cal : résistance de calibrage.

RFB : résistance de contre-réaction (Resistance of Feedback).

SHM : Surveillance de l'état de santé des structures (Structural Health Monitoring).

TGA: Analyse Thermogravimétrique (Thermogravimetric Analysis).

V-pp : tension d'excitation pic à pic.

<b>Introduction .....</b>	<b>9</b>
<b>Chapter 1 Etat de l'art des techniques du suivi de cuisson des matériaux CFRP .....</b>	<b>16</b>
1.1 Introduction .....	17
1.2 Généralités sur les matériaux CFRP .....	18
1.2.1 Les renforts .....	18
1.2.2 La matrice .....	20
1.2.3 Matériaux de l'étude : préimprégnés NC66/NA1808 et T700/M21 .....	25
1.2.4 Les procédés d'élaboration des matériaux CFRP .....	26
1.3 Méthodes de suivi de cuisson .....	28
1.4 Modélisation du comportement électrique du CFRP .....	37
1.4.1 Modélisation à l'échelle de la fibre .....	37
1.4.2 Modélisation à l'échelle du pli et du stratifié .....	40
1.5 Etude préliminaire de l'impédancemétrie électrique .....	53
1.6 Conclusion .....	57
<b>Chapter 2 Matériaux de l'étude et système expérimental de mesure.....</b>	<b>58</b>
2.1 Introduction .....	59
2.2 Matériaux de l'étude.....	60
2.2.1 T700/M21.....	60
2.2.2 NC66/NA1808 .....	69
2.3 La création du nouveau banc .....	71
2.3.1 Le cahier des charges .....	71
2.3.2 La conception et le développement du banc.....	72
2.3.3 Architecture globale du banc.....	72
2.3.4 Unité de mesure IE.....	73
2.3.5 Unité de mesure thermique .....	81
2.3.6 Châssis final .....	81
2.3.7 Interface utilisateur.....	82
2.3.8 Limitations du banc et procédures nécessaires à la mesure.....	84
2.3.9 La configuration de mesure 4 points .....	91
2.4 Conclusion .....	95
<b>Chapter 3 Résultats de suivi de cuisson par impédancemétrie électrique .....</b>	<b>96</b>
3.1 Introduction .....	97
3.2 Caractérisation du matériau de l'étude .....	98
3.2.1 Analyse thermique et identification des points critiques.....	100
3.2.2 Caractérisation du composite NC66/NA1808 et sa résine non-renforcée .....	103
3.2.2.1 Analyse par Vanhographie, rhéomètre à plateaux parallèles et TGA .....	103
3.2.2.2 Analyse par DSC.....	107
3.3 Suivi de cuisson par mesure d'impédance électrique à l'aide du banc développé.....	114
3.3.1 Préparation des échantillons.....	114
3.3.2 Résultats IE sur la résine NA1808 non-renforcée .....	117

3.3.3	Résultats sur les stratifiés NC66/NA1808.....	122
3.3.3.1	Echantillons $[0^{\circ}_8]$ .....	122
3.3.3.2	Echantillons $[0^{\circ}_{16}]$ .....	128
3.3.3.3	Echantillons $[0^{\circ}_1]$ .....	130
3.3.3.4	Défauts de cuisson.....	133
3.4	Conclusion.....	137
<b>Chapter 4</b>	<b>Modélisation du comportement physico-chimique et électrique du matériau</b>	
	<b>CFRP en cours de cuisson .....</b>	<b>139</b>
4.1	Introduction .....	140
4.2	Modélisation de la cinétique de polymérisation .....	141
4.2.1	Modélisation cinétique à l'aide des résultats des essais en DSC .....	143
4.2.2	Corrélation entre l'avancement de réaction et les résultats de mesure IE .....	146
4.2.2.1	Etude préliminaire.....	146
4.2.2.2	Lois de corrélation sur stratifié NC66/NA1808 .....	152
4.2.2.3	Lois de corrélation sur résine NA1808 non-renforcée .....	161
4.3	Modélisation géométrique du CFRP en cours de cuisson.....	164
4.3.1	Modélisation de la répartition des fibres .....	168
4.3.2	Simulation de la conduction électrique .....	172
4.4	Conclusion.....	183
<b>Chapter 5</b>	<b>Perspectives .....</b>	<b>185</b>
5.1	Introduction .....	186
5.2	Analyse thermographique à l'aide de la caméra infrarouge .....	187
5.2.1	Etude thermographique dans le sens DT de l'échantillon $[90^{\circ}_1]$ .....	187
5.2.2	Etude thermographique dans le sens DL de l'échantillon $[0^{\circ}_1]$ .....	190
5.3	Réponse thermique de la mèche de fibres .....	192
5.4	Variation de <b>Z</b> d'un échantillon $[0^{\circ}_1]$ soumis à une sollicitation de flexion.....	194
5.5	Conclusion.....	197
	<b>Conclusion générale.....</b>	<b>198</b>
	<b>Annexe .....</b>	<b>203</b>
	<b>Références Bibliographiques .....</b>	<b>215</b>

## Introduction

Dans l'industrie aéronautique, les matériaux composites rencontrent de plus en plus de succès grâce à leurs excellentes performances. D'après l'évolution de l'utilisation des composites chez Airbus, le pourcentage des composites utilisés dans la fabrication des avions croît d'année en année (Figure 1). Par exemple, l'avion A350 XWB lancé en 2013 est constitué à plus de 50 % de composites (Figure 2).

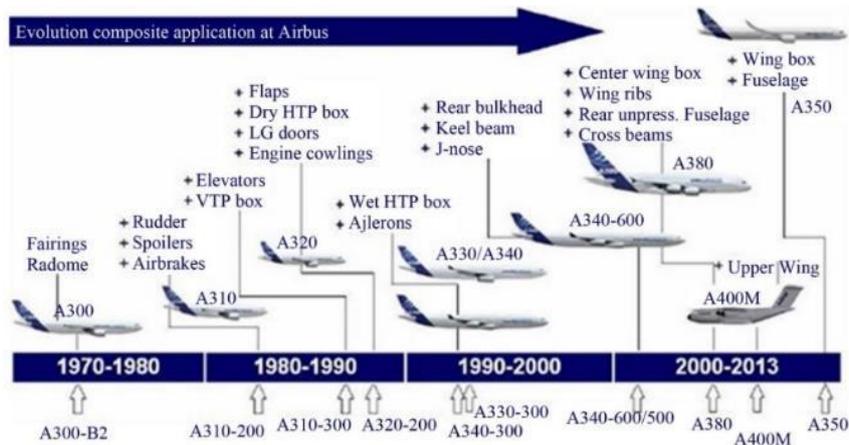


Figure 1 Evolution de l'application des matériaux composites chez Airbus [1]

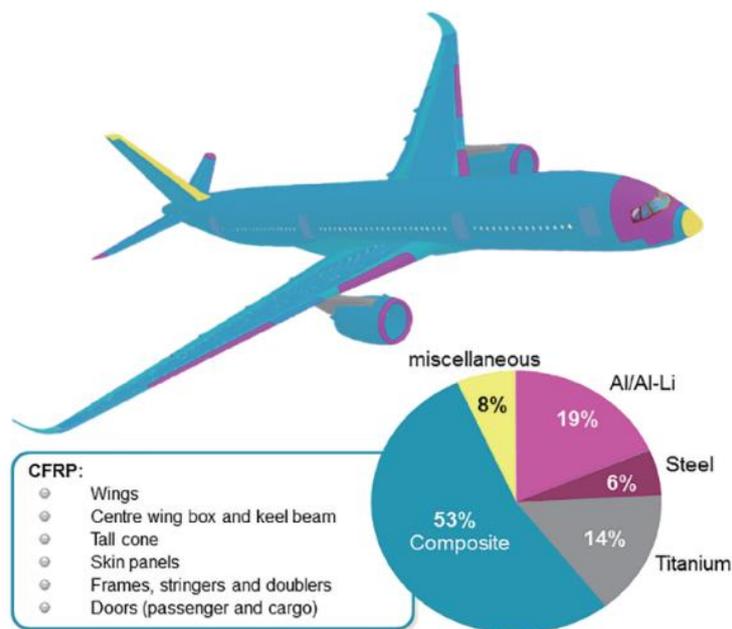


Figure 2 Répartition des matériaux utilisés dans l'A350 XWB [2]

Parmi le catalogue des matériaux composites, les polymères renforcés de fibres de carbone (CFRP) sont souvent utilisés par l'industrie aéronautique. En comparaison avec

les matériaux métalliques, les CFRP présentent de meilleures propriétés mécaniques spécifiques, ce qui signifie que les avions fabriqués en CFRP peuvent être plus légers et donc consommer moins de carburant.

Dans ce contexte, les recherches dans le but d'optimiser des procédés de fabrication des CFRP revêtent une grande importance pour l'industrie aéronautique. Dans le cadre de notre étude, nous nous intéressons aux préimprégnés fibres de carbone et matrice époxy NC66/NA1808 produits par et achetés auprès de la société CTMI France et T700/M21 produit par Hexcel Composites et acheté auprès de Composites Distribution, qui sont souvent utilisés pour la fabrication des ailes et du fuselage des avions. Ici un processus de mise en forme est indispensable pour élaborer ces structures en CFRP à partir de préimprégnés.

En effet, la performance des produits dépend fortement de la maîtrise des procédés et des cycles de cuisson utilisés. Il est donc intéressant de pouvoir suivre voire asservir les procédés de fabrication par le biais d'une surveillance en temps réel. Un tel système de surveillance devrait être capable, par exemple, de suivre et prédire le degré d'avancement de réticulation, voire de détecter des anomalies pendant le cycle de cuisson. Afin d'assurer la sécurité de la structure en service, un dispositif de suivi et de surveillance peut également permettre de contrôler la santé des structures (SHM) et de mesurer/prédire ses performances en temps réel ou à minima lors des phases de maintenance. Dans le cadre de notre étude, nous nous intéressons à développer une méthode basée sur la mesure d'impédances électriques pour caractériser le matériau CFRP non seulement pour assurer un suivi de l'évolution de ses propriétés en cours cuisson, mais également en service afin de répondre à des objectifs de SHM.

Dans la phase de fabrication, les paramètres rhéologiques et géométriques des structures en CFRP évoluent et doivent être optimisés pour répondre aux performances attendues : degré de réticulation, fractions volumiques de fibres, de résine et de porosité, etc. Néanmoins, il est difficile d'observer directement ces paramètres en temps réel, sans détruire le matériau. Dans cette optique, les techniques d'ECND (Evaluation et Contrôle Non Destructif) consistent à déterminer indirectement l'évolution de ces paramètres par le biais de capteurs multi-physiques. L'utilisation de tels capteurs induit le développement de modèles multi-physiques ad-hoc.

Dans notre cas, l'évolution des propriétés électriques des structures en CFRP peut être corrélée à la variation des propriétés rhéologiques et géométriques de CFRP en cours de cuisson (suivi de cycle et détection d'anomalie) mais aussi aux propriétés mécaniques en service avec détection d'endommagement. Afin de répondre aux objectifs sous-tendus par notre étude, il est nécessaire de développer un banc de mesure dédié et développer les modèles associés nécessaires. La modélisation électrique devra adresser plusieurs échelles et tenir compte de l'anisotropie (initiale ou induite) des structures étudiées (Figure 3).

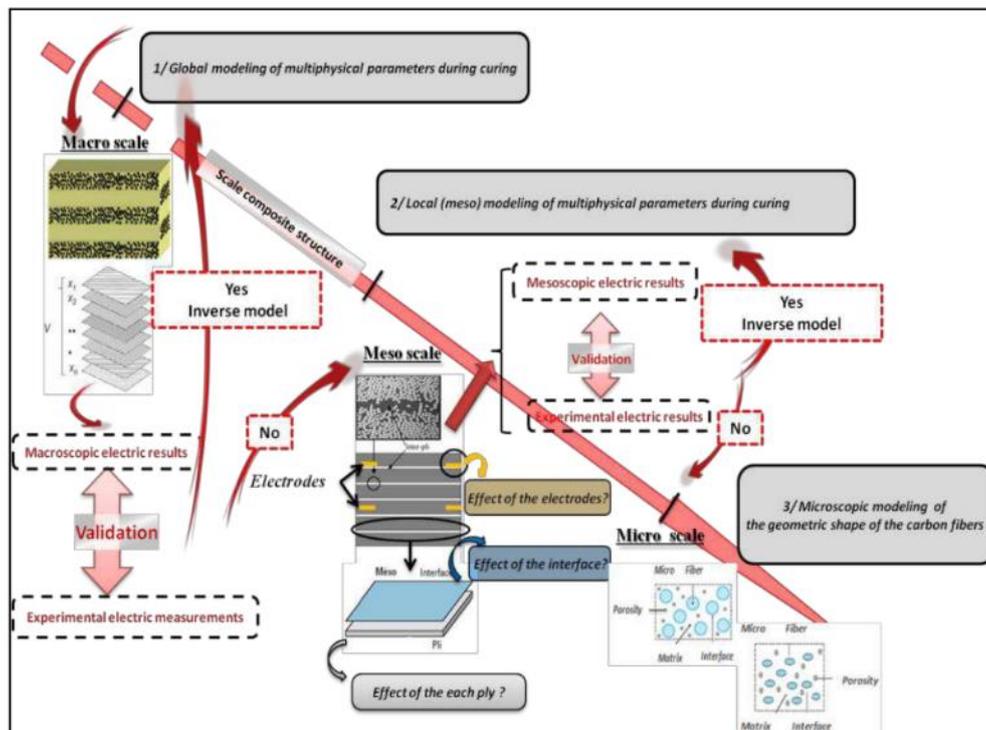


Figure 3 Stratégie pour identification des paramètres multi-physiques de CFRP [3]

En effet, la structure des pièces en CFRP reste complexe, car elle ne dépend pas uniquement et simplement de l'empilement des différents plis utilisés mais également de la répartition des chemins de conduction électrique fortement dépendants de l'évolution des paramètres géométriques à l'échelle de plis et des constituants. Pendant la cuisson, par exemple, l'évolution du réseau de percolation dans chaque pli et interpli dans le sens de l'épaisseur est fortement dépendante du nombre de plis et de la pression utilisée (cuisson en étuve ou autoclave). Les fractions volumiques de fibres / résine, le nombre de contacts inter-fibres et les longueurs de percolation peuvent varier sensiblement d'un pli à l'autre [3-6] (Figure 4).

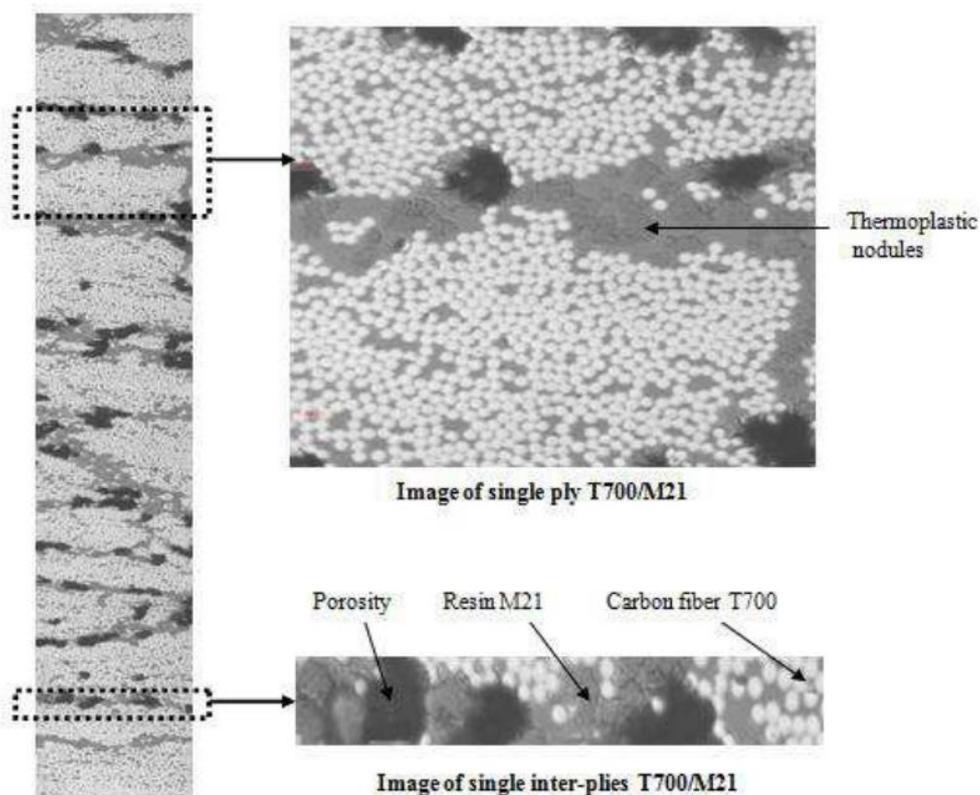


Figure 4 Image microscopique d'un stratifié  $[0^{\circ}_8]$  de T700/M21 représentant différents constituants (fibres, matrice et porosités) [7]

Afin de réaliser les mesures électriques, des capteurs intégrables dans les structures en CFRP sont généralement utilisés (transduction de grandeurs physique). Il est bien plus rare d'utiliser le matériau constitutif lui-même comme capteur (fonctionnalisation du matériau) en utilisant des électrodes en surface ou enfouies par exemple (lecture directe de la grandeur physique). Dans les deux cas, le risque d'intrusivité et de modification des propriétés intrinsèques doivent être considéré et défini. Dans le cadre de notre étude, nous utilisons le matériau CFRP comme capteur. En effet, la réponse électrique (temporelle et fréquentielle) du matériau à une sollicitation du courant dépend de ces paramètres intrinsèques. L'état de matériau peut donc être connu à partir de sa propre réponse électrique. Des électrodes en cuivre peuvent être utilisées pour assurer le passage du courant. Une analyse d'impédancemétrie électrique (IE) a été proposé au sein de l'ICA [8-11]. En ce qui concerne l'instrumentation, un banc d'impédancemétrie électrique doté d'un système de génération/réception du signal électrique et de traitement du signal électrique est nécessaire pour interpréter les résultats de mesure d'impédance électrique des matériaux CFRP en cuisson ou en service.

Cette approche permet de s'affranchir de capteurs encombrants, intrusifs, fragiles ou impliquant un changement notable de la fabrication des structures aéronautique en CFRP. A propos de la fonctionnalisation du matériau, le matériau CFRP peut également jouer un rôle d'actionneur. En effet, l'injection de courant alternatif peut entraîner une élévation de température qui peut être mise à contribution pour assurer un contrôle actif par infra-rouge (détection de défauts) ou servir au dégivrage. Ainsi, les stratifiés en CFRP peuvent devenir des matériaux intelligents rendant compte de l'évolution de leur état à partir de leur propre réponse électrique du stade de la mise en œuvre à la mise en service jusqu'à la ruine.

Les objectifs principaux de cette étude visent le développement d'une approche d'impédancemétrie électrique (IE) à l'aide d'un banc développé au sein du laboratoire ICA pour le suivi de cuisson, et une modélisation de la cinétique de la polymérisation des matériaux CFRP. L'objectif final est de pouvoir proposer un asservissement des procédés de cuisson à des fins d'optimisation de cycle et de performance des structures produites. Une modélisation inverse devra être mise en œuvre à cette fin.

Le premier chapitre est consacré à une étude bibliographique sur les techniques de suivi de cuisson et de surveillance des matériaux composites notamment CFRP (instrumentation et capteurs). Les principes de suivi, les capteurs utilisés, les prix et les domaines d'application de ces différentes techniques présentées sont discutées. Une attention particulière est portée sur les techniques de suivi de cuisson et de détection d'endommagement par mesures électriques ainsi que sur les modélisations de la conduction électrique au sein de ce type de matériaux. Les modèles 3D de circuits RC (résistance et condensateur) parallèles nous intéressent car ils sont capables de décrire les comportements électriques de structure en CFRP sous une excitation électrique alternative (analyse fréquentielle). L'objectif ici est de pouvoir poser un bref état de l'art permettant de mettre en évidence les besoins, les limites et les gains potentiels d'un monitoring assuré par impédancemétrie électrique (IE) en utilisant le matériau lui-même comme capteur (les potentialités d'application des matériaux intelligents).

Le deuxième chapitre détaille les matériaux de l'étude (préimprégnés T700/M21 et NC66/NA1808) ainsi que la conception et le développement d'un banc ad-hoc. Les différents échantillons (monopli, stratifiés multiplis UD et QI) de T700/M21 ont été traités dans les thèses antérieures réalisées à l'ICA [7, 10, 12]. Les analyses thermiques

et rhéologiques conventionnelles (DSC, DMA, rhéomètre à plateaux parallèles, etc.) ont été effectuées sur ces échantillons afin de déterminer la variation du degré d'avancement  $\alpha$  et des paramètres rhéologiques (viscosité  $\mu$ , module de conservation et de perte en cisaillement  $G'$  et  $G''$  et facteur de perte  $\tan\delta$ ) pendant leur polymérisation (transitions physico-chimiques). Cela a permis d'identifier les points critiques de la polymérisation comme le point de liquéfaction (PL), le point de gélification (PG), le point de vitrification (PV) et le point de finalisation (PF). Ces points ont été discutés avec les résultats obtenus par mesure IE en cours de cuisson à l'aide d'un banc basé sur un analyseur spécifique HIOKI IM3570. Un nouveau banc est développé au sein du laboratoire ICA afin de valider l'approche IE sur un nouveau matériau, le préimprégné NC66/NA1808. Ce dernier doit respecter les contraintes suivantes : être low-cost, portable et capable de faire des mesures multi-physiques (électrique et thermique) en multivoies. De plus, il doit permettre l'adaptation de plugins pour étendre les gammes de mesures et pouvoir être facilement transférable.

Le troisième chapitre présente les résultats des analyses thermiques et rhéologiques (DSC, TGA, Vanhographie et rhéomètre à plateaux parallèles) réalisées sur les préimprégnés NC66/NA1808 et la matrice NA1808 non-renforcée. Ils permettent de définir les paramètres physicochimiques caractéristiques des transitions de phases pendant la cuisson. Ces résultats sont confrontés à l'analyse des suivis de cuisson par IE réalisés à l'aide du banc développé et sont traités en utilisant les modules  $|Z|$  et arguments  $\theta$  des impédances électriques mesurées. Les résultats obtenus dans les différentes directions de mesure et avec différentes fréquences d'excitation sont discutés. Les points critiques principaux de la polymérisation (PL, PG, PV et PF) sont identifiés par la même méthode que celle utilisée dans les précédents travaux (analyse à l'aide des lignes asymptotiques et tangentes, et utilisation de la variation des dérivées des grandeurs étudiées). Nous cherchons ici à montrer que des signatures type de cuisson peuvent être obtenues sur des CFRP, indépendamment du moyen de mesure et du type de préimprégné utilisé. L'effet de la présence des fibres de carbone entre échantillons de résine non-renforcée et de préimprégnés est discuté. Une étude sur la faisabilité de la détection de défauts en cours de cuisson est également proposée.

Le quatrième chapitre propose une mise en corrélation du comportement physico-chimique avec la réponse électrique des matériaux CFRP en cours de cuisson. Le

modèle Kamal-Sourour est appliqué afin de décrire la cinétique de polymérisation de la résine NA1808 et un bon accord est obtenu entre les résultats de la simulation et les résultats expérimentaux. La relation entre le degré d'avancement  $\alpha$  et les résultats de mesure IE en  $|Z|$  et  $\theta$  est étudiée et montre une forte corrélation. Plusieurs lois de corrélation (fonctions explicites d'ajustement) entre  $\alpha$ ,  $|Z|$ ,  $\theta$  et leurs dérivées secondes sont proposées afin de décrire la cinétique de la polymérisation. Une modélisation géométrique-électrique de CFRP en post-cuisson est également présentée. Une simulation de la distribution de fibres dans un pli de CFRP est effectuée en tenant compte des paramètres géométriques liés à la microstructure (fraction volumique de fibres, distances de percolation et ondulation des fibres). Le réseau de percolation constitué par les points de contacts inter-fibres est ainsi généré avec différentes configurations de la répartition de fibres : carré, hexagonale et aléatoire. Cette modélisation permet de simuler la conduction électrique au sein d'un de CFRP à l'aide d'une modélisation basée sur la méthode DKMC, Discret Kirchhoff–Monte Carlo. La simulation est faite en 2D (conduction surfacique) et 3D (conduction volumique) afin d'établir une corrélation entre le comportement électrique du matériau et ses paramètres géométriques.

Le cinquième chapitre est une brève présentation de perspectives potentielles de l'approche IE développée. Une étude par thermographie infrarouge est réalisée afin de mettre en évidence la faisabilité d'une fonctionnalisation du matériau pour assurer du contrôle CND ou une fonction de chauffage, par exemple pour dégivrer des surfaces exposées à des températures critiques (bords d'attaque et surfaces de vol des avions par exemple). La réponse d'un échantillon monopli de NC66/NA1808 sous flexion manuelle est abordée pour mettre en évidence la réponse IE à une sollicitation mécanique simple. Dans l'optique de l'utilisation de fibres de carbone comme électrodes de mesure, une étude préliminaire sur le suivi de la réponse IE d'une mèche de carbone en cours de cuisson est également présentée.

Ce manuscrit finira par une conclusion et des perspectives générales.

**Chapter 1    Etat de l'art des techniques du suivi de cuisson  
des matériaux CFRP**

## 1.1 Introduction

Ce chapitre est l'étude bibliographique concernant les méthodes utilisées pour caractériser les pièces en matériaux composites à fibres de carbone renforçant une matrice polymère (CFRP) en cours d'un cycle de polymérisation et en service également (vision SHM : Structure Health Monitoring).

Dans une première partie, une description générale des matériaux composites à fibre de carbone sera présentée, ainsi que les procédés de fabrication concernant notamment les pièces stratifiées produites à partir de préimprégnés CFRP. Nous nous intéresserons plus particulièrement à la fabrication en ou hors autoclave.

Dans la deuxième partie de ce chapitre, un état de l'art sera présenté sur le suivi de cuisson des matériaux composites. Les différentes techniques présentées seront discutées en termes de principe, de capteur, de prix et de domaines d'application. Une attention particulière sera apportée au suivi de cuisson à l'aide de mesures électriques.

Dans une troisième partie, les modèles électriques des matériaux CFRP à différentes échelles seront discutés et comparés. Nous nous intéressons notamment aux modèles 3D de circuits RC (résistance et condensateur) parallèles capables de décrire les comportements électriques de composites CFRP unidirectionnels dans les trois directions principales.

Finalement, un résumé des travaux précédents conduits à l'Institut Clément Ader depuis une dizaine d'années sur le même thème sera présenté et discuté pour illustrer le besoin et l'originalité de ce travail de thèse présenté dans ce mémoire. Il s'agira non seulement d'éclairer le besoin du développement d'un banc de mesure dédié à la méthodologie développée, visant une transférabilité simple vers une application industrielle, mais également de valider l'approche développée dans de précédents travaux de thèse à l'ICA [3-6, 8-11, 13-15] sur un nouveau matériau CFRP.

## 1.2 Généralités sur les matériaux CFRP

Le matériau composite est un matériau multi-phase constitué de matériaux : métaux, céramiques et/ou polymères. Ces matériaux différents en propriétés, une fois assemblés, présentent une synergie, de sorte que la performance globale du matériau composite est meilleure que celle d'un de ces matériaux d'origine. Les composites peuvent être fabriqués afin de répondre à une variété d'exigences différentes et bien spécifiques, rendant les combinaisons entre matériaux infinies. Un matériau composite se compose d'au moins deux phases : le renfort et la matrice.

### 1.2.1 Les renforts

Les renforts jouent un rôle essentiel dans l'amélioration des performances mécaniques des matériaux composites. Les renforts peuvent être classés en fonction de leur forme : particules, fibres courtes et fibres continues. Dans la catégorie des renforts continus, il existe de nombreuses fibres naturelles et synthétiques, y compris des fibres métalliques, de verres, de céramiques et de polymères (Figure 5).

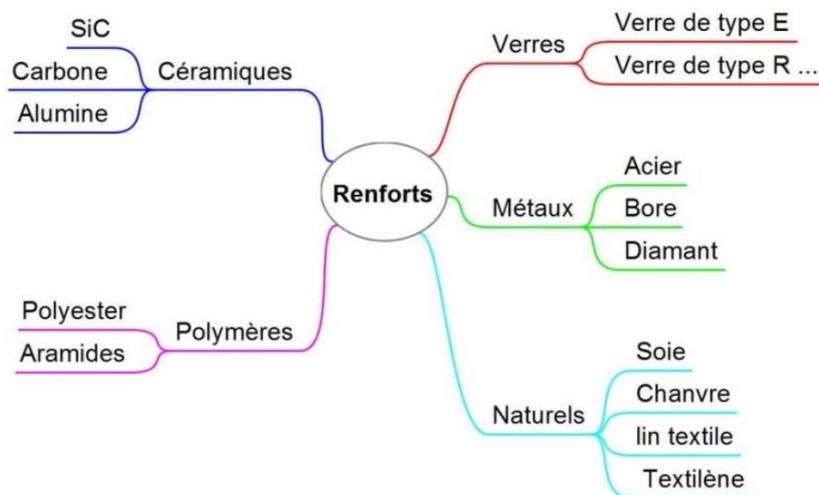


Figure 5 Classification des renforts utilisés pour les matériaux composites [10]

Dans le cadre de notre étude, les fibres de carbone contenues dans les CFRP possèdent non seulement de bonnes propriétés mécaniques, mais aussi une excellente conductivité électrique de l'ordre de  $10^4$ – $10^5$   $S \cdot m^{-1}$  [16, 17] qui permet de faire la caractérisation par la mesure électrique.

Le processus d'élaboration des fibres de carbone à partir de polyacrylonitrile (PAN) se

compose principalement de 3 étapes de traitement en haute température : l'oxydation, la carbonisation et la graphitisation (Figure 6).

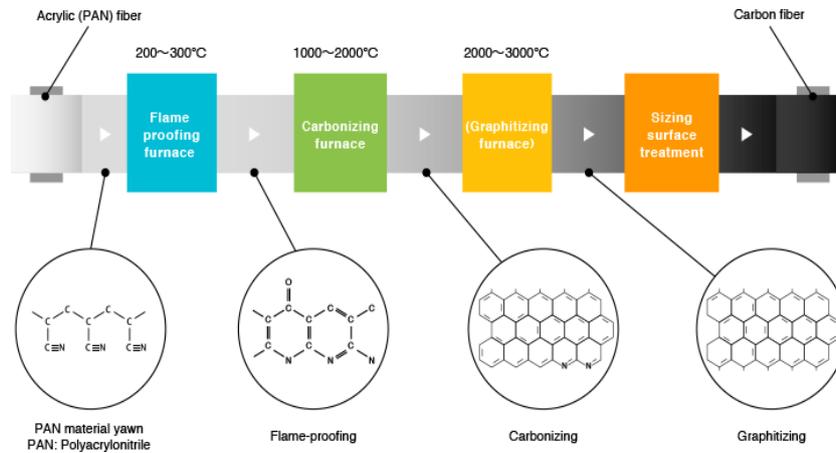


Figure 6 Schéma du processus pour l'élaboration de fibre de carbone à partir d'un précurseur polyacrylonitrile (PAN) [18]

D'un point de vue microstructural (Figure 7), la fibre de carbone se présente sous la forme d'un graphite. Elle présente un certain nombre de propriétés mécaniques remarquables (Tableau 1), notamment une résistance élevée à la traction et à la compression, un module d'élasticité élevé et une masse volumique faible (par rapport aux métaux) qui facilite la réduction du poids des structures aéronautiques. Le module de rigidité de la fibre de carbone dépend de la température de carbonisation [19].

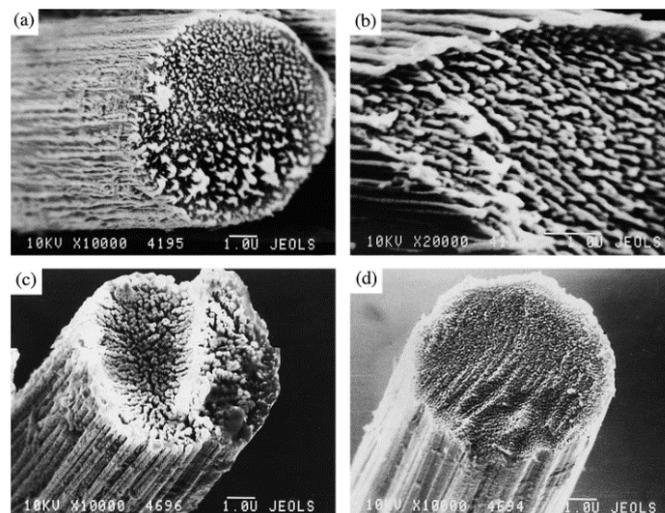


Figure 7 Micrographies de la fibre de carbone [20]

Référence commerciale de PAN	Masse volumique (g/cm <sup>3</sup> )	Résistance à la traction (GPa)	Module de Young (GPa)	Allongement (%)
T300	176	353	230	1.5
T300J	178	421	230	18
T400H	18	441	250	18
T700S	18	49	230	21
T1000G	18	637	294	22
M35J	176	47	343	1.1
M40J	177	441	377	12
M46J	184	421	436	10
M50J	188	412	475	8
M55J	191	402	540	8
M60J	194	392	294	13
M30	17	392	294	13
M30S	173	549	294	19
M30G	173	51	294	17
M40	181	274	392	7
M50	191	245	490	0.5

Tableau 1 Propriétés mécaniques des différentes fibres de carbone [21]

La microstructure graphitique assure le passage des électrons libres via des liaisons covalentes, métalliques ou de type  $\pi$ - $\pi$ . Du point de vue électrique, la fibre de carbone peut être considérée comme un semi-conducteur qui représente une bonne conductivité axiale. La conductivité électrique de la fibre de carbone est proportionnelle à la température de carbonisation [22]. Ainsi, la fibre de carbone étant un conducteur électrique naturel, elle peut être utilisée dans une approche de surveillance (suivi de cuisson, SHM, etc.) par impédancemétrie électrique.

### 1.2.2 La matrice

Dans le cas des matériaux composites, la matrice agit comme un liant pour les renforts, assurant leur cohésion et donnant au produit fini ses propriétés finales et la forme souhaitée. En fonction de leur composition chimique, les matrices composites peuvent être divisées en différents groupes qui sont données sur la Figure 8.

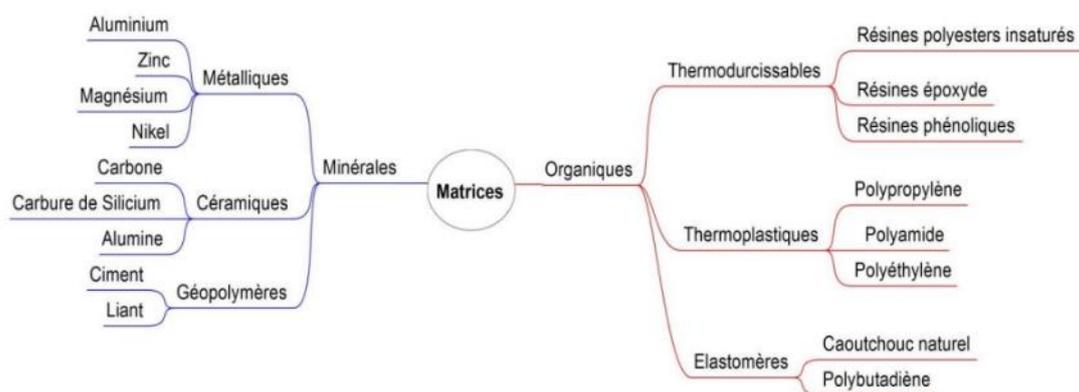


Figure 8 Classification des matrices utilisées pour les matériaux composites [10]

Dans le groupe des matrices organiques, il y a trois sous-catégories : les polymères thermodurcissables (TD), les polymères thermoplastiques (TP) et les élastomères. Les TD, en particulier les résines époxy, sont souvent utilisés dans la construction de structures aéronautiques. Notre étude se concentre sur cette résine. Quelques matrices TD et leurs propriétés mécaniques sont présentées dans le Tableau 2.

Matrices TD	Masse volume (kg/m <sup>3</sup> )	Module d'élasticité longitudinal (MPa)	Module de cisaillement (MPa)	Coefficient de Poisson	Contrainte de rupture (MPa)	Allongement à rupture %	Coefficient de dilatation thermique
Epoxyde	1200	4500	1600	0,4	130	2	11*10 <sup>-5</sup>
Phénolique	1300	3000	1100	0,4	70	2,5	1*10 <sup>-5</sup>
Polyester	1200	4000	1400	0,4	80	2,5	8*10 <sup>-5</sup>
Polycarbonate	1200	2400		0,35	60		6*10 <sup>-5</sup>
Vinylester	1150	3300			75	4	5*10 <sup>-5</sup>
Silicone	1100	2200		0,5	35		
Uréthane	1100	700 à 7000			30	100	
Polyamide	1400	4000 à 19000	1100	0,35	70	1	8*10 <sup>-5</sup>

Tableau 2 Propriétés mécaniques des matrices thermodurcissables [23]

Dans la phase d'élaboration, toutes les matrices TD nécessitent un cycle de cuisson pour leur polymérisation. Pendant la cuisson, la matrice se transforme en un réseau réticulé tridimensionnel en passant par différents états (Figure 9). Différentes transitions physico-chimiques existent pendant la cuisson et conduisent à la réticulation du polymère : la liquéfaction, la gélification et la vitrification.

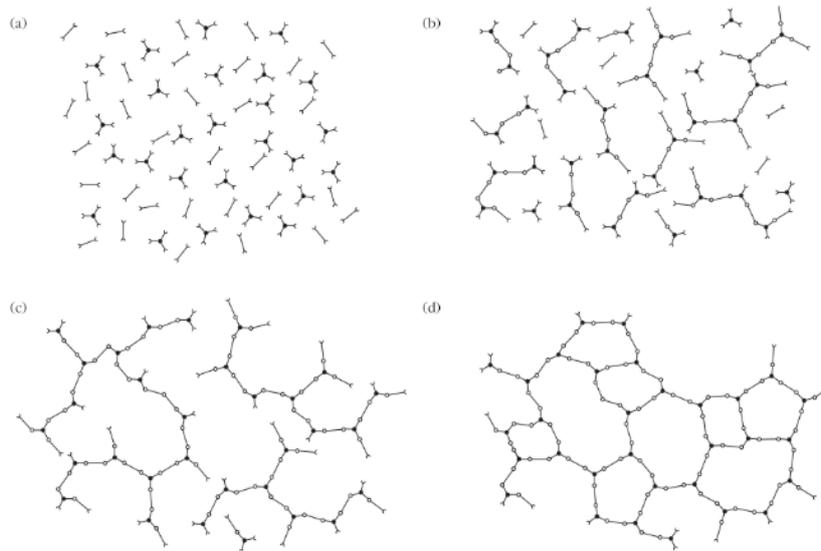


Figure 9 Schématisation du processus de la réticulation d'un polymère thermodurcissable : (a) composants n'ayant pas encore réagi ; (b) croissance linéaire et branchement des chaînes ; (c) formation d'un gel ; (d) produit complètement réticulé [23]

Par rapport aux premières étapes du processus de polymérisation d'une matrice thermodurcissable, réagissant par polyaddition (typique des systèmes époxy/amine), il convient de distinguer les formulations en fonction du procédé de mise en œuvre par lequel elles ont été développées. Pour les mises en œuvre par voie liquide (imprégnation manuelle, infusion, RTM, enroulement filamentaire, etc.), les matrices sont en principe liquides et donc très fluides à température ambiante avant cuisson. Pour les matrices utilisées dans les préimprégnés, la viscosité doit être adaptée sinon la résine s'écoulera quand on manipule les plis de préimprégnés. Dans ce cas, les producteurs de préimprégnés amènent la matrice à un stade de réaction dit stade  $\beta$ . Cela veut dire que la réaction a été démarrée puis stoppée en sortie de chaîne de fabrication du préimprégné. Lors de la fabrication de pièces avec cycle de polymérisation, la matrice verra, lors de l'élévation de température, sa viscosité diminuer. Les chaînes de polymère se linéariseront et parviendront à un point qui sera qualifié de liquéfaction où la résine présentera un minimum de viscosité. A l'issue de cette étape, l'élévation de température conduira la matrice vers la gélification.

La gélification se caractérise par une élévation plus ou moins rapide de la viscosité de la matrice. Pendant cette transition, la matrice passe d'un état liquide visqueux à un état de gel visqueux. La réticulation de la matrice commence lorsque la température de cuisson dépasse une température critique. La phase sol (constituée des monomères) et

la phase gel (constituée des macromolécules) coexistent dans la matrice. La matrice devient de plus en plus visqueuse à cause de la transition de la phase sol à la phase gel.

La vitrification désigne la transition de la matrice d'un gel visqueux à un solide. La mobilité des chaînes moléculaires diminue. La réticulation complète de la matrice s'achève à la fin de cette transition.

Selon le diagramme Temps, Température, Transformation (TTT) (Figure 10) développé par Gillham et al.[24], il y a trois températures critiques pendant la polymérisation des polymères thermodurcissables :  $T_{g0}$ ,  $T_{g_{gel}}$  et  $T_{g_{\infty}}$ .

- $T_{g0}$  désigne la température de transition vitreuse qui correspond à une réticulation nulle de la résine. Pendant le cycle de cuisson, la résine va rester toujours à l'état vitreux si la température de cuisson est inférieure à  $T_{g0}$ .
- $T_{g_{gel}}$  indique le point croisé entre la courbe de gélification et celle de vitrification. La réticulation et la vitrification de résine se produisent en même temps à  $T_{g_{gel}}$ .
- $T_{g_{\infty}}$  désigne la température de transition vitreuse maximale qui correspond à la réticulation maximale de la résine. La résine va gélifier avant de vitrifier si la température de cuisson est supérieure à  $T_{g_{gel}}$  mais inférieure à  $T_{g_{\infty}}$ .

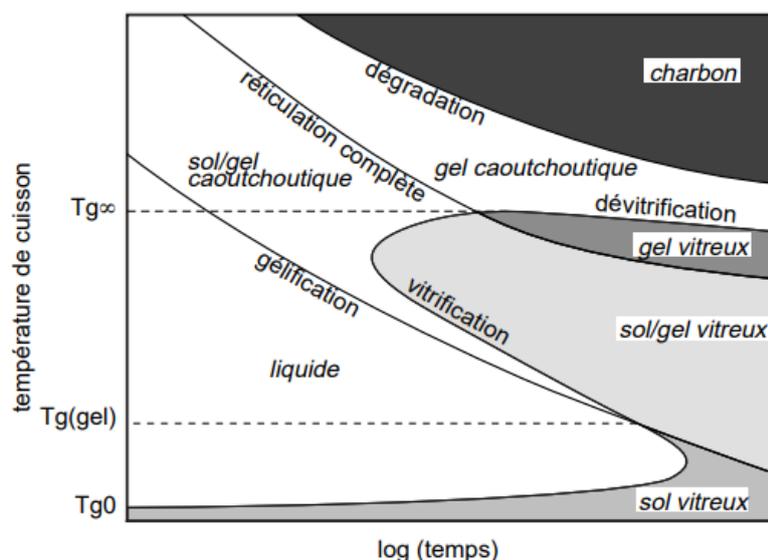


Figure 10 Diagramme TTT schématisé et tel qu'établi par [24]

Le diagramme TTT permet de visualiser les courbes de gélification, de vitrification et

de dégradation séparant les différents états de la matrice thermodurcissable. Les producteurs de pièces à matrice TD seront vigilants de ne pas amener la matrice dans la zone de dégradation et garderont comme objectif d'amener le matériau au-delà de la courbe de vitrification.

Il existe plusieurs paramètres qui permettent de suivre les changements de phase dans la cuisson d'une matrice époxy. Ces paramètres sont le degré d'avancement  $\alpha$  (en %), la viscosité  $\mu$  (en Pa.s), les modules de conservation  $E'$  ou  $G'$ , et de perte  $E''$  ou  $G''$  et enfin la tangente de l'angle  $\delta$  qui est le rapport de  $E''$  et  $E'$  (ou  $G''$  et  $G'$ ).

Tout ceci est notamment décrit dans l'ouvrage du Groupe Français d'études et d'applications des Polymères (GFP) [25, 26]. Certains auteurs utilisent aussi, comme paramètres de suivi de la réaction, la masse moléculaire en nœuds de réticulation  $M_c$ . Nous n'avons pas utilisé ce paramètre dans ce travail de thèse.

Les accès aux différents paramètres ( $\alpha$ ,  $\mu$ ,  $G'$ ,  $G''$  et  $\tan \delta$ ) se font avec des moyens expérimentaux et des méthodologies éprouvées que nous allons décrire dans leurs grandes lignes : analyse calorimétrique différentielle (DSC) [27-29], analyse mécanique dynamique (DMA) [30, 31] et rhéométrie [32, 33] pour l'accès à la viscosité. L'analyse thermogravimétrique (TGA) permet de définir les limites de la zone de dégradation dans le diagramme TTT [34, 35].

Enfin soulignons qu'à l'ICA, nos précédents travaux sur les mesures d'impédance électrique des stratifiés CFRP ont montré que l'on pouvait détecter les changements de phase : minimum de viscosité, gélification et vitrification [3-6, 8-11, 13-15].

L'analyse calorimétrique différentielle ou DSC est très largement utilisée pour déterminer les chaleurs de réaction, les températures de transition vitreuse et les capacités calorifiques des thermodurcissables et des préimprégnés.

Le degré d'avancement  $\alpha$  déterminé à partir de chaleurs de réaction est donné par l'équation Eq. 3 sachant que les enthalpies de réaction totale  $H_{TOT}$  et au cours du temps  $H(t)$  sont elles-mêmes données par les équations Eq. 1 et Eq. 2 (Figure 11 a et b respectivement).

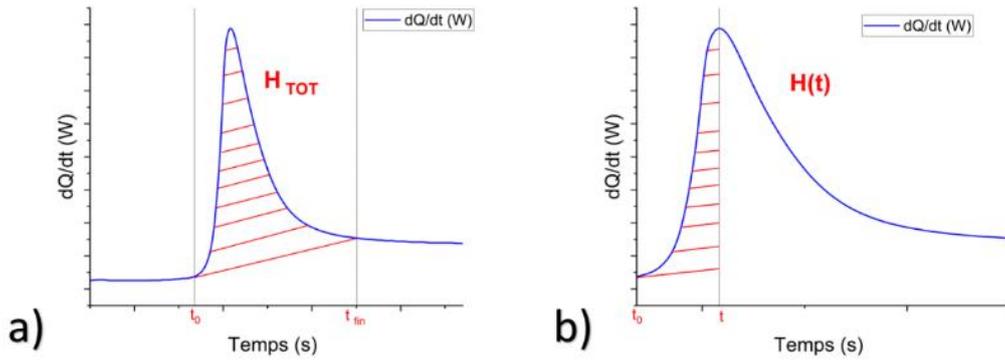


Figure 11 Détermination des enthalpies de réaction totale  $H_{tot}$  et au cours du temps  $H(t)$

$$H_{TOT} = \int_{t=0}^{t=t_{fin}} \frac{dQ}{dt} dt \quad \text{Eq. 1}$$

$$H(t) = \int_{t=0}^{t=t} \frac{dQ}{dt} dt \quad \text{Eq. 2}$$

$$\alpha(t) = \frac{H(t)}{H_{TOT}} \quad \text{Eq. 3}$$

Habituellement la combinaison des essais de DSC utilisés Figure 11 a et b sont à la base de la cinétique de la polymérisation donnant les évolutions du degré d'avancement  $\alpha$  en fonction des conditions de cuisson : temps(t) et température (T) [28, 30, 36, 37].

Les résultats DSC obtenus sur la résine non-renforcée et le préimprégné carbone/époxy peuvent différer en raison de la présence de fibres de carbone, qui ont une conductivité thermique supérieure à celle de la résine polymère et modifient donc le coefficient de conductivité thermique du matériau étudié.

### 1.2.3 Matériaux de l'étude : préimprégnés NC66/NA1808 et T700/M21

L'étude présentée ici est basée sur deux types de préimprégnés utilisés dans l'industrie aéronautique : NC66/NA1808 fourni par CTMI France et T700/M21 fourni par Hexcel Composite France (Figure 12).

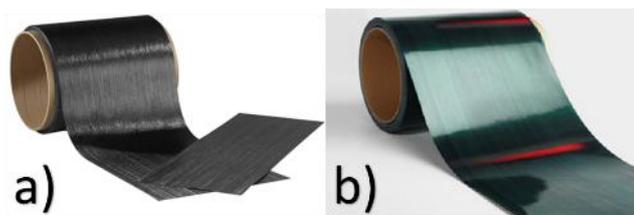


Figure 12 Préimprégnés T700/M21 (a) et NC66/NA1808 (b)

Le préimprégné est un produit semi-fini en CFRP qui attend d'être polymérisé. Les fibres de carbone sont déjà imprégnées dans la résine à l'état semi-liquide et pré-réticulé. Il permet d'obtenir la forme souhaitée de la pièce après polymérisation en empilant plusieurs plis de préimprégnés. Différents types d'empilement peuvent être utilisés (par exemple unidirectionnels ou quasi-isotropes) pour la mise en forme des stratifiés. Les stratifiés CFRP présentent de fait des propriétés anisotropes induites directement par les orientations des fibres dans les préimprégnés, l'empilement choisi mais également le cycle de cuisson appliqué (température, vide et/ou pression) [5, 38].

#### 1.2.4 Les procédés d'élaboration des matériaux CFRP

En ce qui concerne les techniques de mise en forme, les différents procédés (par exemple le tissage, l'infusion, l'enroulement filamentaire, etc.) peuvent être utilisés pour fabriquer les structures aéronautiques en matériaux composites (Figure 13).

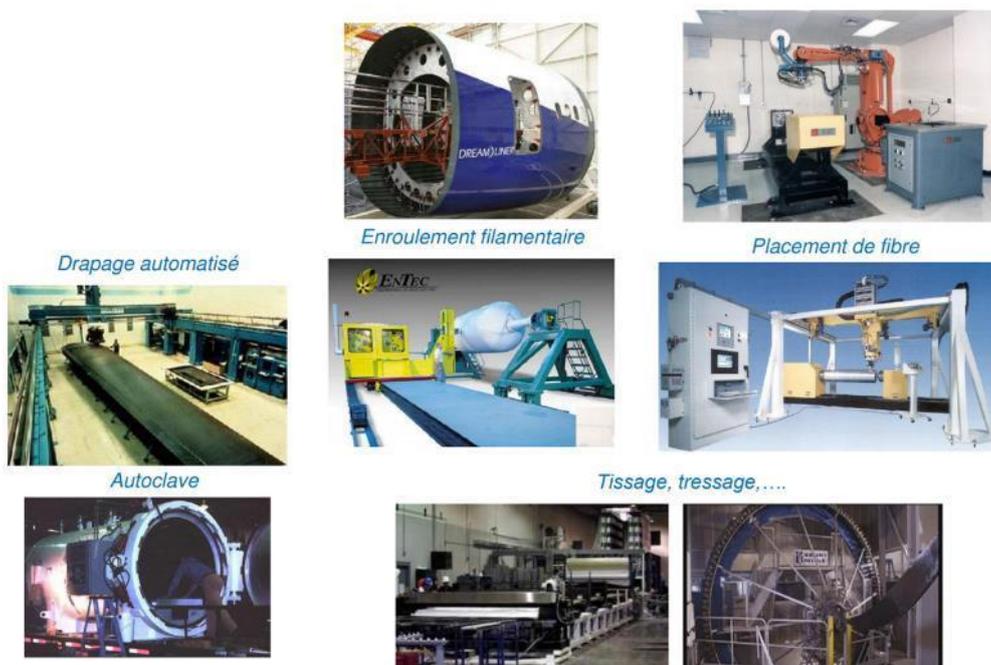


Figure 13 Différents procédés de mise en forme de CFRP [39]

Ici, le procédé de moulage sous bâche à vide nous intéresse. Dans ce cadre, l'élaboration d'une pièce en CFRP à partir des préimprégnés T700/M21 peut être divisée en 3 étapes principales :

- Découpage de la nappe de préimprégnés ;
- Moulage sous vide ;
- Cuisson au sein de l'autoclave ou de l'étuve.

La nappe peut être découpée manuellement ou à l'aide d'un robot industriel programmé. La forme de la pièce finie dépend non seulement de la forme du pli découpé, mais aussi de la forme du moule utilisé. Les plis de CFRP sont ensuite empilés successivement sur le moule. Les produits d'environnement sont placés autour de l'empilement de préimprégnés et sont recouverts par la bâche à vide, qui scelle l'ensemble du moulage (Figure 14). Cette étape est une étape préliminaire à l'évacuation de la résine et de l'air lors de la cuisson : précomptage.

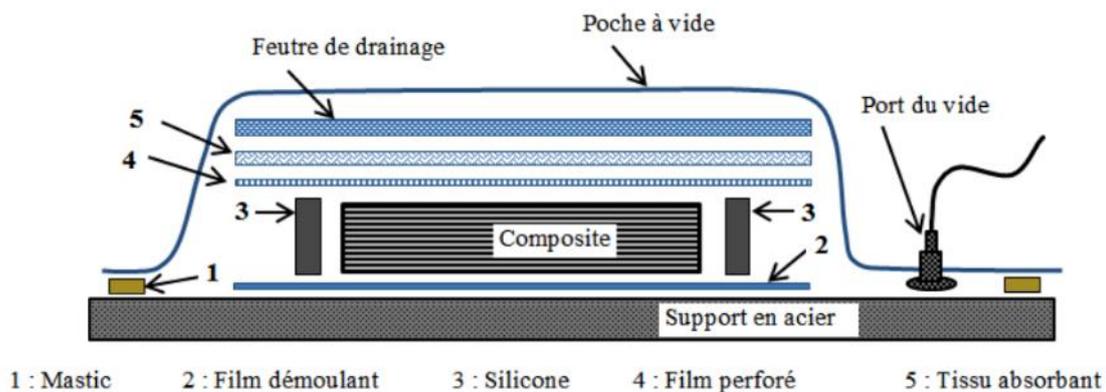


Figure 14 Moulage sous vide pour élaboration de composite [10]

Ensuite, un cycle de cuisson spécifique est effectué pour mise en forme des stratifiés de CFRP. En général, un cycle se compose de plusieurs phases de montées et de paliers thermiques. Dans notre cas, le cycle se compose de trois phases : la phase de chauffage, la phase isotherme et la phase de refroidissement. Dans le cas d'un cycle en autoclave, il faut ajouter de la pression. La cuisson peut être effectuée dans une étuve à pression atmosphérique, ou dans un autoclave avec une pression de 7 bars (Figure 15).

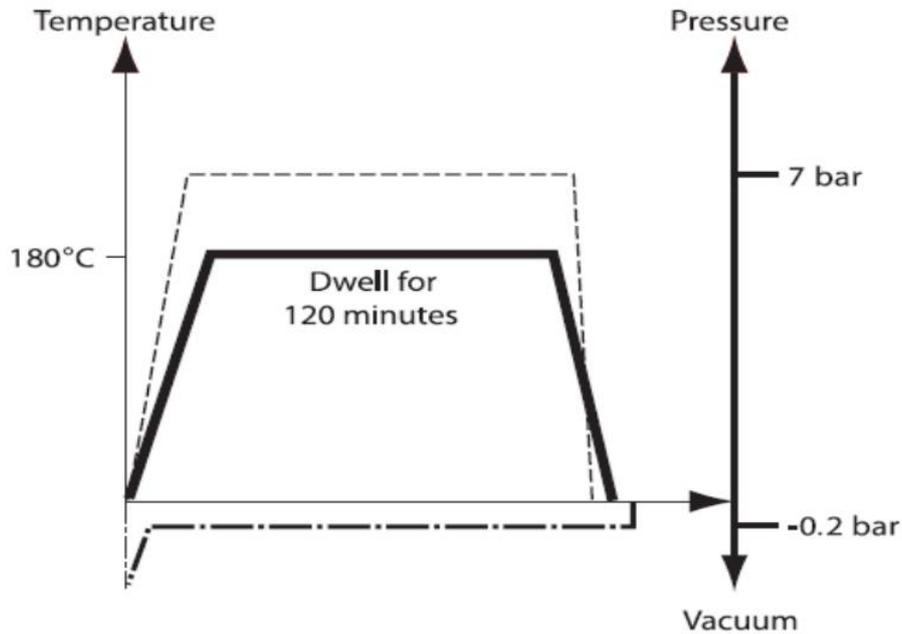


Figure 15 Cycle de cuisson du préimprégné HexPly® M21 dans un autoclave [10]

La pression est un facteur clé qui affecte les fractions volumiques des fibres et de la porosité [7] et les performances du produit. En général, les échantillons cuits en autoclave sont plus performants que ceux cuits en étuve. Par conséquent, si notre approche est validée dans le cas d'une cuisson hors autoclave, elle doit également fonctionner dans l'autoclave.

### 1.3 Méthodes de suivi de cuisson

Comme nous l'avons déjà dit, le degré d'avancement de la réaction  $\alpha$  est un indicateur important du contrôle qualité de la structure en CFRP. Il faut donc des méthodes pour surveiller l'évolution du degré d'avancement  $\alpha$  en temps réel pendant la cuisson, en identifiant les points critiques de polymérisation suivants :

- PL : point de liquéfaction ;
- PG : point de gélification ;
- PV : point de vitrification ;
- PF : fin de réaction.

PL peut être identifié comme le minimum de viscosité  $\mu$  ou du module de perte ( $E''$  ou

$G''$ ) obtenu par les analyses thermiques conventionnelles [40, 41]. PG et PV peuvent être identifiés par la courbe du degré d'avancement de la réaction  $\alpha(t)$  en cours de polymérisation. Par exemple, Li et al. [42] ont estimé les valeurs de degré d'avancement  $\alpha$  à PG et PV dans la polymérisation du composite HEXCEL AS4/8552.  $\alpha$  a été estimé vers 0,55 à PG et vers 0,9 proche de PV (Figure 16). Les valeurs estimées ont été vérifiées avec l'évolution du module de conservation  $E'$  obtenu par les essais DMA.

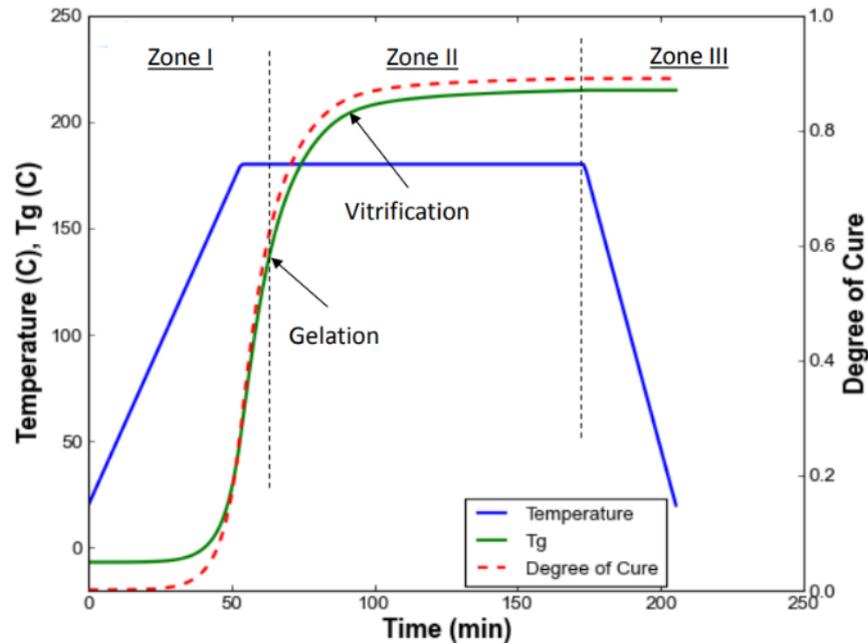


Figure 16 Évolution d'  $\alpha$  dans la polymérisation du composite HEXCEL AS4/8552 avec un cycle d'un seul palier de température [42]

Cependant, Ersoy et al. [43] ont proposé les valeurs d' $\alpha$  à PG vers 0,3 et à PV vers 0,9 pour le même matériau composite HEXCEL AS4/8552, mais avec un cycle de cuisson de deux paliers de température (Figure 17). Les valeurs d' $\alpha$  aux différents points critiques peuvent être cycle dépendant et matériau dépendant (les résultats sur la matrice M21 seront discutés dans le chapitre 2).

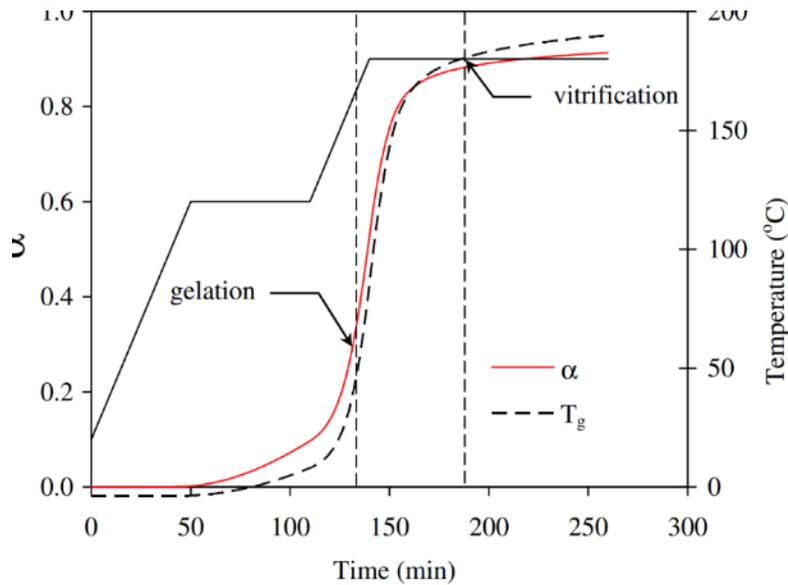


Figure 17 Évolution d' $\alpha$  dans la polymérisation du composite HEXCEL AS4/8552 avec un cycle de deux paliers de température [43]

Outre le suivi du degré d'avancement de la réaction  $\alpha$ , ces méthodes doivent être en mesure de détecter les anomalies en temps réel afin d'ajuster ou d'interrompre la cuisson. Ainsi, dans les différentes phases du cycle de vie des structures aéronautique, de nombreuses techniques de caractérisation peuvent être appliquées pour surveiller l'état de santé de la structure. Chaque technique peut être utilisée dans son domaine d'application, avec ses propres avantages et inconvénients. Dans les paragraphes suivants, certaines de ces techniques seront présentées afin de souligner l'intérêt de l'approche développée dans notre travail.

Par exemple, les fibres optiques à réseau de Bragg (FBG) (Figure 18), qui sont capables de détecter les variations de température et la déformation du matériau, sont souvent utilisées pour surveiller l'état de la structure essentiellement des déformations pendant la cuisson [44-48] ou au cours de divers essais mécaniques [49-54]. Les fibres optiques permettent de suivre les déformations du composite au cours de cuisson. La précision atteinte est supérieure à celle des jauges d'extensomètre classiques. Cependant, les équipements comme les sources laser, les interrogateurs optiques et les analyseurs de spectre restent des matériels onéreux.

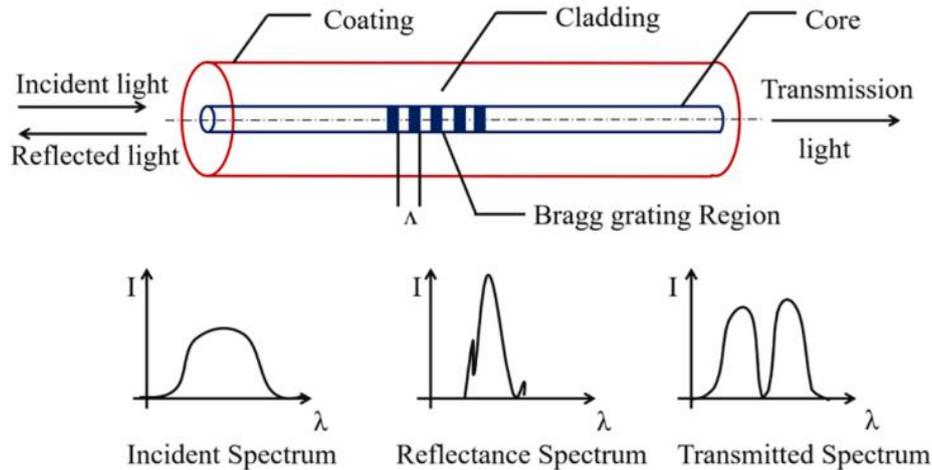


Figure 18 Principe de la transmission optique de FBG [53]

Les travaux réalisés à l'ICA depuis 2005 sur l'utilisation des fibres optiques dans les matériaux composites, permettent de répondre à l'interrogation de l'intrusivité. La Figure 19 montre comment des fibres optiques sont intégrées dans un stratifié quand elles sont placées parallèlement aux fibres carbonées. Il est conseillé d'éviter le placement perpendiculaire créant une ondulation forte de la fibre optique.

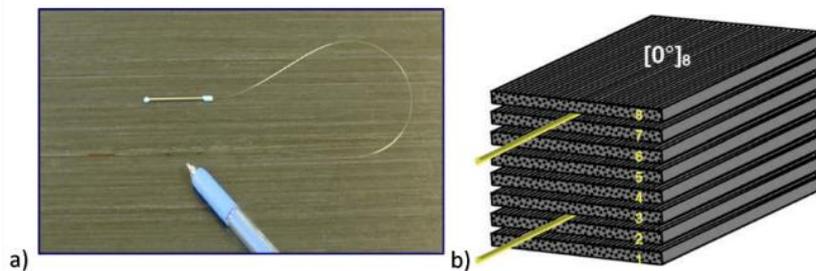


Figure 19 Une photo d'une fibre optique (a) et le schéma du placement parallèle des fibres optiques dans un stratifié  $[0^\circ]_8$  de M21/T700 (b) [44]

En ce qui concerne le placement de la fibre optique parallèle aux fibres de carbone, l'intégration est sans création de défaut de microstructure. Les essais de caractérisation mécaniques en traction, flexion trois points et cisaillement plan menés dans le cadre de la thèse de M. Mulle [55] ont montré que les caractéristiques déterminées grâce à ces essais étaient totalement insensibles à la présence d'une fibre optique (de  $125\mu\text{m}$  de diamètre) noyée dans des stratifié de 2mm d'épaisseur. Au bilan de cette étude, les fibres optiques ne mesurent que des déformations et/ou des températures et ne permettent pas d'accéder au degré d'avancement de la matrice ni aux points critiques PL et PV donnés

par l'analyse du comportement rhéologique.

L'onde guidée ultrasonique basée sur les capteurs piézoélectriques est souvent utilisée pour le suivi de cuisson en temps réel. Le réseau de capteurs piézoélectriques peut également être utilisé pour diagnostiquer les dommages post-cuisson, ce qui permet de surveiller l'état des structures composites tout au long de leur cycle de vie. Les capteurs peuvent être enfouis ou placés à la surface du matériau à tester [56-59].

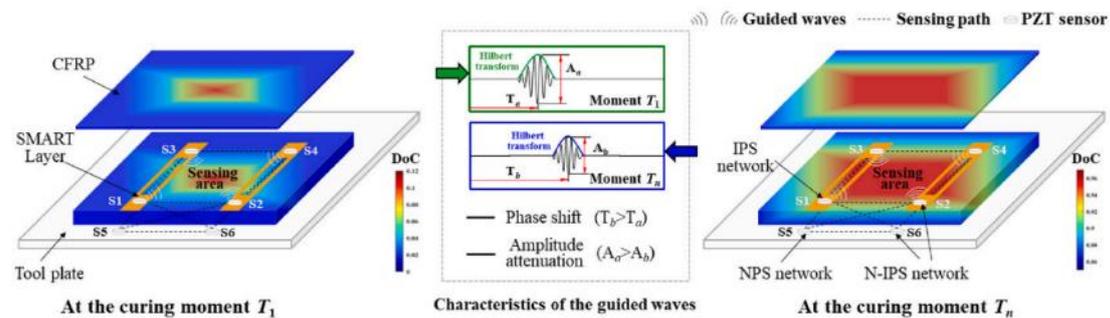


Figure 20 Montage expérimental du suivi de cuisson par les capteurs piézoélectriques [56]

La polymérisation de la résine s'accompagne de changements dans la masse volumique et le module complexe de cisaillement, qui sont en corrélation avec les caractéristiques de propagation de l'onde guidée. Par conséquent, la mesure en temps réel de la vitesse et de l'atténuation de l'onde guidée est utile pour comprendre la cinétique de polymérisation. Par exemple, les points critiques de polymérisation PG et PV peuvent être identifiés par l'amplitude et la vitesse de l'onde guidée obtenues à partir du réseau de capteurs piézoélectriques (Figure 21).

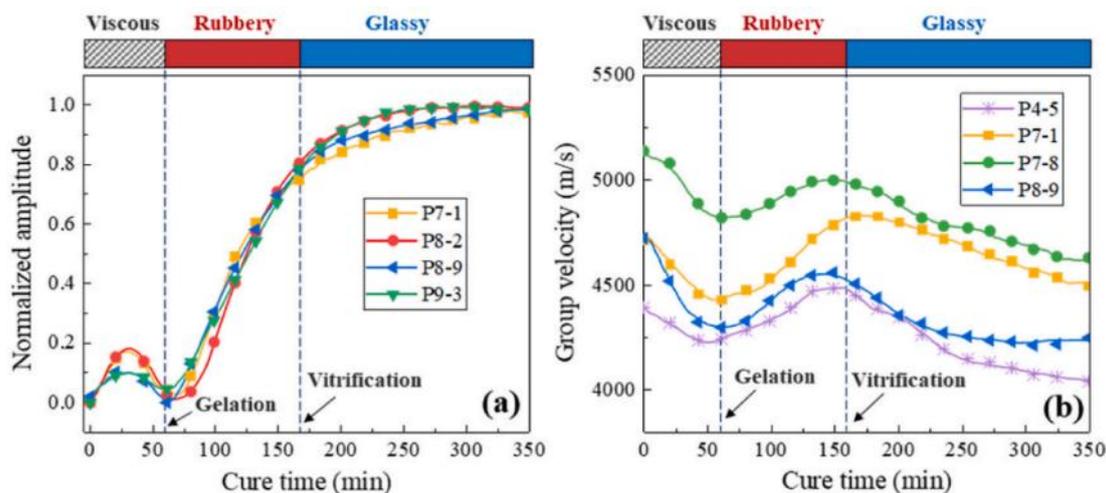


Figure 21 Identification de PG et PV par l'amplitude et la vitesse de l'onde guidée [56]

Dans le contexte des essais non destructifs, les techniques ultrasonores peuvent être utilisées en conjonction avec des techniques de cartographie infrarouge pour surveiller la polymérisation des polymères ou pour visualiser et localiser les défauts dans les structures en service [14, 38, 60, 61]. Une des limitations de l'utilisation de capteurs piézoélectriques dans le suivi de cuisson est liée à la tenue en température (ou la température maximale d'utilisation de ces capteurs) car les cycles de cuisson des systèmes époxy structuraux exigent que les capteurs puissent supporter 200°C pendant plusieurs heures.

L'analyse diélectrique (DEA) est une autre technique souvent utilisée pour caractériser des résines thermodurcissables [62-65] mais également des polymères renforcés par fibres de verre (GFRP) [66, 67]. Il s'agit d'appliquer une petite tension alternative à fréquence variable aux bornes du matériau et de mesurer la réponse fréquentielle à l'aide de transducteurs placés localement ou sur toute la surface à tester. Les techniques diélectriques présentent l'avantage de pouvoir globalement remplacer l'analyse thermique conventionnelle. En effet, elles peuvent surveiller les propriétés diélectriques en cours de la polymérisation, en continu et in situ, lorsque la résine passe d'un liquide de faible viscosité à celui d'un solide réticulé de poids moléculaire infini [68]. Il existe de nombreux systèmes de condensateurs à plaques parallèles mais également les capteurs planaires à parois minces disponibles dans le commerce. Des paramètres tels que la constante diélectrique  $\epsilon_0$ , la permittivité diélectrique complexe  $\bar{\epsilon} = \epsilon' - i\epsilon''$ , la conductivité ionique  $\sigma$  et le facteur de perte diélectrique  $\tan\delta_e = \frac{\epsilon''}{\epsilon'}$  (une analogie du

facteur de perte rhéologique) et peuvent être mesurés en temps réel sur une variété de systèmes réactifs avec une très bonne précision.

Les différentes phases de la polymérisation peuvent être identifiées par le changement des paramètres diélectriques pendant cuisson. Par exemple, la vitrification de la résine peut être identifiée comme le point d'inflexion globale de la courbe de la variation de la partie réelle de la permittivité diélectrique  $\epsilon'(t)$  (Figure 22).

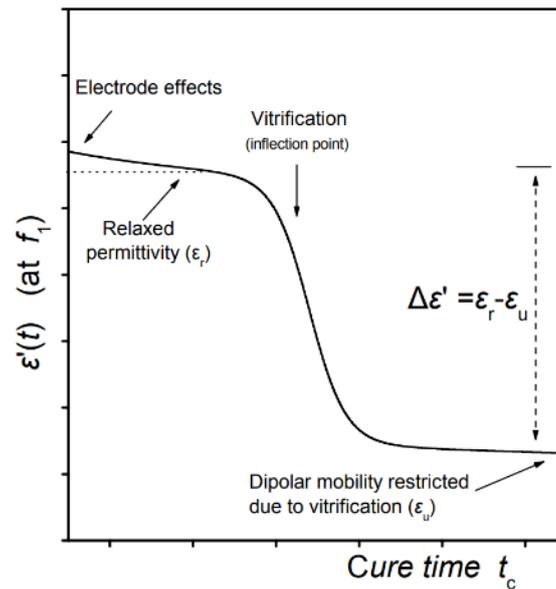


Figure 22 Changement de  $\epsilon'$  de la résine en fonction du temps de cuisson [69]

Pantelalis et al.[70] ont proposé une méthode pour suivre la polymérisation de la résine époxy à l'aide de capteurs DEA (Figure 23).

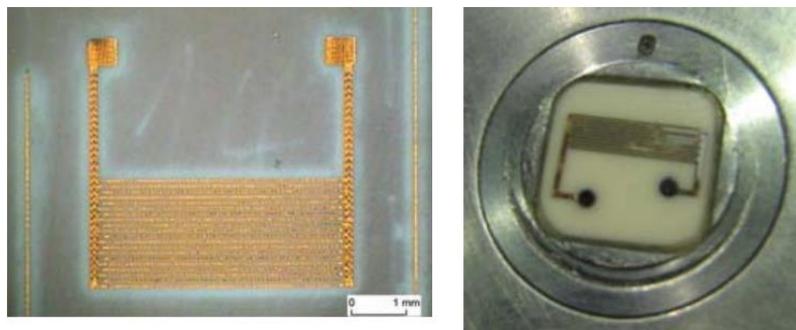


Figure 23 Des capteurs diélectriques durables pour suivi de cuisson [70]

L'impédance complexe est utilisée comme un indicateur de l'avancement de polymérisation de la résine. Dans leurs travaux, Pantelalis et al. ont montré que les

résultats expérimentaux sont en bon accord avec les prévisions d'un modèle cinétique de la réaction, ce qui permet d'identifier les points critiques comme le point de gélification (PG) et la fin de cuisson (PF). Les résultats de suivi diélectrique sont également comparés et validés par les essais en DSC.

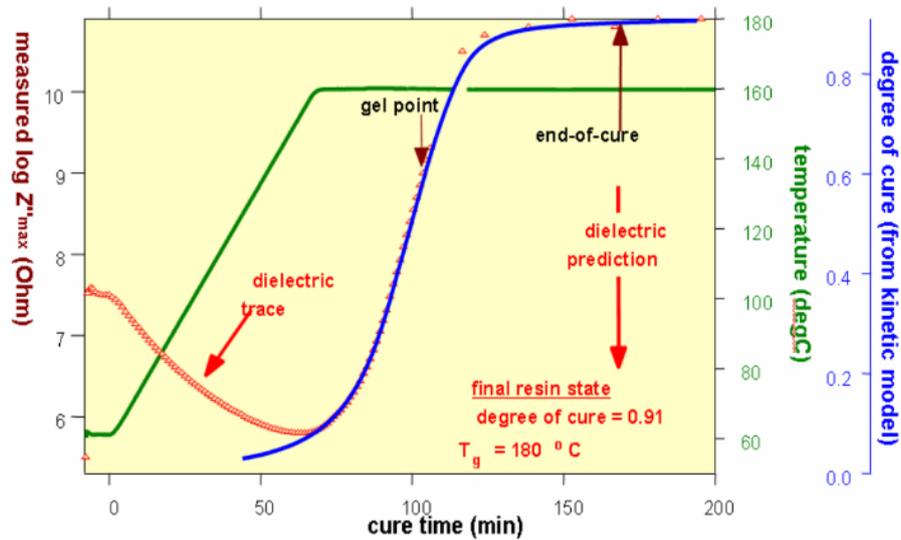


Figure 24 Évolution du signal diélectrique VI-DiAMon, du degré de polymérisation estimé d'une résine époxy aérospatiale typique [70]

Han et al.[71] ont développé une approche de spectroscopie d'impédance électrochimique (EIS) pour surveiller la polymérisation de la résine en temps réel et en utilisant des électrodes à plaques parallèles (Figure 25).

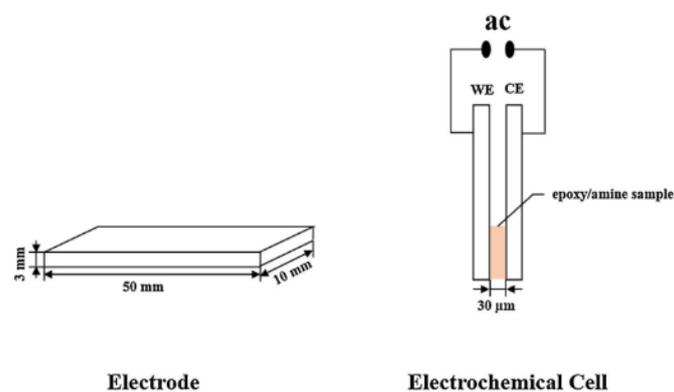


Figure 25 Configuration de mesure diélectrique [71]

Le degré d'avancement à un instant  $t$  obtenu à partir de la variation de l'impédance électrochimique est calculé à l'aide de l'Eq. 4:

$$\alpha(t) = \frac{\lg(Z_t) - \lg(Z_0)}{\lg(Z_\infty) - \lg(Z_0)} \quad \text{Eq. 4}$$

où  $\alpha(t)$  est le degré d'avancement à un instant  $t$ ,  $Z_t$  le module d'impédance électrochimique à un instant  $t$ ,  $Z_0$  au début de la polymérisation et  $Z_\infty$  à la fin de la polymérisation.

Les données expérimentales recueillies par EIS sur l'avancement de la polymérisation sont également validées par comparaison avec les résultats en DSC (Figure 26).

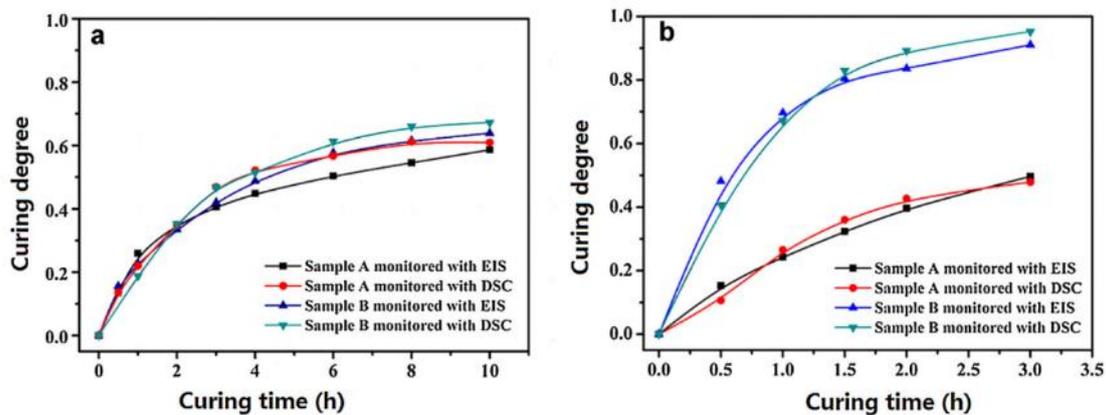


Figure 26 Comparaison de résultats en  $\alpha$  entre EIS et DSC [71]

Cependant, les capteurs diélectriques sont indispensables pour la DEA et ils peuvent être perturbés par l'interférence du champ électrique des fibres de carbone dans le cas de CFRP. C'est pourquoi la plupart des techniques de DEA sont appliquées à des matériaux isolants tels que les polymères purs ou le GFRP, mais elles sont rarement utilisées pour suivre les matériaux à fibres conductrices tels que les stratifiés que nous utilisons dans cette thèse.

En conclusion, ces techniques conventionnelles de suivi de cuisson nécessitent toujours au moins un capteur intégré à l'intérieur du matériau ou à sa surface pour convertir une quantité physique d'intérêt dans le matériau (contrainte, déformation, température, etc.) en un signal électrique. Outre l'effet négatif de l'intrusion des capteurs, la complexité de la mise en place de l'instrumentation est également considérée comme une limitation. En ce qui concerne la qualité des mesures, la distorsion du signal est également inévitable sur le chemin de la conversion et de la transmission.

Une comparaison des différentes techniques conventionnelles de suivi de cuisson est proposée dans le Tableau 3 :

Techniques	Paramètres suivis					Autres fonctions	
	Température	Déformation	$\alpha$	PG	PF	Full-field monitoring	SHM
Thermocouple	x			x	x		
Diélectrique			x	x	x		x
Ultrasonique			x	x	x		x
Optical fibre	x	x			x		x

Tableau 3 Comparaison des différentes techniques de suivi de cuisson

Dans ce contexte, nous nous intéressons à une approche non-intrusive pour le suivi de cuisson, qui utilise le CFRP lui-même comme capteur de son propre état (pas de capteurs externes et pas ou peu de modification de processus de fabrication). Nous cherchons à développer un système d'acquisition permettant d'assurer la mesure d'une grandeur physique sans conversion qu'elle soit locale ou globale, surfacique ou volumique. Ce système doit être conçu dans un objectif de transférabilité simplifiée et permettant la fonctionnalisation du matériau à des fins de SHM (Cf. §1.5).

## 1.4 Modélisation du comportement électrique du CFRP

Dans le cadre de notre étude, une modélisation électrique du CFRP nous permet d'interpréter la variation des paramètres intrinsèques en cours de cuisson à partir de son comportement électrique. Cette modélisation peut être développée aux trois échelles : macroscopique (stratifié), mésoscopique (plis et inter-plis) et microscopique (constitutions élémentaires comme les fibres et la matrice).

Le matériau CFRP peut être considéré comme un mélange triphasé : la fibre de carbone, la résine et la porosité. Cependant il peut être ramené à un système biphasé : fibres et matrice, si la différence de la conductivité électrique entre la matrice et la porosité est négligeable. Dans cette optique, les fibres de carbone possédant une bonne conductivité électrique tout au moins dans le sens longitudinal et la matrice quasi-isolante peuvent être modélisées respectivement par des composants résistifs (R) et capacitifs (C).

### 1.4.1 Modélisation à l'échelle de la fibre

Du point de vue microscopique, le changement global de la résistance électrique du

CFRP dans les différentes sens : L (longitudinal), T (transverse) et Z (sens de l'épaisseur), en cours de cuisson, est provoqué par le changement des paramètres matériaux et géométriques (la géométrie du pli ou du stratifié évolue en cours de cuisson à cause de la contraction chimique, des écarts de dilatation thermique, du flot de la résine et des porosités). D'après la définition de la résistance électrique, il y a trois paramètres qui affectent la conductivité d'une fibre : la longueur ( $l$ ), la section ( $A$ ) et la résistivité ( $\rho$ ) (Figure 27). De plus, la résistivité dépend de la température [72].

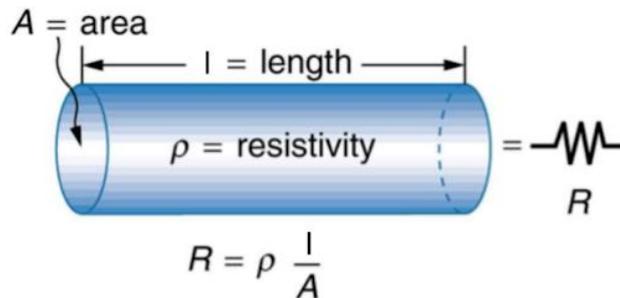


Figure 27 Modèle résistif de fibre de carbone [72]

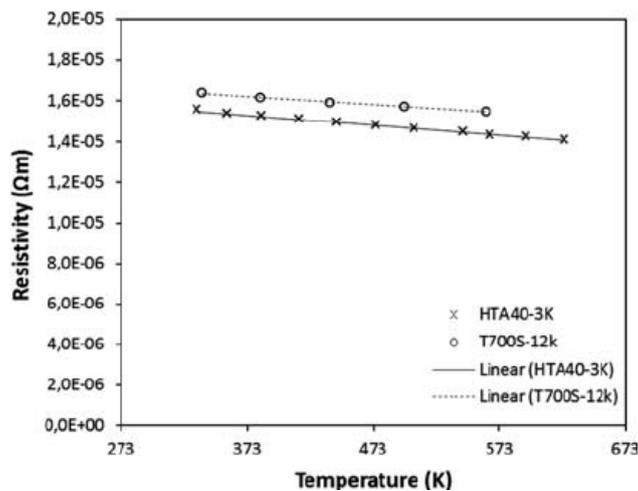


Figure 28 Caractéristiques résistivité-température des fibres de carbone HTA40 et T700S [72]

La valeur de la résistivité électrique longitudinale des fibres de carbone peut être fournie par des fabricants de fibres ou extraite de travaux publiés dans la littérature [73, 74]. Ainsi, dans le cas de mèches de fibres, la conduction longitudinale se fait via la contribution de toutes les fibres. Dans le sens transverse, la conduction électrique est assurée par les contacts inter-fibres. Dans un composite CFRP, le passage de courant entre deux électrodes, va s'effectuer sur un chemin de conduction au travers le matériau. La théorie de percolation est appliquée pour expliquer la conduction électrique

transverse intra-plis et inter-plis d'un stratifié. En théorie, il y a trois types de la conduction entre fibres au niveau de leurs contacts : le contact surfacique (c'est-à-dire la fibre est déformée et il n'y a pas de résine ou porosité entre les deux fibres), le contact linéique (il y a une zone de résine voisine) et le contact des couches extérieurs (les fibres ne sont pas en contact mais dans la distance minimale assurant l'effet tunnel).

Plusieurs études ont été consacrées à la recherche des paramètres clés de l'effet tunnel dans les matériaux renforcés par NTC (nanotubes de carbone). Zare et al. [75, 76] ont proposé des modèles de conduction électrique dans des composites renforcés par NTC pour prévoir la résistivité électrique par effet tunnel dans divers échantillons. En outre, les caractérisations de tous les paramètres sur la résistivité tunnel sont justifiées. La résistivité tunnel des échantillons diminue avec l'augmentation de la concentration en NTC, mais les porteurs de charge provoquent une légère variation de celle-ci. La résistivité tunnel peut varier de 0 à 2500  $\Omega.m$ . Yang et al. [77] ont déterminé les valeurs de la résistivité tunnel pour différents types de contact avec une distance d'effet tunnel de 1,4 nm dans le cas de chargements mécaniques expérimentales et modélisées. Les prédictions théoriques sont validées par des expériences pour les deux premières étapes de déformation, et une combinaison optimale de connexions de déformation est obtenue via une modélisation pour correspondre étroitement aux résultats expérimentaux.

Bien que les NTC soient fondamentalement différents des fibres de carbone unidirectionnelles, ils ont des propriétés électriques similaires sous excitation électrique. Selon Yu et al. [78-81], l'effet tunnel est considéré comme la raison principale de la conduction entre les fibres dans des conditions de basse pression ( $P < 2$  bars). Yu a fait une distinction quantitative entre la conduction par l'effet tunnel et la conduction par le contact inter-fibres surfacique (Figure 29 et Figure 30) [82].

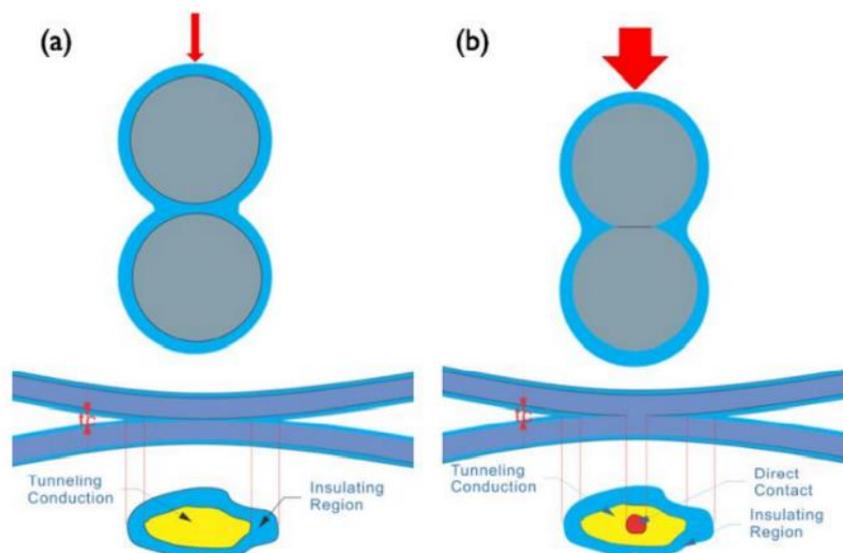


Figure 29 Deux types de conduction électrique : effet tunnel (a) et contact inter-fibres (b) [82]

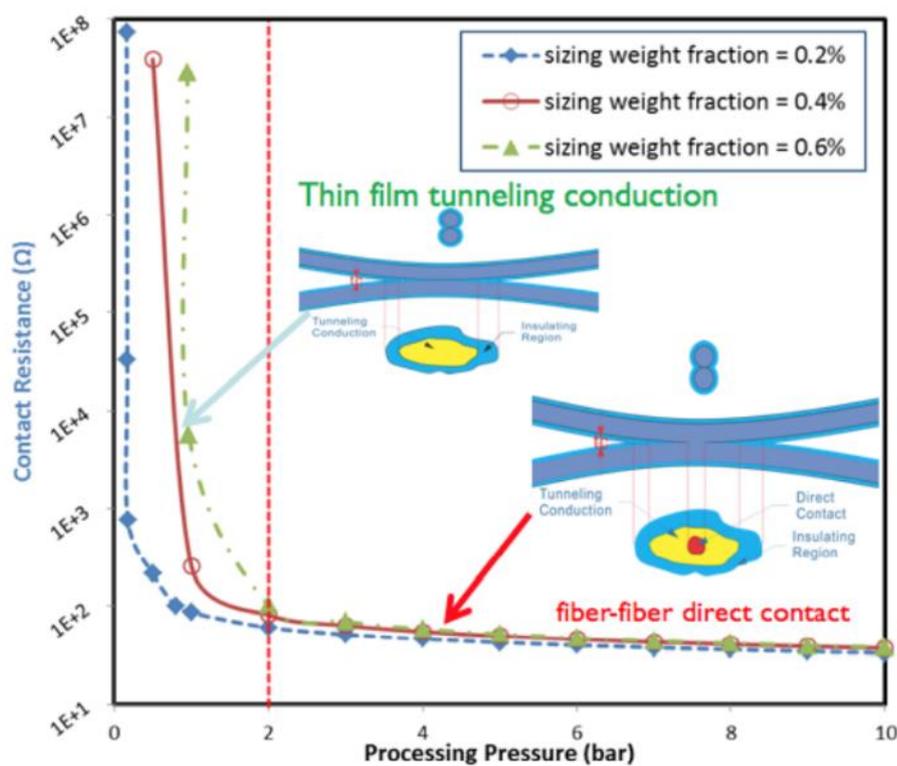


Figure 30 Transition de type de conduction électrique inter-fibres en fonction de la pression [82]

#### 1.4.2 Modélisation à l'échelle du pli et du stratifié

Du point de vue mésoscopique, à partir de la mesure de la conduction électrique longitudinale d'un pli, la rupture de fibre peut être détectée par un changement brutal de la conductivité longitudinale [38, 83-86].

La modélisation 2D de la conductivité électrique dans le sens transverse doit tenir compte du contact entre les fibres, de l'ondulation des fibres et de la propriété intrinsèque de chaque fibre. Parmi ces mécanismes, le contact entre les fibres est très important car il influence le chemin de conduction électrique continu dans le sens de l'épaisseur et donc la conductivité électrique globale du CFRP [65]. Park et al.[66] ont proposé un modèle électromécanique de la fibre soumise à une charge de traction.

Ce modèle analytique a été développé sur la base du modèle GLS (Global Load Sharing) [87]. Le modèle GLS suppose que la charge perdue par une fibre à une certaine position axiale, en raison de la rupture et du glissement, est transférée de manière égale à toutes les fibres intactes (élasticité) dans le plan de la section transverse, et que la résistance des fibres peut être décrite par une fonction de distribution de Weibull. Nous pouvons supposer que la contrainte mécanique de toutes les fibres intactes est égale dans un plan arbitraire unidirectionnel. Dans ce modèle, basé sur l'analogie mécanique-électrique, la distance de percolation est considérée comme le paramètre critique pour coupler la résistance électrique à la déformation de la fibre. Pour la fibre de carbone, sur la base de la régression linéaire de la résistance électrique en fonction de la contrainte de traction, une expression a été proposée pour le changement de résistance (Eq. 5).

$$\frac{\Delta R}{R_0} = \beta \frac{\sigma}{E} \quad \text{Eq. 5}$$

Avec  $\Delta R$  la variation de la résistance électrique,  $R_0$  la valeur initiale de la résistance électrique,  $\sigma$  la contrainte normale,  $E$  le module de Young et  $\beta$  la constante proportionnelle.

La corrélation entre la variation de la résistance électrique et la déformation de la fibre est mesurée lors un essai de traction (Figure 31).

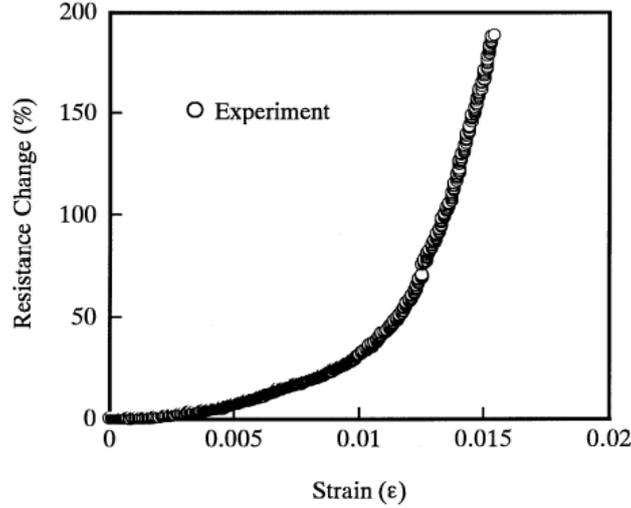


Figure 31 Changement de résistance en fonction de la déformation de la fibre [88]

Lorsqu'une fibre de carbone se brise, elle ne peut plus conduire l'électricité. En général, la probabilité de rupture est proportionnelle à la longueur de la fibre. Les échantillons de fibres longues ont une probabilité de rupture plus élevée que les échantillons de fibres courtes. Dans le cas d'une couche de fibres, des mesures montrent que la conductivité électrique de la couche est indépendante de la longueur de couche. Cela s'explique par la théorie de la percolation, en cas de l'une des fibres en rupture, les points de contact inter-fibres assurent toujours le passage du courant. Ainsi, la distance de percolation électrique est essentielle pour modéliser la conductivité du CFRP. Cette distance est une analogie de la distance ineffective mécanique. Sur la base du modèle GLS, une expression pour la distance ineffective mécanique est proposée (Eq. 6).

$$\delta_c = \left( \frac{\sigma_o r L_o^{1/m}}{\tau} \right)^{\frac{m}{m+1}} \quad \text{Eq. 6}$$

Avec  $\delta_c$  la distance ineffective mécanique,  $r$  le rayon de fibre,  $\sigma_o$  la contrainte normale de référence,  $L_o$  la distance de référence,  $m$  et  $\tau$  les paramètres de Weibull.

$\delta_c$  est utile pour déterminer la distance de percolation électrique  $\delta_{ec}$ .

Dans ce contexte, un modèle de circuit DC (purement résistif) est développé par Park et al. [88] pour décrire la conduction électrique infra-plis dans le sens transverse.

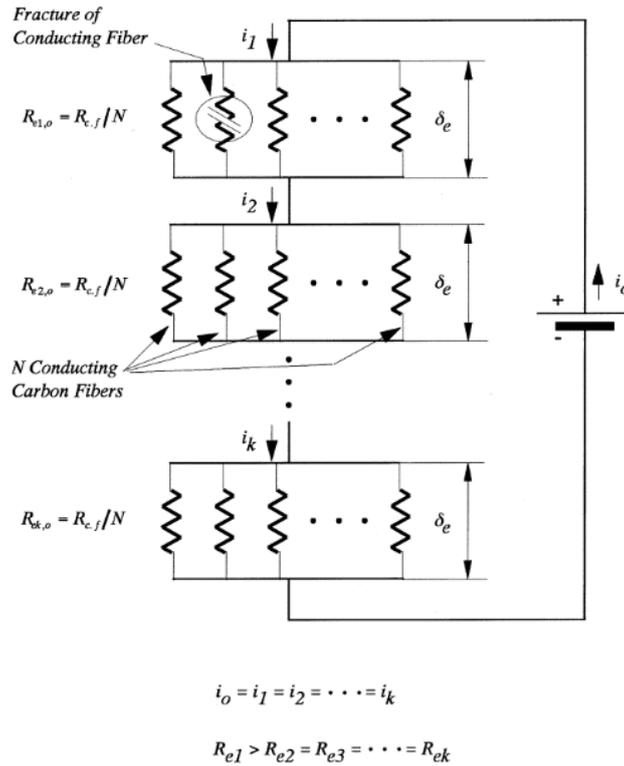


Figure 32 Modèle de circuit à courant continu (purement résistif) avec des cellules discrètes parallèles également espacées [88]

En utilisant ce modèle électrique, une relation du changement de la résistance électrique globale du composite en fonction de la déformation est proposée (Eq. 7).

$$\frac{\Delta R}{\Delta R_0} = (1 + \beta\varepsilon) \exp \left[ \left( \frac{\delta_{ec}}{\delta_c} \right) \left( \frac{E_f \varepsilon}{\sigma_o} \right)^m \right] - 1 \quad \text{Eq. 7}$$

Avec  $E_f$  la résistance de traction de fibre,  $\varepsilon$  la déformation longitudinale de fibre.

Les comportements électriques et mécaniques de CFRP en cours de cuisson ou sous sollicitation mécanique peuvent être corrélés.

Ce modèle analytique permet de prédire l'endommagement global de la fibre de carbone à partir de la résistance électrique mesurée. Cependant, plusieurs verrous limitent l'application de ce modèle. Tout d'abord, le modèle GLS ne peut décrire que la déformation globale du composite. De plus, le modèle de circuit en 2D est approprié à un CFRP obtenu à partir d'un seul pli de préimprégné, mais n'est pas suffisant pour un stratifié multiplié. Un modèle de conduction électrique en 3D est indispensable dans ce

cas. Finalement, ce modèle ne s'intéresse qu'à la partie fibreuse sans intégrer la présence de la résine.

Xia et al.[61-64] ont développé un modèle numérique 3D pour décrire les dommages mécaniques et la résistance électrique des CFRP en utilisant un modèle GLS et un modèle de réseau électrique 3D (Figure 33).

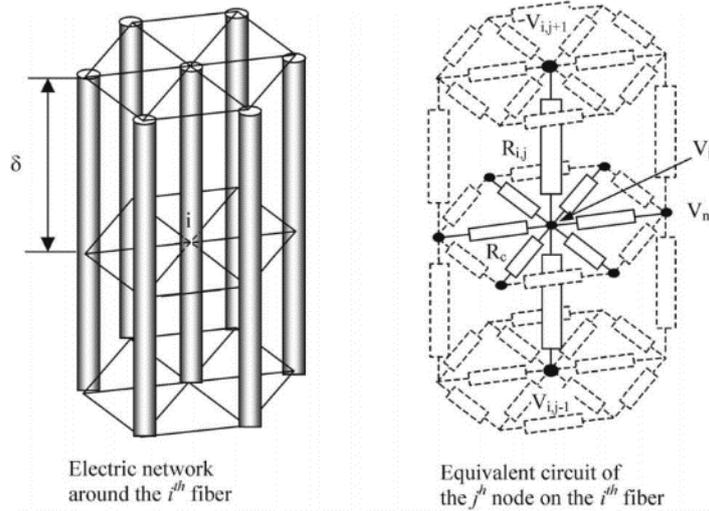


Figure 33 Réseau électrique et circuit équivalent d'un CFRP autour d'un seul nœud ( $\delta$  la distance de percolation électrique) [83]

Cette modélisation permet de corrélérer les distances de percolation électrique, les points du contact inter-fibres et les critères d'endommagement local du matériau en utilisant la loi d'équilibre de force (Eq. 8). Elle permet également de définir le champ de tension distribué à chaque nœud des fibres et aux points de contact inter-fibres en utilisant la loi de Kirchhoff en tenant compte la répartition des fibres (Eq. 9).

$$3. AE_f \left[ \frac{a_{i,j} (u_i(z_{j+1}) - u_i(z_j)) - a_{i,j-1} (u_i(z_j) - u_i(z_{j-1}))}{(2 + a_{i,j} + a_{i,j-1}) \Delta z^2} \right] + h \sum_{n=1}^6 \frac{G_m}{d} (u_n(z_j) - u_i(z_j)) b_n + \tau_y (1 - b_n) = 0 \quad \text{Eq. 8}$$

Avec :  $i, j$ : nœuds de fibres positionnés, respectivement, suivant les directions transverse et longitudinale de fibre;  $n$ : compteur tel que  $i: [i=1 \dots n]$ .

$z$ : position du nœud suivant la direction de fibre.

$u$ : déplacement du nœud lors de l'endommagement.

$a$ : paramètre de l'endommagement.

$A$  et  $E_f$  sont respectivement l'aire et le module d'Young de la fibre ;

$\tau_y$  : la contrainte de cisaillement transverse ;  $G_m$  : module de cisaillement de la matrice ;

$d$  : la distance inter-fibres ;

$b_n = 1$  si  $\tau_n < \tau_y$  et  $b_n = 0$  dans le cas contraire avec  $\tau_n$  : la contrainte de cisaillement =  $G_m(u_n(z) - u_i(z))/d$

$u_n(z)$  : le déplacement de la  $n^{\text{ème}}$  fibre adjacente.

$$R_{i,j} = R_f \{1 + \beta [u_i(z_{j+1}) - u_i(z_j)] / \Delta z\} \quad \text{Eq. 9}$$

Avec  $\beta$ : Coefficient défini par le rapport résistance/ déformation ;

$\Delta z$  : la variation du déplacement entre deux nœuds adjacents ;

$R_f$ : résistance de fibre de longueur  $\Delta z$ .

Un modèle électrique de type « Kirchhoff–Monte Carlo (DKMC) » est utilisé afin de déterminer de façon discrète la distribution de la tension électrique au niveau de chaque nœud des fibres en tenant compte des critères d'endommagements, en utilisant l'équation suivante (Eq. 10).

$$\frac{a_{ij}}{R_{ij}} [v_i(z_j) - v_i(z_{j+1})] + \frac{a_{i,j-1}}{R_{i,j-1}} [v_i(z_j) - v_i(z_{j-1})] + \sum_{n=1}^6 \frac{c_{i,n}^j}{R_c} [v_i(z_j) - v_n(z_j)] = 0 \quad \text{Eq. 10}$$

Avec,  $v_i(z_j)$  le potentiel électrique au niveau du nœud  $j$  de la  $i^{\text{ème}}$  fibre localisée à la position  $z_j$  et  $v_n(z_j)$  le potentiel électrique de  $n^{\text{ème}}$  fibre adjacente à la position longitudinal  $z_j$ .  $R_c$  est la résistance du contact entre deux fibres adjacentes et  $C_{i,n}^j$  est un indicateur de contact entre les fibres ( $C_{i,n}^j = 1$  dans le cas du contact et  $C_{i,n}^j = 0$  dans le cas contraire).

En utilisant les valeurs du potentiel électrique anisotrope ainsi obtenues, la résistance électrique anisotrope du matériau peut être déduite par la relation suivante (Eq. 11).

$$R = V / \sum_{i=1}^{nf} \frac{[v_i(z_{j+1}) - v_i(z_j)] a_{i,j}}{R_{i,j}} \quad \text{Eq. 11}$$

Un modèle numérique a été développé pour mieux décrire la distribution des points de rupture de fibres et des points de contact inter-fibres en 2D et 3D dans le cas de distribution hexagonale des fibres (Figure 34).

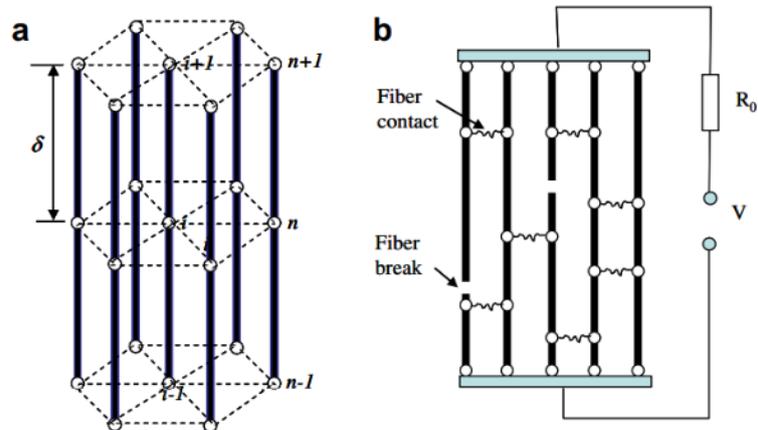


Figure 34 Modèle numérique pour la distribution des points de contact inter-fibres [84]

Comparé au modèle de conduction analytique basé sur la méthode GLS, ce modèle numérique permet d'étudier le rôle des géométries des conducteurs (fibres) et des réseaux de capteurs, de sorte que la réponse électrique mesurée peut être correctement reliée à l'endommagement interne et localisé. Cependant, le modèle GLS est limité par la condition de positionnement des électrodes, de sorte qu'il ne peut décrire que la réponse électrique globale (et non locale) du composite. Xia et al. [83] concluent que la sensibilité de la résistance électrique aux dommages dépend de la distance de percolation et de la géométrie des électrodes. En outre, la distance de percolation est fonction de la fraction volumique des fibres.

Cependant, un modèle de circuit purement résistif n'est pas capable de représenter les propriétés diélectriques de la matrice. En revanche, l'analyse diélectrique (DEA) est une méthode très fiable pour détecter le degré d'avancement pendant le durcissement des polymères thermodurcissables [36]. Dans ce contexte, un modèle de circuit complexe 2D comprenant à la fois la résistivité et la capacité est nécessaire. M. Matsuo et al. [65] ont proposé un circuit parallèle résistance-condensateur (RC) pour décrire la conduction électrique d'un CFRP. Ce modèle peut être utilisé pour expliquer la réponse électrique en courant alternatif du composite et prédire les paramètres de percolation du composite. L'impédance électrique est donc fonction de la fréquence d'excitation.

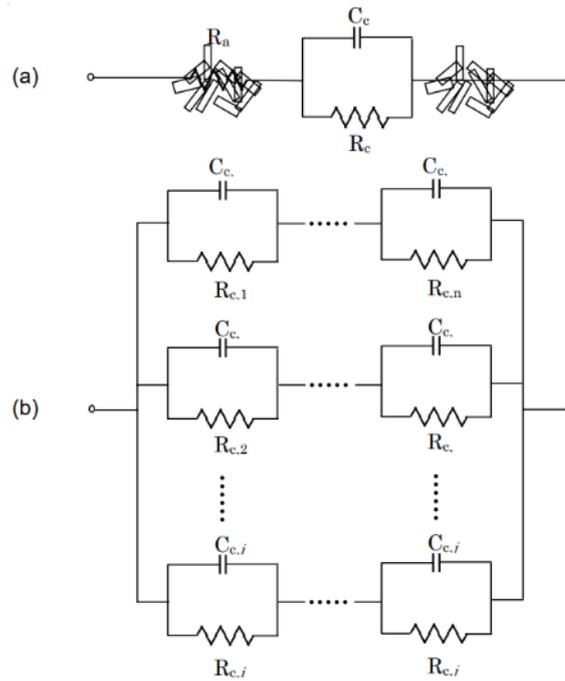


Figure 35 Modèles de circuit complexe 2D: circuit simple résistance-condensateur dans la zone de contact inter-fibres (a) , circuit parallèle équivalent résistance-condensateur (b) [65]

Ce modèle présente toutefois un certain nombre d'imperfections. Tout d'abord, la conduction électrique sous le pli et entre les plis est modélisée par les mêmes circuits. En tant que zone riche en résine, un inter-pli n'a pas les mêmes propriétés qu'un pli. Une distinction doit être faite entre les deux types de conduction. En revanche, les trois types de contact inter-fibres ne sont pas distingués. La déformation de la fibre en cas de contact superficiel est négligeable, c'est-à-dire que la fibre de carbone est considérée comme un solide rigide de diamètre constant. Troisièmement, la fibre de carbone est considérée comme un conducteur unidirectionnel. En d'autres termes, la conduction radiale de la fibre est négligée.

Dans le cadre de notre travail, nous désirons étudier d'autres méthodes de modélisation pour améliorer ce modèle 3D intégrant fibres et résine. Tout d'abord, la configuration de la distribution des fibres est considérée comme un facteur critique. Les dispositions des fibres dans les composites unidirectionnels sont généralement non uniformes et non périodiques. L'hypothèse d'une distribution périodique des fibres conduit à des prévisions incorrectes du comportement mécanique des composites [89]. En fonction de la section transverse du plan (T,Z), il existe trois types de configuration : hexagonale, carrée et aléatoire [82]. Du point de vue de la modélisation Kirchhoff discrète, la

matrice de contact dépend essentiellement de la configuration. Empiriquement, la distribution aléatoire est relativement réelle par rapport aux autres configurations uniformes, mais plus compliquée à simuler.

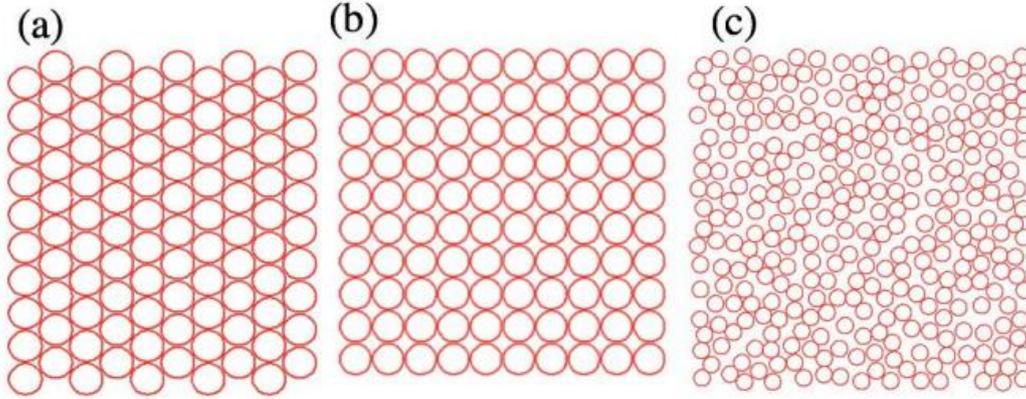


Figure 36 Trois configurations de la répartition des fibres de carbone dans le plan (T,Z) : hexagonale (a), carrée (b) et aléatoire (c) [82]

L'espace entre les fibres peut être calculé à partir d'une fraction volumique et d'un diamètre de fibre connus. La configuration de distribution est représentée par le coefficient dans la formule ci-dessous :

$$V_f = \frac{\pi d_f^2}{4(d_f + d_s)^2} \eta \quad \text{Eq. 12}$$

Avec  $V_f$  est la fraction volumique des fibres,  $d_f$  le diamètre des fibres,  $d_s$  l'espacement entre les fibres,  $\eta$  le paramètre lié à l'ordre d'empilement avec  $\eta = 1$  pour la répartition carrée et  $\eta = \frac{2\sqrt{3}}{3}$  pour la répartition hexagonale.

Khebbab et al.[90] ont proposé un modèle sur la distribution hexagonale dans le plan (T,Z). Une cellule hexagonale est considérée comme l'élément unique qui assure le passage du courant dans le sens transverse pour un stratifiée. Du point de vue global, la distribution de contact inter-fibres est sur la base des chaînes de Markov.

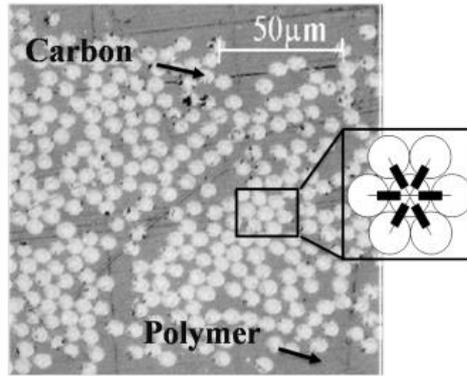


Figure 37 Image microscopique du composite représentant la répartition des fibres [90]

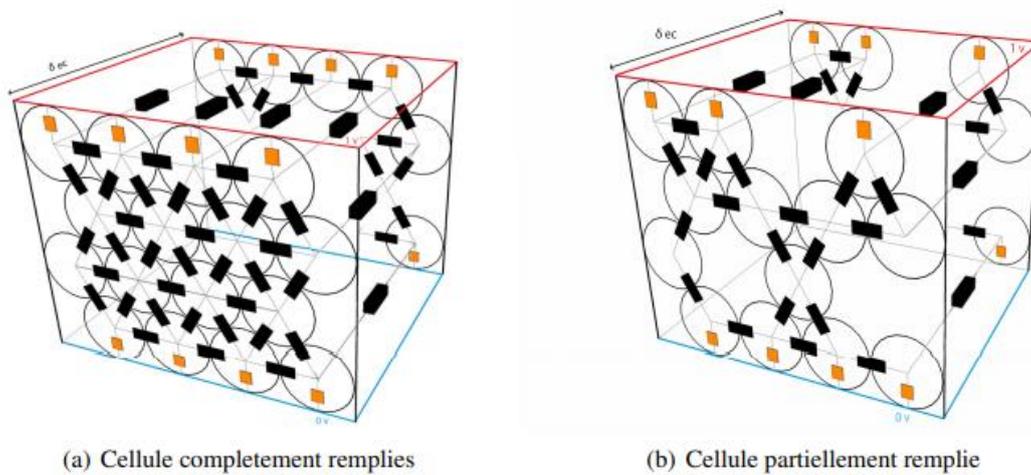


Figure 38 Réseau de résistances en 3D sur la base des chaînes de Markov [90]

Yu et al.[82] ont développé un générateur numérique de microstructure aléatoire programmé dans MATLAB avec les entrées suivantes : le rayon de la fibre (une valeur constante), la fraction volumique des fibres désirée et la taille du domaine. La génération est sur la base d'algorithme RSA (Random Sequential Addition).

Ce modèle ne s'applique qu'à une seule cellule élémentaire. Pour la distribution aléatoire globale des fibres de carbone (dans un stratifié CFRP), il est possible de discrétiser le domaine (plan de coupe) par un maillage assez fin. Chaque cellule peut représenter une seule distribution locale des fibres : hexagonale, carrée, aléatoire ou vide (zone de résine pure). La distribution globale de l'ensemble de ces cellules permettrait de reconstruire le stratifié.

Higuchi et al.[91] ont proposé une méthode pour modéliser les produits CFRP

constitués par les fibres de section non-circulaires (Figure 39). Ils ont combiné une méthode d'éléments finis étendue (XFEM), une méthode d'homogénéisation et une méthode de Monte Carlo et établi la micromécanique computationnelle basée sur XFEM (Figure 40). Le but principal de cette étude est sur les formes de fibre de carbone, mais la méthode proposée est également utilisable pour déterminer la configuration de la répartition des fibres (Figure 41).

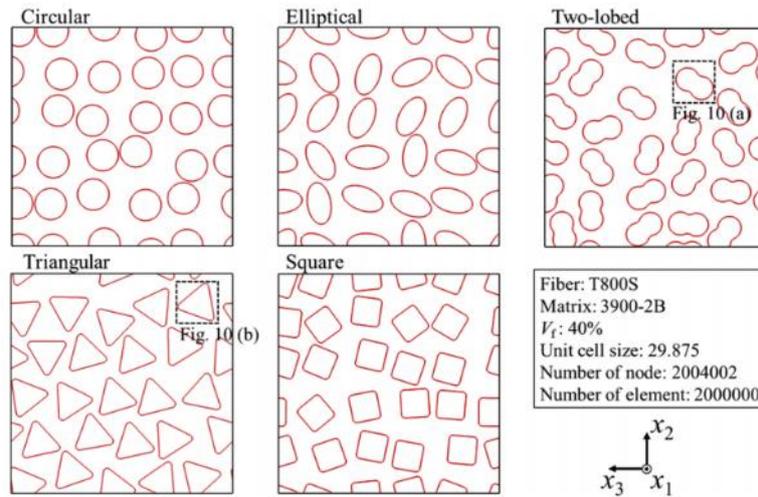


Figure 39 Différents formes de section de fibre de carbone dans le plan (T,Z) [91]

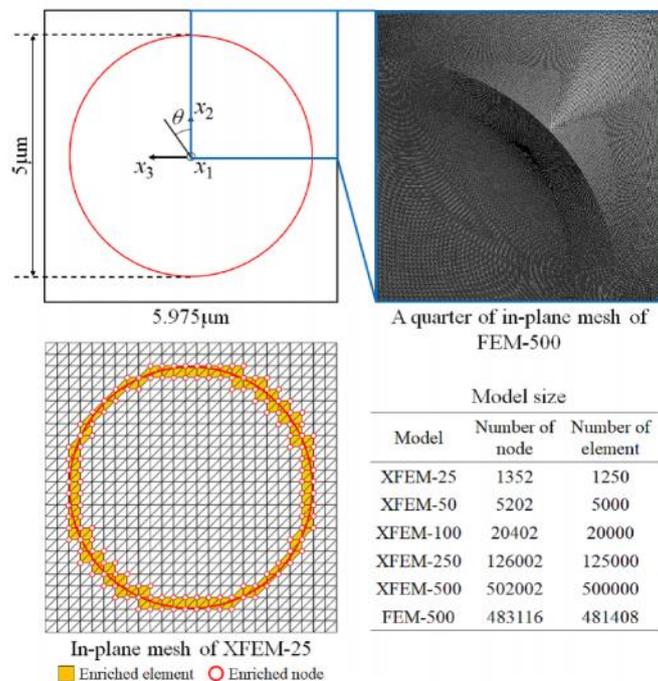


Figure 40 Maillage de convergence de section d'une seule fibre de carbone [91]

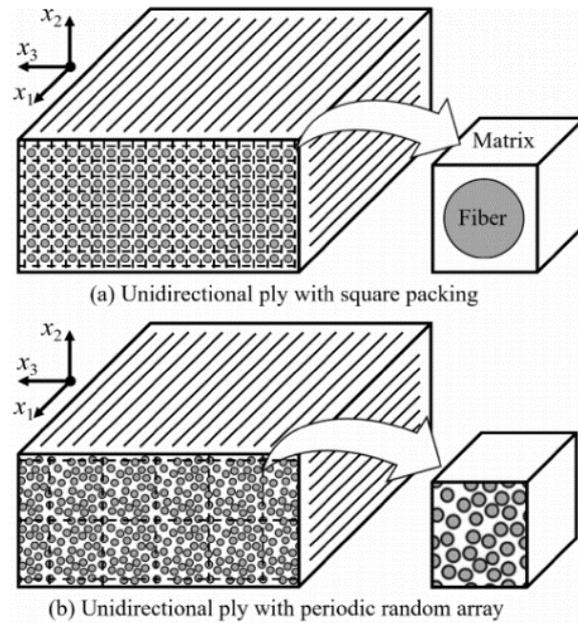


Figure 41 Distribution carrée (a) et aléatoire (b) des fibres dans un pli UD [91]

Afin de représenter au mieux le matériau et recaler ce type de modèle, de nombreux échantillons seraient nécessaires pour effectuer des analyses microstructurales.

Yu et al. [82] ont développé un modèle 2D (Figure 42) pour représenter un stratifié en s'appuyant sur la différence de conductivité entre une couche riche en fibres (pli) et une couche intermédiaire riche en résine (inter-pli). Bien qu'ils aient créé un modèle résistif, cette différence peut être représentée par la différence d'échelle de conductivité.

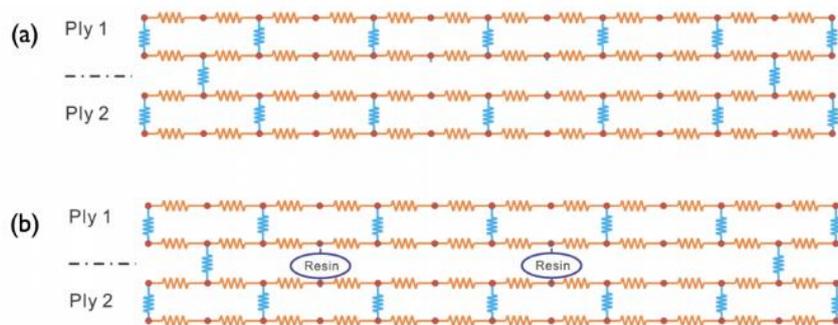


Figure 42 Modèle sans conduction électrique assurée par la matrice de résine (a) ; modèle prenant en compte le contact inter-fibres et par effet tunnel à travers une couche de résine (b) [82]

Ainsi, ils ont proposé une formule de degré de connexion en fonction des dimensions et l'orientation des fibres unidirectionnelles dans un pli, afin de décrire la résistance inter-plis (Eq. 13). Cette formule peut être utilisée sur tous types de stratifié.

$$N_c^o = d_c(\theta)L_xL_y \quad \text{Eq. 13}$$

Avec  $N_c$  le nombre de contact nominal,  $d_c$  la densité de contact,  $\theta$  angle élévation d'ondulation de fibre,  $L_x$  et  $L_y$  les dimensions du stratifiée.

L'ondulation des fibres est également un facteur critique pour la conduction électrique de CFRP. Dans le sens transverse et le sens d'épaisseur, les contacts inter-plis sont créés par l'ondulation des fibres. Ainsi, un réseau de percolation électrique 3D peut représenter le niveau d'ondulation des fibres du composite (Figure 43).

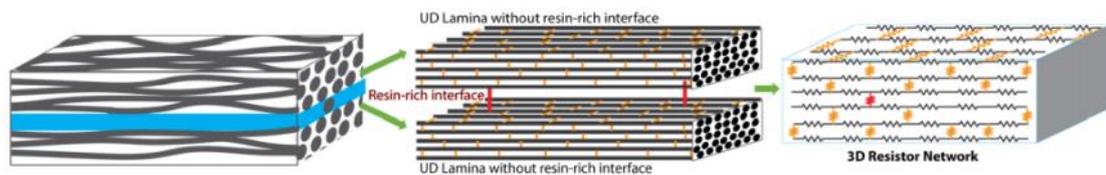


Figure 43 Modèle 3D d'un réseau de circuit résistif [82]

Ils ont également montré que la conductivité de l'interface inter-plis dépend de la fraction volumique de fibres. Ainsi, la conductivité globale dans le sens de l'épaisseur est essentiellement impactée par la connectivité des inter-plis (Figure 44).

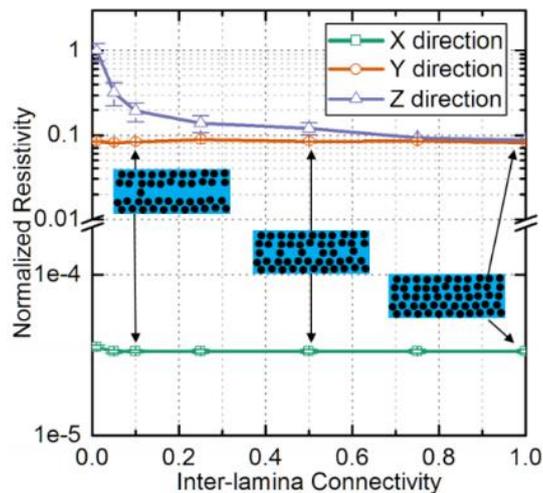


Figure 44 Relation entre la conductivité électrique du composite (X pour longitudinale L, Y pour transverse T) et la connectivité inter-plis [82]

D'un point de vue macroscopique, la fraction volumique des fibres est un facteur critique qui influence la conductivité globale du CFRP. L'ensemble des paramètres de percolation peut être estimé à partir de la fraction surfacique et du nombre de contacts

inter-fibres dans le plan (T, Z) [3, 5, 7]. Par conséquent, il est possible de développer un modèle de conduction à partir de ces données géométriques (matériau virtuel dans un pli ou dans un stratifié). Dans ce contexte, un modèle de réseau 3D composé de cellules RC peut être proposé [3, 4, 6, 8-11, 15] (Figure 45).

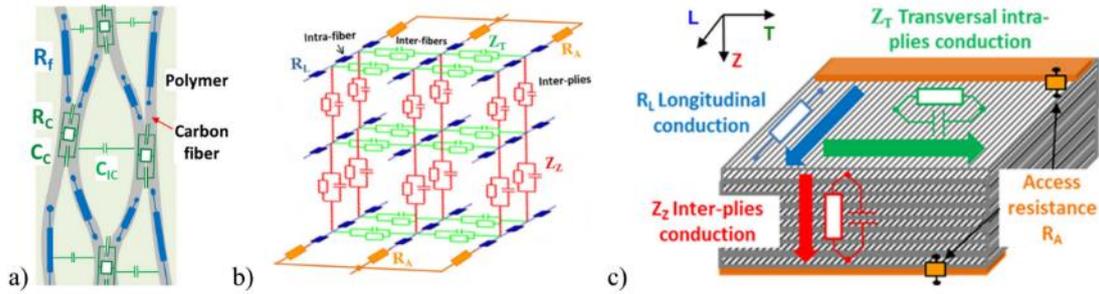


Figure 45 Modèle du réseau 3D de circuits RC dans trois différentes échelles: échelle de constituants (a), échelle de pli/inter-ply (b) et échelle de stratifié (c) [11]

D'après ce modèle 3D, la conduction longitudinale des fibres est modélisée par des résistances en série, la conduction transversale par une série de cellules RC parallèles. Il a été proposé d'utiliser l'impédance électrique pour caractériser le composite afin de tenir compte des aspects résistifs et capacitifs. En ce qui concerne la mesure électrique, le module et la phase d'impédance sont directement mesurés. Par la suite, la partie réelle (résistive) et la partie imaginaire (capacitive) peuvent être calculées (Eq. 14- Eq. 16).

$$\bar{Z} = \frac{R}{1+j\omega RC} \quad \text{Eq. 14}$$

$$|Z| = \frac{R}{\sqrt{1+\omega^2 R^2 C^2}} \quad \text{Eq. 15}$$

$$\theta = -\text{atan}(\omega RC) \quad \text{Eq. 16}$$

Grâce à ces travaux préliminaires, l'impédancemétrie électrique peut être utilisée pour le suivi de cuisson des CFRP sur la base d'un modèle 3D d'un réseau de circuits RC.

## 1.5 Etude préliminaire de l'impédancemétrie électrique

Institut Clément Ader s'intéresse à la méthode de l'impédancemétrie électrique (IE) depuis 2013, et des travaux préliminaires approfondis ont démontré la faisabilité du

suivi de cuisson de CFRP par IE [3, 4, 6, 8-11, 15]. Les échantillons testés étaient des stratifiés fabriqués à partir de T700/M21. Différentes configurations ont été étudiées : monopli, multiplis unidirectionnels et quasi-isotropes (8, 16, 32 et 64 plis), et une structure 3D (déflecteur d'antenne de satellite). Leur polymérisation a été réalisée en étuve et autoclave avec un cycle thermique comprenant une phase isotherme de 120 min à 180°C et avec des vitesses de montée et de descente en température de 2°C/min.

Les changements de l'impédance électrique en réel ( $R_p$ ) et imaginaire ( $C_p$ ) et leur dérivée première du temps sont suivis et analysés afin d'identifier des points caractéristiques tels que des extremums locaux, des points d'inflexion et des intersections d'asymptotes pendant la polymérisation (Figure 46 et Figure 47). Ces points sont comparés aux variations de grandeurs physico-chimiques déterminées par analyse thermique comme la viscosité, le module complexe de cisaillement et l'angle de perte. L'ensemble des points détectés en IE ont été corrélés à ces mesures incluant les points critiques PL, PG, PV et PF.

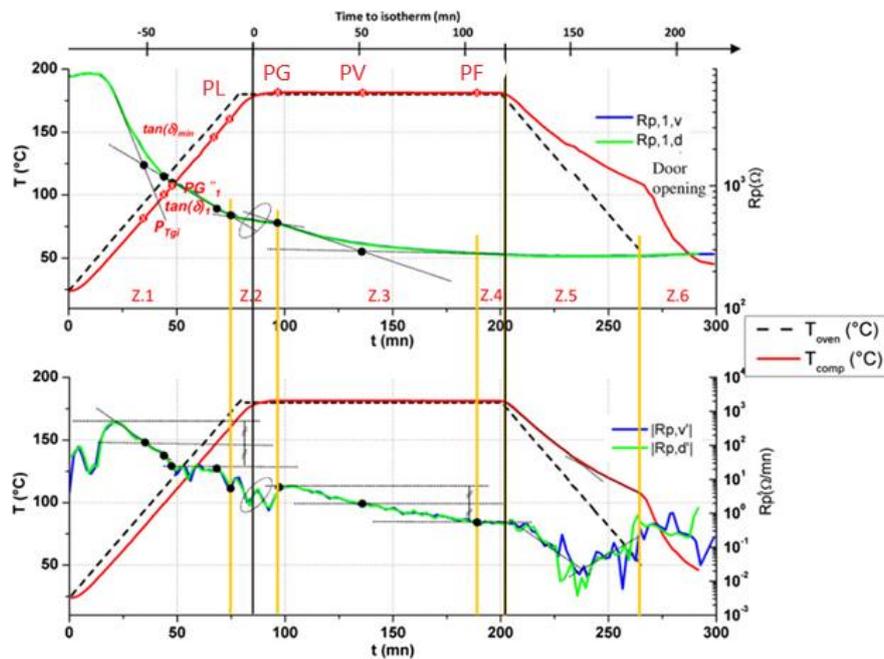


Figure 46 Analyse des mesures de  $R_p$  et de sa dérivée dans les différents sens de mesure [8]

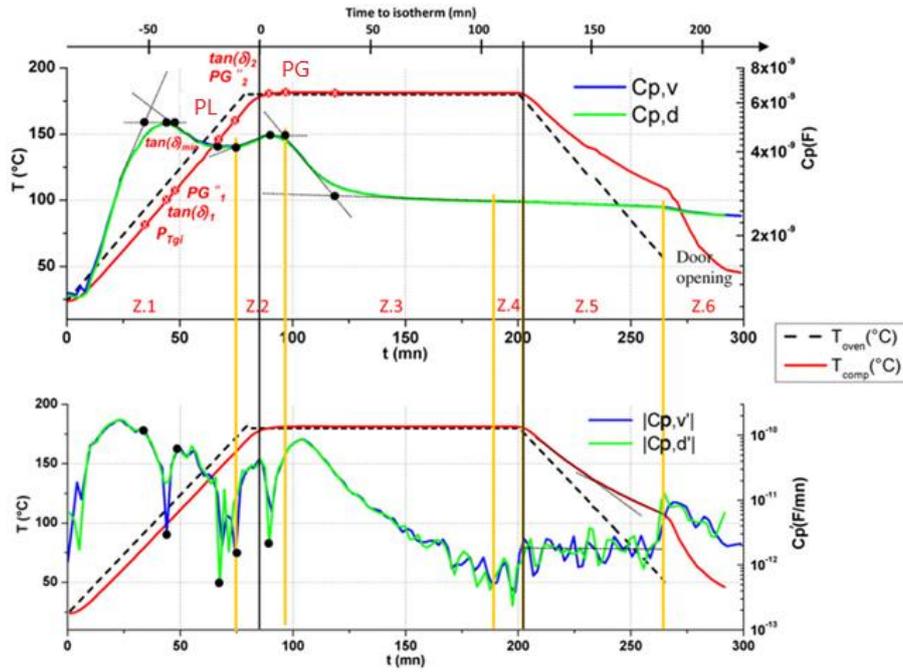


Figure 47 Analyse des mesures de Cp et de sa dérivée dans les différents sens de mesure [8]

Dans cette étude préliminaire, l'analyseur d'impédance monocanal Hioki IM3570 a été utilisé et piloté par une routine LabVIEW développée pour le besoin [11, 15]. L'analyseur se caractérise par une très grande précision de mesure de l'impédance et une large gamme de fréquences (4 Hz à 5 MHz). Il présente une excellente sensibilité à  $|Z|$  (1 m $\Omega$ ) et  $\theta$  (0,01°). De plus, un multiplexeur électromagnétique composé d'un module de huit relais a permis d'effectuer des plusieurs mesures multidirectionnelles dans le même cycle de cuisson. Un module de thermocouple a été utilisé parallèlement afin de mesurer la température dans l'étuve ou l'autoclave en temps réel (Figure 48).

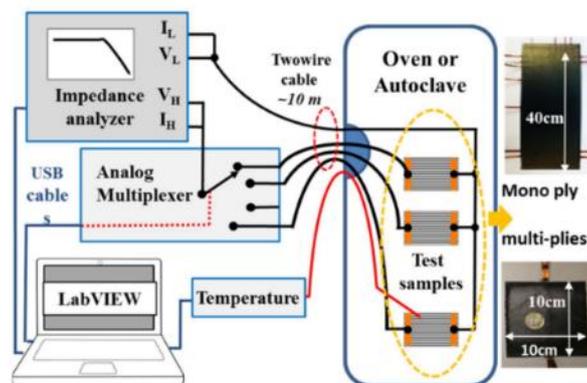


Figure 48 Schéma du banc d'impédancemétrie électrique sur la base de Hioki IM3570 [11]

La conduction électrique entre le banc et la structure en CFRP est assurée par des

électrodes en cuivre. Deux types d'électrodes ont été testés : rubans de 50  $\mu\text{m}$  d'épaisseur et tissus de 100  $\mu\text{m}$  d'épaisseur. Pour des soucis de non intrusivité, les électrodes en tissu ont été validées. Elles étaient insérées entre des plis sélectionnés d'un stratifié (Figure 49). La résistance d'accès globale (interface électrode/fibre et fil conducteur) était inférieure à  $1\Omega$ .

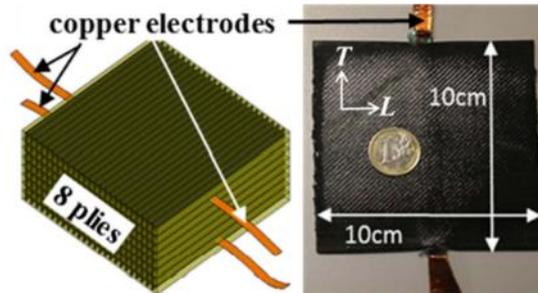


Figure 49 Conduction à travers l'épaisseur : électrodes placées dans 8 plis UD T700/M21  $[0^\circ_8]$ , les électrodes situées entre les plis 1-2 et 7-8, perpendiculairement aux fibres [11]

Dans les processus de fabrication des CFRP, différents produits d'environnement sont nécessaires pour la cuisson en étuve ou en autoclave. Une expérience a été menée pour démontrer que toute fuite survenant dans la poche sous vide pendant la cuisson pouvait être détectée [6]. Trois temps de rupture de vide ont été testés correspondant au temps de PL, PG et PV. Les signatures associées ont permis de mettre en évidence la faisabilité d'une détection de ce type de défaut en cours de cuisson (Figure 50).

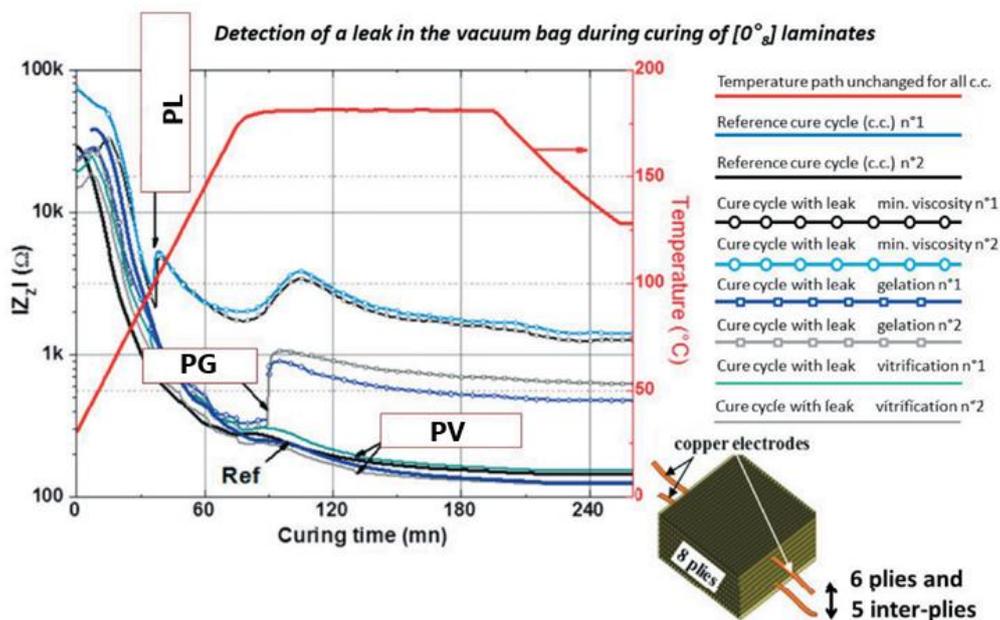


Figure 50 Détection de fuite en cours de cuisson de T700/M21 à PL, PG et PV par IE [6]

## 1.6 Conclusion

Cet état de l'art du suivi de cuisson et du contrôle de la santé du matériau composite notamment CFRP permet de situer le contexte de notre étude. Parmi les différentes techniques de monitoring, la méthode de l'impédancemétrie électrique (IE) en utilisant le matériau lui-même comme capteur nous intéresse et les résultats préliminaires ont été discutés. Dans cette phase préliminaire, la faisabilité et la fiabilité du suivi de la cuisson par la méthodologie proposée utilisant IE ont été démontrées. Cependant, il est nécessaire de pouvoir démontrer cette faisabilité sur un autre type de CFRP et mettre en évidence de potentielles signatures communes. De plus, à des fins de transférabilité et afin d'augmenter la cadence d'acquisition des mesures, un nouveau système d'acquisition doit être proposé et comparé au premier banc pour validation.

En effet, tous les travaux préliminaires ont été effectués à partir d'un analyseur d'impédance électrique Hioki IM3570, qui est coûteux, encombrant, monocanal et avec des temps d'acquisition non négligeable (de l'ordre d'une minute pour un balayage d'une vingtaine de fréquences) induisant des points de mesures de plusieurs minutes d'écart lors d'une campagne multivoie (via le multiplexeur utilisé alors). Le nouveau banc doit pouvoir être portable, peu coûteux, multicanal et assurer un échantillonnage de mesures plus important. De plus, il doit pouvoir assurer des mesures IE en configurations 2 et 4 points et intégrer de façon synchronisée la mesure de température (Cf. chapitre 3).

**Chapter 2 Matériaux de l'étude et système expérimental de  
mesure**

## 2.1 Introduction

Ce chapitre est une présentation des matériaux de l'étude et du système de mesure multiphysique (électrique et thermique) pour le suivi de cuisson en temps réel qui a été développé dans cette thèse.

Dans une première partie, deux types de préimprégnés T700/M21 et NC66/NA1808 seront présentés. Les stratifiés multipliés et monopliés de T700/M21 sont utilisés dans des travaux préliminaires, les propriétés physico-chimiques ( $\alpha$  et les paramètres rhéologiques) pendant leur polymérisation sont déterminés par des méthodes d'analyse thermique conventionnelles (comme DSC et DMA). Cela permet d'identifier les points critiques de la polymérisation comme PL, PG, PV et PF points qui seront comparés avec les résultats obtenus par IE (Impédance Electrique).

Dans la deuxième partie, le banc de mesure IE fait « maison » et développé dans le cadre de cette étude est présenté. Ce banc est portable, peu coûteux, multicanaux, capable de mesurer la température et de faire des mesures IE synchrones avec un taux d'acquisition suffisamment important. Les parties matérielles et logicielles sont conçues afin de répondre aux exigences expérimentales du suivi des changements de phases de la matrice du composite en cours de cuisson mais également pour une utilisation en service ou en cours d'essai. Un analog-front-end (AFE) permettant de faire des mesures quatre points (mesure Kelvin) est également conçu et réalisé pour assurer des mesures longitudinales sur les CFRP. Les performances de mesure du banc et tout comme celles d'un appareil d'impédancemétrie commercial de marque Hioki sont validées par une série de mesures sur des circuits nominaux de référence et des stratifiés T700/M21 cuits déjà caractérisés dans les études précédentes [7, 12].

Finalement, le montage expérimental du suivi de cuisson est présenté. Les précédents travaux ont montré la faisabilité de suivi de cuisson de CFRP T700/M21 en et hors autoclave. Dans le cadre de notre étude, nous réalisons des essais hors autoclave, en étuve, pour réduire le coût des campagnes expérimentales.

## 2.2 Matériaux de l'étude

### 2.2.1 T700/M21

Les composites unidirectionnels préimprégnés de type T700/M21 produits par Hexcel Composite France sont couramment utilisés dans la fabrication de structures primaires pour l'industrie aéronautique. Dans les travaux préliminaires [7, 12], le préimprégné T700/M21 a été caractérisé par méthodes d'analyse thermique conventionnelles (rhéomètre, DMA et DSC).



Figure 51 Un rouleau de préimprégné unidirectionnel T700/M21 carbone/époxy

Les caractéristiques physiques de la fibre T700 et de la résine M21 sont présentées respectivement dans le Tableau 4 et le Tableau 5. La partie thermodurcissable de la résine M21 est chargée par des nodules thermoplastiques qui permettent d'augmenter la résistance au choc du système et la tenue à la propagation de fissure. Paris et al.[12] ont montré, à partir d'observations de microscopie électrique à balayage (MEB), que ces nodules thermoplastiques proviennent de la transformation des particules présentes dans la résine non-réticulée et à l'état de préimprégné (ou prepreg). Les caractéristiques mécaniques, électriques et thermiques du composite T700/M21 polymérisé sont données dans le Tableau 6 [7, 12].

dtex (g/m)	0.81
Nombre des filaments	12 000
Section d'une fibre ( $\mu\text{m}^2$ )	33.2
Diamètre moyen ( $\mu\text{m}$ )	6.5
Résistivité électrique ( $\Omega\cdot\text{m}$ )	$25 \times 10^{-5}$
Résistance à la Traction //	4,9 GPa
Module d'Young //	240 GPa
Allongement à rupture //	2,0 %
Masse volumique	$1,80 \text{ g/cm}^3$
$\lambda_{\text{th}}$ //	$0,75 \text{ J/g}\cdot^\circ\text{C}$
CTE //	$-0,38 \cdot 10^{-6}/^\circ\text{C}$

Tableau 4 Caractéristiques physiques de la fibre de Carbone T700 [7, 12]

Masse volumique ( $\rho$ )	1200 kg/m <sup>3</sup>
Module de traction (E)	4500 MPa
Module de cisaillement (G)	1600 MPa
Allongement à la rupture (A%)	2% à 100°C, 6% à 200°C
Coefficient de Poisson ( $\mu$ )	0.4
Température de transition vitreuse (°C)	$210 \pm 5^\circ\text{C}$

Tableau 5 Caractéristiques physiques de la résine M21 [7, 12]

Matériau composite (T700/M21)	Epaisseur du pli (mm) : 0.26
	Taux volumique de fibre $V_f$ (%) : 59
	Module de Young : $E_l = 142 \text{ GPa}$ , $E_t = 8.4 \text{ GPa}$
	Module de cisaillement : $G_{l2} = 3.8 \text{ GPa}$ ,
	Coefficient de Poisson longitudinal: $\nu_{lt} = 0,32$
	Coefficient de Poisson transverse: $\nu_{tt} = 0,51$
	Température de transition vitreuse: $T_g = 187^\circ\text{C}$
	Déformation max. en traction longitudinale: $1.6 \cdot 10^{-2}$
	Déformation max. en traction transverse: $1.02 \cdot 10^{-2}$
	Contrainte max. en traction $\sigma_{\text{max}}$ : 50 MPa
	Conductivité électrique longitudinale: $\sigma_L = 10^5 \text{ S/m}$
Conductivité électrique transversale : $\sigma_T = 10 \text{ S/m}$	
Conductivité électrique suivant l'épaisseur : $\sigma_z = 5 \text{ S/m}$	

Tableau 6 Caractéristiques moyennes mécaniques, électriques et thermiques du composite T700/M21 cuit [7, 12]

L'anisotropie du matériau (sur un pli unidirectionnel ou un stratifié) après cuisson, en termes de conductivité électrique montre une impédance électrique du matériau dans le sens longitudinal ( $|Z_L|$ ) beaucoup plus petite que dans les autres sens ( $|Z_T|$  et  $|Z_z|$ ).

Dans le cadre d'un suivi de cuisson par IE, l'écart de valeur et la variation de ces paramètres en cours de cycle de polymérisation, nécessite un instrument de mesure électrique avec différentes gammes et précisions pour assurer des mesures sensibles dans toutes les directions. De fait, la configuration du système de mesure doit être ajustable pour répondre à ce besoin.

La distribution des différents constituants d'un stratifié post-cuisson (fibres de carbone, matrice, nodules thermoplastiques et porosités) peut être observée par analyse microstructurale (Figure 52). Les clichés obtenus permettent d'estimer, entre autres, la fraction volumique de fibres de carbone à partir de la fraction surfacique mesurée. Les valeurs moyennes des fractions surfaciques (dans les plis et les inter-plis) de fibres ( $S_f$ ), de matrice ( $S_m$ ) et de porosité ( $S_0$ ) pour des stratifiés T700/M21  $[0^\circ]_8$  (8 plis UD), élaborés en autoclave et en étuve, sont présentées dans le Tableau 7.

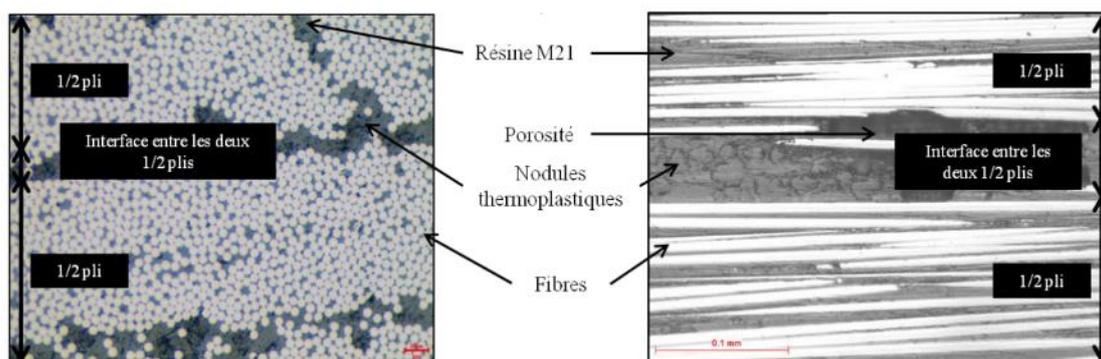


Figure 52 Observations microstructurales suivant l'épaisseur d'un monopli T700/M21 dans les plans (T,Z) (a) et (L,Z) (b) [7]

$S_{\text{moyen}} (\%)$	Fibres		Porosité		Matrice	
	Plis	Inter-plis	Plis	Inter-plis	Plis	Inter-plis
Autoclave	63,76	17,41	3,10	6,85	33,14	75,74
Etuve	53,86	17,82	5,00	23,65	41,15	58,53

Tableau 7 Fractions surfaciques moyennes de fibres, de porosité et de matrice dans les plis et inter-plis en cuisson étuve et autoclave [7, 12]

On constate que la fraction surfacique des fibres suivant les épaisseurs des plis des stratifiés polymérisés par autoclave est plus importante que celles présentées par les

stratifiés cuits en étuve et donc sous pression (64%/54%). Cet écart de 10 % est dû à l'effet de la pression en autoclave (7 bars) assurant un flot de la résine plus important ainsi qu'une évacuation des porosités. Pour les inter-plies, on constate que les fractions surfaciques moyennes des fibres sont du même ordre de grandeur (environ 17%).

Dans l'étude préliminaire, deux types d'électrode ont été testés : ruban de cuivre (135  $\mu\text{m}$  avec la passivation ; film de cuivre 3M 1181 Tape et Film Kapton High Temperature Masking Tape Multicomp) et toile tissée de cuivre (Toile métallique de cuivre CUA1 Recuit N° 162.44 FR 0.050, Gantois). Un exemple du stratifié T700/M21 instrumenté par électrodes de cuivre est présenté dans la Figure 53.

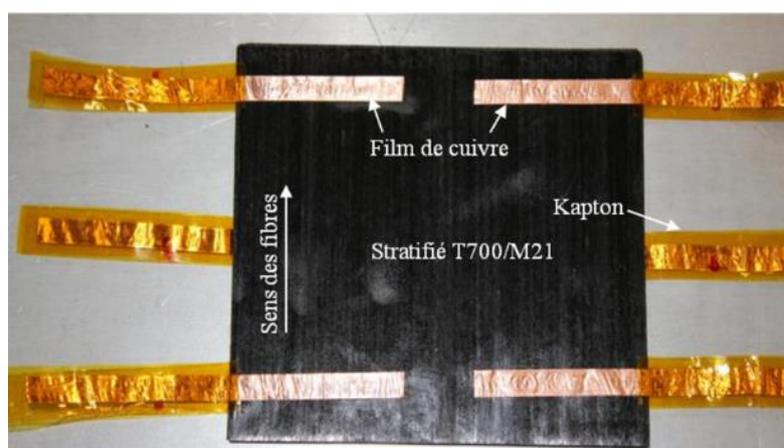


Figure 53 Un stratifié T700/M21 instrumenté à cœur et en surface par ruban en cuivre [7]

Des essais mécaniques ont été réalisés [7, 10] afin de mettre évidence des effets d'intrusivité potentiels. Il ressort de ces essais que les électrodes tissées de cuivre n'ont pas d'effet néfaste a contrario des rubans de cuivre. Ceci a été validé également, par analyse microstructurale. Des échantillons instrumentés sont comparés dans le Tableau 8 pour mettre en évidence l'accumulation de la résine et de la porosité sous les rubans de cuivre positionnés entre les plis 1-2 et 7-8 de stratifiés  $[0^{\circ}_8]$ . Comme l'indique ce tableau, mais également la Figure 54, le tissu de cuivre est parfaitement intégré dans l'inter-plic, sans induire un effet cumulatif local de résine ni de porosité qui entraîne les effets d'intrusivité détectés lors des essais mécaniques. Ce type d'électrode est donc conservé dans le cadre de l'étude présentée dans ce mémoire.

$S_{inter-plis}$ moyen (%)		Plis 1-2 en-dessous	Plis 1-2 au-dessus	Plis 7-8 en-dessous	Plis 7-8 au-dessus
<b>Fibres</b>	Ruban Etuve	28,39	33,20	10,63	20,57
	Ruban Autoclave	30,05	39,49	26,65	27,21
	Toile Autoclave	33,90	45,50	28,30	29,00
<b>Porosité</b>	Ruban Etuve	19,75	16,68	23,32	8,55
	Ruban Autoclave	17,65	-	22,54	-
	Toile Autoclave	1,43	-	2,41	-
<b>Matrice</b>	Ruban Etuve	51,86	50,12	66,05	70,88
	Ruban Autoclave	52,30	60,51	50,81	72,79
	Toile Autoclave	64,67	54,50	69,29	71,00

Tableau 8 Fractions surfaciques moyennes de fibres, Comparaison de valeurs moyennes des fractions surfaciques de fibres, de porosité et de matrice aux niveaux des inter-plis instrumentés par les rubans et par la toile pour chaque type de cuisson (étuve; autoclave) [7]

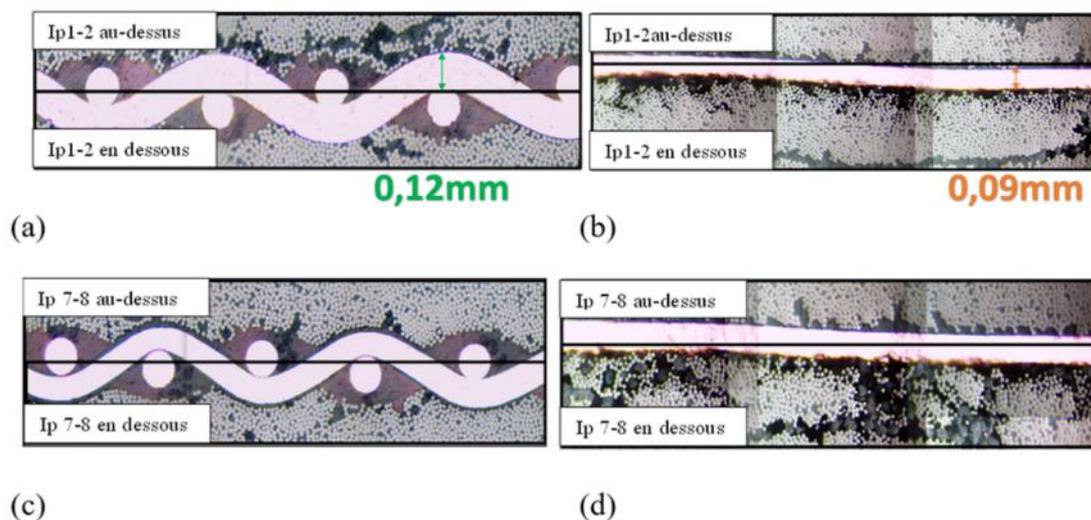


Figure 54 Micrographies des inter-plis 1-2 et 7-8 instrumentés par le tissu de cuivre (resp. a et c) et le ruban de cuivre (resp. b et d) dans le plan (T, Z) [7]

Dans cette étude préliminaire, la résine M21 a également été caractérisée avec un rhéomètre à plateaux parallèles et par DSC. La Figure 55 présente les résultats obtenus sur le système de la matrice M21 non-renforcée par essais de rhéométrie et ceux issus de la cinétique de réaction qui permettent de prévoir les valeurs du degré d'avancement  $\alpha$  en fonction du cycle de cuisson (temps et température) suivi. Les essais de rhéométrie nous ont permis de simuler les conditions de température du cycle de polymérisation (refroidissement exclu) recommandé par le producteur du système M21. Pendant ces essais, ont été enregistrés la viscosité  $\mu$ , le module de conservation et de perte en

cisaillement  $G'$  et  $G''$  et la tangente de l'angle de perte  $\tan\delta$ . En début de cycle de polymérisation, la viscosité  $\mu$  diminue jusqu'à un minimum qui est noté PL (Cf. chapitre 1). Ce point apparaît sur la Figure 55. Le pic principal de  $\tan\delta$  ainsi que l'intersection de  $G'$  et  $G''$  permettent de marquer le début de gélification noté par le point PG. Lorsque le matériau est à  $180^\circ\text{C}$ , un nouveau pic- d'intensité plus faible- se manifeste pour témoigner du début de la vitrification de la matrice. Ce point est noté PV. Enfin lorsque le degré d'avancement  $\alpha$  dépasse 95% a été placé un point PF pour marquer la fin de polymérisation car l'évolution de  $\alpha$  est extrêmement lente. Les quatre points caractéristiques des changements de phases rhéologiques et de la polymérisation du système époxy pendant un cycle de polymérisation repérés sur la Figure 55 seront les événements recherchés dans le suivi de la cuisson des composites par IE.

L'expérience acquise avec les travaux précédents sur le suivi de cuisson par IE à l'ICA [7, 10] en partenariat avec le LAAS nous ont montré qu'il était difficile, du fait des volumes et des quantités de matière à chauffer lors de la fabrication de plaques stratifiées en étuve ou en autoclave, de retrouver exactement les rampes de montée en température réalisées avec notre rhéomètre à plateaux parallèles.

Afin de s'affranchir de ces problèmes qui font qu'au lieu d'atteindre par exemple  $180^\circ\text{C}$  après 73 minutes de rampe, on atteint  $180^\circ\text{C}$  après 80 minutes, nous avons utilisé une seconde échelle de temps dont l'origine ( $t=0$ ) est placée au début du palier isotherme à  $180^\circ\text{C}$ . Pour ce qui concerne les mesures IE, elles sont toutes réalisées pour la cuisson en étuve (cette thèse) ou en autoclave (pour certains des travaux antérieurs fait à l'ICA). On ne peut garantir avec une étuve de  $1\text{m}^3$  et quelques kg de moule métallique à chauffer de parvenir à  $180^\circ\text{C}$  exactement après 73 minutes. D'où l'intérêt de cette seconde échelle de temps.

Le Tableau 9 identifie les point PL, PG, PV et PF et donne les temps auxquels ils apparaissent ainsi que les températures correspondantes. Il indique aussi que l'isotherme à  $180^\circ\text{C}$  est atteinte après 73 minutes. Ces 73 minutes seront prises comme  $t=0$  dans la seconde échelle de temps dont l'origine est le début du palier isotherme.

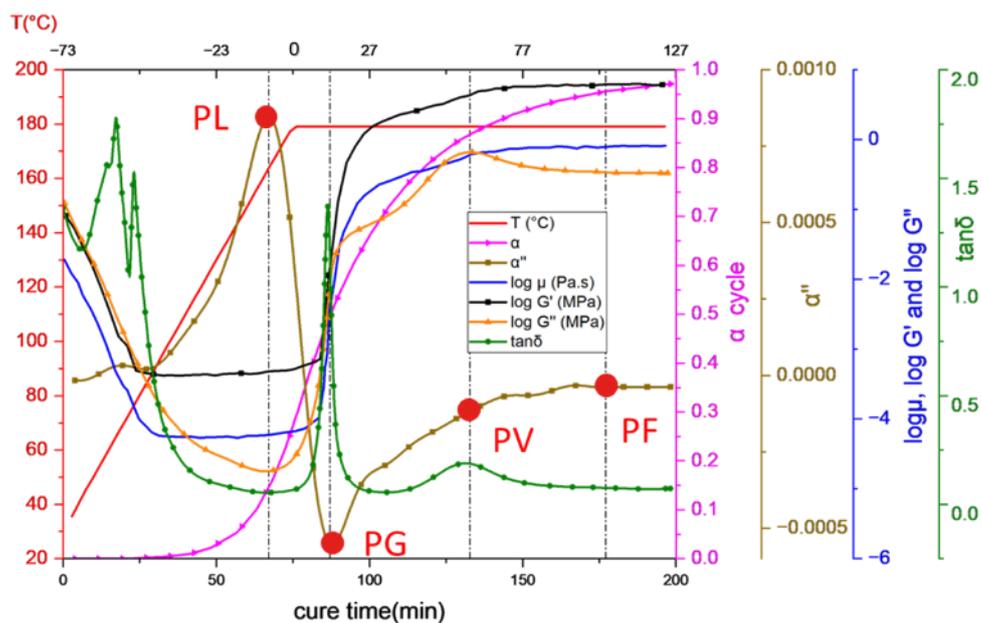


Figure 55 Points caractéristiques rhéologiques sélectionnés sur les évolutions en  $\alpha$ ,  $\mu$ ,  $G'$ ,  $G''$  et  $\tan \delta$  en cours de cuisson de la résine M21 [10]

	PL	PG	PV	PF
Température (°C)	155	180	180	180
Temps Isotherme (min)	-12	10	55	105

Tableau 9 Points caractéristiques déterminés par un rhéomètre à plateaux-parallèles [7]

Pour les mesures d'IE des travaux précédents sur le suivi de cuisson [3, 4, 8, 10, 11], un analyseur d'impédance monocanal Hioki IM3570 a été utilisé et piloté via une interface utilisateur développée sous LabVIEW (Figure 56). L'analyseur se caractérise par un écart de  $\pm 0.08\%$  en  $|Z|$  et  $\pm 0.05^\circ$  en  $\theta$  avec une grande gamme de fréquences de 4 Hz à 5 MHz [92]. Il présente également une excellente sensibilité sur les mesures de  $|Z|$  (1 m $\Omega$ ) et  $\theta$  (0,01°). Un multiplexeur analogique composé d'un module à huit relais électromagnétiques, piloté par un microcontrôleur Arduino, a permis de réaliser des mesures sur différents échantillons et dans différentes directions (Figure 57).



Figure 56 Le banc IE utilisant HIOKI IM3570 [10]

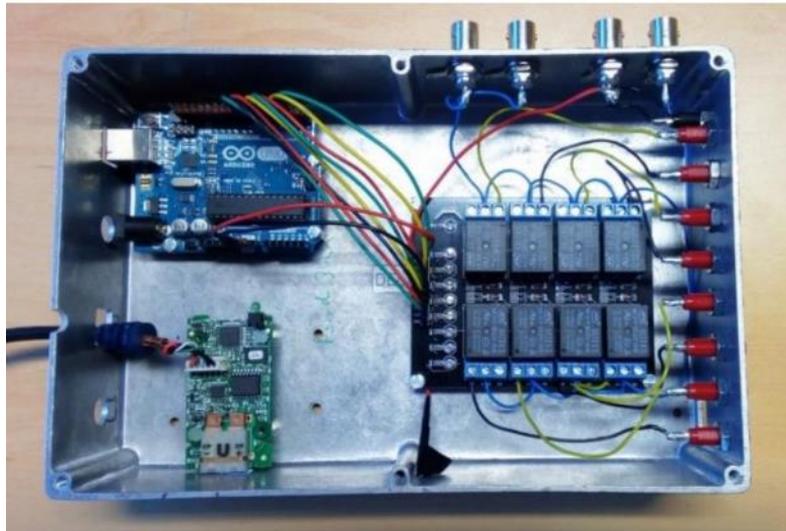


Figure 57 Le multiplexeur construit dans les travaux précédents à l'ICA et au LAAS [10]

Un ensemble de points d'intérêt avaient été déterminé dans cette étude (Annexe-i). Parmi ceux-ci, les points PL, PG, PV et PF détectés par mesure IE et les instants auxquels ils ont été enregistrés sont rappelés dans la Figure 58 et le Tableau 10. Ces résultats sont comparés à ceux obtenus à partir des essais de rhéologie (PL, PG, PV) et calculé par la cinétique de réaction (essai en DSC) pour le point PF. Les résultats du tableau peuvent montrer quelques décalages imputables notamment à des effets d'inertie de cycles et de taille des échantillons utilisés dans les diverses techniques de mesure.

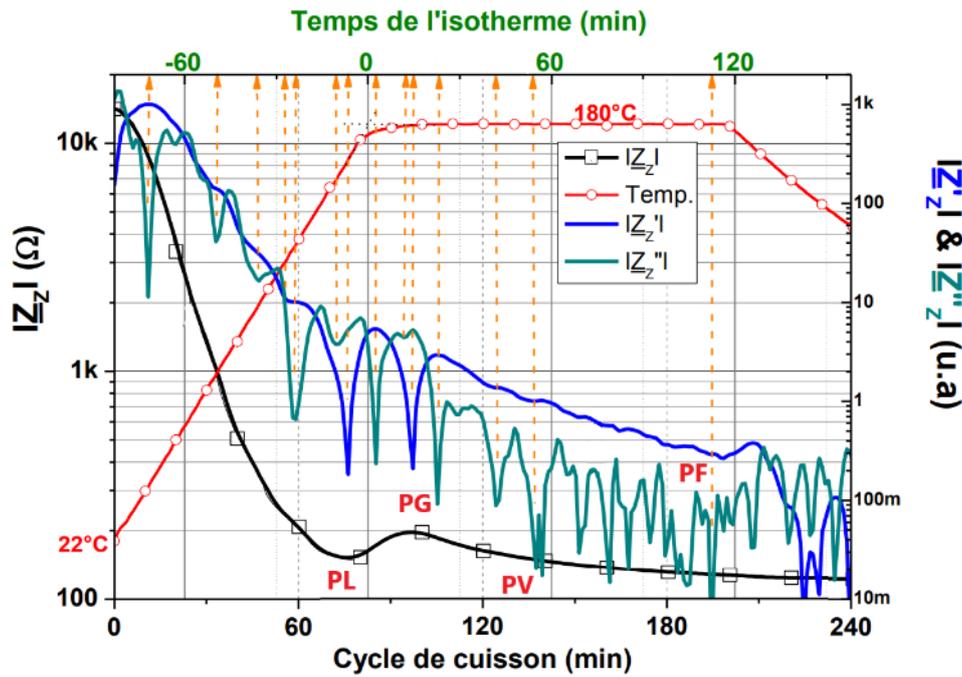


Figure 58 Points caractéristiques par IE en utilisant  $|Z_z|$  ses dérivées premières et secondes [10]

Temps isotherme	PL	PG	PV	PF
Selon rhéomètre (min)	-10	10	55	105
Selon mesure IE (min)	-8	14	55	112

Tableau 10 Comparaison entre les points caractéristiques déterminés par rhéomètre et par IE [10]

Dans les processus de fabrication des CFRP, différents produits d'environnement sont nécessaires pour le cycle de polymérisation en étuve ou en autoclave. Une expérience a été menée pour démontrer que toute fuite survenant dans le sac à vide pendant le durcissement de la résine pouvait être détectée. Trois temps caractéristiques différents pour simuler une fuite de vide (décrochage de la buse à vide) ont été choisis : PL, PG et PV. Ces ruptures ont montré des signatures particulières différentes des signatures de référence pour un cycle sans défaut (Figure 59). Ceci a mis en évidence la possibilité de rendre compte de défaut de cuisson avec l'approche proposée.

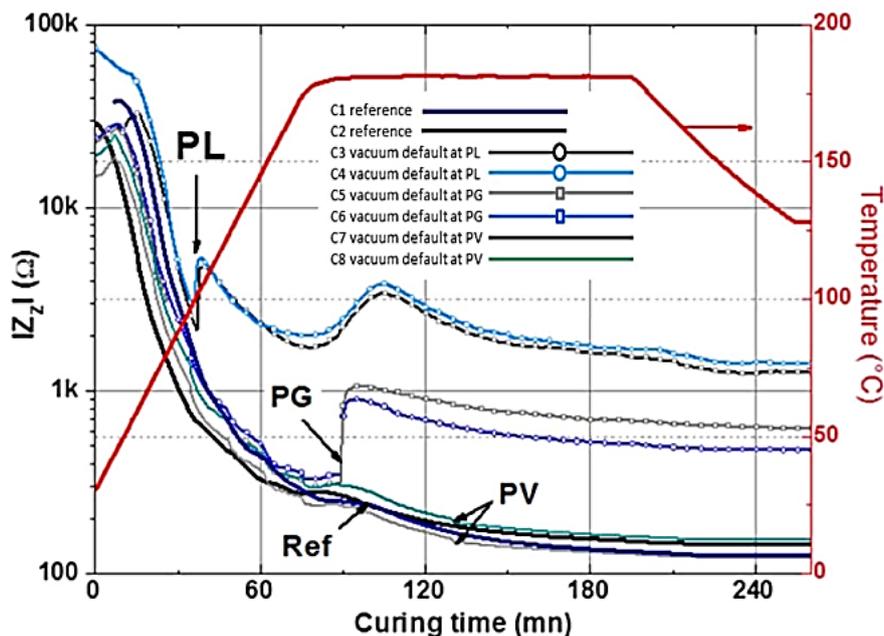


Figure 59 Changements dans  $|Z_z|$  à 10 kHz de 8 échantillons avec défaut de vide détecté [11]

Tous les travaux antérieurs étaient basés sur l'analyseur Hioki IM3570, qui est volumineux, encombrant, monocanal, peu sensible dans le domaine temporel (il consacre trop de temps à l'acquisition des données) et difficilement transférable vers la fabrication de la structure composite dans l'industrie aéronautique.

Ce banc est donc nécessaire pour poursuivre notre approche de suivi de cuisson par mesure IE. Il devrait répondre aux spécifications suivantes : portable, peu coûteux, multicanaux, synchronisé ou suffisamment sensible dans le domaine temporel. Nous allons donc dans ce chapitre détailler les étapes de conception et de réalisation de ce nouveau banc de mesures d'impédance électrique et thermique multicanaux. Auparavant, nous présentons ci-dessous, le matériau préimprégné carbone/époxy support de ces travaux de thèse. Il n'a malheureusement pas été possible de poursuivre avec le matériau T700/M21 ou l'un de ses successeurs type IMA/M21EV.

La démarche d'analyse IE sera reprise sur le nouveau matériau de l'étude (Cf. paragraphe suivant) et une analyse en anomalie sera effectuée (Cf. chapitre 3).

## 2.2.2 NC66/NA1808

Le matériau utilisé dans notre étude, est un préimprégné NC66/NA1808 fabriqué par la société CTMI France. Les informations disponibles (fiche fournisseur et [93]) sur ce

matériau sont données dans le Tableau 11.

Fibres NC66	Résine 1808NA	Pré-imprégné NC66/1808NA
Architecture du pli : UD Diamètre moyen d'une fibre : 7 $\mu$ m	Résine époxy thermodurcissable Densité : 1,18g/cm <sup>3</sup> Température de transition vitreuse : 128°C Viscosité à 80°C : 5Pa.s	Résistance en cisaillement : 78MPa Résistance en flexion : 1389MPa Module de flexion : 117GPa Consolidation à 120°C Taux volumique de fibres : 58% - 65%

Tableau 11 Caractéristiques du préimprégné NC66/NA1808 (Données fournisseur, [8])

Le cycle de cuisson proposé par le fournisseur a été adapté par le CRITT Mécanique et Composite de Toulouse afin d'augmenter le degré d'avancement qui n'atteint pas 100%. Le degré d'avancement  $\alpha$  maximal obtenu est de l'ordre de 85% en autoclave. Ce cycle, donné en Figure 60, sera utilisé dans le cadre de cette étude. Nous gardons toujours le cycle proposé par le CRITT avec  $\alpha=85\%$  à la fin de cuisson.

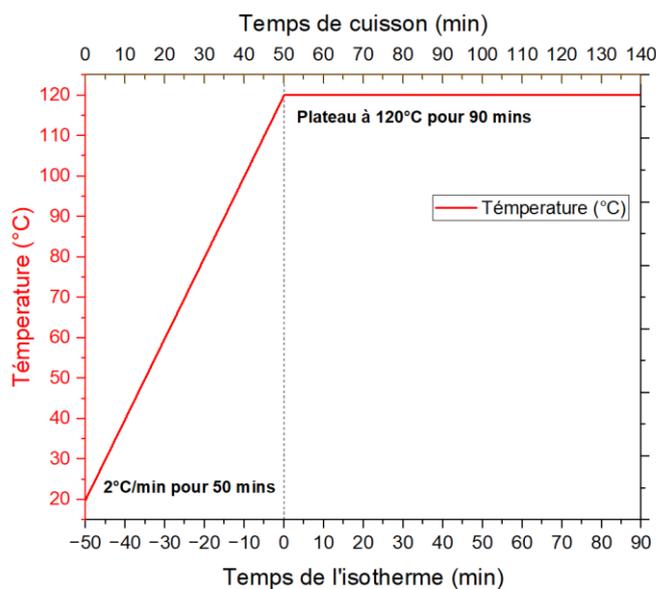


Figure 60 Cycle de cuisson en étuve pour la résine NA1808 et les préimprégnés NC66/NA1808

Dans le chapitre 3, le matériau NC66/NA1808 et la résine NA1808 non-renforcée seront caractérisés par analyse thermique (DSC, TGA, Rhéomètre à plateaux parallèles, Vanhographe). Ces résultats seront comparés aux analyses IE effectuées grâce au nouveau banc (Cf. paragraphe suivant) dans différentes configurations. Des échantillons stratifiés ( $[0^{\circ}_8]$  et  $[0^{\circ}_{16}]$ ) et monopli de préimprégnés ainsi que des échantillons de résine non-renforcée seront étudiés.

L'objectif est non seulement de pouvoir vérifier la méthodologie des travaux précédents [3, 4, 8, 10, 11] dans sa faisabilité avec un nouveau banc mais également de vérifier des tendances communes des signatures en impédance  $|Z_z|$  entre deux types de CFRP différents : T700/M21 et NC66/NA1808.

## **2.3 La création du nouveau banc**

### **2.3.1 Le cahier des charges**

Le banc doit être doté de 8 canaux de mesure d'impédance électrique (analyse fréquentielle) et 2 canaux de mesure thermique. Ces canaux doivent être indépendants et permettent des mesures synchronisées ou commutées avec des temps de commutation très courts. Les canaux de mesure électrique doivent pouvoir être utilisés pour caractériser l'impédance électrique des échantillons de CFRP pendant la cuisson (en étuve ou autoclave) ou en service. La température des échantillons doit pouvoir être mesurée simultanément par deux thermocouples identiques connectés à deux canaux de mesure thermique.

Chaque canal doit être indépendant en termes de paramètres de mesure, ce qui permettra à l'utilisateur d'effectuer des mesures dans le sens longitudinal, transversal ou dans celui de l'épaisseur avec une propre configuration pour chaque canal.

L'ensemble du système de mesure devra être intégré dans un châssis permettant en ses bords la connexion des canaux de mesure, l'interfaçage de communication et l'alimentation.

L'interface utilisateur devra être développée sous le logiciel LabVIEW. La communication entre le logiciel et le banc se fera via un port USB. Les différents modules électroniques intégrés au banc communiqueront via un protocole I<sup>2</sup>C (communication Inter-Integrated Circuit). Le logiciel comprendra une interface utilisateur permettant de calibrer le banc, de configurer indépendamment chaque canal (en fonction du type de mesure souhaité), de lancer les mesures d'impédance et de température, de visualiser les résultats sous forme graphique en temps réel et d'exporter les données pour le post-traitement.

Le banc doit être conçu de sorte à proposer un encombrement minimal, une transportabilité aisée, un coût nettement réduit face au banc précédent (Hioki IM3570),

une qualité de mesure avec un écart de 5% pour rendre compte des variations d'IE en cuisson ou en service et taux d'acquisition de données suffisant pour effectuer un traitement des signaux suffisant.

### **2.3.2 La conception et le développement du banc**

La conception et le développement du banc sont divisés en plusieurs étapes : sélection et connexion des composants en fonction du cahier des charges, développement du logiciel et élaboration d'un protocole de calibrage des canaux de mesure.

Tout d'abord, nous avons besoin d'un module électrique spectrométrique (ou une puce spectrométrique) peu coûteuse permettant de mesure d'impédance électrique de haute précision en  $|Z|$ , de grande plage en  $|Z|$  et de fréquence, et à grand taux d'échantillonnage comme une alternative au HIOKI IM3570 utilisé dans les travaux précédents [3, 4, 8, 10, 11].

Après différentes recherches de solutions correspondant à notre besoin en termes d'IE, la puce AD5933 (Annexe-ii) a été considérée comme potentiellement la plus pertinente pour effectuer les mesures associées entre autres solutions commerciales [94-98]. Cependant, la puce AD5933 elle-même ne peut pas être pilotée directement par une interface de communication. Dans ce contexte, le module électronique PmodIA basée sur cette puce a été choisi car il intègre sur sa plateforme : alimentation, communication et calibrage de la puce.

Ainsi, les composants principaux qui ont été retenus sont présentés ci-dessous et détaillés par la suite.

### **2.3.3 Architecture globale du banc**

Le banc contient :

- Une unité de mesure IE comprenant :
  - Analyseurs d'impédance PmodIA (x8) ;
  - Multiplexeur (MUX) (Annexe-ii) pour la commutation entre les PmodIA ;
  - Carte d'acquisition de données NI-USB-8452 (Annexe-ii) ;
  - Connecteurs BNC (x16 pour assurer les entrées/sorties des 8 canaux IE) ;

- Autres câbles et connecteurs.
- Une unité de mesure thermique comprenant :
  - Module thermocouple National Instruments ;
  - Connecteurs DIN Type-K pour thermocouples (x2) ;
  - Autres câbles et connecteurs.
- Un Hub USB pour connecter le DAQ et le Module NI;
- Une alimentation générale de 5V.

Une interface utilisateur doit être développée afin d'assurer la communication avec les modules de mesures (asservissement et transfert de données).

Le diagramme de l'architecture du nouveau banc de mesure est donné sur la Figure 61.

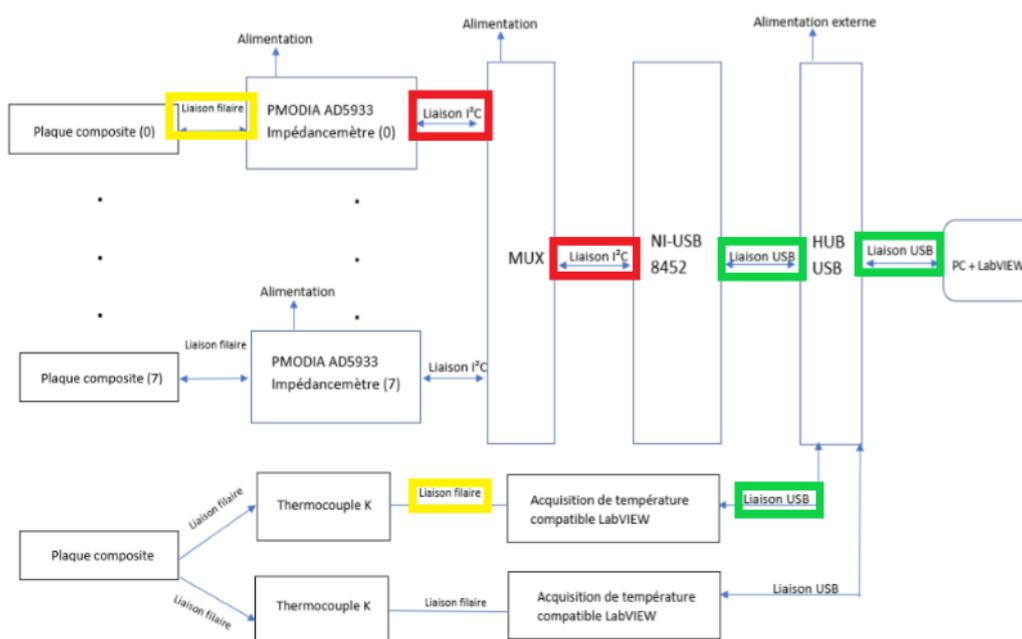


Figure 61 Diagramme de l'architecture du nouveau banc. Les connexions assurées par les fils de jumper sont encadrées en jaune, par le protocole I<sup>2</sup>C en rouge et par USB en vert

### 2.3.4 Unité de mesure IE

La Figure 62 schématise le fonctionnement de l'unité de mesure IE. Ce diagramme permet de mieux comprendre la fonction de la carte d'acquisition de données (DAQ) qui consiste à convertir les données sous le protocole I<sup>2</sup>C vers le protocole USB.



Figure 62 La chaîne de transmission du signal IE

a) **PmodIA**

Le profil et le schéma-bloc de PmodIA sont présentés respectivement dans la Figure 63 et la Figure 64. Les fonctions de chacune des puces intégrées sont précisées dans le Tableau 12.

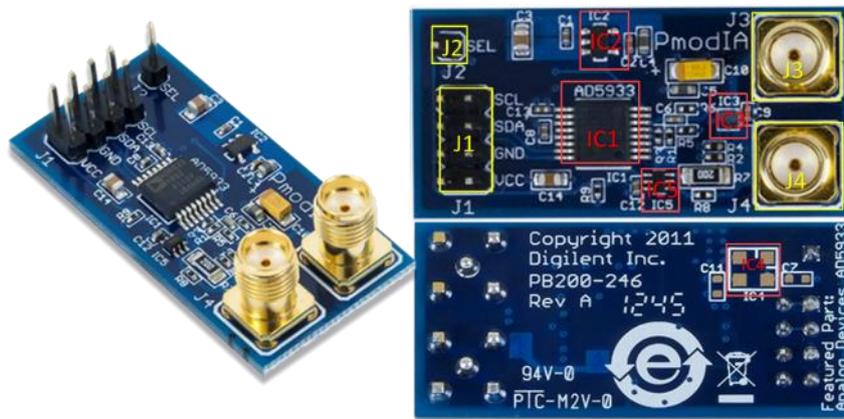


Figure 63 Profil d'un module PmodIA

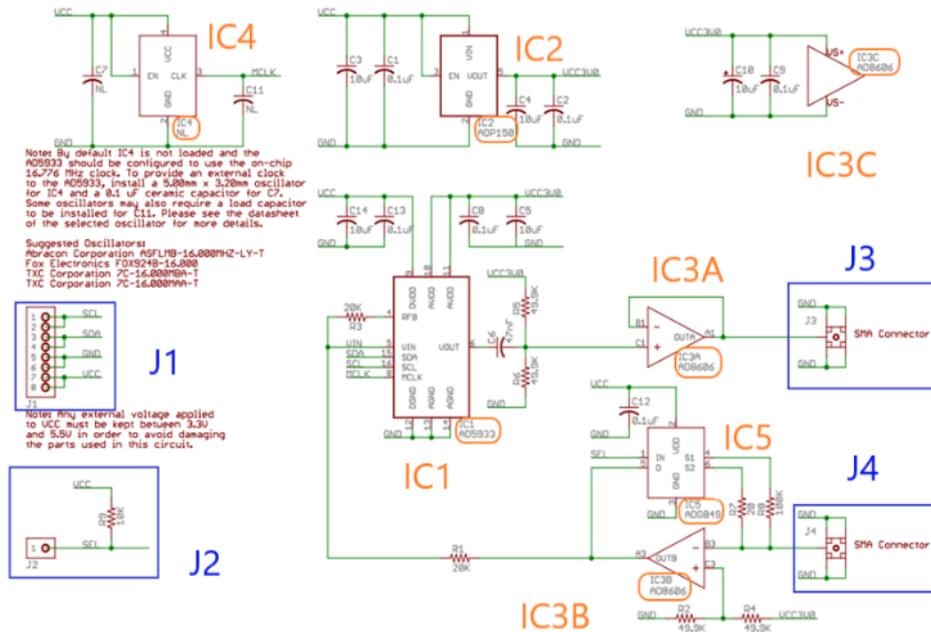


Figure 64 Schéma-bloc d'un module PmodIA

	Circuit intégré (IC)				
	IC1	IC2	IC3 (A à C)	IC4	IC5
Nom de produit	AD5933	ADP150	AD8606	Option	ADG849
Fonction	Analyseur d'impédance	Régulateur de tension	AOP pour polarisation	Horloge externe	Sélecteur de RFB
Rôle	Principal	Annexe	Annexe	Annexe	Annexe

Tableau 12 Les circuits intégrés au PmodIA

Avec :

AOP : amplificateur opérationnel.

RFB : résistance de feedback (contre réaction).

**b) Circuits intégrés :**

- **IC1 est la puce AD5933 qui sert à réaliser l'analyse fréquentielle.**

Du point de vue de l'architecture du module PmodIA, IC 2-5 et J1-J4 sont les composants annexes à IC1 AD5933. La fonction de la puce AD5933 (IC1) est détaillée ci-après.

- **IC2 est un régulateur de tension linéaire.**

Il sert à convertir la tension instable fournie par USB (5V) vers une tension stable tension (3,3V) pour alimenter le module PmodIA. Une alimentation stable est essentielle pour les résultats des mesures, car l'amplitude de la tension du signal d'excitation dépend de la tension de l'alimentation.

- **IC3 sert à polariser le signal.**

C'est une puce dotée de 2 AOP (notés comme 3A et 3B) qui sert à générer un décalage de composant continu (offset) pour assurer cette polarisation. Le signal d'excitation de l'AD5933 est une tension alternative symétrique, de sorte que le courant généré passant le matériau mesuré présente les mêmes caractéristiques. Cependant, la puce AD5933 ne peut lire que des tensions positives comprises entre 0 et 5V. Ainsi, il faut utiliser une

paire d'AOP pour polariser le signal et convertir le signal d'entrée alternatif en positif.

- **IC4 est une option pour ajouter une horloge externe**

Ce circuit intégré peut modifier la plage de fréquence. Par défaut, le PmodIA utilise l'horloge interne de la puce AD5933 (fréquence de 16,776 MHz).

- **IC5 est un sélecteur de résistances de feedback (RFB)**

Deux voies sont disponibles (20  $\Omega$  et 100k  $\Omega$ ) servant à adapter l'impédance électrique du matériau mesuré.

c) **Bornes d'entrées/sorties :**

L'ensemble des 4 pins J1(SCL, SDA, GND et VCC) sert à la communication I<sup>2</sup>C pour la transmission des données.

SCL désigne le signal d'horloge, SDA désigne les données de mesure, GND et VCC sont respectivement la masse digitale et la tension au collecteur commun (alimentation de 5V).

La borne J1 sera connecté à une carte d'acquisition de donnés.

La borne J2 sert à transmettre le signal de la sélection de la résistance de feedback (RFB) vers IC5.

La borne J3 du connecteur SMA sert au signal sortie (signal d'excitation) du PmodIA

La borne J4 sert pour le signal d'entrée (signal de réception).

d) **Fonctionnement de la puce IC1 - AD5933**

Le schéma bloc de la puce AD5933 est présenté dans la Figure 65. La puce AD5933 permet de réaliser un balayage fréquentiel électrique pour une ou plusieurs répétitions de cycle de mesures. Pour ceci, elle a besoin d'un ensemble de modules reliés par des sous-composants de conversion du signal. Les différents modules sont (voir Figure 65):

- A. Module de génération associé à un convertisseur numérique analogique DAC (rectangle vert),
- B. Module d'amplification (rectangle rouge),
- C. Module de contraction (rectangle jaune),

- D. Module de conditionnement associé à un filtre passe-bas (rectangle violet),
- E. Module de communication associé à des sous-modules : convertisseur analogique numérique ADC, fenêtrage et DFT (rectangle orange).

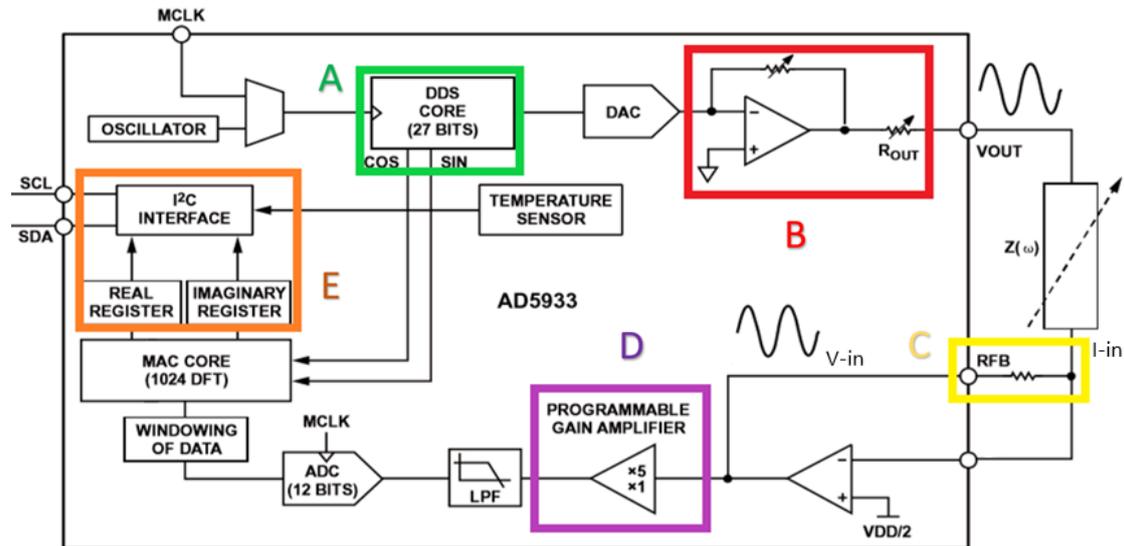


Figure 65 Schéma-bloc de la puce AD5933

### **Module de génération**

A est un générateur de signal en mode DDS (direct digital synthèse) de 27 bits qui permet de générer un signal sinusoïdal numérique avec variation de fréquence pour assurer un balayage fréquentiel (Figure 66). Ce signal est ensuite converti par un DAC (convertisseur numérique-analogique) en un signal analogique noté  $V_{out}$  (tension d'excitation) qui détermine la réponse fréquentielle du matériau mesuré en  $|Z|$  et  $\theta$  (Figure 67). Les paramètres du balayage fréquentiel sont : la fréquence initiale  $f_i$ , le pas de balayage  $f_{step}$  et le nombre de pas  $N_{step}$ . Ces paramètres doivent être définis avant d'effectuer la mesure (via l'interface utilisateur).

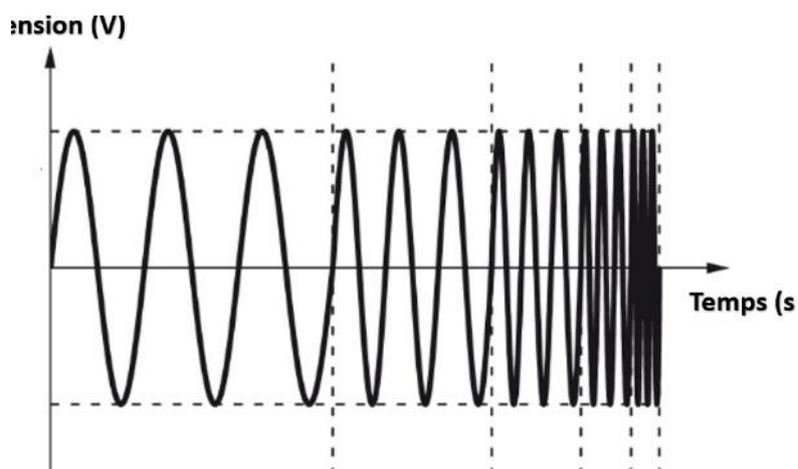


Figure 66 Un exemple de balayage de fréquence

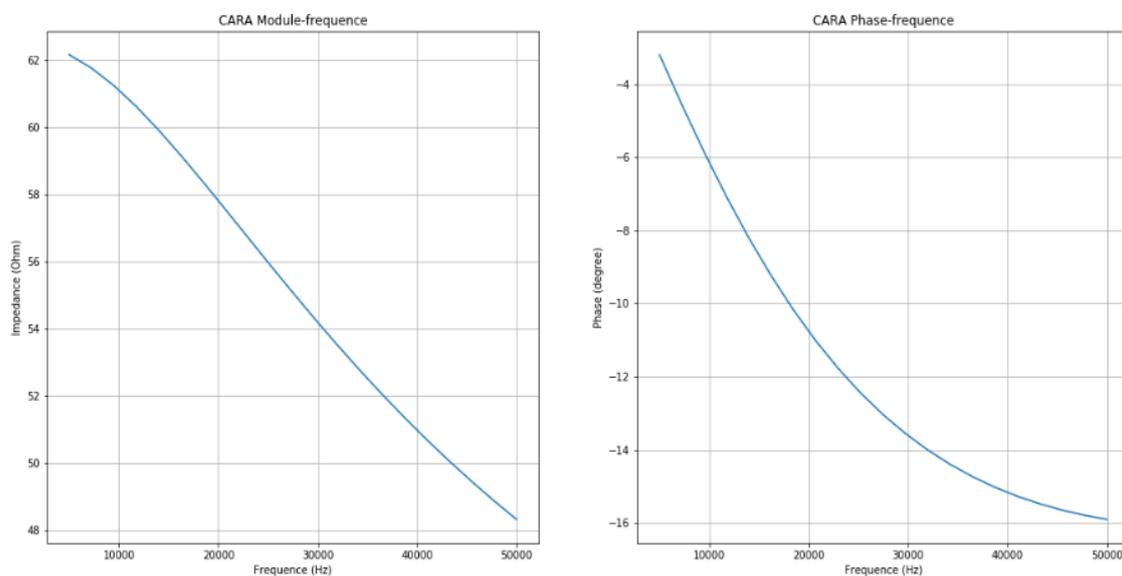


Figure 67 Une réponse fréquentielle type du circuit RC cascade

### ***Module d'amplification***

**B** est un amplificateur de tension pour sélectionner le niveau de la tension d'excitation pic à pic ( $V_{pp}$ ), afin d'adapter les différents ordres de grandeur d'impédance électrique à mesurer afin d'éviter la saturation du signal d'entrée (tension supérieure 5V). Il y a quatre niveaux de  $V_{pp}$  avec leurs propres décalages de composant continu (DC offset ou DC Bias), leur impédance de sortie et leur courant de court-circuit (Tableau 13). La tension de sortie  $V_{out}$  vaut la valeur de  $V_{pp}$  choisie.

TRANSMIT OUTPUT VOLTAGE		
Range 1		
AC Output Excitation Voltage <sup>4</sup>	1.98	V p-p
DC Bias <sup>5</sup>	1.48	V
DC Output Impedance	200	Ω
Short-Circuit Current to Ground at VOUT	±5.8	mA
Range 2		
AC Output Excitation Voltage <sup>4</sup>	0.97	V p-p
DC Bias <sup>5</sup>	0.76	V
DC Output Impedance	2.4	kΩ
Short-Circuit Current to Ground at VOUT	±0.25	mA
Range 3		
AC Output Excitation Voltage <sup>4</sup>	0.383	V p-p
DC Bias <sup>5</sup>	0.31	V
DC Output Impedance	1	kΩ
Short-Circuit Current to Ground at VOUT	±0.20	mA
Range 4		
AC Output Excitation Voltage <sup>4</sup>	0.198	V p-p
DC Bias <sup>5</sup>	0.173	V
DC Output Impedance	600	Ω
Short-Circuit Current to Ground at VOUT	±0.15	mA

Tableau 13 Quatre niveaux de V-pp disponibles pour AD5933 sous 5V d'alimentation

### ***Module de contraction***

**C** (en dehors de la puce) est une résistance de feedback RFB ou résistance de contre-réaction nécessaire pour calculer le module d'impédance  $|Z|$  du matériau mesuré. La puce AD5933 n'est pas dotée de cette résistance, c'est pourquoi le module PmodIA en propose deux. En fait, la tension V-out aux bornes du spécimen du matériau composite (excitée en fréquence) engendre un courant d'intensité I-in (Eq. 17) La RFB permet de transformer ce courant en tension V-in (Eq. 18).

$$I\text{-in} = \left( \frac{V\text{-out}}{Z(w)} \right) \quad \text{Eq. 17}$$

$$V\text{-in} = RFB \times I\text{-in} \quad \text{Eq. 18}$$

### ***Module de conditionnement***

**D** est un amplificateur de tension permettant de conditionner le signal d'entrée V-in. Il a deux gains disponibles (x1 ou x5) pour adapter les différents ordres de grandeur d'impédance électrique à mesurer. En fait, le fonctionnement de la puce AD5933 se compose de deux phases : le calibrage et la mesure.

Dans la phase de calibrage, une résistance nominale de valeur connue R-cal est utilisée

comme la référence (prise sur un circuit connu, un échantillon de matériau, etc.) et est comparée à la RFB choisie. Le résultat de tension V-in de la phase de calibrage est enregistré comme tension V-ref (Eq. 19).

$$V\text{-ref} = RFB \left( \frac{V\text{-out}}{R\text{-cal}} \right) \text{Gain} \quad \text{Eq. 19}$$

Dans la phase de mesure IE,  $|Z|$  du matériau suivi est calculé en tenant compte de la résistance de calibrage (Eq. 20) et  $\theta$  est déterminé par le déphasage entre les tensions V-out et V-in grâce au module de communication.

$$|Z| = R\text{-cal} \left( \frac{V\text{-ref}}{V\text{-in}} \right) \quad \text{Eq. 20}$$

### ***Module de communication***

E est le module de communication I<sup>2</sup>C qui permet de transmettre le signal vers une carte d'acquisition de données. La tension V-in analogique est convertie par un convertisseur analogique/numérique (ADC) en signal numérique, échantillonné par un sous-module de fenêtrage et séparé en une partie réelle et une partie imaginaire par le sous-module de transformation de Fourier Discrète (DFT) avec 10 bits alloués aux calculs (Eq. 21).

$$X(f) = \sum_{n=0}^{1023} (x(n)(\cos(n) - j \sin(n))) \quad \text{Eq. 21}$$

Avec X(f) la tension du signal à la fréquence f, x(n) la série de V-in numérisée pour chaque point d'échantillonnage en sortie de l'ADC, cos(n) et sin(n) les vecteurs échantillonnés à la fréquence f. L'algorithme DFT renvoie les séries de données réelles et imaginaires de V-in, ce qui permet de déduire le module  $|Z|$  (Eq. 20) et l'argument  $\theta$  (Eq. 22).

$$\theta = \arctan \left( \frac{\text{Im}(V\text{-in})}{\text{Re}(V\text{-in})} \right) \quad \text{Eq. 22}$$

Avec Im(V-in) la partie imaginaire de la tension d'entrée et Re(V-in) la partie réelle.

### 2.3.5 Unité de mesure thermique

Le banc est doté de deux thermocouples de Type-K pilotés par le module NI USB-TC01 pour la mesure thermique. Ils permettent de suivre la température en temps réel en cours de cuisson. La qualité de la mesure des thermocouples de la température ambiante jusqu'au palier isotherme de 180°C, pour le cycle de cuisson d'un stratifié T700/M21 (voir Figure 55), est validée à l'aide d'un module PicoLog commercial. Les résultats de mesure de température sont comparés dans le Tableau 14 et le Tableau 15.

	Test n°1	Test n°2	Test n°3	Test n°4	Test n°5	Test n°6
T(°C) Thermo Pico (Channel 3)	24.12	24.36	24.33	24.18	24.39	24.35
T(°C) Thermo Pico (Channel 7)	23.54	24.05	23.83	23.86	24.08	24.48
Thermocouple n°1	23.38	23.69	23.71	23.73	23.84	23.92
Thermocouple n°2	23.62	23.86	23.91	23.94	24.05	24.09

Tableau 14 Mesure de température ambiante, comparaison entre le banc développé (n°1 et n°2) et les mesures du module PicoLog (Channel 3 et Channel 7)

	Test n°1	Test n°2	Test n°3	Test n°4	Test n°5	Test n°6
T(°C) oven	180	180	180	180	180	180
T(°C) Thermo Channel 3	181	180.6	181.3	180.8	181.2	181.2
T(°C) Thermo Channel 7	181	180.8	181.5	181	181.3	181.5
Thermocouple n°1	180.08	179.04	180.11	179.41	179.98	179.93
Thermocouple n°2	179.7	178.56	179.78	179.17	179.75	179.67

Tableau 15 Mesure de température élevée, comparaison entre le banc développé (n°1 et n°2) et les mesures du module PicoLog (Channel 3 et Channel 7)

### 2.3.6 Châssis final

Le système de mesure développé intégré dans son châssis final, de dimension 280x245x80 (en mm), est présenté dans les figures suivantes. La Figure 68 présente plus particulièrement les différents composants électroniques servant aux unités IE et thermique. La Figure 69 présente les connexions des différents canaux IE (BNC) et thermique (connecteurs type K).

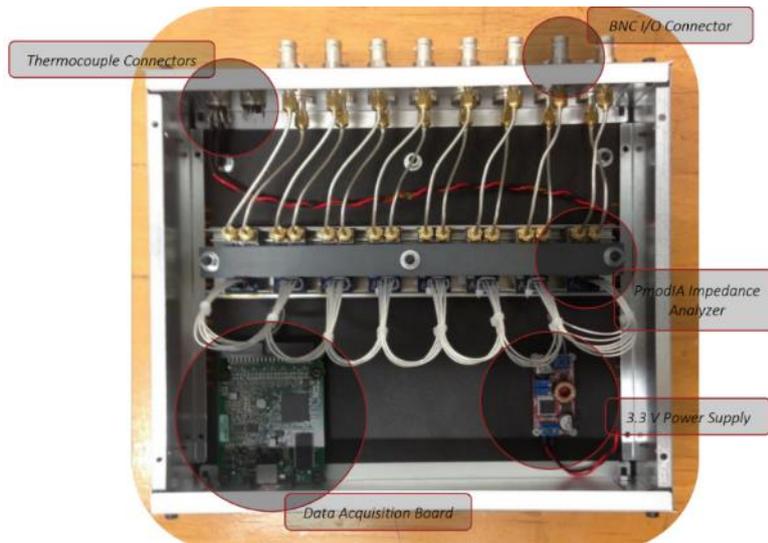


Figure 68 Les composants électroniques du banc



Figure 69 Les canaux des mesures du banc

### 2.3.7 Interface utilisateur

D'après l'architecture du banc, les mesures IE et thermique sont indépendantes mais doivent être pilotées sous une seule interface développée sous LabVIEW (Figure 70).

Le cahier des charges imposé était le suivant :

- Un contrôle général ;
- Une zone dédiée à l'unité de mesure IE :
  - Sélecteur de canaux,

- Paramètres du balayage fréquentiel électrique applicable à chacune ou toutes les voies : intervalle et pas fréquentiel, tension d'excitation, gain, RFB et nombre de répétitions du balayage ;
- Gestion des dossiers de calibrage et de données,
- Graphiques et afficheurs de visualisation des données en temps réel.
- Une zone dédiée à l'unité de mesure thermique :
  - Sélecteur de canaux,
  - Gestion des dossiers de données,
  - Graphiques de visualisation des données en temps réel.

La façade avant finale de l'interface utilisateur développée sous LabVIEW est donnée dans la Figure 70.

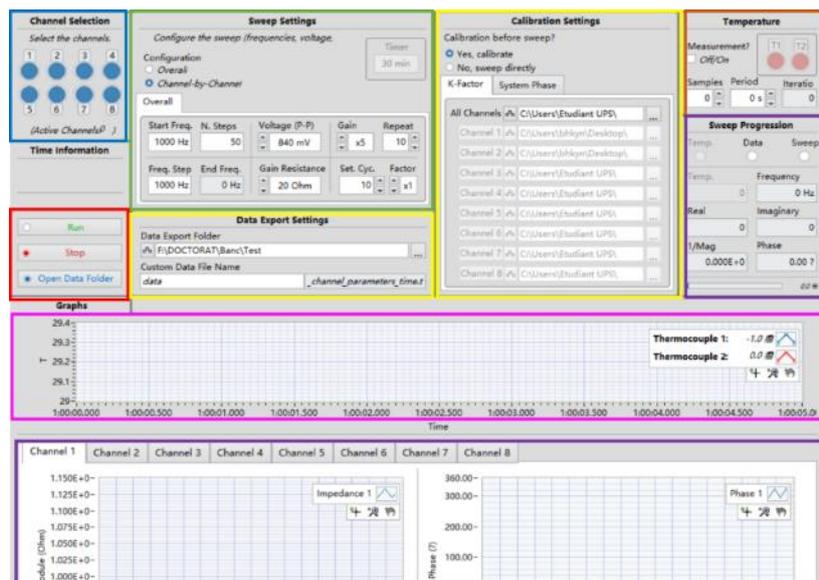


Figure 70 Interface utilisateur du nouveau banc avec le panel de contrôle marche-arrêt (rouge), le sélectionneur de canal IE (bleu), le contrôle des paramètres d'entrées de PmodIA (vert), la gestion des fichiers de calibrage et de données de mesure (jaune), le contrôle de mesure thermique (orange), les moniteurs de visualisation des données IE (violet) et de mesure thermique (magenta)

Via la définition des paramètres dans la zone pour définir le balayage fréquentiel, tous les paramètres de mesure IE de la puce AD5933 peuvent être configurés via les contrôles de l'interface utilisateur (Figure 71).

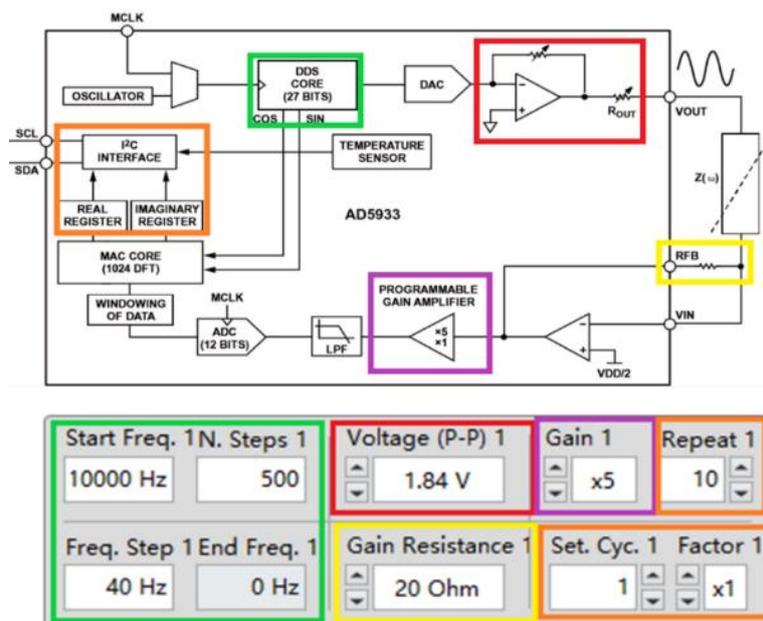


Figure 71 Les contrôles pour les paramètres de mesure IE de la puce AD5933

Il est à préciser que les valeurs de la tension  $V_{pp}$  ont été réajustées. En effet, comme détaillé précédemment, le module IC2 du PmodIA convertit la tension instable fournie par USB (5V) vers une tension stable tension (3,3V) pour alimenter le module PmodIA. Les nouvelles valeurs  $V_{pp}$  sont donc : 1,84 V, 840 mV, 330 mV et 190 mV.

Le détail du développement de la partie contrôle et des schémas blocs LabVIEW n'est pas présenté dans ce mémoire.

### 2.3.8 Limitations du banc et procédures nécessaires à la mesure

#### a) Protocole de calibrage

Selon l'équation Eq. 20, la valeur du module d'impédance  $|Z|$  du matériau mesuré dépend de la résistance de calibrage. La puce AD5933 possède une plage du signal d'entrée  $V_{in}$  de 0 à 5 V avec une résolution de 1,22 mV. Ainsi, la valeur de la résistance de Feedback RFB doit être aussi proche que possible de  $|Z|$  du matériau testé pour éviter que le signal sature ( $>5V$ ) ou qu'il soit trop faible ( $<1,22$  mV). Cependant, le PmodIA n'est doté que de deux RFB sélectionnables (20  $\Omega$  et 100 k $\Omega$ ). Consécutivement, il faut adapter la résistance de calibrage  $R_{cal}$ , la tension d'excitation pic à pic  $V_{pp}$  et le Gain pour garantir que le signal mesuré soit correct.

Après une série de tests empiriques, trois combinaisons de calibrage (entre 5 $\Omega$  et 1M $\Omega$ )

pour différentes gammes de  $|Z|$  ont été identifiées (Tableau 16). Dans le cadre de ce travail, nous visons des mesures IE avec une erreur relative inférieure à 5% en  $|Z|$  et en  $\theta$ . Une validation de gammes a été effectuée par une série d'essais de mesure sur des circuits nominaux et des échantillons CFRP de T700/M21 des travaux précédents (Cf.1.2.10. c). Il n'est pas nécessaire de tester une validation de gamme en  $\theta$  car sa valeur est déterminée par le rapport des parties réelles et imaginaires de  $V_{in}$  (Eq. 22).

Intervalle $ Z $	V-pp (V)	Gain	R-cal ( $\Omega$ )	RFB ( $\Omega$ )
[5 $\Omega$ ; 100 $\Omega$ ]	0,198	X1	22	20
[100 $\Omega$ ; 10 k $\Omega$ ]	1,98	X5	470	20
[10 k $\Omega$ ; 1 M $\Omega$ ]	0,198	X1	100k	100k

Tableau 16 Combinaison des paramètres de calibrage définissant 3 gammes de mesure en  $|Z|$

Au-delà des gammes de mesures de  $|Z|$ , il est également important de définir les gammes accessibles en balayage de fréquence.

### b) Gammes de fréquences accessibles

D'après la fiche technique de la puce AD5933, la gamme de fréquence est [1k Hz ; 100 kHz]. Le PmodIA sans horloge externe possède la même gamme. Cependant, à cause de la génération du signal par une méthode directe numérique (DDS) utilisée par le module de génération de tension, il existe une distorsion du signal à basse fréquence entre 1k à 5k (Figure 72). A partir de 5 kHz, la réponse fréquentielle est stable.

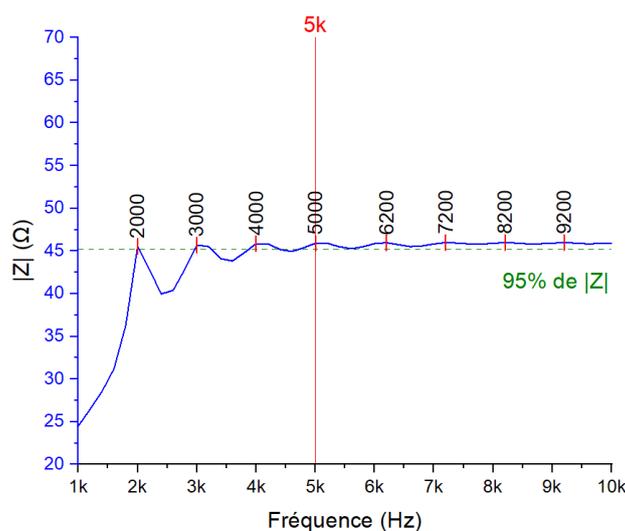


Figure 72 La réponse fréquentielle d'une résistance de 46  $\Omega$  dans l'intervalle [1 kHz ; 10kHz] avec un pas de 0,2 kHz, mesuré par le banc

La borne minimale de balayage sera donc imposée à 5kHz. Nous avons ici, une limitation plus forte que lors de l'utilisation du Hioki (Annexe-ii) dans le banc précédent. Cependant, d'après les mesures réalisées sur des stratifiées T700/M21 à l'aide du Hioki IM3570, il apparaît qu'aux basses fréquence (entre 10 Hz à 5 kHz), la réponse fréquentielle en  $|Z|$  reste quasi-constante et linéaire (Figure 73). Une analyse de de la réponse IE en  $\theta$ , montre une distorsion au-delà de 50kHz.

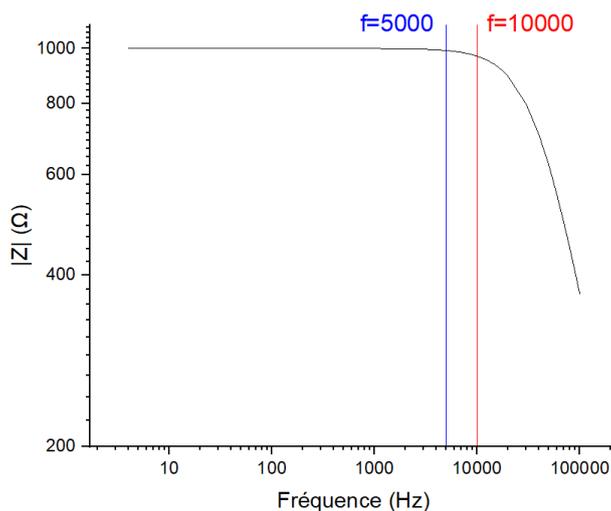


Figure 73 La réponse fréquentielle d'un échantillon de  $[0^{\circ}_8]$  T700/M21 dans l'intervalle [10 Hz ; 100kHz] avec un pas de 100 Hz, mesuré par le Hioki IM3570

En conclusion, l'intervalle [5 kHz ; 50 kHz] est conservée pour répondre aux exigences d'analyse fréquentielle dans le cadre de notre étude. Selon les travaux antérieurs [3, 4, 8, 10, 11], la fréquence optimale était de 10 kHz pour mettre en évidence les propriétés résistives et capacitives des matériaux CFRP T700/M21. Cette valeur est dans l'intervalle défini. Cependant, s'il était nécessaire d'utiliser des fréquences plus basses ou plus haute, il faudrait adapter une horloge externe sur le PmodIA.

### c) Validation des gammes de mesure en $|Z|$

Deux types d'essais pour validation ont été réalisés : sur circuits nominaux (montages de résistances et condensateurs en série et parallèle) et échantillons CFRP T700/M21 déjà connus.

#### *Circuits nominaux*

Une série de tests est effectuée en respectant le protocole de calibrage, dans le but de

valider la gamme de mesure en  $|Z|$  et en  $\theta$  du banc avec une précision adéquate. Les résultats sont comparés avec ceux obtenus à l'aide du HIOKI 3570.

Une carte d'évaluation électronique EVAL-AD5933 EBZ (Figure 74) est également utilisée afin de valider la performance de mesure IE de la puce AD5933. Une interface utilisateur graphique (GUI) est développée par le fournisseur ANALOG DEVICES et est utilisée dans ce cadre.

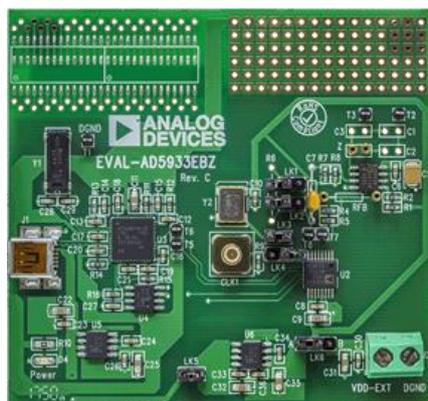


Figure 74 Carte EVAL-AD5933 EBZ

Plusieurs circuits passifs (R, C, RC en parallèle et en cascade) avec des composants étalons ( $\Delta \leq 5\%$ ) ont été réalisés (Figure 75).

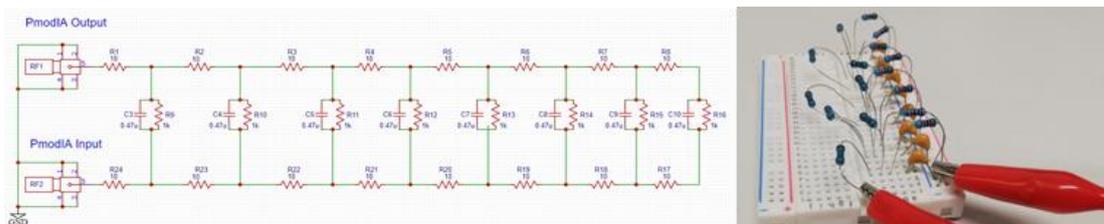


Figure 75 Conception et réalisation d'un circuit RC cascade pour valider la précision de mesure IE en  $|Z|$  et en  $\theta$  du banc avec pince crocodile

La plage d'erreur relative en  $|Z|$  et  $\theta$  a été calculée (Tableau 17). Ces résultats permettent de valider la plage de mesure en  $|Z|$  de  $5\Omega$  à  $1M\Omega$  avec une précision adéquate ( $\leq 5\%$ ). L'impédance supérieure à  $1M\Omega$  n'est pas utile dans notre approche, mais l'impédance inférieure à  $5\Omega$  peut être intéressante pour assurer des mesures électriques longitudinales (dans le sens de fibre pour un stratifié unidirectionnel). Par conséquent, il a été décidé de mettre en œuvre un module électronique permettant de réaliser des mesures dans l'intervalle  $[0.1\Omega ; 5\Omega]$ .

Circuit nominal	Erreur relative en $ Z $	Erreur relative range en $\theta$
Résistance en $0.1\Omega$ - $5\Omega$	10%-90.5%	0%-1%
Résistance en $5\Omega$ - $10k\Omega$	0.4%-5%	0%-1%
Résistance en $10k\Omega$ - $1M\Omega$	0.1%-2.5%	0%-1%
Condensateur en $10nF$ - $470nF$	1%-5%	0%-5%
RC parallèle en $100\Omega$ - $1M\Omega$	0.5%-4.5%	0%-2%
RC cascade en $100\Omega$ - $1M\Omega$	0.5%-4.5%	0%-2%

Tableau 17 Résultats de mesure IE avec le nouveau banc en balayage fréquence de 5kHz à 50kHz

### **CFRP T700/M21**

2 stratifiés  $[0^\circ_8]$  T700/M21 instrumentés pour les mesures dans le sens de l'épaisseur (sens Z) ont été utilisés et identifiés comme Ech1 et Ech2.

2 stratifiés  $[0^\circ_8]$  T700/M21 instrumentés pour les mesures dans le sens transverse ont été utilisés (sens T) et noté comme Ech3 et Ech4.

Les mesures en  $|Z|$  et  $\theta$  avec le nouveau banc ont été réalisées avec un balayage de fréquence dans l'intervalle  $[5 \text{ kHz}, 50 \text{ kHz}]$  sur les 8 voies disponibles. Elles sont comparées avec les résultats obtenus par la carte d'évaluation et le Hioki (le Tableau 18, le Tableau 19 et la Figure 76). Il ressort que l'ensemble des canaux PmodIA donne les mêmes réponses et que la comparaison des mesures avec le Hioki affiche des erreurs relatives inférieures à 5%.

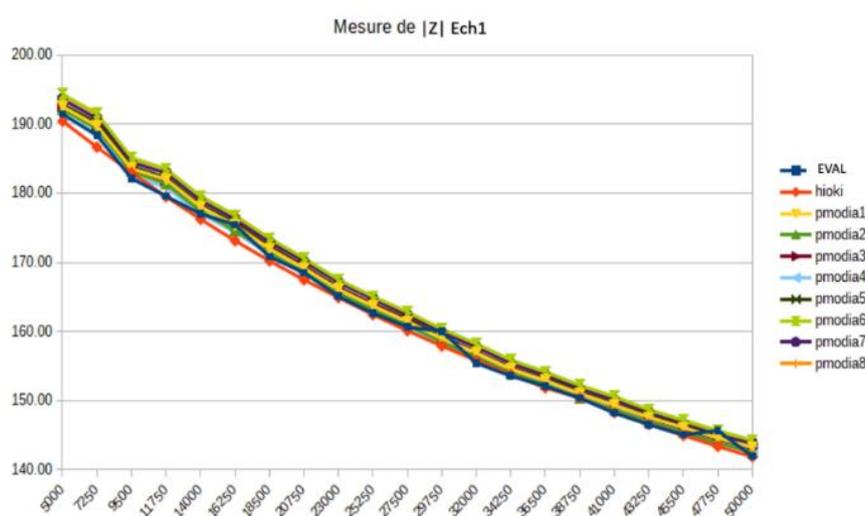


Figure 76 Comparaison des résultats sur un stratifié  $[0^\circ_8]$  Ech1 de mesure en  $|Z|$  entre la carte d'évaluation (EVAL), le banc (8 PmodIA) et Hioki IM3570

$ Z $	PmodIA1	PmodIA2	PmodIA3	PmodIA4	PmodIA5	PmodIA6	PmodIA7	PmodIA8
$ Z _{ech1}$	2.13%	1.92%	2.10%	1.87%	2.71%	3.51%	3.03%	3.60%
$ Z _{ech2}$	2.18%	1.78%	2.20%	1.70%	1.91%	2.74%	2.24%	2.73%
$ Z _{ech3}$	1.65%	1.40%	1.65%	1.06%	1.89%	2.60%	2.21%	2.52%
$ Z _{ech4}$	1.69%	1.38%	1.73%	2.29%	2.14%	1.39%	1.80%	1.45%

Tableau 18 Erreur maximale de la mesure de  $|Z|$  sur 4 échantillons  $[0^\circ_8]$  T700/M21 en comparaison avec les mesures données par le Hioki IM3570

$\theta$	PmodIA1	PmodIA2	PmodIA3	PmodIA4	PmodIA5	PmodIA6	PmodIA7	PmodIA8
$\theta_{ech1}$	1.79%	3.55%	4.04%	4.76%	4.49%	2.13%	2.29%	1.99%
$\theta_{ech2}$	2.10%	1.45%	3.98%	2.21%	2.30%	3.15%	1.21%	3.16%
$\theta_{ech3}$	1.23%	4.08%	1.62%	1.33%	4.17%	4.04%	2.06%	4.24%
$\theta_{ech4}$	2.58%	4.21%	2.97%	2.63%	4.97%	2.30%	3.27%	3.08%

Tableau 19 Erreur maximale de la mesure de  $\theta$  sur 4 échantillons  $[0^\circ_8]$  T700/M21 en comparaison avec les mesures données par le Hioki IM3570

Le Tableau 18 et le Tableau 19 mettent en évidence la qualité des mesures obtenues avec le banc développé dans cette thèse. De plus, soulignons que pour calculer les erreurs dans ces deux tableaux nous avons utilisé des données brutes sans compensation des effets parasites des fils d'amenées de courant. Les erreurs associées seraient donc encore plus basses. Pour des mesures en cours de cuisson, compte tenu des fortes variations et de potentielles faibles valeurs notamment en  $|Z|$ , effectuer une compensation devient incontournable.

#### d) Compensation des éléments parasites du système de mesure

Le dispositif expérimental d'IE contient de nombreux câbles différents (Jumper, SMA, BNC et Hifi) pour transmettre les signaux, et l'impédance électrique parasite qui en résulte est inévitable (Figure 77). L'ensemble de ces éléments sont obtenus à température en circuit ouvert et fermés.

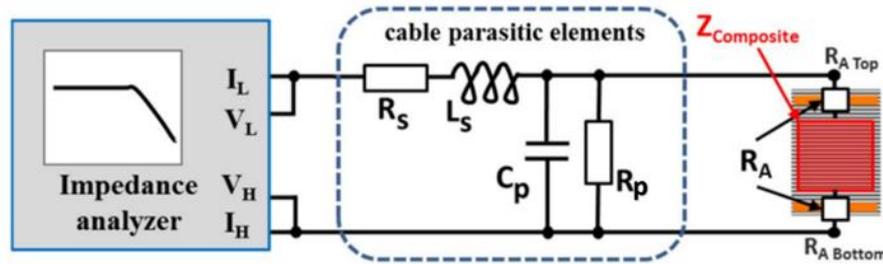


Figure 77 Eléments parasites électroniques de mesure IE

Avec :

$R_s$  : la résistance parasite série (fils de connexion, électrodes, éventuel électrolyte).

$L_s$  : l'inductance parasite série (fils de connexion, éventuel enroulement des électrodes, éventuel électrolyte).

$R_p$  : la résistance parasite parallèle (fuite dans le diélectrique).

$C_p$  : la capacité parasite parallèle (fuite dans le diélectrique).

$R_a$  : la résistance de contact électrode/échantillon.

Les valeurs caractéristiques de ces éléments parasites d'ensemble de câbles sont mesurées à l'aide de Hioki IM3570 et présentés dans le Tableau 20. Il est donc nécessaire d'adapter une loi de compensation de ces éléments parasites. La loi réadapte à chaque changement de configuration filaire.

	$R_s$	$L_s$	$R_p$	$C_p$	$R_a$
<b>Valeur moyenne</b>	150 mΩ	2 mH	1.5 GΩ	40 pF	60 mΩ
<b>Ecart-type</b>	± 14.5 mΩ	± 0.07 mH	± 0.01 GΩ	± 5.6 pF	± 10 mΩ

Tableau 20 Valeurs caractéristiques des éléments parasites électriques de mesure IE

L'impédance électrique totale des éléments parasites  $\bar{Z}_{\text{parasite}}$  est calculée grâce à l'équation Eq. 23.

$$\bar{Z}_{\text{parasite}} = R_s + j\omega L_s + \left( \frac{R_a R_p}{R_a R_p + j\omega C (R_a + R_p)} \right) \quad \text{Eq. 23}$$

Une loi de correction est donc intégrée dans l'interface utilisateur pour compenser ces éléments parasites. Une étude lors d'un cycle de cuisson ne laisse pas apparaître d'effets complémentaires liés à la température. Cependant, pour les valeurs inférieures à la valeur de saturation du PmodIA ( $5 \Omega$ ), cette compensation n'est plus suffisante, il est nécessaire de réaliser une mesure 4 points comme nous allons à présent exposer.

### **2.3.9 La configuration de mesure 4 points**

#### **a) Conception d'un AFE**

Selon la fiche technique de la puce AD5933, la plage de mesure en  $|Z|$  est dans l'intervalle [ $1 \text{ K}\Omega$  ;  $10 \text{ M}\Omega$ ] avec une sensibilité de  $10\Omega/\text{mV}$ . Cette plage peut être modifiée en fonction des besoins réels de mesure, par un ensemble d'amplificateurs opérationnels (comme l'ensemble IC2 du PmodIA, voir Figure 64) montés à la sortie du signal. Comme mentionné précédemment, la plage en  $|Z|$  du PmodIA (mesure 2 points) est dans l'intervalle [ $5 \Omega$  ;  $1 \text{ M}\Omega$ ] avec une sensibilité de  $1\Omega/\text{mV}$ . Ceci permet de couvrir le même ordre de grandeur de variation de mesures IE que celui utilisé lors des travaux précédents [3, 4, 8, 10, 11] pour assurer le suivi de cuisson des CFRP.

Cependant, le seuil de saturation de  $5 \Omega$  et les éléments parasites de l'ordre de  $4,7 \Omega$ , ne permettent de réaliser des mesures en-dessous de cette valeur. Ainsi, pour suivre l'évolution du module d'impédance longitudinale  $|Z|_L$  sur des échantillons de CFRP (valeur de quelques Ohm voire quelques centaines de milli-Ohm), il est nécessaire d'adapter la mesure aux bornes du PmodIA. Il est choisi d'augmenter la plage de mesure en  $|Z|$  dans l'intervalle [ $0,1 \Omega$  ;  $5\Omega$ ] avec une bonne sensibilité. Dans ce contexte, la configuration de mesure à quatre points est une bonne solution pour éliminer l'effet parasite en séparant l'étage d'excitation (source de courant) de l'étage de réception (amplificateur d'instrument - INA) du signal (Figure 78). A cette fin, il a été décidé de développer un circuit appelé Analog Front End (AFE) qui sera connecté aux bornes du PmodIA.

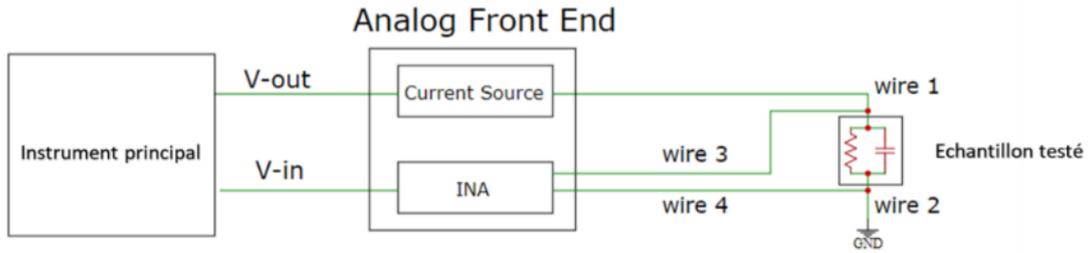


Figure 78 Schéma de principe d'AFE

De nombreux chercheurs ont déjà conçu des AFE permettant d'optimiser les performances de la puce AD5933 pour les applications dans les divers domaines [99-101]. Cependant, nous n'avons pas réussi à trouver de données issues de la littérature sur la réalisation d'un AFE adapté au module PmodIA.

La détermination des composants de l'AFE (Annexe-iii) a été réalisée à l'aide d'un logiciel de conception électronique et la structuration du circuit d'intégration a été réalisée à l'aide d'un logiciel de conception de circuit pour fabrication chez un fournisseur de circuits imprimés.

#### b) **Choix des composants et la loi de correction d'AFE**

Les composants actifs (amplificateurs opérationnels - AOP) sont sélectionnés en fonction de leur performance (bande passante, rapport signal/bruit - SNR, etc.) et de leurs prix (vision low-cost de notre étude).

Schématiquement, le module principal d'un AFE est une source de courant Howland permettant de convertir la tension d'excitation  $U_{IN+} - U_{IN-}$  (V-out pour le PmodIA) en un courant  $I_L$  (I-in pour le PmodIA) indépendant de la charge  $Z_L$  (l'impédance du matériau mesuré plus l'ensemble des éléments parasites dans notre cas). Le montage classique d'une source de courant Howland est présenté ci-dessous :

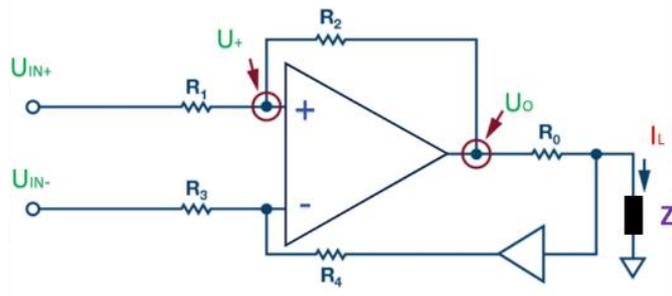


Figure 79 Schéma-bloc d'un montage de la source de courant Howland

Avec  $R_{1-4}$  les résistances d'équilibre,  $R_0$  la résistance de sortie et  $Z_L$  la charge.

Bien que  $R_2$  puisse réduire la précision de mesure du circuit, l'insertion d'un suiveur, entre  $R_1$  et  $R_4$ , dans le chemin de contre-réaction pour former une source de courant Howland peut éliminer ce problème (Figure 79). La totalité du courant de sortie passe par  $R_0$  vers la borne  $U_{IN-}$  (borne d'entrée du PmodIA). Le courant de sortie  $I_L$  est calculé à l'aide de l'équation ci-dessous (Eq. 24) :

$$I_L R_0 \left[ 1 + \frac{R_1}{R_2} + Z_L \left( 1 - \frac{R_1 R_4}{R_2 R_3} \right) \right] = U_{in+} \left( \frac{R_4}{R_3} + 1 \right) - U_{in-} \left( \frac{R_4}{R_3} \right) \left( \frac{R_1}{R_2} + 1 \right) \quad \text{Eq. 24}$$

Si  $R_1/R_2 = R_3/R_4 = k$ , coefficient d'amortissement du signal, alors le courant de sortie  $I_L$  est indépendant de la charge  $Z_L$  et il est contrôlé uniquement par la tension de sortie  $U_{IN+} - U_{IN-}$  (V-out pour le PmodIA) (Eq. 25). Ensuite,  $I_L$  (I-in pour le PmodIA) peut être converti en une tension par un amplificateur d'instrument, dans l'intervalle [0V ; 5V] non-saturée et affranchie des éléments parasites (V-in pour le PmodIA).

Il est ainsi donc possible de séparer la tension d'excitation du PmodIA (V-out) de la tension de lecture (V-in) à ces mêmes bornes par transformation à l'aide d'un AFE. De fait, des mesures 4 points peuvent être réalisées pour des valeurs inférieures à 5  $\Omega$ .

$$I_L = \frac{U_{IN+} - U_{IN-}}{k R_0} \quad \text{Eq. 25}$$

### c) AFE : Produit fini

Le circuit pour impression sur plaque PCB est conçu à l'aide du logiciel EasyEDA. Le prototype AFE est réalisé par le fousseur NextPCB (à Shenzhen, Chine) avec un coût

de 90 US dollars (Figure 80). Le détail du schéma-bloc du circuit et le layout du PCB ne sont pas présentés dans cette thèse.



Figure 80 Module AFE

La connexion entre le PmodIA et l'AFE est présentée dans la Figure 81. Pour le besoin de cette figure, nous avons utilisé un PmodIA externe au banc pour faciliter la visibilité de cette connexion.

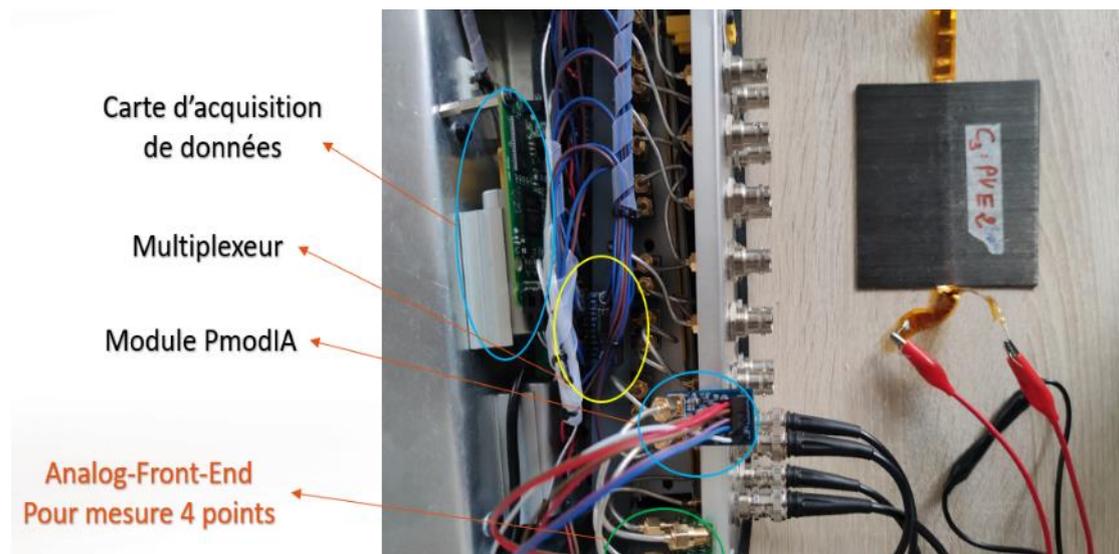


Figure 81 Connexion entre PmodIA et AFE

#### d) Coût

Concevoir un dispositif de mesure multivoies et à faible coût était dans les objectifs de cette partie du travail de thèse. L'ensemble du nouveau banc (basé sur 8 PmodIA et 2 thermocouples K et l'ensemble des composants ad-hoc) représente environ 15% du coût du premier banc utilisé (basé sur le Hioki IM3570 et ses composants ad-hoc).

## 2.4 Conclusion

Un nouveau banc « fait maison » a été conçu et produit développé au sein du laboratoire ICA en tenant compte de spécifications telles que la portabilité, le faible coût, le taux d'échantillonnage, la précision et les configurations à 2 et 4 points. Les mesures couvrent des gammes de fréquences allant de 5kHz à 50kHz et des impédances allant de  $0,1 \Omega$  à  $1 M\Omega$ . Un circuit d'extension AFE a été conçu et connecté au PmodIA pour la configuration en mesure à 4 points. Huit canaux basés sur le PmodIA et 2 canaux basés sur le thermocouple de type K permettent au banc d'effectuer des mesures multiphysiques (IE + température) de façon synchrone.

Les mesures obtenues à la fois sur des circuits nominaux (étalons) et des stratifiés T700/M21 cuits ont permis de montrer la faisabilité de mesures IE en  $|Z|$  et  $\theta$ . Ces valeurs sont quasi-identiques à celles obtenues à l'aide du Hioki IM3570. Une étude comparative nous a permis de montrer que sous compensation les écarts entre les mesures de notre banc et celles produites par le Hioki IM3570 s'échelonnaient entre 0 à 5% ce qui est de très bon niveau.

Dans le chapitre suivant, le nouveau banc sera utilisé sur une série d'échantillons de stratifiés NC66/NA1808 et de résine non-renforcée NA1808 afin d'assurer le suivi de cuisson en étuve (avec compensation des éléments parasites). Une comparaison avec le Hioki IM3570 sera effectuée pour validation supplémentaire de la faisabilité des mesures IE avec ce nouveau banc. Les variations de mesure en  $|Z|$  et  $\theta$  seront comparées à celles des mesures d'analyse thermiques pour retrouver les points critiques de cuisson.

## **Chapter 3 Résultats de suivi de cuisson par impédancemétrie électrique**

### 3.1 Introduction

Ce chapitre présente les résultats de caractérisation du matériau de l'étude : le préimprégné NC66/NA1808 et sa résine NA1808 et ceux du suivi de cuisson avec le banc développé dans ces travaux de thèse.

Dans une première partie, les résultats des analyses thermiques et rhéologiques conventionnelles sur différents échantillons de préimprégné NC66/NA1808 et de résine NA1808 non-renforcée seront discutés. A partir des résultats en DSC, les enthalpies totales de réaction de polymérisation  $H_{tot}$ , à la fin du cycle de cuisson spécifique  $H_{cycle}$  et résiduelle  $H_{res}$  seront mesurées afin d'appréhender les grandeurs nécessaires à la compréhension du suivi du cycle de cuisson. Tous les points liés aux changements de phase et dits 'points critiques' (PL, PG, PV et PF) seront identifiés par la même méthodologie que celle utilisée dans les précédents travaux [7, 10], et discutés aux niveaux du temps et du degré d'avancement  $\alpha$ . L'effet de la présence des fibres de carbone dans la polymérisation du composite sera également discuté.

Dans une deuxième partie, le suivi de cuisson de différents échantillons de composite (y compris monopli, stratifiés UD de 8 plis et 16 plis) et de résine non-renforcée sera réalisé à l'aide du banc développé dans cette étude, afin de corréler les résultats IE obtenus avec ceux des analyses thermiques et rhéologiques. Cette étape nous permettra de vérifier si la tendance des signatures électriques de polymérisation en  $|Z|$  et  $\theta$  du CFRP T700/M21 obtenue dans les précédents travaux [3-6, 8-11, 15] est retrouvée sur le matériau de l'étude (NC66/NA1808) en utilisant le nouveau banc. Cette étape permettra de valider une cohérence de signature, indépendante du banc de mesure, pour les CFRP considérés. Enfin, une étude d'un cycle de cuisson avec défaut (rupture de vide et rupture de cycle en temporel) sera également proposée afin de montrer la faisabilité de sa détection avec la méthode IE proposée et le nouveau banc. De plus, les résultats des mesures post-cuisson seront discutés afin de démontrer la possibilité d'appliquer la méthode IE au SHM.

### 3.2 Caractérisation du matériau de l'étude

Dans le cadre des travaux préliminaires [8-11, 15], des stratifiés en CFRP (fabriqués à partir de préimprégnés T700/M21) ont été suivis in situ et en temps réel, pendant leur polymérisation en étuve ou en autoclave, à l'aide d'un banc spécifique comprenant un analyseur d'impédance Hioki IM3570. Les échantillons ont été continuellement excités par un signal électrique en balayage de fréquence pendant la cuisson. Les quatre configurations du positionnement des électrodes ont été appliquées: L (longitudinale), T (transversale), DL (diagonale dans l'épaisseur en longitudinale) et DT (diagonale dans l'épaisseur en transversale) (Figure 82). Les comportements électriques du matériau ont été observés à l'aide de fonctions temporelles telles que  $|Z|=f(t)$  et  $\theta=f(t)$ . De plus, leurs dérivées premières ( $|Z|'$  et  $\theta'$ ) et secondes ( $|Z|''$  et  $\theta''$ ) ont été calculées pour identifier les points de polymérisation critiques dont les quatre principaux : PL, PG, PV et PF (Tableau 21). Les signatures électriques de polymérisation du stratifié T700/M21 en  $|Z|$  et  $\theta$  dans la direction transversale infra-ply sont présentées dans la Figure 83. Les points critiques ont été corrélés avec les résultats des analyses thermiques et rhéologiques conventionnelles [3, 15].

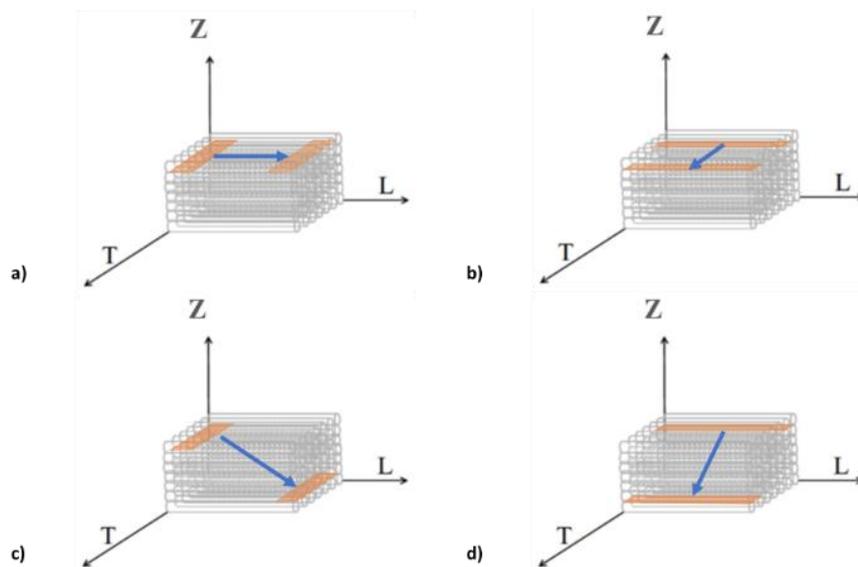


Figure 82 Schématisation 3D des différentes configurations d'électrodes (orange) avec le flux de courant (bleu) : L (a), T (b), DL (c) et DT (d)

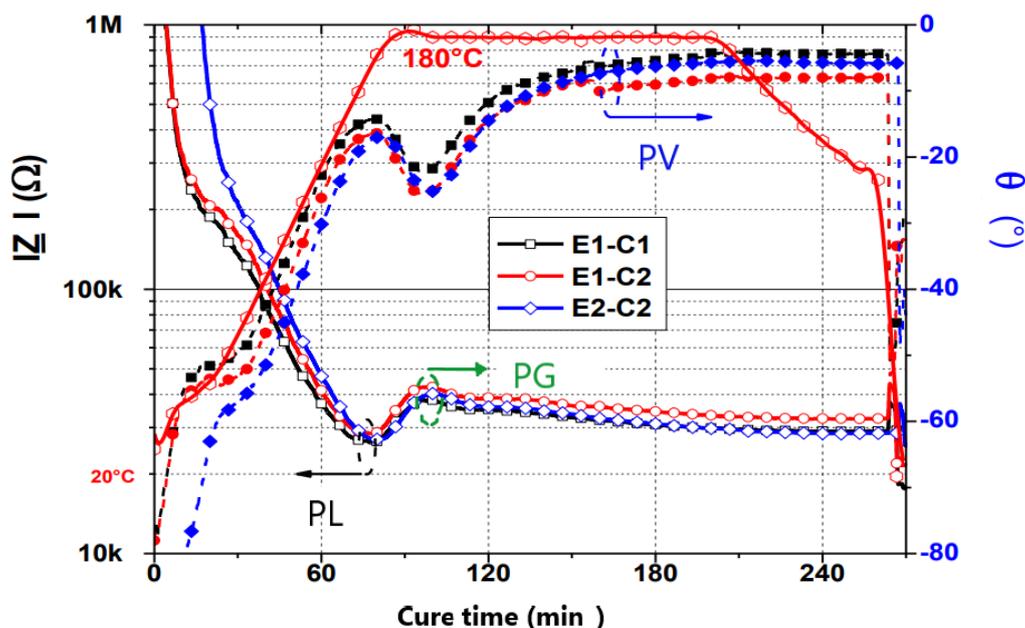


Figure 83 Mesures de  $|Z|$  et  $\theta$  pour 3 échantillons T700/M21 ( $E_i$ ,  $i = 1$  à 3) à 10 kHz obtenues à l'aide de Hioki IM3570, pour deux cycles de cuisson différents (C1 et C2) [10]

Points critiques	$ Z $	$\theta$
PL	Minimum local	Maximum local
PG	Maximum local	Minimum local
PV		Maximum local
PF		Maximum local

Tableau 21 Points critiques corrélés à la mesure IE sur les échantillons T700/M21

De plus, l'étude préliminaire a démontré la faisabilité de la méthodologie IE développée non seulement pour le suivi de l'avancement de la polymérisation  $\alpha$  mais également pour la détection des défauts de cuisson. D'après les signatures électriques du composite T700/M21, un défaut de cuisson tel qu'une fuite de vide a été clairement mis en évidence par des comportements anormaux en  $|Z|$  et  $\theta$  (voir Figure 50) permettant de définir des signatures types.

Dans le cadre de cette étude, nous décidons de suivre la polymérisation d'un nouveau matériau composite réalisé à partir de préimprégnés NC66/NA1808. Le suivi de la polymérisation via des signatures en  $|Z|$  et  $\theta$  en IE se fait à l'aide du nouveau banc décrit au chapitre 2. L'objectif principal ici est de montrer que l'approche préliminaire n'est ni matériau-dépendant, ni instrument-dépendant, en ce qui concerne la tendance globale des signatures obtenues d'un CFRP à l'autre. De plus, la résine NA1808 non-renforcée

sera analysée de la même façon et les résultats comparés avec ceux des composites.

La précision des dérivées de  $|Z|$  et  $\theta$  par rapport au temps dépend des différents temps caractéristiques du banc : le temps d'acquisition des données ( $t_a$ ) du PmodIA et le temps de commutation ( $t_s$ ) du multiplexeur.  $t_a$  dépend de la vitesse de traitement du signal de l'analyseur d'impédance.  $t_s$  dépend du protocole de communication I<sup>2</sup>C qui ne consacre que quelques microsecondes à la transmission des données.

Pour définir ces deux temps, le matériau utilisé est un stratifié cuit composé de 8 plis UD T700/M21 [0°<sub>8</sub>] avec deux électrodes en cuivre intégrées pour assurer la mesure transversale. Un balayage de fréquence de 5 kHz à 50 kHz avec 10 pas linéaire de balayage (chaque pas d'incrément de la fréquence de 5 kHz) est mis en œuvre pour assurer la mesure de  $t_a$  et  $t_s$ . Chaque étape est répétée 100 fois pour obtenir la valeur moyenne et assurer la précision de la mesure. Cette répétition de 100 a été choisie afin de ne pas trop augmenter  $t_a$ . Le Hioki IM3570 est utilisé pour la comparaison avec la même configuration de balayage de fréquence. Les résultats sont donnés dans le Tableau 22. Nous gardons cette configuration pour la suite de ce travail.

Temps caractéristique	Nouveau banc	Hioki IM3570
Temps d'acquisition des données $t_a$	1.23s	Plus d'une minute
Temps de commutation $t_s$	< 0,1ms	>100ms

Tableau 22 Temps d'acquisition des données et temps de commutation du banc et de Hioki

### 3.2.1 Analyse thermique et identification des points critiques

Dans les précédents travaux, parmi l'ensemble des points critiques physico-chimiques retenus, les points critiques principaux PL, PG, PV et PF de la résine M21 ont été définis à partir des résultats d'essai en DSC ( $\alpha$ ) et sur rhéomètre à plateaux parallèles ( $\mu$ ,  $G'$ ,  $G''$  et  $\tan \delta$ ). L'obtention de ces points est décrite ci-dessous (voir Figure 55).

- PL peut être défini par :
  - les points minimaux de la viscosité  $\mu(t)$  ou  $G''(t)$ ,
  - le point de départ du degré d'avancement de la réaction  $\alpha(t)$  situé à l'intersection de la première et de la deuxième asymptote (voir Figure 84),

- la première valeur maximale de la dérivée seconde du degré d'avancement de la réaction par rapport au temps  $\alpha''(t)$  (Cf. Figure 55),
- PG peut être défini par :
  - le point d'inflexion majeur après le PL de la viscosité  $\mu(t)$  et du degré d'avancement de la réaction  $\alpha(t)$
  - la valeur de  $\tan\delta(t) = 1$  (la première intersection de  $G'(t)$  et de  $G''(t)$ ),
  - la première valeur minimale de la dérivée seconde du degré d'avancement de la réaction par rapport au temps  $\alpha''(t)$ .
- PF peut être défini par :
  - la fin de la réticulation est liée aux points maximaux finaux de la viscosité  $\mu(t)$  et du degré d'avancement de la réaction  $\alpha(t)$  (tendant vers le maximum),
  - une valeur constante du module de cisaillement de conservation  $G'(t)$ , du module de cisaillement de perte  $G''(t)$  et de  $\tan\delta(t)$ .
- PV peut être défini par :
  - la transition entre la fin de la gélification (point d'intersection des deuxième et troisième asymptotes (Figure 84) et la fin de la réticulation correspondant à PF,
  - un maximum local du module de cisaillement de perte  $G''(t)$  et du  $\tan\delta(t)$  après la fin de la gélification,
  - $\alpha(t)$  tendant entre 0,9 et 0,95 [12, 42, 43, 102].

Comme indiqué dans la Figure 55, deux échelles de temps sont utilisées pour rendre compte de ces points. La première échelle correspond au temps de polymérisation, tandis que la seconde prend le début du palier isotherme comme origine de temps. Par exemple, cela signifie que PL se produit 67 minutes après le début du cycle de polymérisation ou apparaît à 6 minutes avant le début du palier de polymérisation à 180°C donc  $t_{PL} = -6$  min. Il faut préciser ici, que la polymérisation n'est pas complète (en raison du cycle de polymérisation utilisé), induisant un  $\alpha$  à PV d'environ 0,86 et à PF d'environ 0,95.

Il faut souligner que la méthode d'identification des points critiques à partir de degré

d'avancement  $\alpha(t)$  dépend du matériau. Des matériaux différents peuvent avoir des valeurs de  $\alpha$  différentes au même point critique, et nous ne pouvons que proposer les bornes supérieures et inférieures en  $\alpha$  pour chaque point. Dans ce cas, les méthodes d'asymptote et de dérivée peuvent être utilisées pour identifier les points critiques (Figure 84 et Tableau 23).

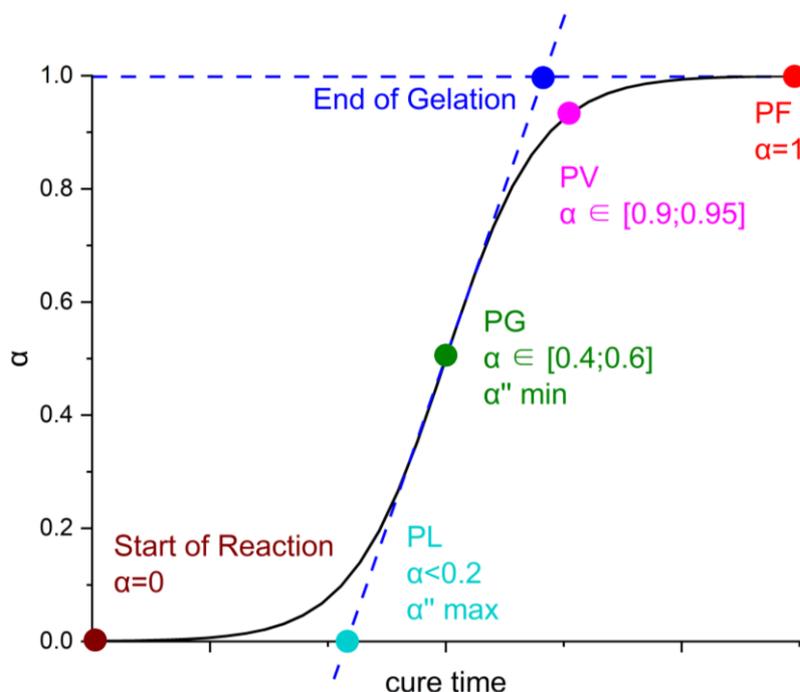


Figure 84 Identification des points caractéristiques PL, PG, PV et PF de la polymérisation de résine à l'aide de la courbe  $\alpha(t)$  et ses dérivées pour une polymérisation complète

Points critiques	$\alpha$	$\alpha''$
PL	Intersection de la 1 <sup>e</sup> et de la 2 <sup>e</sup> asymptotes	Maximum local
PG	Point d'inflexion principal	Minimum local
PV		Point de la transition du régime dynamique au régime amortissant
PF	Point de stationnement final	Point de la transition du régime amortissant au régime stationnaire

Tableau 23 Identification des points critiques principaux par la méthode des asymptotes et de la dérivée seconde de  $\alpha$

Dans le cadre de cette thèse, nous utilisons la même méthodologie afin de déterminer les points critiques du composite NC66/NA1808 et de sa résine NA1808 non-renforcée.

### 3.2.2 Caractérisation du composite NC66/NA1808 et sa résine non-renforcée

Les matériaux de l'étude ont été caractérisés à l'aide de plusieurs méthodes d'analyse thermique conventionnelles : Vanhographe, TGA, Rhéomètre à plateaux parallèles et DSC. Les points critiques principaux PL, PG, PV et PF du composite NC66/NA1808 et de sa résine non-renforcée sont identifiés par différentes méthodes.

#### 3.2.2.1 Analyse par Vanhographe, rhéomètre à plateaux parallèles et TGA

Tout d'abord, les températures de gélification de la résine NA1808 non-renforcée peuvent être identifiées à l'aide d'un Vanhographe. Le Vanhographe [103] illustré à la Figure 85 impose une contrainte de cisaillement en régime sinusoïdale à un stratifié  $[0,90]_{4s}$  de NC66/NA1808 qui a été pré-compacté et placé entre le mors de sollicitation et le mors de mesure.

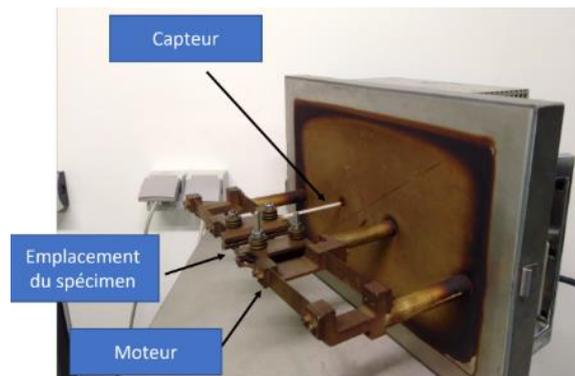


Figure 85 Système de mesure mécanique du Vanhographe

Une rampe ou un palier de température est appliqué sur l'échantillon. Ces deux conditions correspondent respectivement à un essai dynamique ou isotherme. La rigidité  $K$  de l'échantillon est mesurée par rapport à une plaque de référence en aluminium 1020 utilisée pour calibrer l'essai. Une valeur de rigidité relative comprise entre 0% et 100% peut être obtenue en cours de l'essai et en temps réel. La variation de la rigidité  $K$  de l'échantillon au cours de l'essai peut être corrélée à la variation de la viscosité  $\mu$ , ce qui permet de déterminer les temps de gélification avec différentes températures puis d'identifier certains points critiques. Cinq paliers isothermes ont été testés : de 100 à 140°C par pas de 10°C.

Les résultats obtenus d'après un essai Vanhographe sont analysés à l'aide de lignes

asymptotiques et tangentes comme schématisé dans la Figure 86 (exemple d'un palier de 110°C).

1. Ligne tangente à la valeur de rigidité minimale (la ligne de base) ;
2. Ligne tangente à la valeur de rigidité maximale indiquant PF ;
3. Ligne tangente à la courbe de rigidité indiquant le point d'inflexion ;
4. Le temps de rigidité minimal.

PL est identifié à l'intersection de ligne 1 et 4, PG à l'intersection de ligne 1 et 3 et PF à l'intersection de ligne 2 et la courbe de variation de la rigidité (Tableau 24).

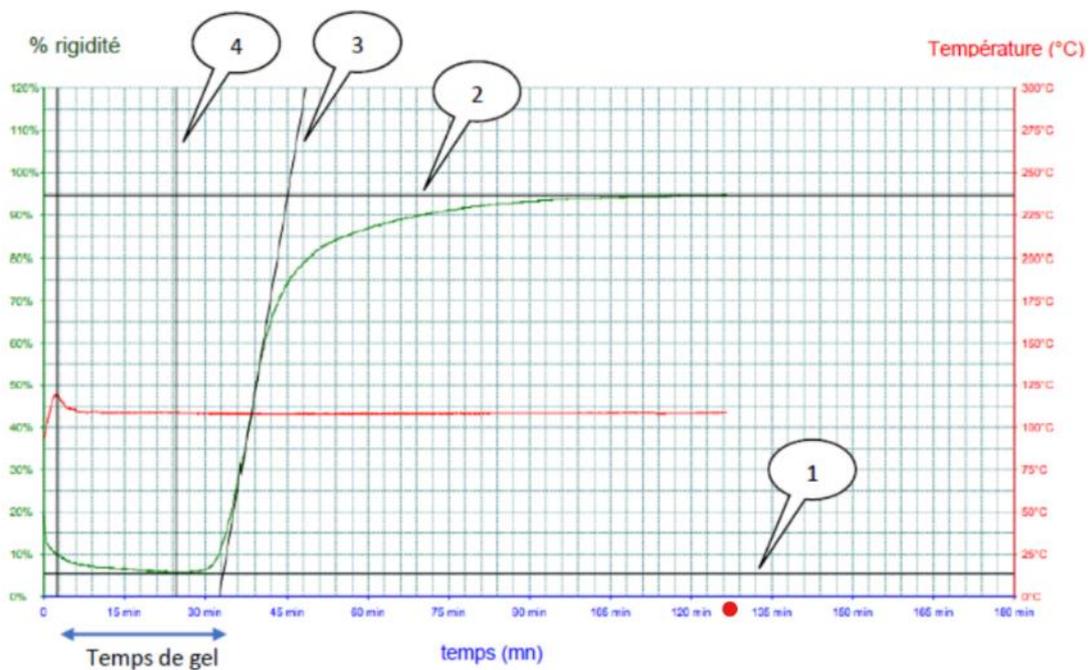


Figure 86 Résultats de Vanhographie d'un stratifié NC66/NA1808 au palier de 110°C

La courbe de gélification du stratifié donnant l'interpolation des PG pour les 5 températures isothermes est présentée dans la Figure 87.

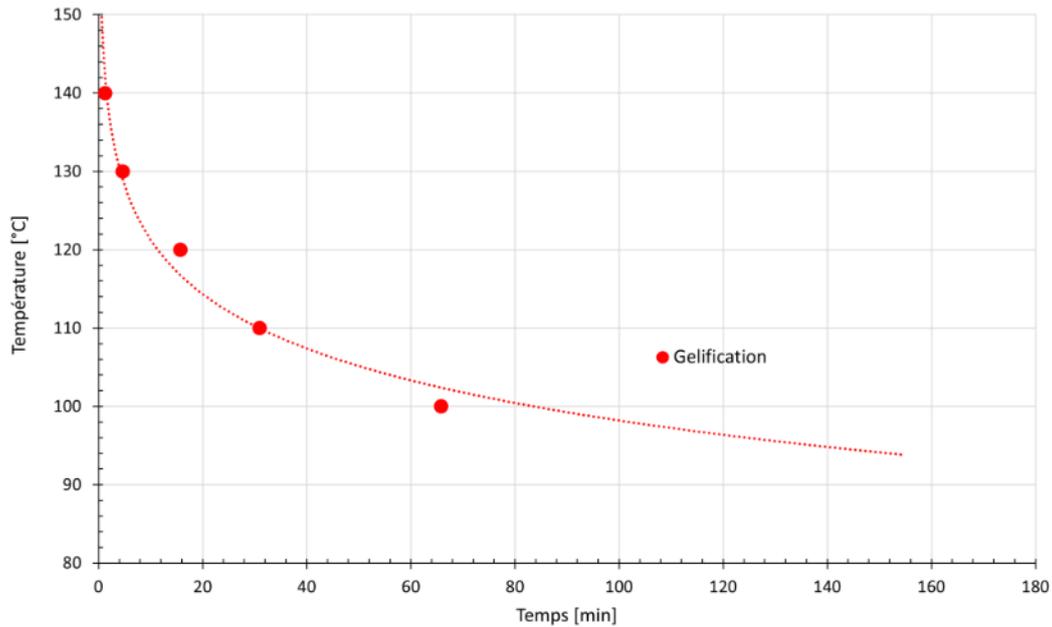


Figure 87 Courbe de gélification du stratifié  $[0,90]_{4s}$  obtenue à l'aide de Vanhographe

Pour le palier isotherme à  $120^{\circ}\text{C}$ , les valeurs de PL, PG et PF sont données dans le Tableau 24. Il est important de mentionner ici que, comme l'essai est réalisé en palier isotherme, les valeurs obtenues sont décalées dans le temps par rapport à un cycle de cuisson classique avec rampe puis palier. Ces valeurs nous donnent donc une borne maximale informative.

Points critiques de NC66/NA1808	Rigidité relative K	Temps d'essai Vanhographe	Temps isotherme équivalent
<b>PL</b>	Minimum local	34 min	9 min
<b>PG</b>	Point d'inflexion principal	41 min	16 min
<b>PF</b>	Point de stationnement final	105 min	80 min

Tableau 24 Identification des points critiques principaux la variation de la rigidité

Nous avons également déterminé PG à l'aide d'un rhéomètre à plateaux parallèles (HAAKE MARS Rheometer II) en condition isotherme à  $120^{\circ}\text{C}$  Figure 88. Le PG est estimé à la croisée de  $G'$  et  $G''$  et apparaît 16 min après le début d'essai.

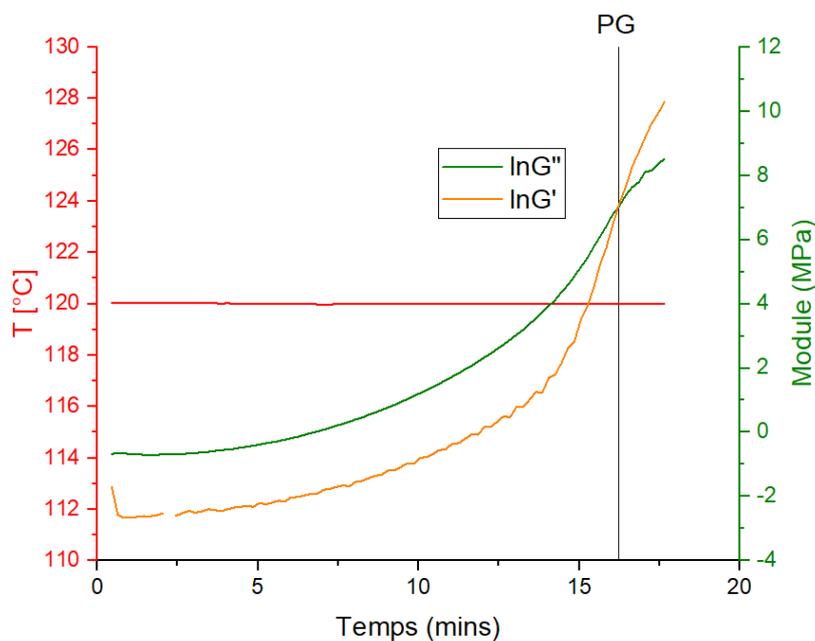


Figure 88 PG déterminé à l'aide d'un rhéomètre à plateaux parallèles sur la résine non-renforcée NA1808

Les températures de dégradation de la résine sont généralement déterminées par une analyse thermogravimétrique (TGA). La résine NA1808 non-renforcée est analysée à l'aide de l'appareil ATG TA instrument Q100 au sein de l'ICA (Figure 89).



Figure 89 ATG TA instrument Q100

Un diagramme TTT non-complet de la résine NA1808 non-renforcée a été élaboré à l'aide de mesures complémentaires en TGA (Figure 90). Par exemple, si la rampe de

température est 10°C /min, la température de dégradation de NA1808 est estimée à 370°C. Les températures de gélification ( $T_g$ ) et de dégradation ( $T_d$ ) pour différentes rampes en température sont déterminées (Tableau 25).

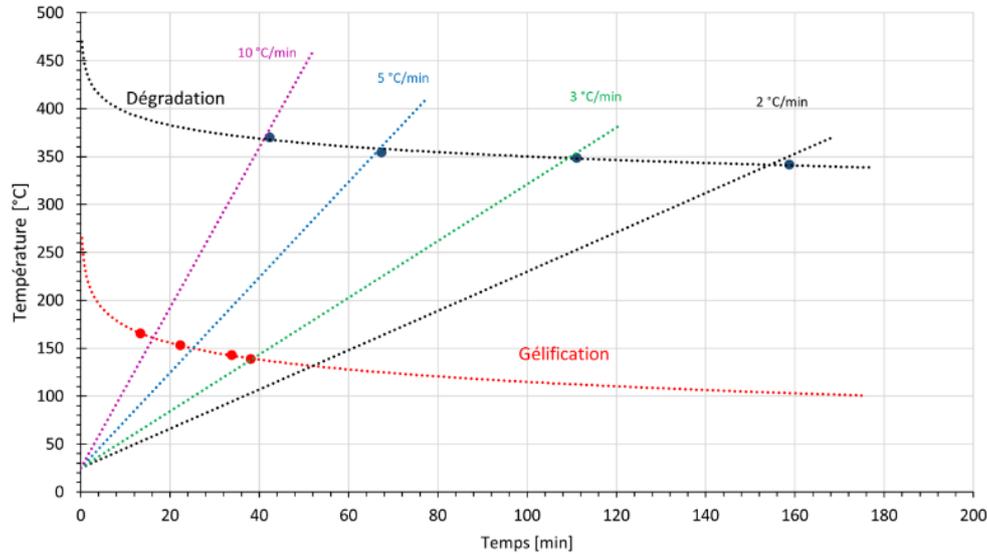


Figure 90 Courbes de gélification et de dégradation de la résine 1808NA non-renforcée en dynamique à l'aide de TGA

Rampe de température (°C/min)	$T_g$ (°C)	$T_d$ (°C)	Temps de gélification (min)	Temps de dégradation (min)
2	130	342	52	155
3	140	350	38	110
5	150	360	25	67
10	170	370	16	41

Tableau 25 Identification des températures  $T_g$  et  $T_d$  à l'aide de TGA

La rampe de 2°C/min est utilisée dans le cycle de cuisson de notre préimprégné. Ainsi compte tenu des résultats obtenus avec le Vanhographe, le rhéomètre à plateaux parallèles et la TGA, PG sera proche du point isotherme (compris entre 0 et 16 minutes après le temps isotherme) lors de la cuisson de stratifiés NC66/NA1808.

### 3.2.2.2 Analyse par DSC

Des échantillons de résine NA1808 non-renforcée (masse approximative : 7 mg) ont été caractérisés à l'aide d'un instrument DSC 250-TA, afin de calculer  $\alpha(t)$  à partir de

$\frac{H(t)}{H_{tot}}$  puis la vitesse de réaction  $\frac{d\alpha}{dt}$  (ou  $\alpha'$ ).

La masse approximative des échantillons de prepreg NC66/NA1808 pour les essais de DSC est de 20 mg afin d'assurer la masse de la résine dedans est vers 7mg (le taux massique de matrice de prepreg est 35%). Une modélisation de la cinétique de réaction de polymérisation basée sur le modèle Kamal-Sourour [104] sera discutée dans le chapitre 4.

Ensuite, une série d'expériences en DSC en mode balayage dynamique (de  $-50^{\circ}\text{C}$  à  $342^{\circ}\text{C}$  avec une rampe de  $2^{\circ}\text{C}/\text{min}$ ) sur une douzaine d'échantillons a été mise en œuvre afin de calculer  $H_{\text{tot}}$  (pour  $\alpha=1$ ) à partir de l'intégration du pic principal de flux de chaleur  $\frac{dQ}{dt}$  (Figure 91).

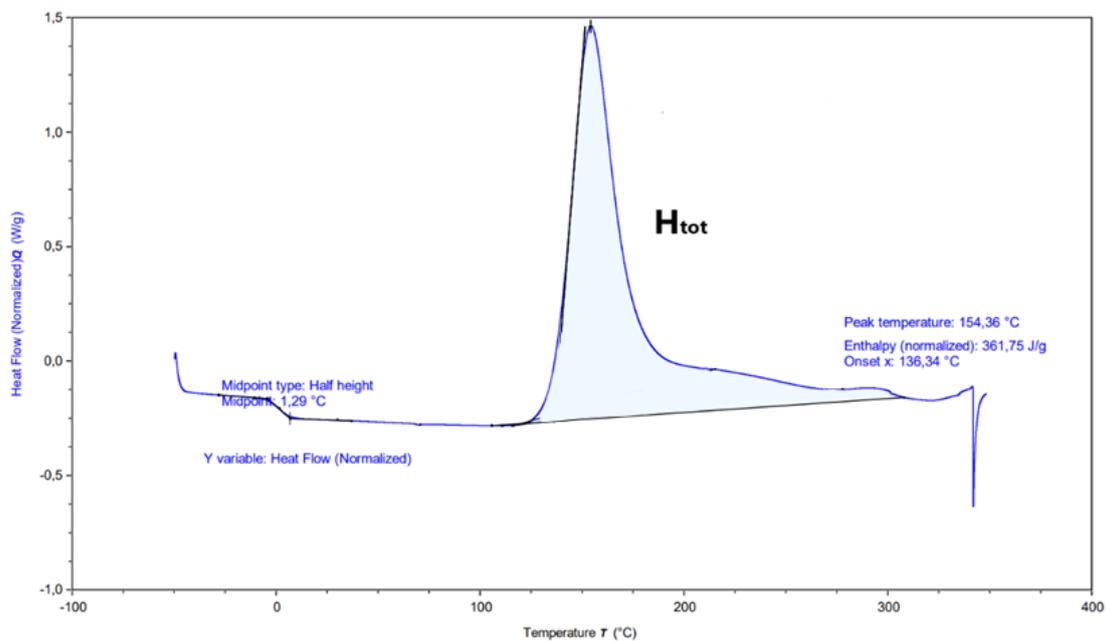


Figure 91  $H_{\text{tot}}$  calculée d'un échantillon de la résine NA1808 non-renforcée par DSC

Le cycle de cuisson proposé par le fournisseur CTMI France a été adapté par le CRITT Mécanique et Composite pour augmenter le degré d'avancement de la réaction  $\alpha$  qui n'atteint jamais 100% (max 85% en autoclave).

Dans ce contexte, les essais en DSC nous ont permis de mesurer les enthalpies de cycle et résiduelles après cuisson. Ils se composent des quatre étapes suivantes dont :

1. Un régime dynamique de  $-50^{\circ}\text{C}$  jusqu'à  $120^{\circ}\text{C}$  avec une rampe de  $2^{\circ}\text{C}/\text{min}$  (85 min).
2. Un régime isotherme stationnaire de  $120^{\circ}\text{C}$  durant 90 min.

3. Un régime de refroidissement rapide jusqu'à  $-50^{\circ}\text{C}$ .
4. Un régime dynamique de  $-50^{\circ}\text{C}$  à  $350^{\circ}\text{C}$  jusqu'à dégradation de la résine avec une rampe de  $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$  (40 min).

L'évolution de flux de chaleur  $\frac{dQ}{dt}$  pour un échantillon de résine NA1808 non-renforcée est présentée dans la Figure 92 et Figure 93. Le flux de chaleur dans les régimes 1 et 2 a été intégré afin de calculer l'enthalpie du cycle de cuisson utilisé ( $H_{\text{cycle}}$ ). Le changement de l'enthalpie à cause du refroidissement dans le régime 3 est négligé. Le régime 4 est une rampe de montée en température qui sert à calculer l'enthalpie résiduelle après le cycle de cuisson  $H_{\text{res}}$ . L'enthalpie totale  $H_{\text{tot}}$  de la polymérisation de résine peut être vérifiée à l'aide de l'équation Eq. 26 et la valeur de  $\alpha$  à la fin de cycle de cuisson est calculée à l'aide de l'équation Eq. 27.

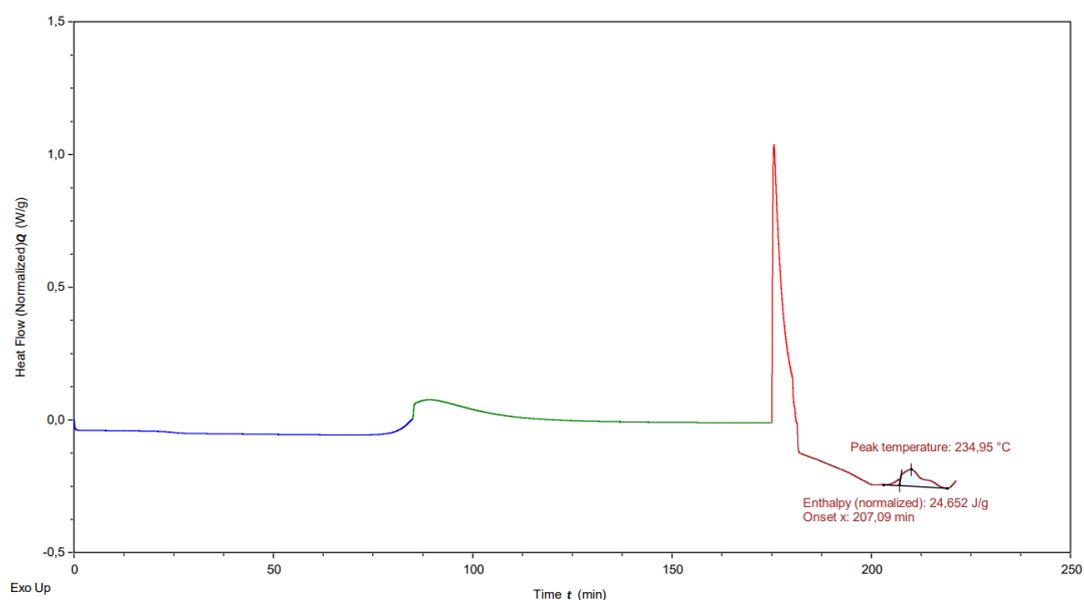


Figure 92 Résultat DSC sur la résine NA1808 non-renforcée : flux de chaleur  $dQ/dt$  en régime dynamique (bleu), isotherme (vert), refroidissement (rouge) et chauffe jusqu'à dégradation (marron) utilisé pour calculer l'enthalpie résiduelle  $H_{\text{res}}$

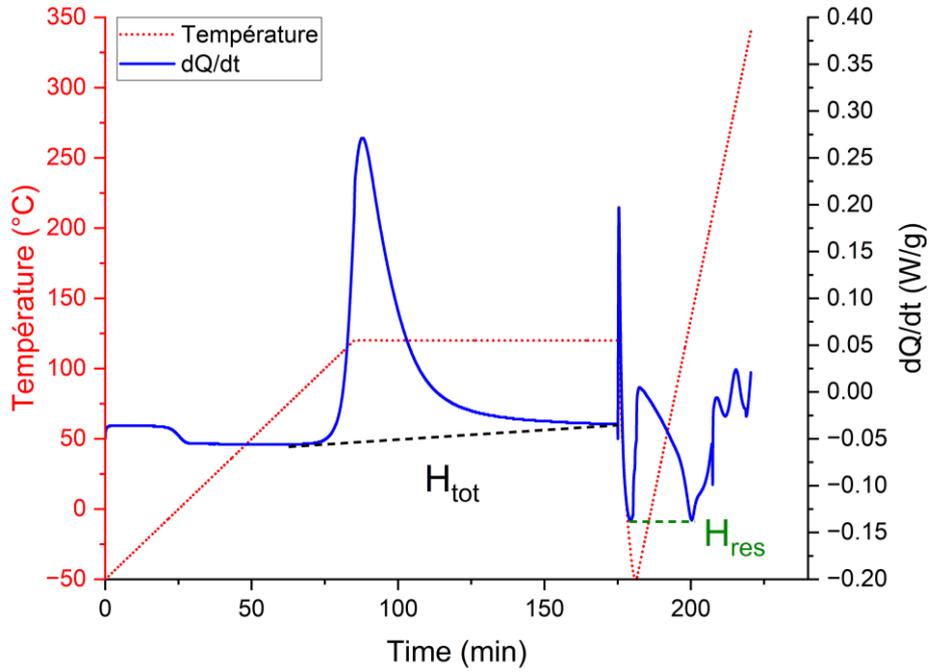


Figure 93 Résultat DSC sur la résine NA1808 non-renforcée : le flux de chaleur (la courbe bleue) en fonction de température (la courbe rouge) et du temps

$$H_{TOT} = H_{cycle} + H_{res} \quad \text{Eq. 26}$$

$$\alpha_{cycle} = \frac{H_{cycle}}{H_{TOT}} \quad \text{Eq. 27}$$

D'après les résultats de DSC, la valeur moyenne de  $\alpha_{cycle}$  de la résine NA1808 non-renforcée est environ de 90% et celle du prepreg NC66/NA1808 proche de 85%. La méthode d'identification des points critiques présentée dans la Figure 84 doit être adaptée aux matériaux et au cycle utilisé.

De plus, les essais montrent que  $H_{tot}$  pour la résine NA1808 est proportionnelle à la masse des échantillons utilisés (Figure 94). Cette relation ne peut pas être observée dans les résultats de mesure sur des échantillons de prepreg (Figure 95) car ces échantillons contiennent des quantités différentes de résine par unité de masse.

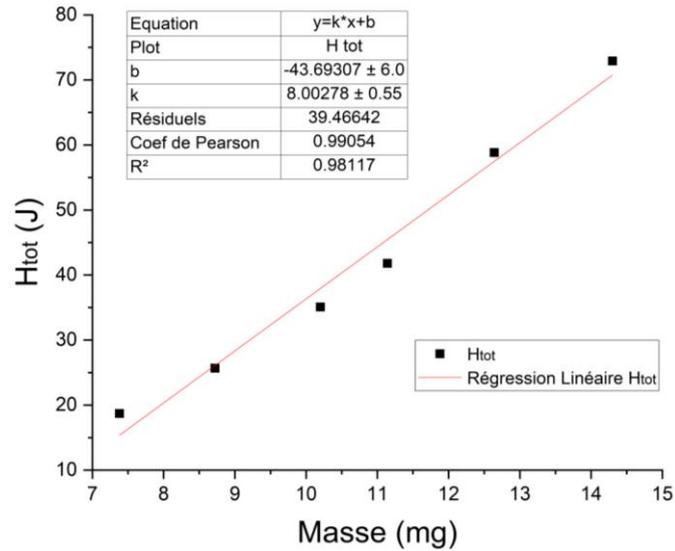


Figure 94 Relation entre  $H_{tot}$  et masse des échantillons de résine NA1808

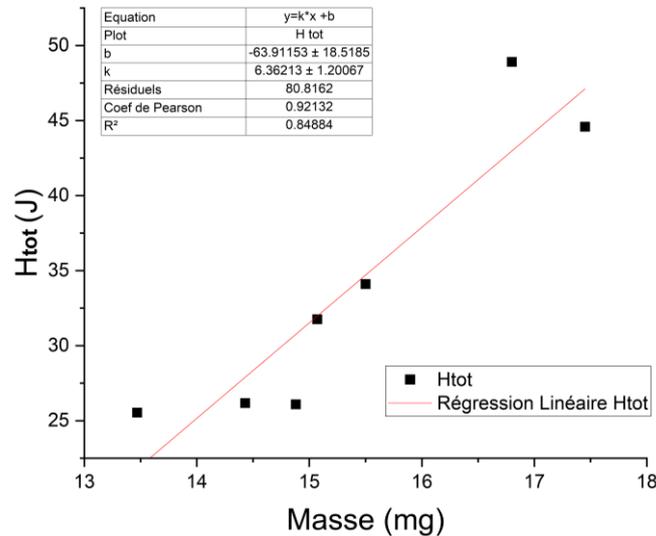


Figure 95 Relation entre  $H_{tot}$  et la masse des échantillons de préimprégné NC66/NA1808

Un ensemble de points particuliers peut être déterminé sur les courbes obtenues en DSC à partir des dérivées du degré d'avancement  $\alpha$ . Ils peuvent aider à une future modélisation de la cinétique de polymérisation de la résine qui pourrait être comparée à une réponse modélisée en IE. Dans le corps de ce chapitre, nous ne présenterons que les points PL, PG, PV et PF (Tableau 26), les autres seront donnés en Annexe-iv. Les valeurs de  $\alpha$  et du temps sont déduites de la méthode des asymptotes et de la dérivée (Figure 96 et Figure 97). Les résultats de plusieurs échantillons quasi-identiques sont respectivement présentés à la Figure 98 et la Figure 99. PL est très proche de l'arrivée au temps isotherme (moins de 1 minute avant) et PG apparaît vers 6 minutes après le

début de l'isotherme. PV et PF apparaissent respectivement vers 36 et 81 minutes après le début du palier isotherme à 120°C.

Points critiques	NC66/NA1808 préimprégné		Résine NA1808	
	$\alpha$ (%)	Temps isotherme (min)	$\alpha$ (%)	Temps isotherme (min)
PL	7.0±0.5	-0.70±0.11	8.0±0.4	-0.63±0.04
PG	36.4±1.4	7.16±0.33	38.9±1.2	6.06±0.06
PV	79.5±1.1	35.55±0.72	84.0±0.9	35.66±0.20
PF	85.0±1.5	78.00±0.23	90.0±1.0	81.03±0.27

Tableau 26 Identification des points critiques de NC66/NA1808 et sa résine par DSC

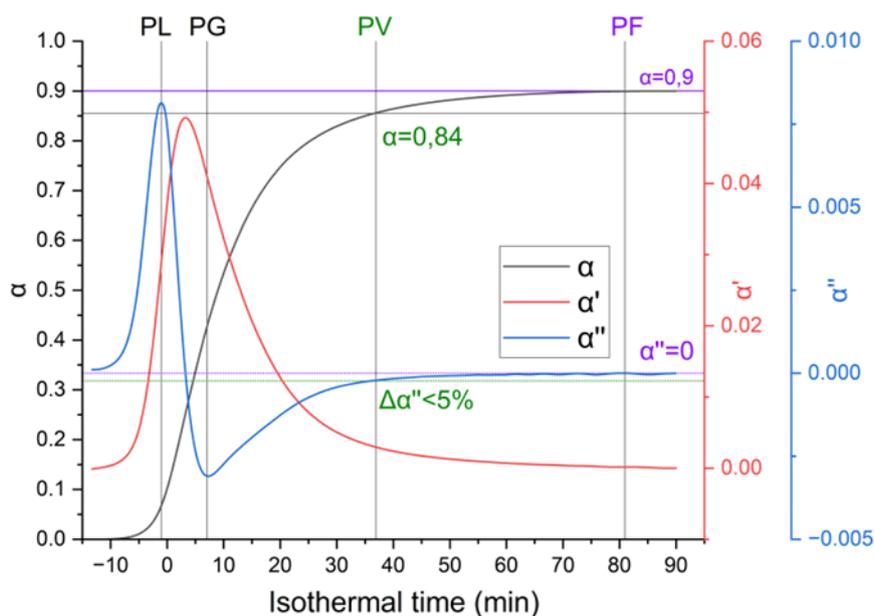


Figure 96 Identification de PL, PG, PV et PF à l'aide de  $\alpha$  et de ses dérivées en fonction du temps, l'origine des temps  $t=0$  est placée au début du palier isotherme à 120°C

En termes de cinétique de réaction et donc d'évolution du degré d'avancement  $\alpha$ , PV est identifié comme le point de transition du régime dynamique vers le régime amortissant et le point de limite pour  $\Delta\alpha'' < 5\%$  (analogie avec un seuil d'amortissement d'un système mécanique amortisseur et ressort de premier ordre).

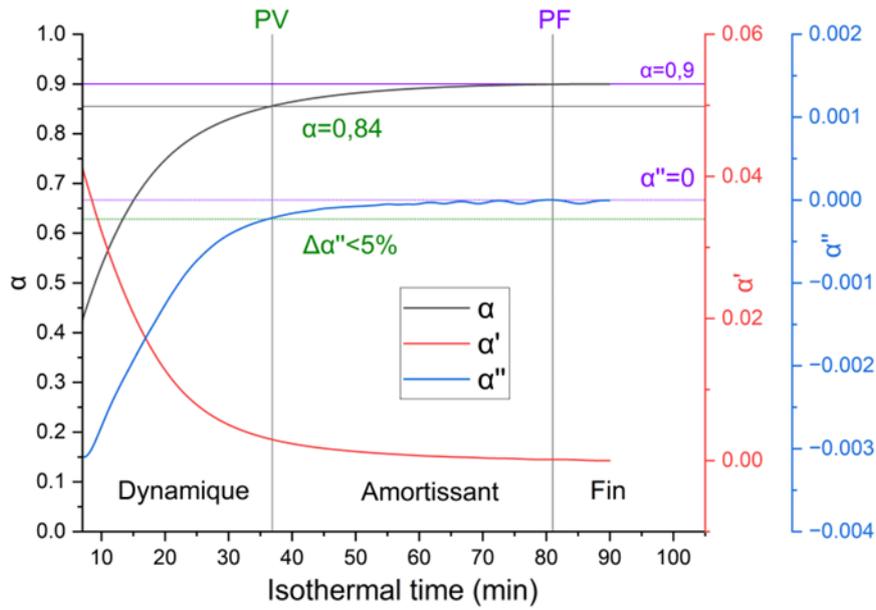


Figure 97 Vue de détail après le PG : 3 régimes de transition de la cinétique de réaction

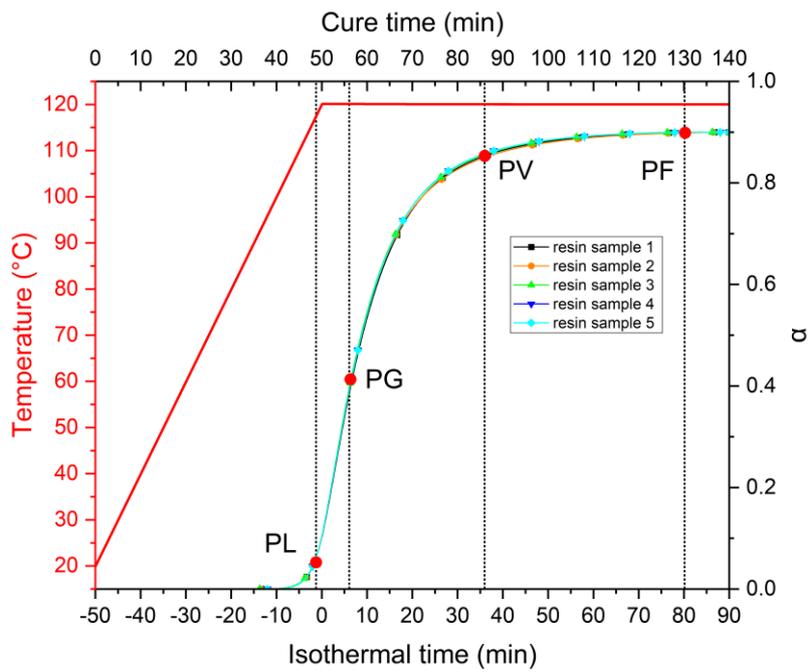


Figure 98 Identification de PL, PG, PV et PF sur 5 échantillons de résine NA1808

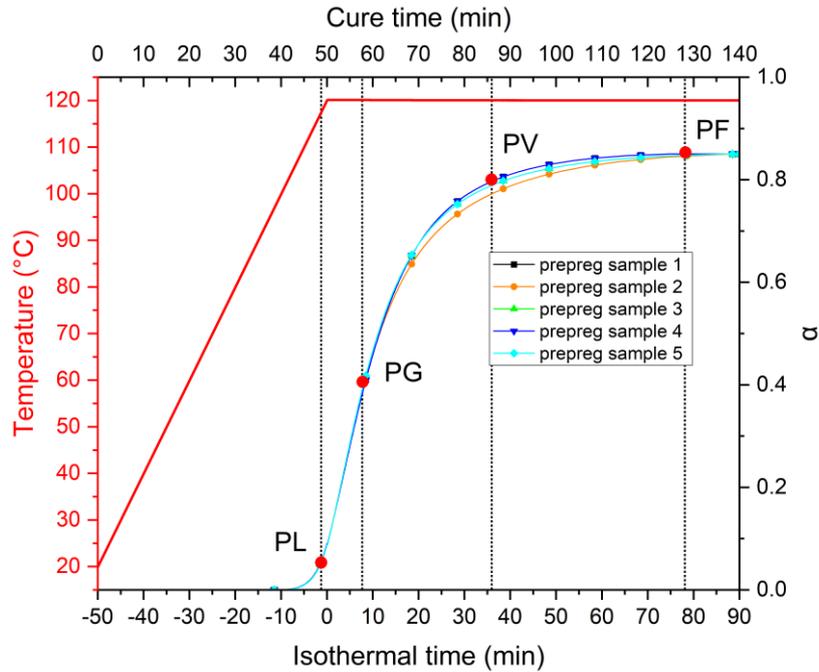


Figure 99 Identification de PL, PG, PV et PF sur 5 échantillons de prepreg NC66/NA1808

### 3.3 Suivi de cuisson par mesure d'impédance électrique à l'aide du banc développé

#### 3.3.1 Préparation des échantillons

Deux échantillons de monopli NC66/NA1808 unidirectionnels  $300 \times 100 \text{ mm}^2$  (avec  $125 \mu\text{m}$  d'épaisseur) sont drapés sur deux plaques PCB identiques (plateformes monopli). Des stratifiés unidirectionnels de  $10 \times 10 \text{ cm}^2$  (1 mm d'épaisseur  $[0^\circ_8]$  et 2 mm d'épaisseur  $[0^\circ_{16}]$ ) ont aussi été utilisés dans ce travail.

Des électrodes fines et flexibles en tissu de cuivre (copper mesh en anglais) de  $14 \times 0,7 \text{ cm}^2$  avec  $100 \mu\text{m}$  d'épaisseur sont insérées entre des plis choisis dans les stratifiés CFRP, selon différentes configurations, afin d'assurer le passage du courant électrique dans les différentes directions de mesure : L (longitudinale), T (transversale), DL (diagonale dans l'épaisseur en longitudinale) et DT (diagonale dans l'épaisseur en transversale).

Pour les configurations L et T, deux électrodes identiques sont insérées horizontalement dans l'espace inter-plis entre les deux plis les plus hauts du stratifié (Figure 100). Dans ce cas, la réponse électrique du matériau instrumenté est considérée comme surfacique. Dans les configurations DT et DL, la première électrode est insérée entre les deux plis

les plus hauts et la seconde est insérée entre les deux plis les plus bas, afin d'obtenir une réponse électrique considérée comme volumique (Les différentes configurations sont illustrées sur la Figure 82).

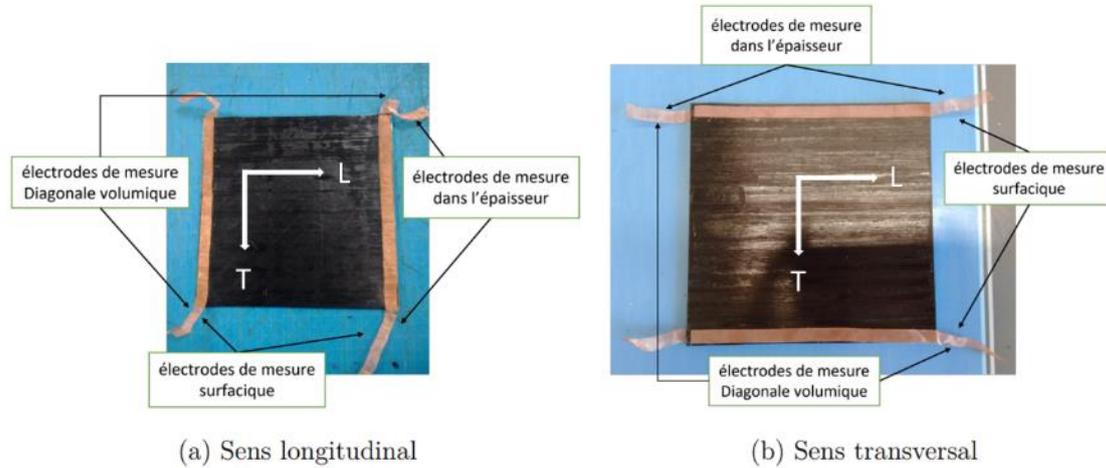


Figure 100 Configurations d'électrodes horizontales en configuration L et DL (a), en configuration T et DT (b)

Marguerès et al. [8] ont démontré l'équivalence entre les mesures d'IE dans la direction de l'épaisseur diagonale transversale (DT) et de l'épaisseur verticale et l'effet non-intrusif des électrodes en tissu de cuivre sur la tenue mécanique des stratifiés et sur les flux de résine pendant la cuisson. Après le cycle de polymérisation, les électrodes restent dans les stratifiés en CFRP à des fins de surveillance de l'état de santé de la structure (SHM). Ceci permet de fonctionnaliser le matériau par exemple en tant qu'actionneur pour assurer l'essai non destructif (END) par tomographie infrarouge et le dégivrage (une discussion sera présentée à ce sujet dans le chapitre 5).

Les deux échantillons de monopli ont été fabriqués avec un réseau d'électrodes. Ils permettent de faire la mesure IE dans la direction DL et DT en cours de cuisson (en utilisant les deux électrodes Entrée/Sortie intégrés aux bords des échantillons) et de faire la mesure post-cuisson dans la direction L et T en utilisant les différentes combinaisons des électrodes (Figure 101).

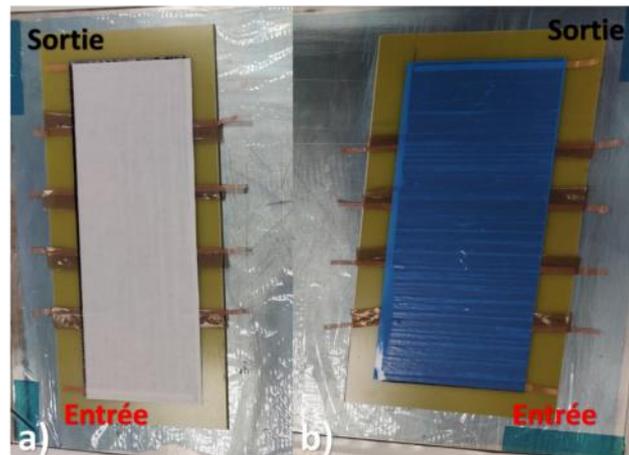


Figure 101 Plateformes monopoli de prepreg NC66/NA1808 drapés sur plaque PCB pour la mesure IE dans la direction DL (a) et DT (b) en utilisant les électrodes entrée/sortie

Les échantillons de résine non-renforcée sont fabriqués comme indiqué dans la Figure 102 et la Figure 103. La résine a été placée dans un cadre en silicone de  $10 \times 10 \times 2 \text{ cm}^3$ . Les cadres en silicone sont scellés avec un adhésif isolant dont la constante diélectrique est significativement plus élevée que celle de la résine, ce qui garantit que l'échantillon ne soit pas court-circuité lors de l'excitation électrique à haute fréquence.



Figure 102 Schéma d'un échantillon de la résine non-renforcée dans un cadre en silicone

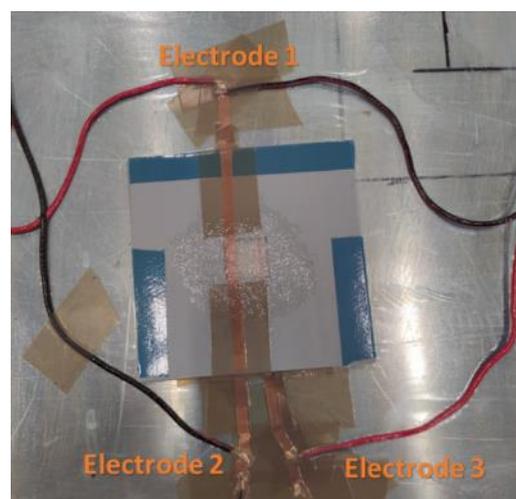


Figure 103 Échantillon de résine non-renforcée

Les trois électrodes identiques sont placées comme suit : 1 sur la surface supérieure et 2 sur la surface inférieure de l'échantillon de résine. Ceci permet d'assurer des mesures en surface (2 et 3), dans l'épaisseur (1 et 2) et en diagonal dans l'épaisseur (1 et 3).

Au total, 19 échantillons  $[0^\circ_8]$ , 9 échantillons  $[0^\circ_{16}]$  et 8 échantillons de résines non-renforcées ont été cuits en étuve et contrôlés par le système IE au cours de 4 cycles de polymérisation. Pour chaque cycle, il y a 8 échantillons suivis par le nouveau banc et 1 échantillon suivis à l'aide du Hioki IM3570 à des fins de comparaison. Les informations relatives aux échantillons sont présentées dans le Tableau 27. Les différentes configurations d'électrodes appliquées aux échantillons de stratifiés NC66/NA1808 sont mises en évidence. Les échantillons de résine non-renforcée NA1808 sont suivis dans les 3 différentes configurations pour vérifier que l'information donnée par l'IE en  $|Z|$  suivant DL correspond bien à la somme des valeurs en  $|Z|$  obtenus en surfacique et en épaisseur.

Cycle de cuisson	NC66/NA1808 $[0^\circ]_8$	NC66/NA1808 $[0^\circ]_{16}$	Résine NA1808	Echantillons mesurés par Hioki IM3570
1	2L,2T,2DL,2DT	0	0	$[0^\circ_8]$ DT
2	2DT	2DL, 2DT	2	$[0^\circ_8]$ DT
3	2DT,2DL	2DT	2	$[0^\circ_{16}]$ DT
4	2DT,1DL	2DT	3	résine

Tableau 27 Informations sur les spécimens avec configuration d'électrodes

### 3.3.2 Résultats IE sur la résine NA1808 non-renforcée

Contrairement aux stratifiés CFRP, les échantillons de résine non-renforcée présentent un comportement isotrope lorsqu'ils sont excités par une tension en balayage de fréquence. Leur réponse en  $|Z|$  et  $\theta$  dépend de la fréquence (Figure 104). Lorsque la fréquence de mesure augmente, l'amplitude de  $|Z|$  diminue ainsi que celle de  $\theta$  à cause de l'effet d'induction au niveau de l'ensemble des fils d'amenés de courant de notre banc vers le stratifié.

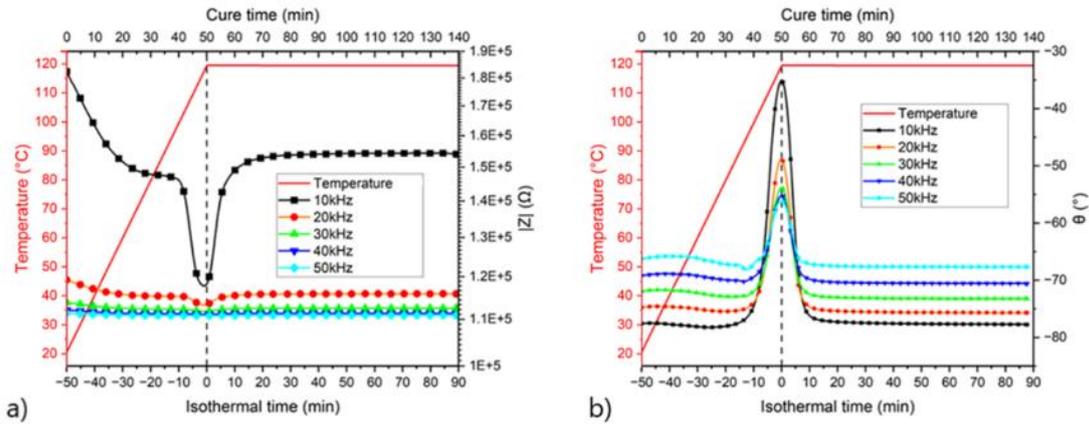


Figure 104 Réponses en fréquence en  $|Z|$  (a) et  $\theta$  (b) pour des échantillons de résine non-renforcée

La résine non-renforcée est un matériau isolant dont les porteurs de charge permettent la conduction ionique. À la fin de la phase de liquéfaction, la résine atteint le minimum de viscosité et le maximum de conductivité ionique, de sorte que PL est en corrélation avec le pic principal correspondant au minimum de  $|Z|$  et au maximum de  $\theta$  respectivement. La résine présente une capacité élevée avant et après PL car la rotation dipolaire prédomine sur la conduction ionique, de sorte que  $\theta$  tend vers  $-90^\circ$ . Après PL, la courbe  $\theta$  peut être divisée en deux étapes : une partie dynamique et une partie plus globalement stationnaire. PG peut être identifié comme le point de transition entre ces deux parties et peut donc être trouvé en utilisant la méthode asymptotique (Figure 105). Dans la partie la plus stationnaire (Figure 106), deux légères transitions peuvent être détectées sur la courbe  $\theta$  en utilisant  $|Z|'$  et  $\theta'$ . Ces deux transitions locales peuvent être associées à PV et PF. Ces points peuvent être détectés sur tous les échantillons et à toutes les fréquences. Les résultats obtenus pour ces 4 points critiques sont donnés dans le Tableau 28 et sont comparés aux valeurs obtenues en DSC. La comparaison indique une bonne corrélation des résultats.

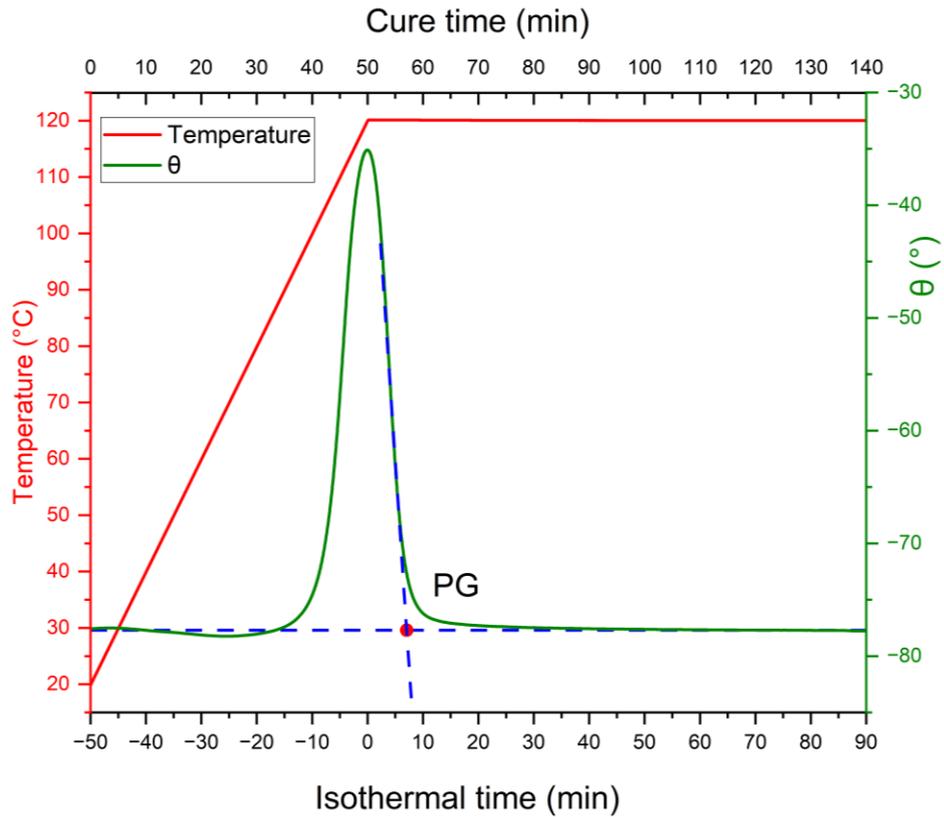


Figure 105 PG de la résine non-renforcée NA1808 obtenu en utilisant la méthode asymptotique sur  $\theta=f(t)$  à  $f=10$  kHz

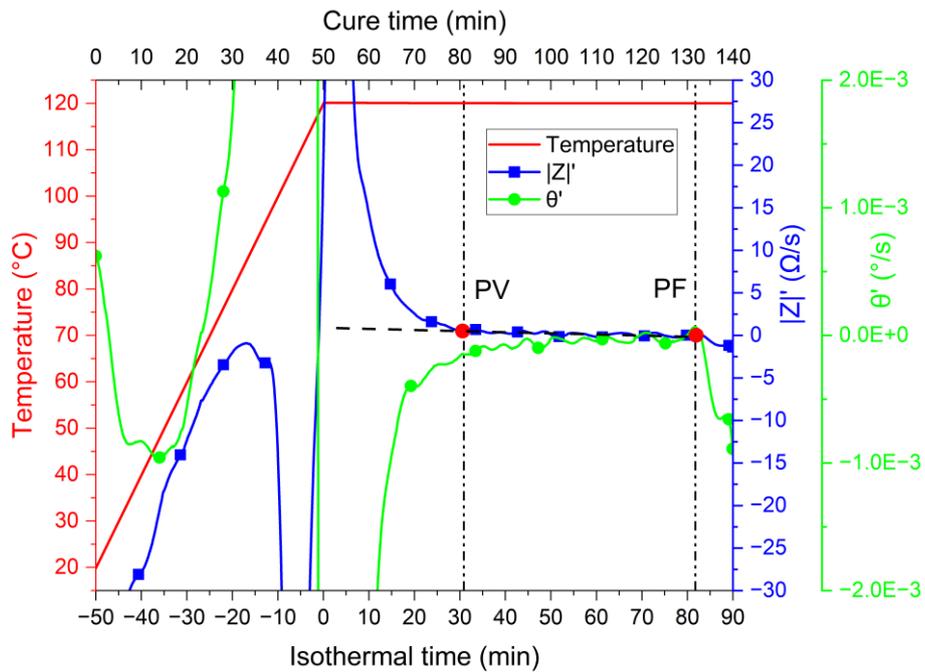


Figure 106 Identification de PV et PF à l'aide de  $|Z'|$  et  $\theta'$  pour des échantillons de résine non-renforcée à  $f=10$  kHz

Points critiques	Résine IE (min)	Résine DSC (min)
PL	-1.28±0.04	-0.63±0.04
PG	6.00±0.6	6.06±0.06
PV	36.10±0.33	35.66±0.20
PF	82.50±0.46	81.03±0.27

Tableau 28 Identification des points critiques de la résine NA1808 non-renforcée par IE et comparaison avec les résultats obtenus en DSC

Afin d'élaborer, dans le futur, un modèle 3D de la conductivité électrique de la résine en balayage de fréquence de 5kHz à 50kHz, nous avons effectué des mesures post-cuisson avec les trois configurations d'électrodes : surfacique, volumique verticale et volumique diagonale (sans distinction de DL et DT car l'échantillon de résine est isotrope et quasi-homogène).

Les résultats obtenus (Tableau 29 et Figure 107) nous permettent de conclure que l'inverse de la capacité mesurée en diagonal vaut la somme des inverses de la capacité mesurés dans l'épaisseur et en surface :  $1/C_{\text{Diagonal}} = 1/C_{\text{Surfacique}} + 1/C_{\text{Vertical}}$ . Dans ce cas, C est approximativement égale à  $\frac{1}{2\pi f|Z|}$  pour un système purement capacitif.

Fréquence (Hz)	1/C Diagonal	1/C Surfacique	1/C Vertical	1/C somme	Erreur
5k	3.79E+11	7.73E+10	2.99E+11	3.76E+11	0.75%
10k	3.98E+11	8.11E+10	3.16E+11	3.97E+11	0.16%
15k	4.07E+11	8.29E+10	3.25E+11	4.08E+11	0.32%
20k	4.13E+11	8.39E+10	3.30E+11	4.14E+11	0.24%
25k	4.18E+11	8.45E+10	3.35E+11	4.19E+11	0.38%
30k	3.61E+11	7.31E+10	2.89E+11	3.62E+11	0.37%
35k	3.69E+11	7.48E+10	2.95E+11	3.70E+11	0.24%
40k	3.74E+11	7.59E+10	3.00E+11	3.76E+11	0.40%
45k	3.79E+11	7.69E+10	3.04E+11	3.81E+11	0.30%
50k	3.84E+11	7.76E+10	3.07E+11	3.84E+11	0.08%

Tableau 29 Comparaison entre les valeurs de  $1/C_{\text{Diagonal}}$  et la somme de  $1/C_{\text{Surfacique}}$  et  $1/C_{\text{Vertical}}$

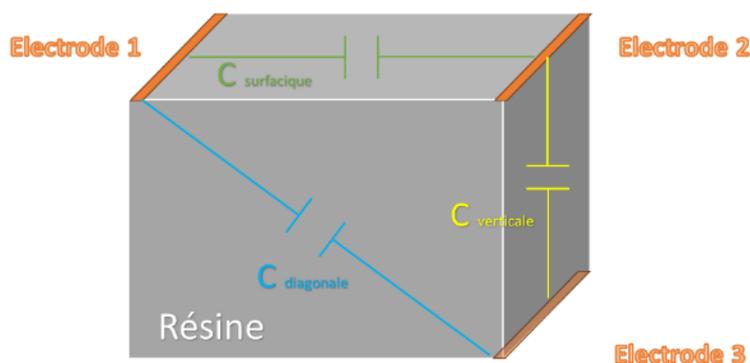


Figure 107 Schéma de conduction électrique de la résine NA1808 non-renforcée avec différentes configurations d'électrodes

L'effet inductif des fils d'aménages, notamment des fils HIFI avec une longueur de 3 mètres, a été étudié. Des mesures IE sur un échantillon de résine non-renforcée ont été effectuées avec 2 configurations. Une première configuration se compose des câbles BNC et des électrodes de tissu cuivre (configuration de contrôle des échantillons avant et après cuisson). Une seconde configuration se compose des câbles BNC, des fils HIFI et des électrodes de tissu cuivre (configuration de suivi de cuisson). Les valeurs de  $|Z|$  et  $\theta$  à différentes fréquences en mesure surfacique avec les différentes configurations sont présentés dans le Tableau 30 et sur la Figure 108.

Fréquence (Hz)	$ Z _1$ sans fils HIFI	$ Z _2$ avec fils HIFI	$\theta_1$ sans fils HIFI	$\theta_2$ avec fils HIFI	$ Z _2 /  Z _1$	$\theta_2 / \theta_1$
5k	3.37E+06	3.55E+05	-88.3	-87.2	10.52%	98.81%
10k	1.71E+06	1.81E+05	-88.4	-87.1	10.61%	98.48%
15k	1.14E+06	1.22E+05	-88.5	-87.0	10.70%	98.25%
20k	8.62E+05	9.26E+04	-88.6	-86.9	10.75%	98.08%
25k	6.92E+05	7.49E+04	-88.6	-86.9	10.82%	98.04%
30k	5.78E+05	6.28E+04	-88.6	-86.9	10.86%	98.00%
35k	4.97E+05	5.41E+04	-88.7	-86.9	10.89%	97.94%
40k	4.35E+05	4.76E+04	-88.7	-86.9	10.93%	97.88%
45k	3.87E+05	4.24E+04	-88.7	-86.9	10.96%	97.89%
50k	3.49E+05	3.83E+04	-88.8	-86.9	10.98%	97.86%

Tableau 30 Comparaison des résultats en  $|Z|$  et  $\theta$  avec deux configurations filaires en balayage de fréquence de 5 kHz à 50 kHz

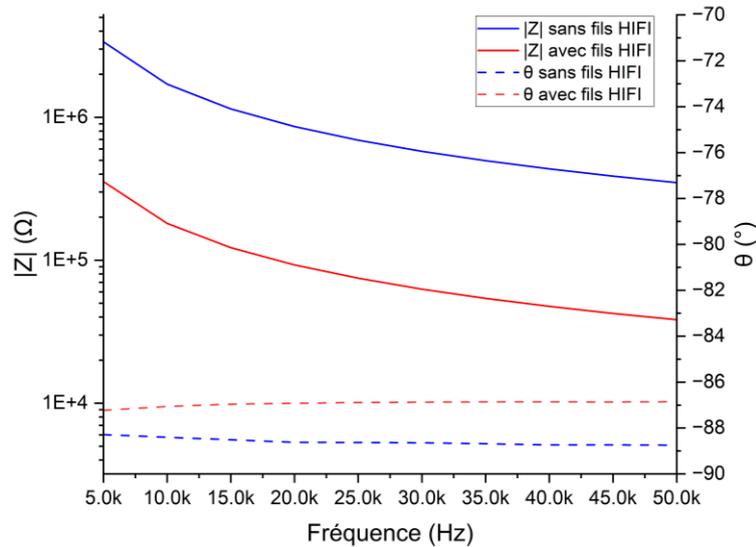


Figure 108 Résultats en  $|Z|$  et  $\theta$  de résine avec deux configurations filaires dans la direction volumique diagonale en balayage de fréquence

Les valeurs de  $\theta$  des deux configurations restent comparables. Cependant, les valeurs en  $|Z|$  de la 2<sup>e</sup> configuration ne représentent qu'un dixième de celles de la 1<sup>ère</sup> configuration mais le signal reste identique dans sa forme. Une explication de ce phénomène est que le fil HIFI a une inductance ( $L_s$ ) non négligeable, ce qui entraîne une forte diminution de la valeur de  $|Z|$  de l'impédance équivalente du système en raison de sa valeur  $|Z|$  positive et celle négative de l'échantillon de résine. Toutefois, la résistance du fil ( $R_s$ ) reste négligeable, ce qui entraîne un très faible changement de phase de l'impédance équivalente du système, qui tend toujours vers  $-90^\circ$ .

Ainsi, dans le cas de mesure sur des échantillons de résine non-renforcée, il est important de connaître les éléments parasites comme  $L_s$  et  $R_s$  si la mesure de la valeur précise de  $Z$  est concernée et non son évolution globale. Pour définir correctement ces éléments, une mesure avec un système autocompensé, comme le Hioki, peut être réalisée. Une loi de correction peut donc être introduite dans le banc de mesure via l'interface d'utilisateur si nécessaire (chapitre 2)

### 3.3.3 Résultats sur les stratifiés NC66/NA1808

#### 3.3.3.1 Echantillons $[0^\circ]_8$

La Figure 109 montre l'évolution des mesures en  $|Z|$  et  $\theta$  à différentes fréquences pendant la polymérisation. Les courbes  $|Z|$  se superposent, tandis que les courbes  $\theta$

restent globalement parallèles avec des valeurs tendant vers  $0^\circ$  en fin de cuisson. Les échantillons  $[0^\circ_8]$  sont presque purement résistifs dans le sens de l'épaisseur, certainement en raison d'un fort taux volumique de fibre proche de  $V_f=65\%$  (Cf. chapitre 4) et d'un réseau de percolation important. En outre, les courbes en  $\theta$  sont inverses des courbes en  $|Z|$  présentant les mêmes points extrema dans le temps indépendamment de la fréquence. Les résultats obtenus sur les échantillons T700/M21 (teneur en fibres  $V_f=51\%$ ), utilisés dans les travaux précédents, dépendaient davantage de la fréquence. Les courbes correspondantes pour le matériau T700/M21 sont données en Annexe-v (pour une gamme de fréquences plus étendue, allant de 10Hz à 100 kHz). La lecture y constatera la plus forte dépendance de  $|Z|$  aux différentes fréquences eu comparaison des résultats de la Figure 109.

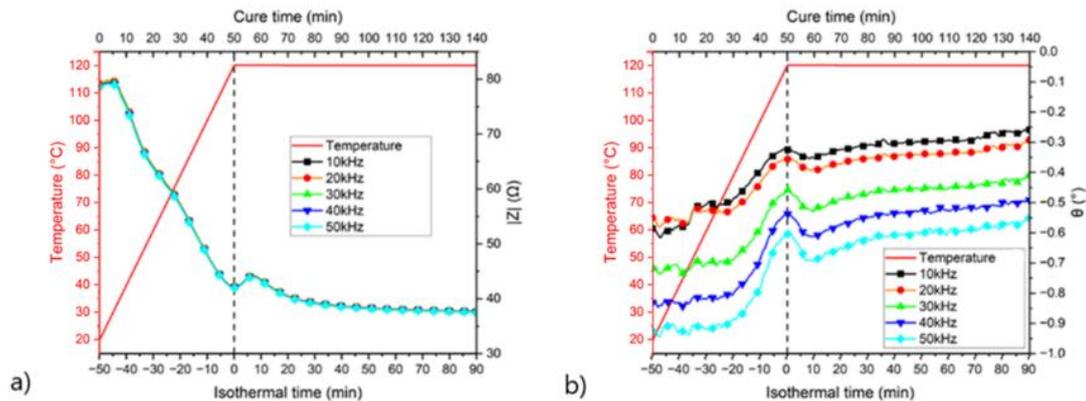


Figure 109 Réponses en fréquence en  $|Z|$  (a) et  $\theta$  (b) du  $[0^\circ_8]$  dans la direction DT

La Figure 110 présente les mesures obtenues sur 2 cycles de cuisson (C1 et C2) avec le nouveau banc et comparées à celles obtenues à l'aide du Hioki. Les tendances des résultats sont similaires pour tous les échantillons  $[0^\circ_8]$  en utilisant les deux bancs.

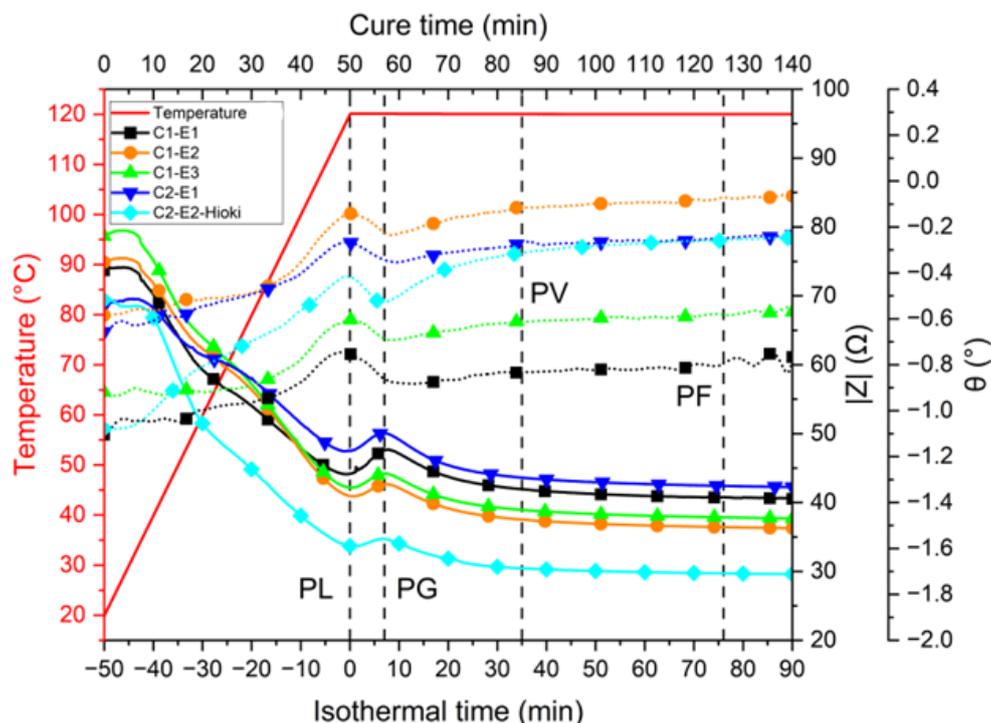


Figure 110  $|Z|$  (solide) et  $\theta$  (point) d'échantillons  $[0^\circ_8]$  ( $E_i$ , échantillon  $i$  pour chaque cycle de cuisson) à 10 kHz dans la direction DT en utilisant le nouveau banc et l'analyseur Hioki, pour deux ensembles de polymérisation différents (C1 et C2)

Sur la base des variations de  $|Z|$  et  $\theta$  pendant la polymérisation des échantillons NC66/NA1808, PL et PG sont identifiés par les points minimum et maximum principaux de  $|Z|$  respectivement. PV et PF sont clairement identifiés à l'aide des mesures  $\theta$  (Figure 111), mais aussi en utilisant les dérivées première et seconde de  $|Z|$ . Après PG, la courbe de la dérivée seconde de module d'impédance  $|Z|''$  peut être divisée en trois étapes : une partie dynamique, une partie amortissante et une partie stationnaire. En termes de cinétique de réaction, PV est identifié comme le point de transition du régime dynamique vers le régime amortissant et le point de limite pour  $\Delta|Z|'' < 5\%$  (même analogie avec un seuil d'amortissement d'un système mécanique amortisseur et ressort de premier ordre). PF est le point de transition entre les deux dernières parties avec des valeurs de  $|Z|'$  et  $|Z|''$  tendant vers 0 (Figure 112).

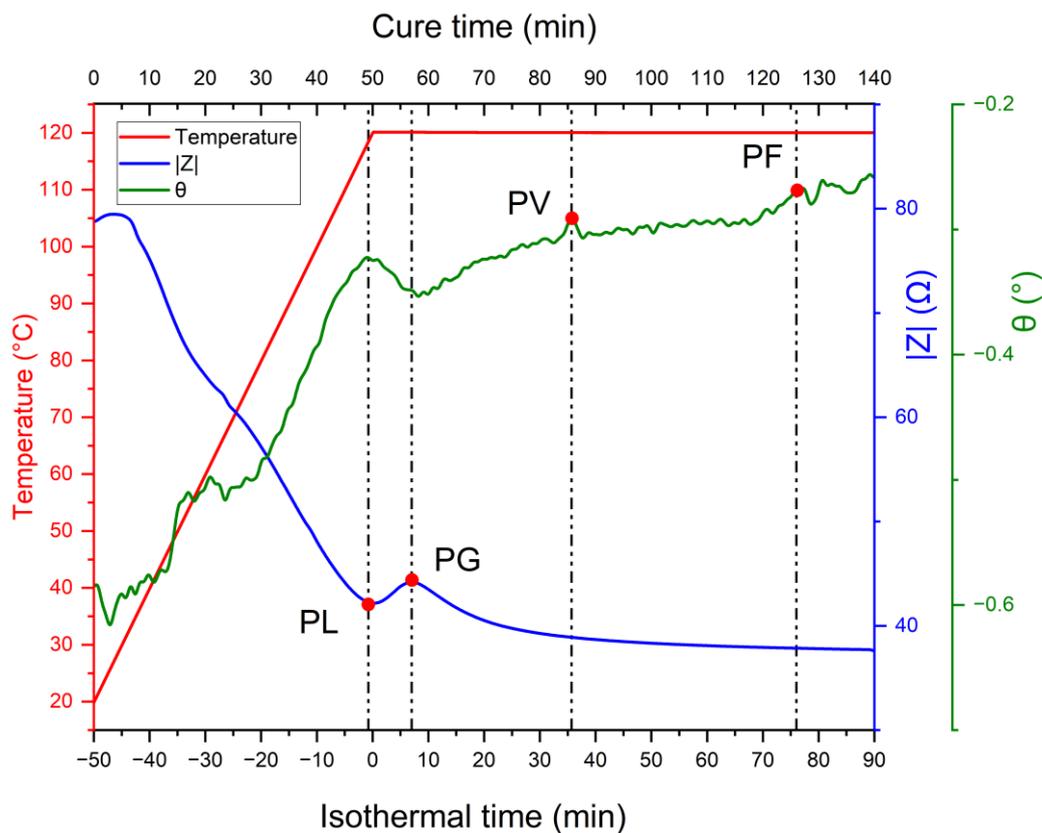


Figure 111 Points critiques PL, PG, PV et PF identifiés par IE sur les échantillons NC66/NA1808 à 10 kHz dans la direction DT [0°<sub>8</sub>]

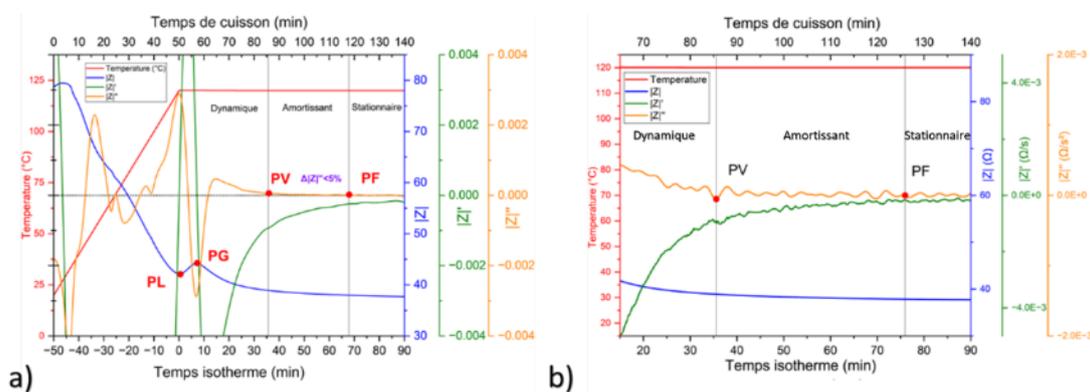


Figure 112 PV et PF identifiés par IE sur les échantillons NC66/NA1808 [0°<sub>8</sub>] à 10 kHz dans la direction DT à l'aide des dérivées 1<sup>ère</sup> et 2<sup>nde</sup> de  $|Z|$  : a) vue globale (avec les 5%) et b) avec vue locales (pics locaux)

Si nous comparons les résultats des mesures IE pour les échantillons en NC66/1808NA en utilisant le nouveau banc à ceux obtenus pour les échantillons T700/M21 en utilisant le banc précédent basé sur le Hioki IM3570 (voir Figure 83), les tendances obtenues sont les mêmes. Cela confirme que des signatures typiques de cuisson peuvent être

obtenues sur des CFRP, indépendamment du moyen de mesure.

Comme mentionné précédemment, le PmodIA utilisé en configuration de mesure en 2 points n'est pas capable de suivre l'évolution du module d'impédance longitudinale  $|Z|_L$  sur des échantillons de CFRP (valeur de quelques Ohm voire quelques centaines de milli-Ohm). Pour permettre une configuration en 4 points sur PmodIA, un Analog-Front-End (AFE) a été développé pour compléter les capacités de mesure en petit  $|Z|$  (Cf. chapitre 2). Pour rappel, il se compose de deux éléments : une source de courant et un amplificateur d'instrumentation (INA). Le signal en tension est converti en un courant qui excite les échantillons. Par ailleurs, la tension aux bornes des échantillons est mesurée par l'amplificateur d'instrumentation et envoyée au banc. Les éléments parasites des fils sont ainsi éliminés grâce à la séparation de la source d'excitation et du dispositif de mesure.

Figure 113 présente les mesures longitudinales (L) obtenues sur les échantillons NC66/NA1808 [0°<sub>8</sub>] en utilisant une voie PmodIA seule et une voie PmodIA avec AFE. Le résultat obtenu avec PmodIA est faussé par l'impédance parasite du système (environ 4,6Ω). En revanche, l'AFE permet au PmodIA de mesurer des petites impédances (<1Ω) avec une bonne sensibilité. Bien que la valeur  $|Z|$  mesurée par le PmodIA seul ne soit pas correcte, le comportement global est similaire à celui obtenu avec l'ajout de l'AFE. Ainsi, les points critiques peuvent également être identifiés à l'aide du PmodIA seul dans la direction longitudinale. La clé du suivi du cycle de polymérisation à l'aide des mesures IE ne réside pas dans la valeur de  $|Z|$  mais bien dans ses changements et la variation  $\Delta|Z|$ . Tous les points critiques peuvent être détectés à l'aide de  $|Z|$  et  $|Z|'$  comme le montre la Figure 114: PV est corrélé à un maximum local de  $|Z|'$  et PF au dernier maximum local de  $|Z|'$ . L'ensemble des valeurs obtenues est donné dans le Tableau 31 et comparé aux résultats DSC. Les résultats montrent une bonne corrélation.

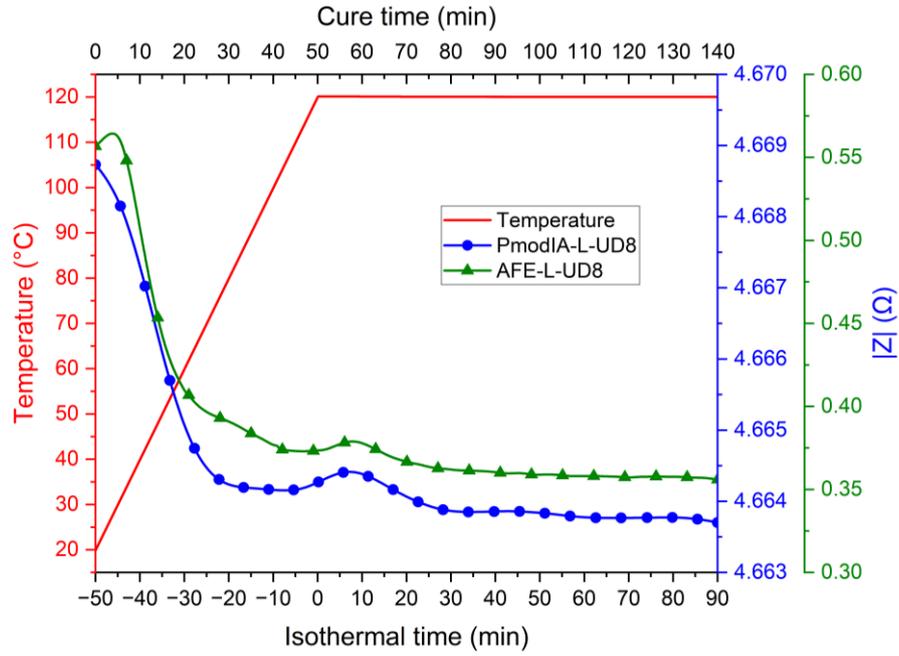


Figure 113 Résultats longitudinaux (L) avec PmodIA seul et avec AFE à 10 kHz sur des échantillons NC66/NA1808 [0°<sub>s</sub>]

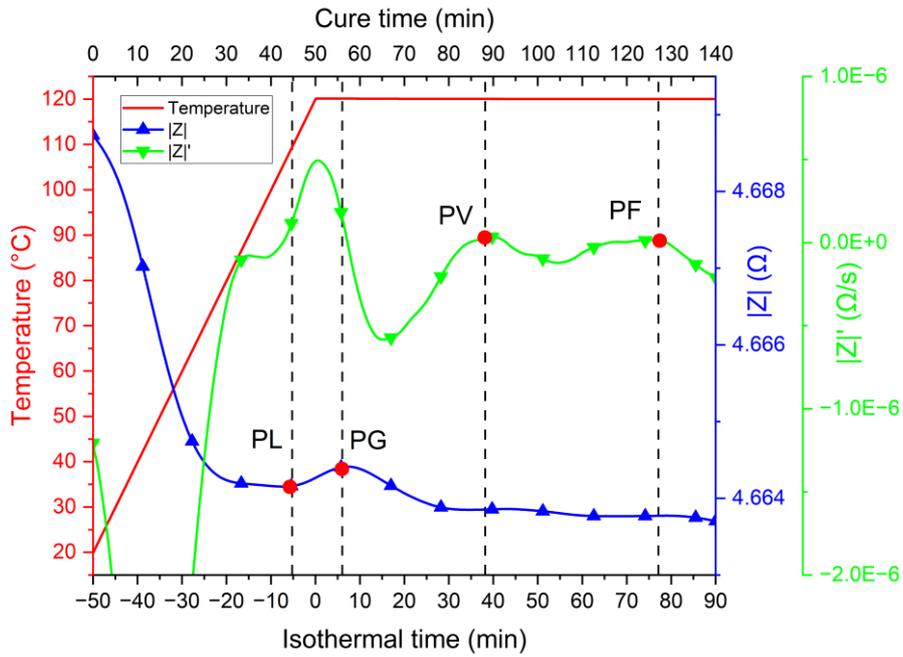


Figure 114 |Z| et |Z|' longitudinale (L) à 10 kHz sur des échantillons NC66/NA1808 [0°<sub>s</sub>]

Points critiques	Stratifié EI (min)	Stratifié DSC (min)
PL	-0.25±0.06	-0.70±0.11
PG	6.91±0.05	7.16±0.33
PV	36.88±0.63	35.55±0.72
PF	76.13±0.71	78.00±0.23

Tableau 31 Identification des points critiques du stratifié  $[0^\circ_8]$  de NC66/NA1808 par IE et comparaison avec les résultats obtenus en DSC

### 3.3.3.2 Echantillons $[0^\circ_{16}]$

Nous avons utilisé la même méthode pour analyser le comportement de cuisson d'un stratifié  $[0^\circ_{16}]$  NC66/NA1808. Les signatures obtenues sont identiques dans la forme et la tendance à celles des stratifiés  $[0^\circ_8]$  précédemment présentés. La Figure 115 montre l'évolution des mesures en  $|Z|$  et  $\theta$  à différentes fréquences pendant la polymérisation. Les courbes  $|Z|$  se superposent. Les courbes  $\theta$  restent globalement parallèles (mise à part pour la fréquence la plus basse à 10 kHz) et restent également proches  $0^\circ$ .

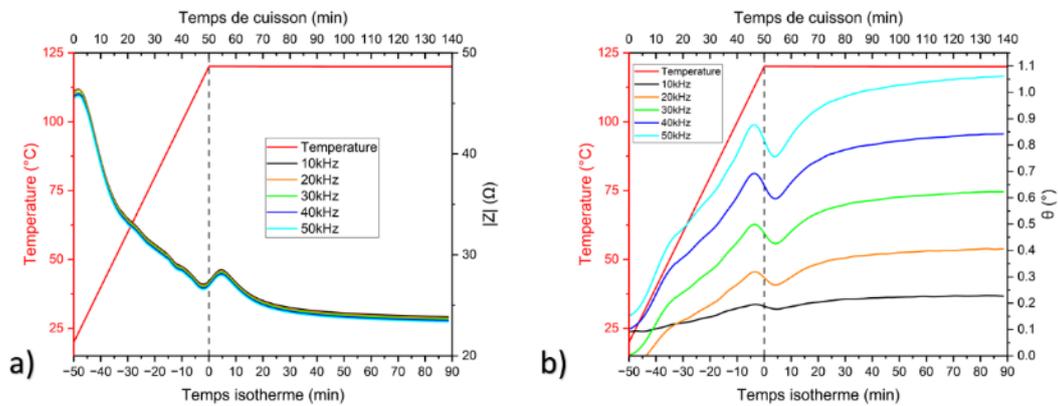


Figure 115 Réponses en fréquence en  $|Z|$  (a) et  $\theta$  (b) du  $[0^\circ_{16}]$  dans la direction DT

Les points critiques principaux (PL, PG, PV et PF) peuvent être identifiés à l'aide de la même méthode des asymptotes et des dérivées (Figure 116). PL et PG sont identifiés par les points minimum et maximum principaux de  $|Z|$  respectivement. PV est le point de transition entre les deux premières parties (la dynamique et l'amortissante) après le PG. PF est le point de transition entre les deux dernières parties (l'amortissante et la stationnaire) avec des valeurs de  $|Z|'$  et  $|Z|''$  tendant vers 0.

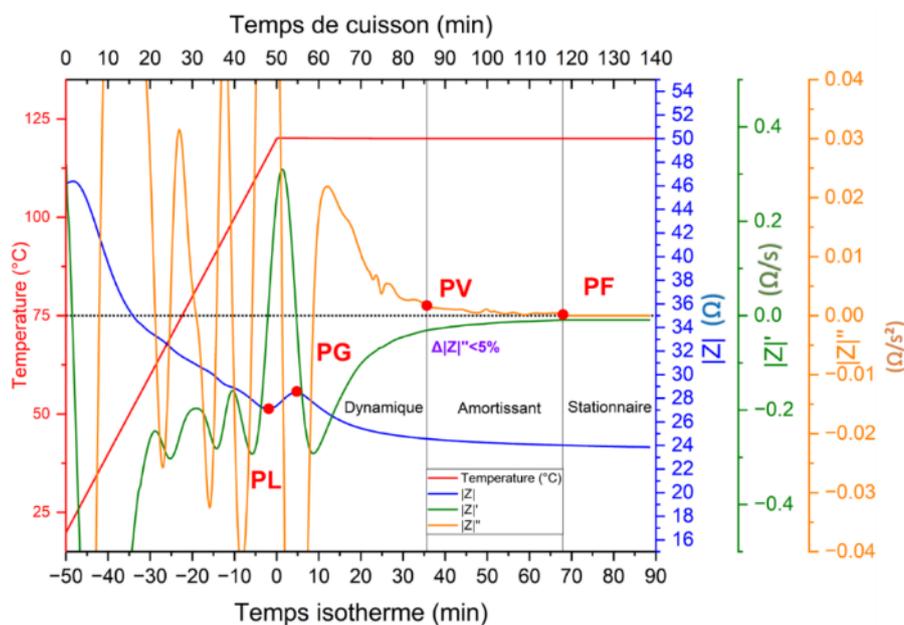


Figure 116 Points critiques PL, PG, PV et PF identifiés par IE sur les échantillons NC66/NA1808 à 10 kHz et dans la direction DT  $[0^\circ_{16}]$

Points critiques	$[0^\circ_8]$ (min)	$[0^\circ_{16}]$ (min)
PL	$-0.25 \pm 0.06$	$-1.55 \pm 0.08$
PG	$6.91 \pm 0.05$	$4.50 \pm 0.07$
PV	$36.88 \pm 0.63$	$33.62 \pm 0.43$
PF	$76.13 \pm 0.71$	$68.51 \pm 0.85$

Tableau 32 Identification des points critiques du stratifié  $[0^\circ_{16}]$  de NC66/NA1808 par IE et comparaison avec les résultats sur le stratifié  $[0^\circ_8]$

Pour les stratifiés NC66/NA1808, la valeur de  $|Z|$  mesurée dans la direction DT et à la fin de cuisson des  $[0^\circ_{16}]$  est plus petite par rapport à celle des  $[0^\circ_8]$ . Cependant, cette relation de la valeur de  $|Z|$  est inverse dans le cas des stratifiés T700/M21.

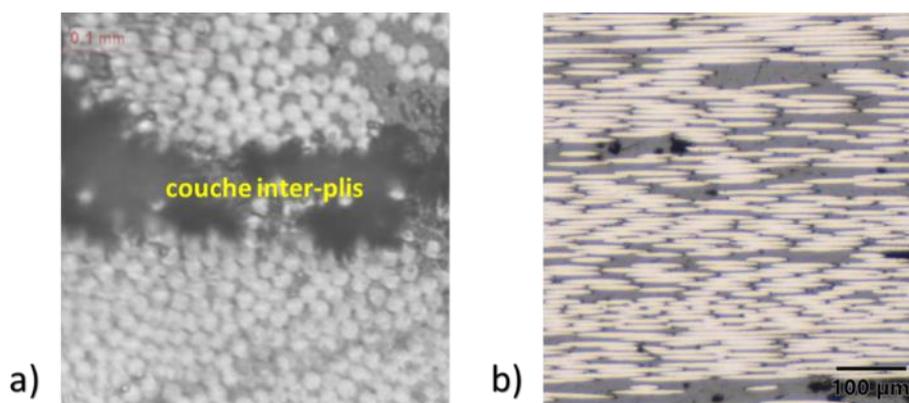


Figure 117 Microstructures des stratifiées  $[0^{\circ}_8]$  de T700/M21 avec  $V_f \approx 53\%$  (a) et de NC66/NA1808 avec  $V_f \approx 65\%$  (b)

La Figure 117 montre les microstructures des stratifiées  $[0^{\circ}_{16}]$  réalisés avec les 2 matériaux T700/M21 (a) et NC66/NA1808 (b). Non seulement les fractions volumiques de fibres sont très différentes mais de plus on constate la différence de microstructure des deux stratifiés. Le système T700/M21 comporte des zones inter-plis non-renforcées et constituées donc uniquement de matrice M21 isolante. Du fait de ces couche inter-plis non-renforcée en fibres de carbone conductrices dans les stratifiées T700/M21, augmenter l'épaisseur ou le nombre de plis du stratifié équivaut à accroître l'épaisseur de matrice diélectrique ce qui provoque une élévation de la valeur des modules de l'impédance  $|Z|$ . Les résultats de mesure IE sur les échantillons  $[0^{\circ}_{16}]$  présentent des résultats inversés en termes de valeurs de  $|Z|$  comparés aux résultats de l'étude précédentes sur les stratifiés T700/M21.

Il serait important par la suite de vérifier le comportement des signatures IE dans le cas de stratifiés UD plus épais et également de tester des configurations non unidirectionnelles, quasi-isotrope (QI) par exemple. Tout ceci permettra – du moins nous le supposons – d'amener des conclusions plus fermes sur la relation entre le module de l'impédance mesuré  $|Z|$  et les nombres de plis des stratifiés.

### 3.3.3.3 Echantillons $[0^{\circ}_1]$

L'évolution de  $|Z|$  et de  $\theta$  à différentes fréquences pendant la polymérisation est présentée dans la Figure 118. Les mesures ont été faites sur la plus grande distance en configuration DT (Figure 101 et Figure 120). Par rapport aux échantillons de stratifiés, l'échantillon monopli présente des valeurs de  $|Z|$  pendant la cuisson entre 1000 et 4500 ohms (contre quelques dizaines d'ohm pour les stratifiés), et  $\theta$  présente également

des caractéristiques capacitives dans la bande des hautes fréquences ( $\theta$  vers  $-30^\circ$  à la  $f=50\text{kHz}$ ). Ceci confirme l'effet de la stratification détecté au paragraphe précédent.

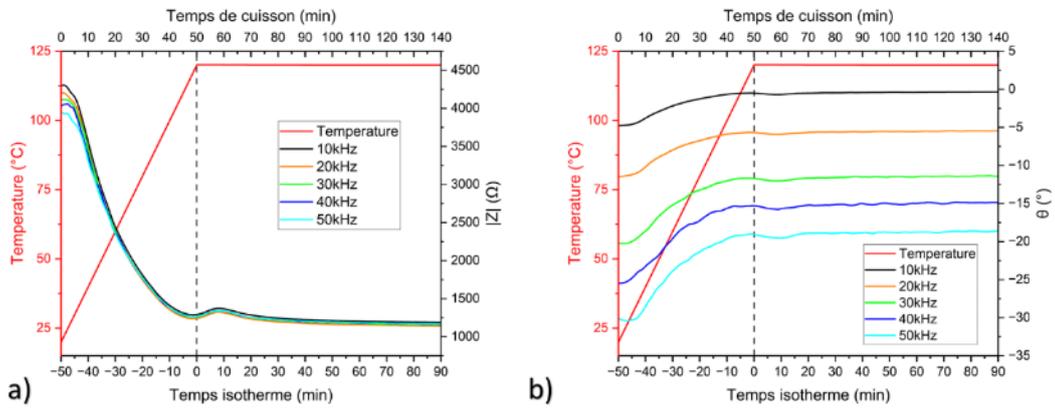


Figure 118 Réponses en fréquence en  $|Z|$  (a) et  $\theta$  (b) du  $[0^\circ_1]$  dans la direction DT

Cependant, la forme et la tendance des signatures IE de l'échantillon  $[0^\circ_1]$  sont identiques par rapport à celles des stratifiés  $[0^\circ_8]$  et  $[0^\circ_{16}]$ . Elles permettent d'identifier les points critiques en utilisant toujours les mêmes méthodes (Figure 119). PG, PV et PF de  $[0^\circ_1]$  sont en retard de quelques minutes par rapport à ceux des stratifiés  $[0^\circ_8]$ .

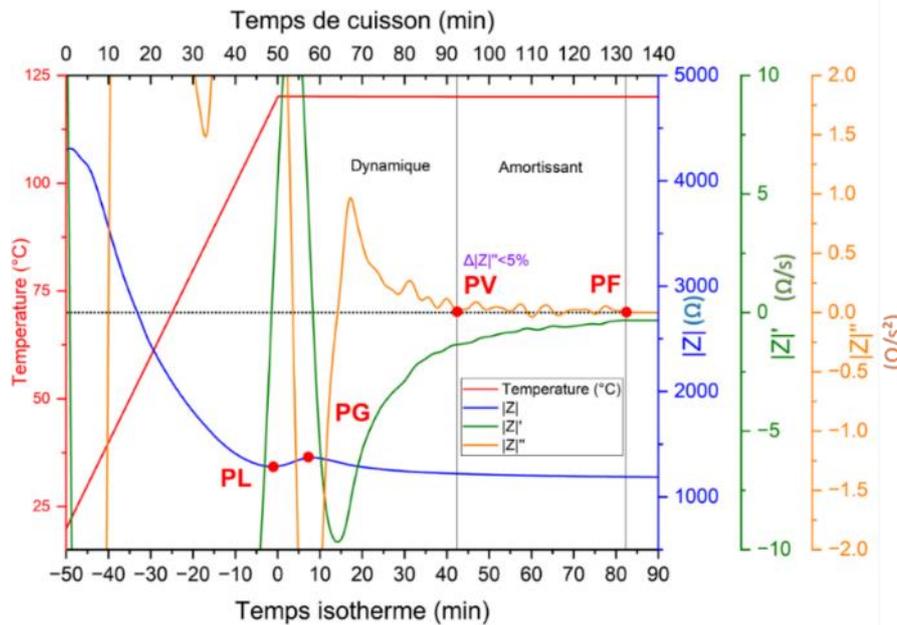


Figure 119 Points critiques PL, PG, PV et PF identifiés par IE sur les échantillons NC66/NA1808  $[0^\circ_1]$ ,  $|Z|$  mesuré à 10kHz dans le sens DT

Points critiques	$[0^{\circ}_8]$ (min)	$[0^{\circ}_1]$ (min)	$[0^{\circ}_{16}]$ (min)
PL	$-0.25 \pm 0.06$	$-0.09 \pm 0.51$	$-1.55 \pm 0.08$
PG	$6.91 \pm 0.05$	$8.50 \pm 0.32$	$4.50 \pm 0.07$
PV	$36.88 \pm 0.63$	$42.5 \pm 0.79$	$33.62 \pm 0.43$
PF	$76.13 \pm 0.71$	$82.5 \pm 0.66$	$68.51 \pm 0.85$

Tableau 33 Identification des points critiques du stratifié  $[0^{\circ}_{16}]$  de NC66/NA1808 par IE et comparaison avec les résultats sur les  $[0^{\circ}_8]$  et les  $[0^{\circ}_{16}]$

Ensuite, un réseau d'électrodes identiques placé aux nœuds A à H est soudé aux deux bords latéraux de l'échantillon monopli pour faire les mesures post-cuisson (Figure 120) puis vérifier la loi géométrique sur la conduction électrique dans le CFRP cuit. Chaque bord latéral de l'échantillon comporte 4 électrodes, qui sont équidistantes de 50mm. Les résultats de mesures IE sont donnés dans le Tableau 34.

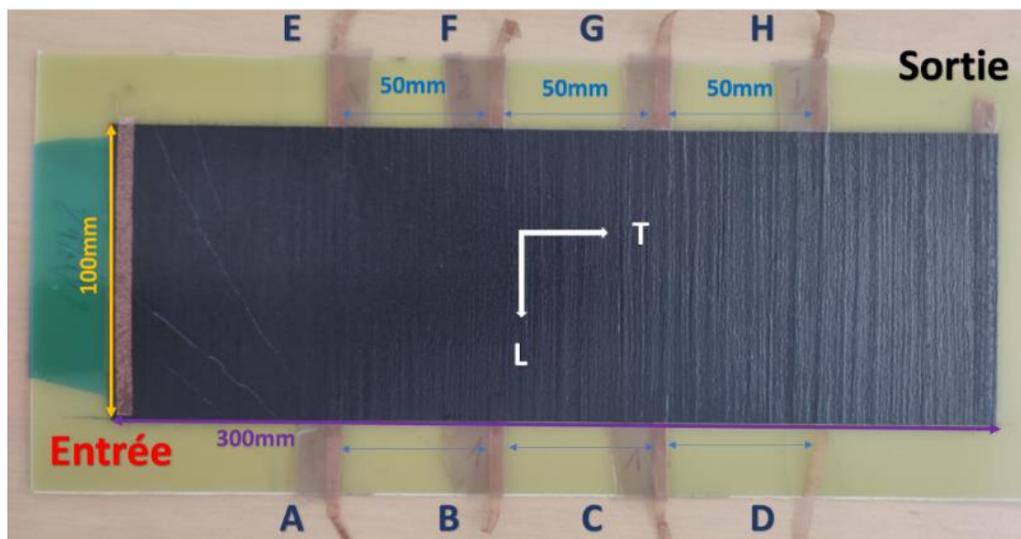


Figure 120 Configuration d'électrodes sur un échantillon de monopli de prepreg NC66/NA1808

$ Z $ ( $\Omega$ ) entre 2 nœuds avec $f=10$ kHz	A	B	C	D	E	F	G	H
A	X	X	X	X	X	X	X	X
B	202,21	X	X	X	X	X	X	X
C	405,76	201,23	X	X	X	X	X	X
D	603,32	402,3	188,46	X	X	X	X	X
E	2,26	204,59	418,51	609,28	X	X	X	X
F	204,94	2,75	214,68	405,47	201,65	X	X	X
G	417,92	215,19	2,19	192,08	401,16	202,47	X	X
H	607,35	404,58	191,22	2,79	605,23	403,21	186,71	X

Tableau 34 Résultats des mesures IE sur un monopli NC66/NA1808 cuit selon différentes les configurations : conduction longitudinale horizontale en bleue, transversale horizontale en jaune et diagonale horizontale en vert

Selon la Figure 118 et la Figure 119, la valeur de  $|Z|$  de l'échantillon monopli  $[0^\circ_1]$  dans le sens DT à la fin de cuisson est de  $1200\Omega$ . La mesure est faite via les électrodes d'entrée (en rouge) et de sortie (en noire) dans la Figure 120. La loi de conduction électrique en série  $|Z|_{\text{Diagonale}} = |Z|_{\text{Longitudinale}} + |Z|_{\text{Transversale}}$  est vérifiée. Dans le sens transversal, la valeur  $|Z|$  est proportionnelle à la distance et la linéarité de conduction électrique est vérifiée. Ceci peut être utilisé pour le suivi de cuisson mais également le SHM de structures de grande taille : modélisation du comportement IE, choix du placement des électrodes, etc.

### 3.3.3.4 Défauts de cuisson

La détectabilité des défauts pendant la polymérisation est étudiée à l'aide de deux tests différents : une absence de vide et une interruption du cycle de polymérisation pendant quelques minutes.

Pour l'essai d'absence de vide, un échantillon de CFRP  $[0^\circ_8]$  a été placé à l'extérieur du sac à vide. Les changements de  $|Z|=f(t)$  à 10 kHz dans la direction DT ont été mesurés et comparés à ceux d'un autre échantillon  $[0^\circ_8]$  placé à l'intérieur du sac à vide pendant le même cycle de polymérisation (Figure 121). Les deux échantillons ont la même valeur initiale  $|Z|$  au début de la polymérisation. L'absence de vide affecte de manière significative le comportement global de  $|Z|$ , en particulier avant la phase de vitrification.

Il montre un comportement complètement différent en  $|Z|$  dans la phase de liquéfaction, certainement en raison d'un manque d'écoulement de la résine et d'un réseau de percolation des fibres de carbone dégradé. A la fin de la polymérisation, la valeur finale de  $|Z|$  est presque le double de la valeur normale. PL et PG ne peuvent pas être détectés comme d'habitude et après avoir traversé PV, la tendance en  $|Z|$  des deux laminés commence à converger jusqu'à la fin de la cuisson. Les courbes  $|Z|'$  des deux échantillons sont données pour mettre cela en évidence dans la Figure 122.

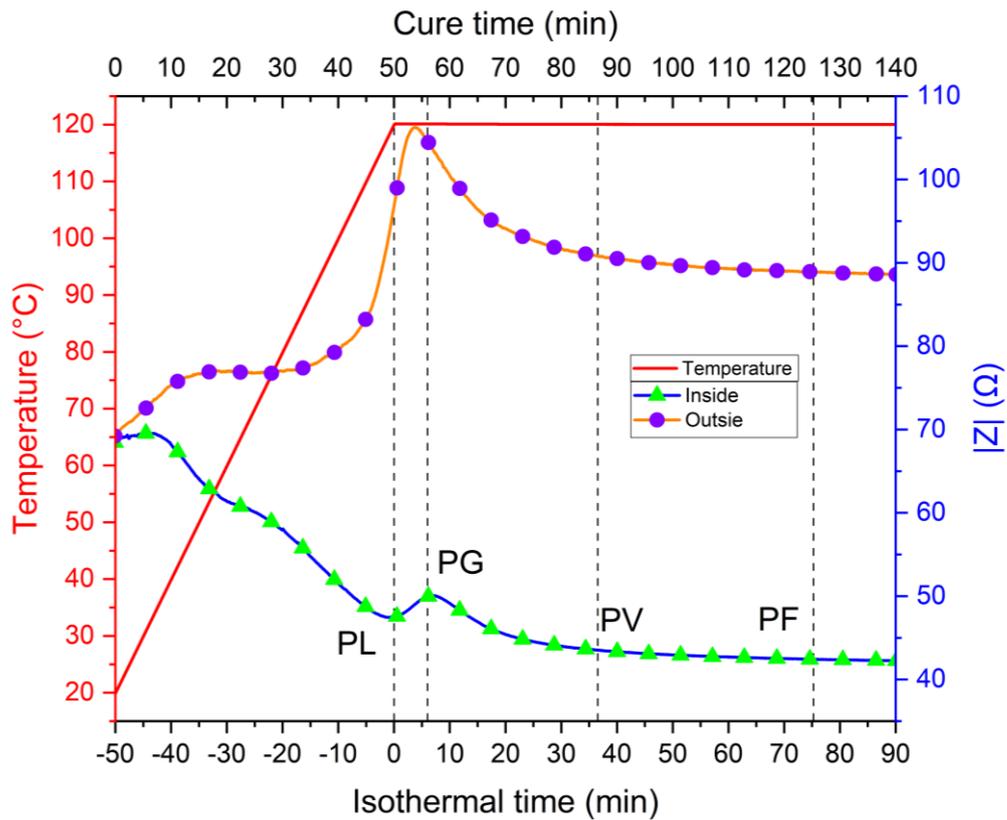


Figure 121 Mesure de  $|Z|$  à 10 kHz dans la direction DT sur des échantillons de CFRP  $[0^\circ_8]$  placés à l'extérieur et à l'intérieur du sac à vide pendant le même cycle de polymérisation

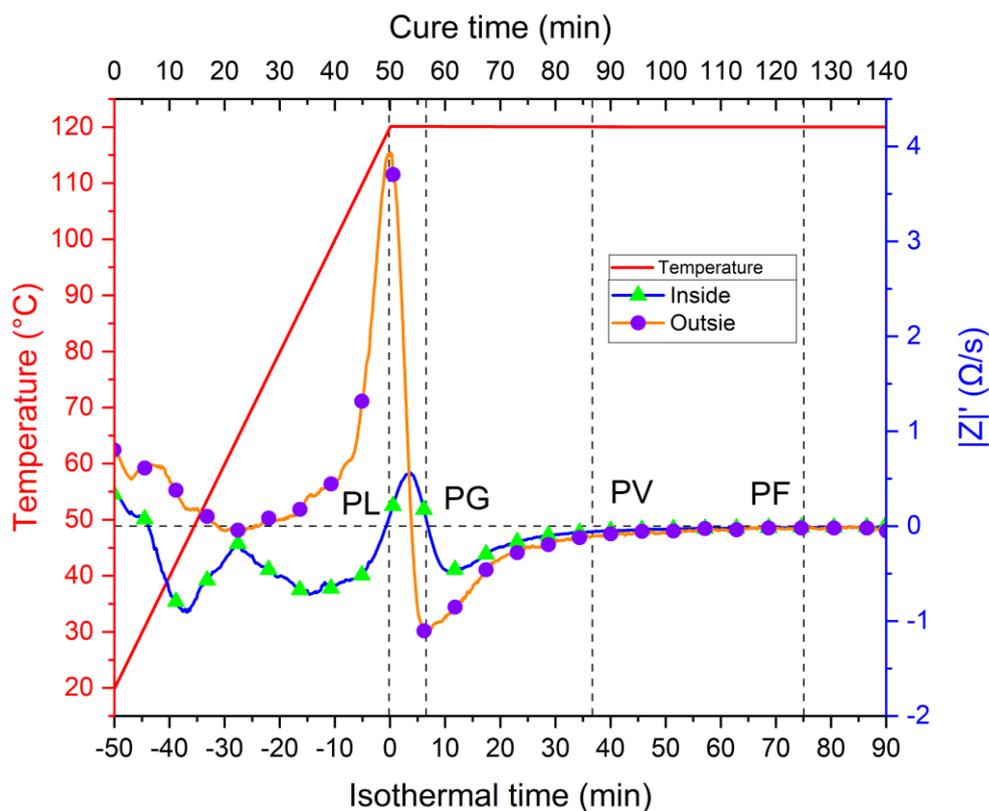


Figure 122 Mesure de  $|Z|'$  à 10 kHz dans la direction DT sur des échantillons de CFRP  $[0^{\circ}_8]$  placés à l'extérieur et à l'intérieur du sac à vide pendant le même cycle de polymérisation

Pour l'arrêt dans le cycle de polymérisation, le cycle de polymérisation a été interrompu 14 minutes avant le temps d'arrivée de l'isotherme pendant 4 minutes, puis relancé. Deux séquences d'empilement différentes ont été utilisées ici : les échantillons  $[0^{\circ}_8]$  et  $[0^{\circ}_{16}]$ . Comme la montre la Figure 123, l'interruption a induit un retard pour PL et PG. D'un point de vue général, l'interruption de la polymérisation avant PG ne modifie pas le comportement global de la courbe en  $|Z|$  et n'entraîne pas de valeurs anormales, mais se traduit simplement par un délai temporel.

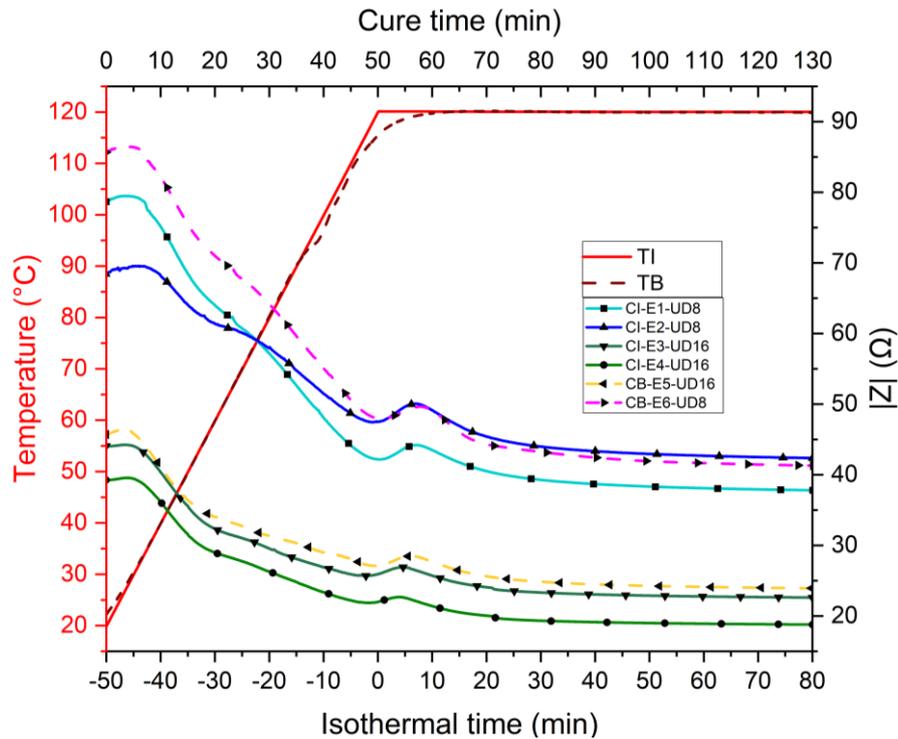


Figure 123 Comparaison des mesures en  $|Z|$  à 10 kHz dans la direction DT pour des cycles normaux (CI) et un cycle avec 4 minutes d'arrêt (CB), avec la température normale du four TI et la température de rupture CB

Tableau 35 donne PL et PG obtenus pour les échantillons testés. Un retard de l'ordre de 60 s est obtenu pour les échantillons  $[0^{\circ}_8]$  et de l'ordre de 80 s pour les échantillons  $[0^{\circ}_{16}]$ .

Échantillons	PL (temps isotherme)	PG (temps isotherme)
CI $[0^{\circ}]_8$	-18s	430s
CB $[0^{\circ}]_8$	41s	484s
CI $[0^{\circ}]_{16}$	-95s	270s
CB $[0^{\circ}]_{16}$	-15s	360s

Tableau 35 Détection de délai du cycle de cuisson par IE, avec CI cycle de polymérisation normal et CB cycle de polymérisation avec interruption

En conclusion, l'approche proposée utilisant notre méthodologie IE permet de détecter à la fois l'absence de vide et l'interruption du cycle de cuisson par création de signatures typiques ou le décalage temporel dans des points critiques dans une signature proche d'une signature de référence.

### 3.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons proposé une approche spécifique, basée sur l'impédancemétrie électrique, pour assurer le suivi de la polymérisation de CFRP à l'aide d'un nouveau banc créé au sein du laboratoire, utilisant des modules PmodIA, développés à cet effet.

Différents échantillons (quelques mg), de préimprégnés NC66/NA1808 et de résine NA1808 non-renforcée, ont été analysés thermiquement et rhéologiquement pour mettre en évidence les transitions physico-chimiques de la résine au cours d'un cycle spécifique de polymérisation. Les quatre points critiques principaux ont été identifiés pour permettre une comparaison avec l'approche IE : le point de liquéfaction (PL), le point de gélification (PG), le point de vitrification (PV) et la fin de la réaction (PF). Des échantillons de stratifiés (100 cm<sup>2</sup> de surface) et de résine non-renforcée (environ 1 g) ont été cuits en étuve et les mesures IE ont été effectuées en utilisant le même cycle de polymérisation. Des électrodes en cuivre ont été utilisées pour accéder au matériau utilisé ici en tant que capteur de son propre état, sans aucun changement significatif dans le processus global de la fabrication (compactage et mise sous vide).

Les résultats IE ont été analysés en tenant compte des changements dans le module d'impédance  $|Z|$  et l'argument  $\theta$ , en prenant en compte les informations locales et globales données par les dérivées premières et secondes par rapport au temps, et en utilisant l'approche de construction d'asymptotes. Les résultats obtenus mettent en évidence une bonne concordance dans la définition de PL, PG, PV et PF.

Quelques écarts temporels dans la définition de ces points entre les échantillons de DSC et de suivi de cuisson en étuve par IE sont attribués à la différence de taille des échantillons et à l'effet potentiel d'inertie thermique du cycle en étuve. A ceci s'ajoute l'effet de la présence des fibres de carbone entre échantillons de résine non-renforcée et de préimprégnés.

Les formes et tendances globales des résultats présentés sont également en accord avec celles obtenues précédemment sur des échantillons T700/M21 à l'aide du premier banc utilisant un analyseur d'impédance Hioki IM3570. Cela nous permet de penser que l'approche proposée pourrait définir des signatures typiques sur CFRP, ce qui faciliterait

le suivi de cuisson. En outre, la faisabilité de la détection des défauts pendant le cycle de polymérisation a été démontrée à l'aide de deux tests différents : une rupture de vide et une interruption de quelques minutes au cours de la polymérisation. Une signature électrique complètement différente a été obtenue dans le premier cas et un décalage dans le domaine temporel a été mis en évidence dans le second.

Comme les électrodes en cuivre peuvent rester dans la structure CFRP après la fin de cuisson, l'approche proposée peut être utilisée pour la surveillance de structures en service afin de répondre à un objectif de SHM. De plus, comme le matériau est fonctionnalisé, il peut être utilisé comme un actionneur pour le contrôle non-destructif et actif (par exemple la tomographie infrarouge et le dégivrage). Ainsi, pour compléter notre approche de la méthodologie IE appliquée au SHM, une modélisation thermique-électrique-mécanique optimisée sera développée dans le cadre d'une étude plus approfondie. Un matériau virtuel sera conçu pour décrire les changements du matériau non seulement pendant la polymérisation mais aussi pendant le chargement mécanique. En outre, les résultats expérimentaux et numériques seront discutés dans le cas d'une bonne concordance et une approche inverse pourrait être proposée à des fins d'optimisation des matériaux et des processus. Ces contenus seront abordés et discutés aux chapitre 4 et 5 de la thèse.

**Chapter 4 Modélisation du comportement physico-chimique  
et électrique du matériau CFRP en cours de cuisson**

## 4.1 Introduction

Ce chapitre est une présentation de la modélisation du comportement physico-chimique et électrique du matériau CFRP en cours de cuisson (visant une application potentielle également en service).

Dans la première partie, nous proposons une modélisation de la cinétique de polymérisation du préimprégné NC66/NA1808 et de la résine NA1808 non-renforcée. Un bon accord est obtenu entre les résultats de la simulation (développée sous Matlab) et les résultats des essais en DSC. Ensuite, les courbes du degré d'avancement de la réaction et de ses dérivées sont corrélés avec les courbes de  $|Z|(t)$  et de  $\theta(t)$  en cours de cuisson. Ceci permet de proposer des lois de corrélation physico-chimique et électrique pour décrire la cinétique de la polymérisation à partir des résultats de mesure IE.

Dans la deuxième partie, une modélisation géométrique, à l'échelle mésoscopique (au niveau du pli) a été développée, afin d'établir une corrélation entre le comportement électrique du matériau et certains paramètres géométriques liés notamment à la microstructure (fraction volumique de fibres, distances de percolation et ondulation des fibres). La conductivité électrique (approche résistive développée ici) d'une structure en CFRP dépend notamment du réseau de percolation des contacts inter-fibres qui varie à cause des changements géométriques et mécaniques en cours de cuisson ou en service. Un modèle électrique de type DKMC (Discret Kirchhoff–Monte Carlo) permettant de déterminer de façon discrète la distribution de la tension au niveau de chaque nœud de fibres (pour des configurations théoriques de distribution de fibres) est proposé.

## 4.2 Modélisation de la cinétique de polymérisation

Différents types de modélisations de la cinétique de polymérisation des thermodurcissables existent dans la littérature : modèle d'ordre  $n$  (1), modèle autocatalytique (2), modèle autocatalytique de Kamal-Sourour (3) avec constantes cinétiques suivant une loi d'Arrhenius (Tableau 36) [12].

Models	Equations
1. $n^{th}$ order reaction	$\frac{d\alpha}{dt} = k(1 - \alpha)^n$
2. Autocatalytic reaction	$\frac{d\alpha}{dt} = k\alpha^m(1 - \alpha)^n$
3. $n^{th}$ order + autocatalytic reaction	$\frac{d\alpha}{dt} = (k_1 + k_2 \alpha^m)(1 - \alpha)^n$
Arrhenius dependent rate constant	$k_i(T) = A_i e^{-\frac{E_{a_i}}{RT}}$

Tableau 36 Modèles cinétiques couramment utilisés et leurs expressions fonctionnelles [12]

Parmi ces différents modèles, les modèles phénoménologiques, qui décrivent la réaction de polymérisation de façon globale (sans entrer dans la complexité du suivi de chaque réaction chimique) nous intéressent plus particulièrement dans cette étude. Il n'est pas nécessaire de connaître la composition chimique exacte de la résine pour suivre le comportement global de la réaction. Dans la gamme des modèles phénoménologiques, le modèle de Kamal-Sourour [104] est pertinent pour décrire une réaction autocatalytique (la courbe  $\alpha(t)$  sous forme de la fonction sigmoïde), cas de la résine époxy NA1808.

Nakouzi et al. [105] ont proposé une modélisation de la cinétique de polymérisation du système époxy/amine en utilisant les paramètres de réaction  $k_1$  et  $k_2$ , afin de décrire les trois étapes de la réaction d'un système époxy/amine. Le paramètre  $k_1$  concerne la vitesse de la réaction entre une molécule d'époxy et une d'amine primaire et  $k_2$  concerne celle entre un groupe d'alcool-amine secondaire avec une molécule d'époxyde. Cette dernière réaction produit une molécule avec un groupe amine tertiaire et deux groupes alcool secondaire (Figure 124).

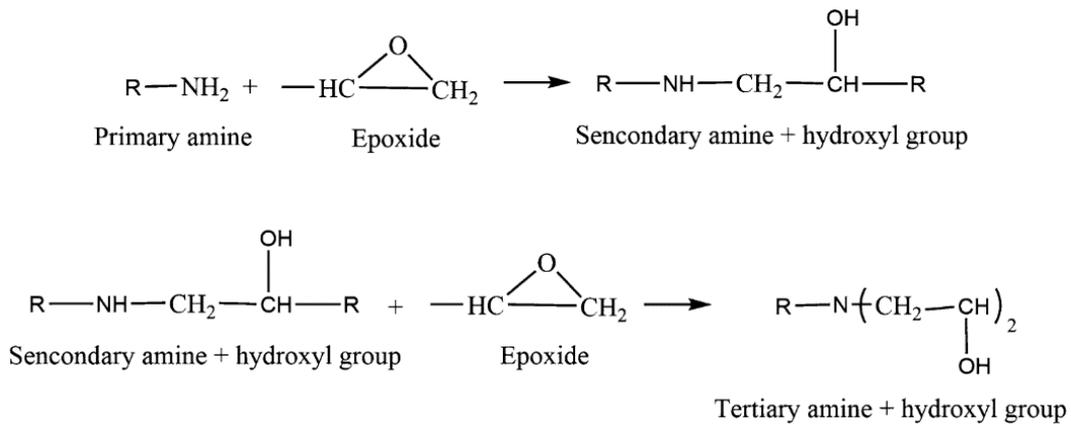


Figure 124 Une réaction de polymérisation du système époxy/amine [106]

Dans ce contexte, la relation entre le degré d'avancement  $\alpha$  et la vitesse de réaction peut être décrit par l'équation Eq. 28. Les valeurs de  $k_1$  et  $k_2$  dépendent de la température selon une loi d'Arrhenius (Eq. 29).

$$\frac{d\alpha}{dt} = (k_1 + k_2\alpha^m) (1-\alpha)^n \quad \text{Eq. 28}$$

$$k_i = A_i \exp\left(-\frac{E_i}{RT}\right) \quad \text{Eq. 29}$$

Avec  $m$  et  $n$  les facteurs partiels,  $A_i$  un facteur pré-exponentiel,  $E_i$  une énergie d'activation et  $R$  la constante universelle des gaz parfaits.

Nous avons donc utilisé le modèle de Kamal-Sourour pour modéliser la cinétique de polymérisation du stratifié [0°<sub>8</sub>] de NC66/NA1808 et de la résine NA1808 non-renforcée. Pour déterminer les paramètres du modèle, le degré d'avancement  $\alpha$  et la vitesse de réaction  $\frac{d\alpha}{dt}$  ont été déterminés sur la base d'essais en DSC. Les trois étapes de polymérisation d'un système époxy/amine peuvent être identifiées à partir de la courbe  $\frac{d\alpha}{dt}$  (Figure 125).

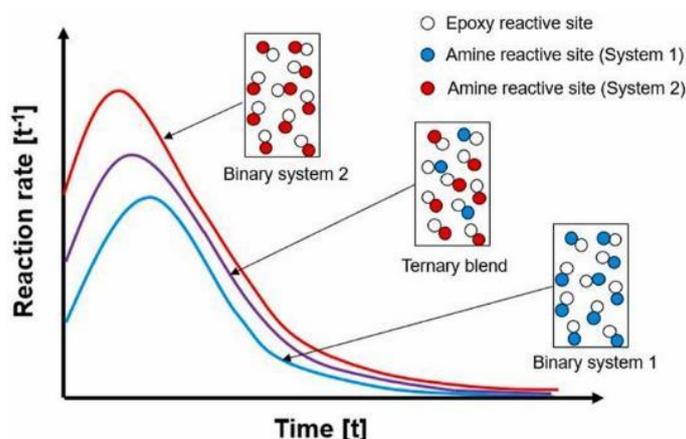


Figure 125 Trois états de la polymérisation d'un système époxy/amine sur la courbe de la vitesse de réaction  $\frac{d\alpha}{dt}$  obtenue par essai en DSC [107]

#### 4.2.1 Modélisation cinétique à l'aide des résultats des essais en DSC

Nous avons utilisé le logiciel de calcul numérique MATLAB avec le solveur ODE45 (Équation Différentielle Ordinaire) en utilisant la méthode explicite Runge-Kutta, afin de simuler la cinétique de la polymérisation de la résine NA1808 non-renforcée. L'algorithme utilisé est détaillé en Annexe-vi.

Pour différents isothermes (100°C, 110°C, 120°C, 130°C et 140°C) appliqués en DSC, les vitesses de réaction  $k_1$ ,  $k_2$  et les exposants  $m$  et  $n$  sont estimés à l'aide de la résolution sous Matlab et présentés dans le Tableau 37.

Température (°C)	$k_1(s^{-1})$	$k_2(s^{-1})$	$m$	$n$
100	3.05E10 <sup>-5</sup>	6.80E10 <sup>-4</sup>	0,753	2.033
110	1.27E10 <sup>-5</sup>	9.75E10 <sup>-4</sup>	0,52	2.05
120	8.67E10 <sup>-5</sup>	2.33E10 <sup>-3</sup>	0,628	3.031
130	8.16E10 <sup>-4</sup>	6.21E10 <sup>-3</sup>	0,909	3.105
140	1.53E10 <sup>-3</sup>	1.39E10 <sup>-2</sup>	1.003	3.949

Tableau 37 Paramètres cinétiques estimés à l'aide de MATLAB de la résine NA1808 pour chaque température isotherme

A partir de l'équation Eq. 29, nous pouvons tracer les courbes des logarithmes népériens des  $k_i=f(\frac{1}{T})$ , afin de déterminer les paramètres des énergies d'activations  $E_i$  et des

facteurs pré-exponentiels  $A_i$  de la résine NA1808 (Figure 126).

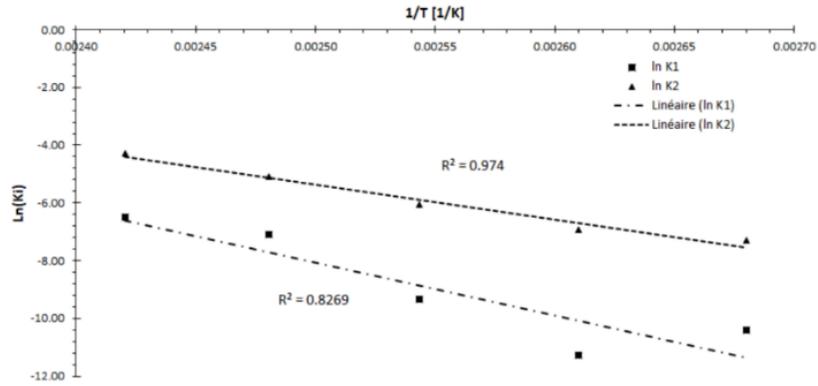


Figure 126 Résultats de la régression linéaire de  $\ln(k_i)$

Les paramètres  $m$  et  $n$  en fonction de température sont présentés sur la Figure 127 et le Tableau 38. On remarque que les coefficients de corrélation  $R^2$  sont supérieurs à 90%.

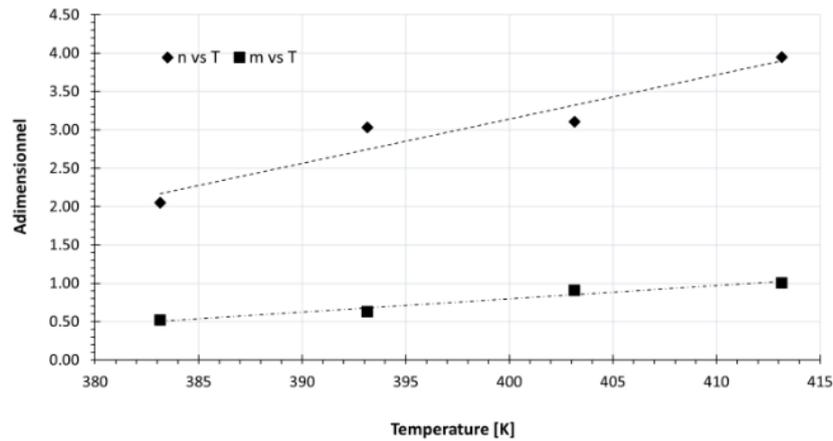


Figure 127 Paramètres cinétiques  $m$  et  $n$  en fonction de la température

Paramètre	Valeurs	
$k_1$ [1/s]	$\ln(k_1) = -18349(1/T)[K] + 37.811$	$R^2 = 0.8269$
	$A_1 \cong 2.64 \text{ E}+16$ [1/s]	
	$E_1 \cong 152.6$ kJ/mol	
$k_2$ [1/s]	$\ln(k_2) = -12105(1/T) + 24.899$	$R^2 = 0.974$
	$A_2 \cong 6.65 \text{ E}+10$ [1/s]	
	$E_2 \cong 100.6$ kJ/mol	
<b>m</b>	0.7626	Moyenne
	$m = 0.0173T - 6.12$	$R^2 = 0.9582$
<b>n</b>	2.833	Moyenne
	$n = 0.049T - 16.38$	$R^2 = 0.9195$

Tableau 38 Paramètres cinétiques en fonction de la température

Ainsi, tous les paramètres cinétiques du modèle de Kamal-Sourour sont déterminés. Le degré d'avancement  $\alpha$  et la vitesse de réaction  $\frac{d\alpha}{dt}$  de la résine NA1808 non-renforcée sont présentés sur les Figure 128 et Figure 129 respectivement pour une comparaison essais-calculs.

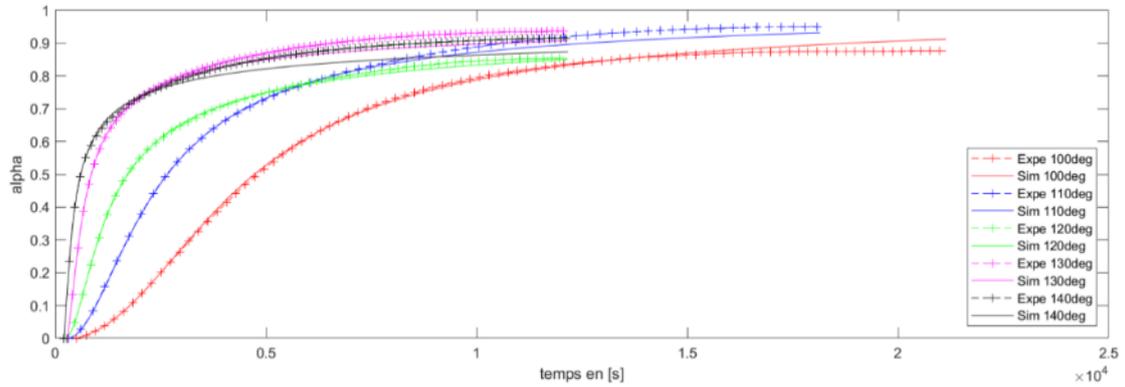


Figure 128 Comparaison entre les  $\alpha(t)$  modélisés (Sim) et expérimentaux (Exp) pour chaque température ( $^{\circ}\text{C}$ ) isotherme

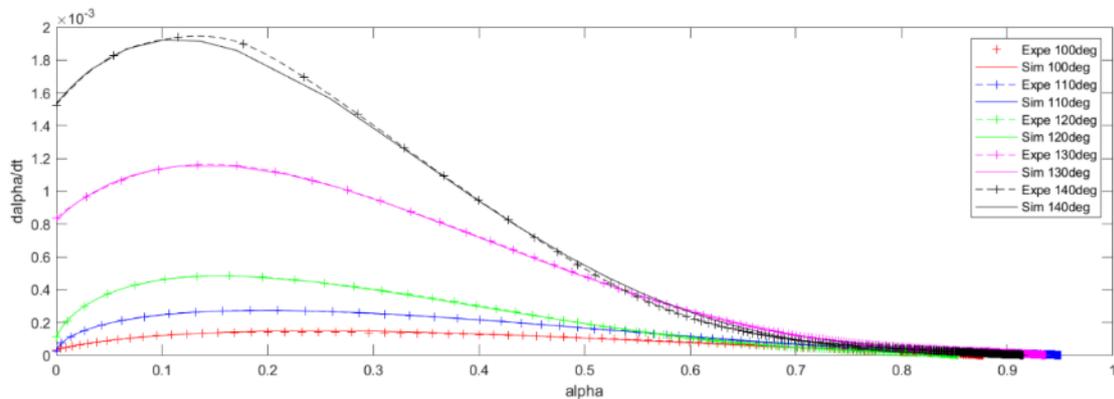


Figure 129 Comparaison de  $\frac{d\alpha}{dt}(\alpha)$  entre les modélisés (Sim) et expérimentaux (Exp) pour chaque température ( $^{\circ}\text{C}$ ) isotherme

D'après les résultats obtenus, la meilleure corrélation simulation-expérience apparaît à  $120^{\circ}\text{C}$ , température qui correspond au palier isotherme du cycle de cuisson appliqué pour la polymérisation de préimprégnés NC66/NA1808 dans le cadre de notre étude. Cette modélisation nous aide à mieux comprendre la cinétique de la polymérisation de la résine NA1808 dans le régime isotherme. Une étude plus approfondie pourrait compléter cette première approche pour étudier la partie dynamique mais la réaliser nous éloignerait de notre objectif principal qui est l'établissement de modèles.

## 4.2.2 Corrélation entre le degré d'avancement et les résultats de mesure IE

### 4.2.2.1 Etude préliminaire

Nous avons essayé de mettre en place une corrélation entre le comportement physico-chimique et électrique pendant la polymérisation de la résine à l'aide du degré d'avancement  $\alpha$ , de la vitesse de réaction  $\frac{d\alpha}{dt}$  et les résultats de mesure d'impédance électrique (IE) en cours de cuisson. Différentes grandeurs électriques comme l'impédance électrique  $\bar{Z}$ , la conductivité ionique  $\sigma$  (proportionnelle à l'inverse de la partie réelle de  $\bar{Z}$ ) et la permittivité diélectrique complexe  $\bar{\epsilon}$  peuvent être utilisés pour la modélisation de la cinétique.

Ainsi, Kazilas et al. [108] ont développé un modèle de cinétique sur la base de mesure IE pour prédire le degré d'avancement de la polymérisation de la résine RTM6. Ce système est produit par la société Hexcel Composite. Le maximum de la partie imaginaire de l'impédance électrique  $|Z|_{\text{image-max}}$  a été utilisé comme un indicateur de la réaction. Un spectre en  $|Z|$  de la résine a été établi à l'aide d'un balayage de fréquence et la valeur maximale du spectre à certains instants de la cuisson a été sélectionnée en tant que  $|Z|_{\text{image-max}}$ . La variation de  $|Z|_{\text{image-max}}$  dans les régimes isotherme et dynamique est présenté dans la Figure 130.

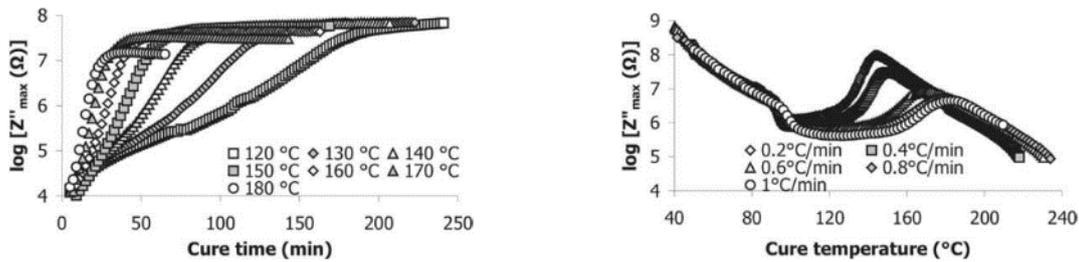


Figure 130 Evolution de  $|Z|_{\text{image-max}}$  en isotherme (a) et dynamique (b) de la résine RTM6 [108]

La variation de l'impédance électrique de la résine en cours de cuisson est liée à la température  $T$  et au degré d'avancement de la polymérisation  $\alpha$ . Ainsi, une loi de corrélation sous la forme d'équation aux dérivées partielles a été proposée afin de corréler la dérivée première de  $|Z|_{\text{image-max}}$  avec celles d' $\alpha$  et de la température (Eq. 30).

$$\frac{d(\log|Z|)}{dt} = (c_{11} + c_{12}T) \frac{d\alpha}{dt} + c_{12} \alpha \frac{dT}{dt} \quad \text{Eq. 30}$$

Avec  $c_{11}$  et  $c_{12}$  les coefficients de la relation logarithmique-linéaire.

Cette loi peut être appliquée non seulement dans le régime dynamique de cuisson mais aussi dans le régime isotherme. La bonne concordance (un coefficient de corrélation égal à 0,92) au niveau des dérivées premières entre les résultats d'essai en DSC ( $\frac{d\alpha}{dt}$ ) et le modèle ( $\frac{d(\log|Z|)}{dt}$ ) a démontré la faisabilité de la prédiction du degré d'avancement  $\alpha$  à partir des mesures d'impédance électrique (Figure 131).

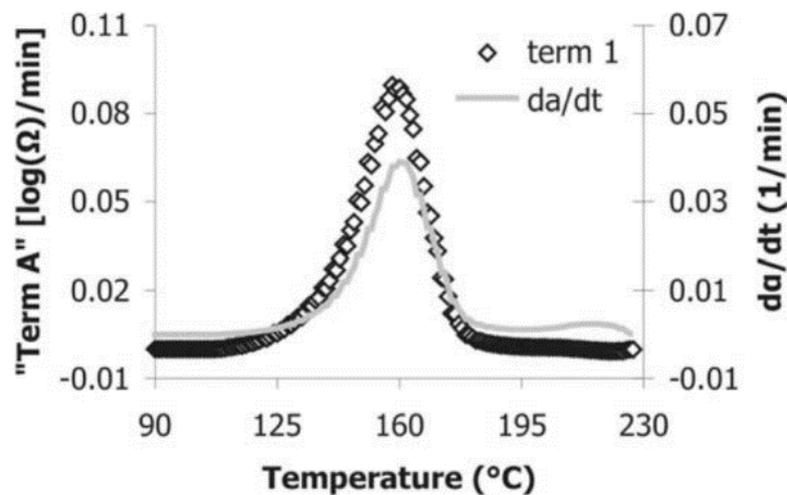


Figure 131 Comparaison entre la vitesse de réaction  $\frac{d\alpha}{dt}$  déterminée par DSC et  $\frac{d(\log|Z|)}{dt}$  de la résine RTM6 dans le régime dynamique, avec un coefficient de corrélation égal à 0,92 [108]

Ce modèle n'est pas applicable dans notre cas à cause des différences qu'il y a dans les comportements des matrices RTM6 [108] et NA1808 (notre matériau support) durant leur cycle de polymérisation. En effet, l'évolution globale du  $|Z|_{\text{image-max}}$  de la résine NA1808 pendant la polymérisation n'est pas monotone. La forme de  $\frac{d(\log|Z|)}{dt}$  (une fonction gaussienne) n'est pas similaire à celle de  $\frac{d\alpha}{dt}$  (Figure 132). Cependant, la méthodologie utilisée dans la modélisation reste éclairante pour notre étude. Du point de vue de l'analyse dimensionnelle, nous considérons  $\alpha$  et  $|Z|$  comme homogènes.

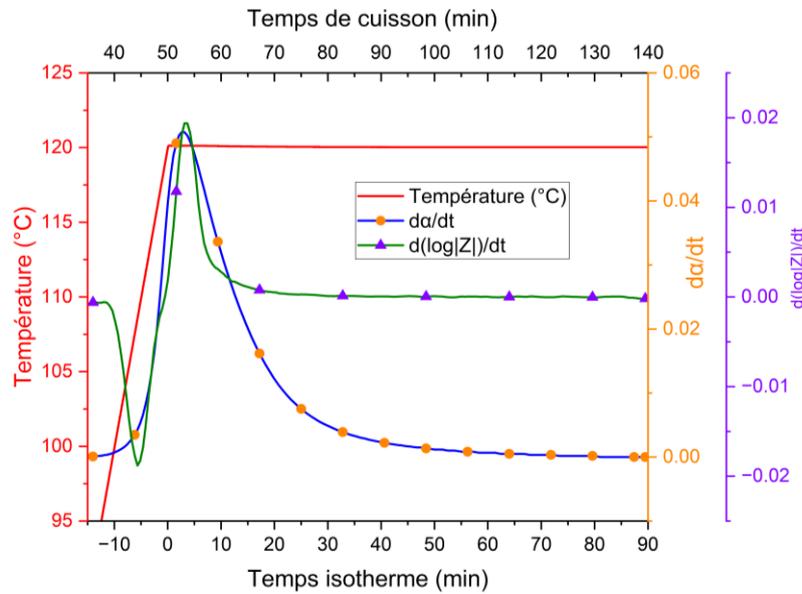


Figure 132 Comparaison entre la vitesse de réaction  $\frac{d\alpha}{dt}$  déterminée par DSC et  $\frac{d(\log Z)}{dt}$  de la résine NA1808 dans le cycle défini (dynamique plus isotherme)

De nombreuses lois de corrélation entre les comportements rhéologique et électrique ont été développées dans l'approche mise en place dans de précédents travaux de thèse à l'ICA. Sassi et al. [7] ont proposé de déterminer de manière empirique les différents paramètres rhéologiques ( $\mu$ ,  $G'$ ,  $G''$  et  $\tan\delta$ ) de stratifiés T700/M21, en se basant sur les mesures de composants électriques équivalents (R et C) en cours de cuisson (à l'étuve et à l'autoclave), comme montré dans le logigramme donné en Figure 133.

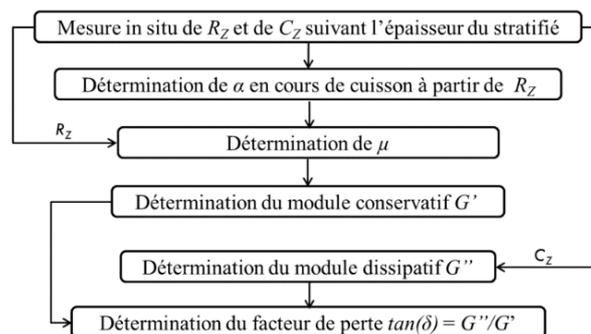


Figure 133 Logigramme du suivi des paramètres rhéologiques à partir des mesures électriques [7]

La conductivité ionique  $\sigma$  de la résine est souvent corrélée à  $\alpha$  et est proportionnelle à l'inverse de la résistance équivalente  $\frac{1}{R_z}$  mesurée dans la direction de l'épaisseur (Z). Par exemple, une corrélation empirique entre  $\alpha$  et  $\frac{1}{R_z}$  a été proposée et validée à l'aide du modèle Kamel-Sourour (Figure 134, Figure 135 et Figure 136) [7].

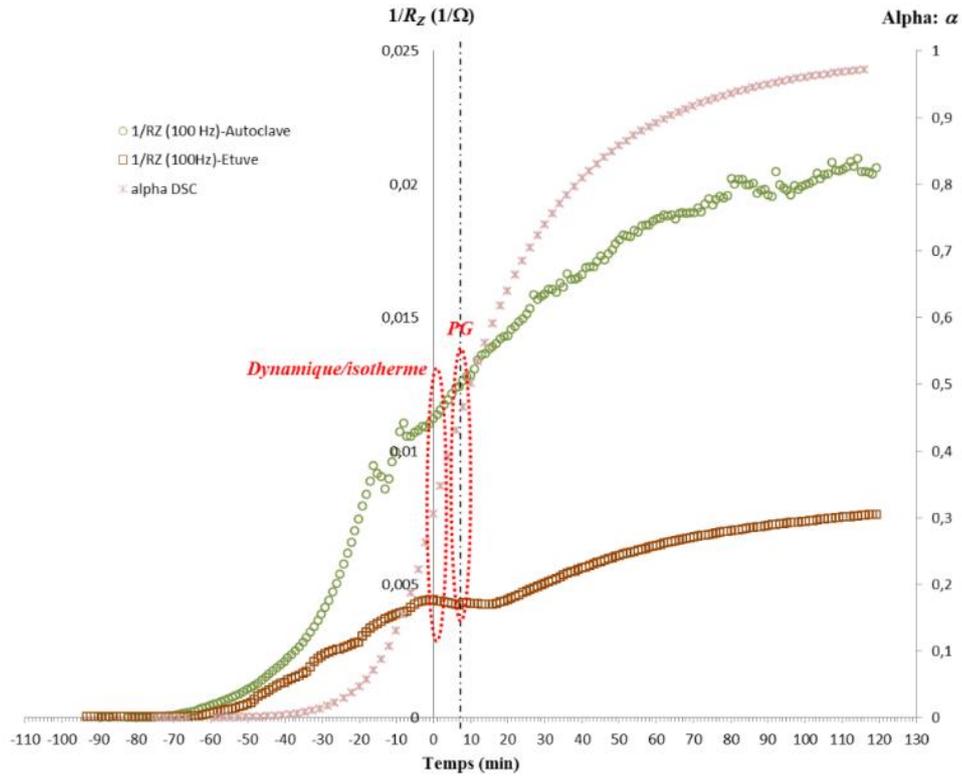


Figure 134 Variation d'  $\alpha$  et  $1/R_Z$  (à 100 Hz) en fonction du temps de cuisson à l'étuve et à l'autoclave [7]

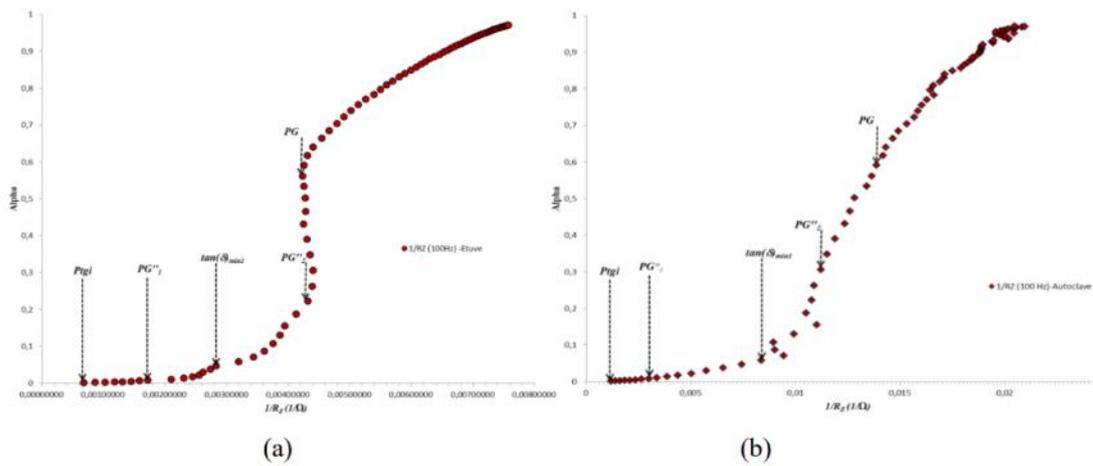


Figure 135 Corrélation entre  $\alpha$  et  $1/R_Z$  en cours de cuisson à l'étuve (a) et à l'autoclave (b) [7]

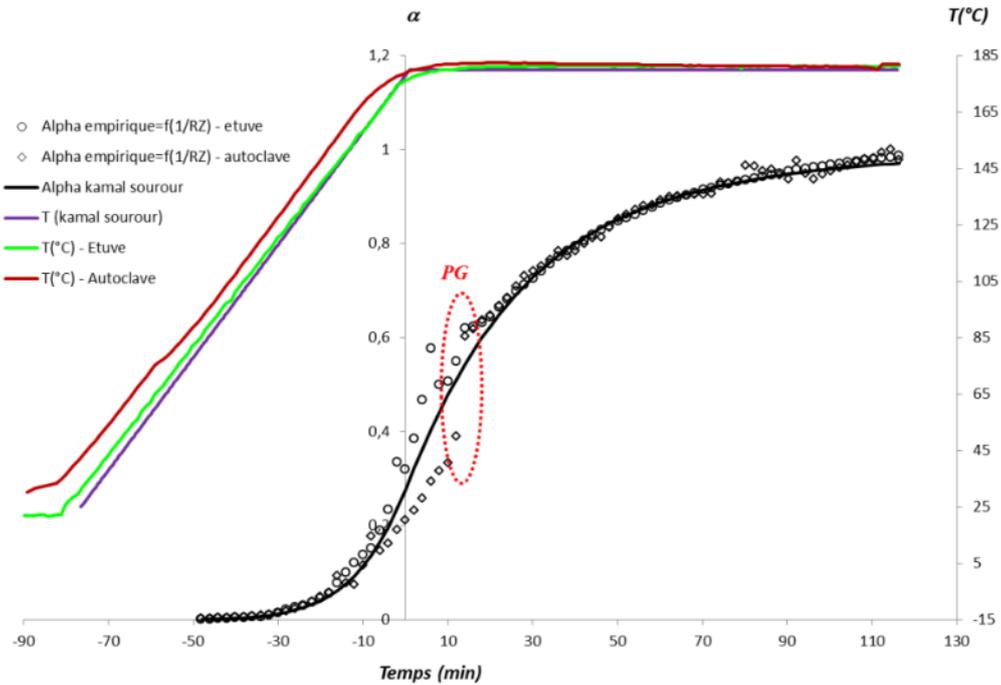


Figure 136 Variations de  $\alpha$  obtenues à partir des mesures de  $1/R_z$  à l'étuve et à l'autoclave en utilisant des lois empiriques et à partir du modèle de Kamal et Sourour [7]

Ainsi, les résultats obtenus montrent que  $\alpha$  et  $\frac{1}{R_z}$  peuvent être liés en utilisant des lois de type puissance avant PG et ceci indépendamment du cycle de cuisson.

$$\alpha = P \left( \frac{1}{R_z} \right)^q \quad \text{Eq. 31}$$

Avec P et q les paramètres à déterminer à partir des données expérimentales.

Ces résultats montrent que les tendances empiriques  $\alpha$  associées à la polymérisation en étuve et en autoclave encadrent les valeurs obtenues par le modèle cinétique de Kamal et Sourour. L'utilité des lois de corrélation partielles (avant et après le PG), en tenant compte du changement de phase de la résine M21 au fur et à mesure de la réaction de polymérisation, a été démontrée. Ainsi, la bonne concordance des résultats entre les mesures électriques ( $\frac{1}{R_z}$ ) et  $\alpha$  confirme la faisabilité d'utiliser  $\frac{1}{R_z}$  pour suivre in situ tout au long du cycle de cuisson l'avancement de la réaction de polymérisation  $\alpha$  sur la base de lois phénoménologiques simples prenant en compte l'état rhéologique de la résine époxy M21 [7].

Dans le cadre de notre étude, au lieu de calculer  $R_z$  et  $C_z$ , nous essayons de corréler

directement  $\alpha$  avec les résultats de mesure IE en  $|Z|$  et  $\theta$  sur le stratifié NC66/NA1808 et la résine NA1808. Les variations de  $|Z|$ ,  $\theta$ , R, C en cours de cuisson en étuve de stratifiés NC66/NA1808 [0°<sub>8</sub>] et de la résine NA1808 sont respectivement présentées dans les Figure 137 et Figure 138.

Dans le cas du stratifié, les courbes d'évolution de  $|Z|$  et de R sont strictement superposées tout au long du cycle de cuisson. Celles de C et de  $\theta$  sont quasi-parallèle à partir du point départ d'intégration du flux de chaleur pour calculer  $\alpha$  (vers -12min avant le point d'arrivée isotherme). Cependant, l'utilisation de C permet d'augmenter les amplitudes de pics localisés. Dans le cas de la résine, la forme de la courbe  $|Z|$  n'est plus identique à celle de R, mais leurs tendances globales sont quasi-identiques après PL. En revanche, la forme de la courbe de la capacité équivalente C est totalement différente de celle de  $\theta$  dans le stade autour de PL. Le point de départ (première valeur  $\alpha > 0$ ) et le PG sont plus évidents sur la courbe de C par rapport à celle de  $\theta$ . Dans le chapitre 3, nous avons analysé seulement les courbes  $|Z|(t)$ ,  $\theta(t)$  et leurs dérivées en fonction du temps afin d'identifier PL, PG, PV et PF. Cependant, le point de départ n'est pas détectable sans séparer la courbe C(t) à partir de  $|Z|(t)$  et  $\theta(t)$  sur la base d'un modèle RC parallèle. La capacité équivalente C est proportionnelle à la permittivité diélectrique  $\epsilon$ . L'angle de perte diélectrique  $\delta$  est le complémentaire de l'argument  $\theta$  (Cf. Chapitre 1).

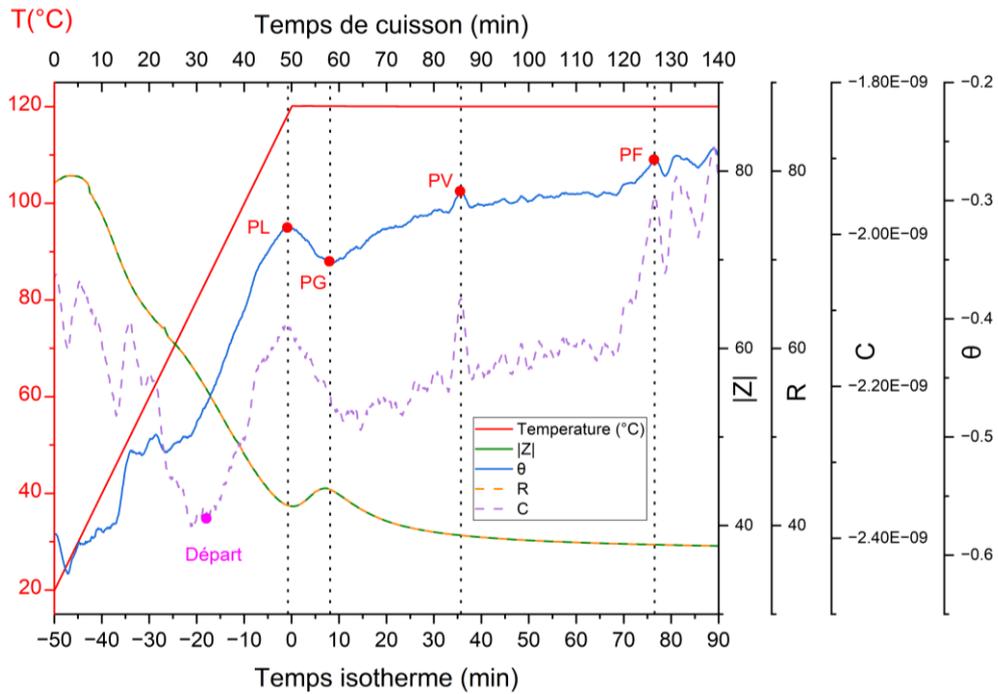


Figure 137 Variations de  $|Z|$ ,  $\theta$ , R et C dans le sens DT en cours de cuisson d'un stratifié  $[0^\circ_s]$   
NC66/NA1808

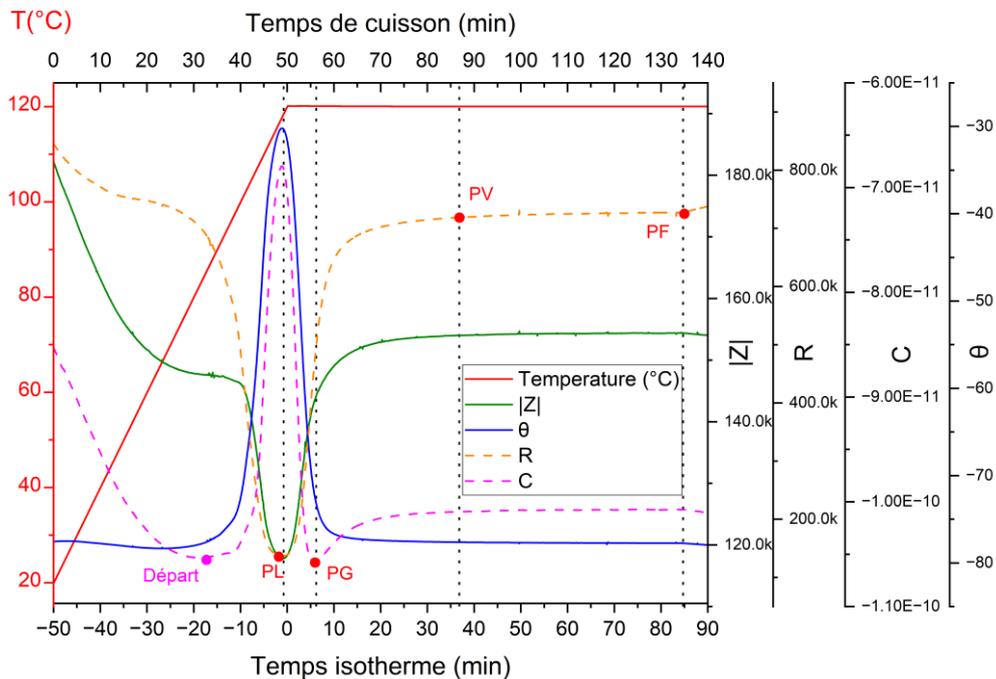


Figure 138 Variations de  $|Z|$ ,  $\theta$ , R et C dans le sens DT en cours de cuisson de la résine NA1808

#### 4.2.2.2 Lois de corrélation sur stratifié NC66/NA1808

Nous essayons ici de proposer des fonctions explicites qui représentent  $\alpha$  et ses dérivées pendant la polymérisation en utilisant les résultats de mesure IE (en  $|Z|$ ,  $\theta$  et leurs

dérivées par rapport au temps) à 10 kHz, afin de réaliser modélisation cinétique de polymérisation. Dans ce contexte, une analyse de corrélation entre les différentes variables doit être effectuée afin de déterminer les relations dimensionnelles entre ces dernières variables. Pour ceci, nous utilisons une approche statistique de type Pearson.

Le coefficient de Pearson  $r$  (Eq. 32) est un indice correspondant au degré de corrélation linéaire entre deux variables. Le coefficient varie entre -1 et +1. La valeur 0 correspond à une relation nulle entre les deux variables. Une valeur négative (corrélacion négative) signifie que lorsqu'une des variables augmente, l'autre diminue ; tandis qu'une valeur positive (corrélacion positive) indique que les deux variables varient ensemble dans le même sens. Si la valeur absolue de  $r$  est entre 0,6 et 0,8, la corrélation existe potentiellement et si elle est supérieure à 0,8, la corrélation entre les deux variables testées est considérée comme suffisamment élevée pour exprimer une relation explicite entre les variables étudiées.

$$r = \frac{\sum_{i=1}^n (X_i - \bar{X})(Y_i - \bar{Y})}{\sqrt{\sum_{i=1}^n (X_i - \bar{X})^2} \sqrt{\sum_{i=1}^n (Y_i - \bar{Y})^2}} \quad \text{Eq. 32}$$

Avec  $\bar{X}$  et  $\bar{Y}$  les valeurs moyennes des variables  $X$  et  $Y$ .

Les résultats de mesure IE sur le stratifié [0°<sub>8</sub>] NC66/NA1808 en  $|Z|$ ,  $\theta$  et leurs dérivées forment le premier groupe de variables ( $X$ ). Les résultats des essais en DSC en  $\alpha$  et ses dérivées forment le second groupe de variables ( $Y$ ). Dans le Tableau 39, les coefficients de Pearson correspondant aux paires de variables présentant la plus forte corrélation sont indiqués en rouge souligné.

Coefficient de Pearson ( $r$ )	$\alpha$	$\alpha'$	$\alpha''$
$ Z $	<b><u>-0,92</u></b>	0,59	0,17
$ Z '$	0,54	0,14	-0,07
$ Z ''$	-0,51	-0,05	<b><u>0,84</u></b>
$\theta$	<b><u>0,80</u></b>	-0,58	-0,02
$\theta'$	-0,33	-0,33	0,08
$\theta''$	0,00	-0,03	-0,26

Tableau 39 Coefficients de corrélation Pearson ( $r$ ) entre les résultats des essais en DSC ( $\alpha$  et ses dérivées par rapport au temps) et les résultats de mesure IE ( $|Z|$ ,  $\theta$  et leurs dérivées par rapport au temps) du stratifié  $[0^\circ_8]$  NC66/NA1808

Nous décidons d'étudier l'expression des deux fonctions de corrélation suivantes :  $\alpha=f(|Z|)$ ,  $|Z|$  et  $\alpha$  sont homogènes ( $r = 0.92$ ) et  $\alpha''=f(|Z|'')$ ,  $|Z|''$  et  $\alpha''$  sont homogènes ( $r = 0.84$ ). En effet, comme  $|Z|$  et  $\theta$  ont une évolution corrélable (Cf. chapitre 3), nous conservons ici seulement  $|Z|$ .  $\theta$  et ses dérivées sont moins représentatives sur la corrélation avec  $\alpha$  car il existe plusieurs stades d'ondulation localisés (fonction explicite non possible dans ce cas) dans la courbe de  $\theta(t)$  autour du PV et du PF par exemple.

Cependant,  $|Z|(t)$  et  $|Z|''(t)$  ne sont pas monotones, il faut donc diviser leurs évolutions en plusieurs parties afin de faciliter la modélisation. Par exemple, la courbe  $|Z|(t)$  à partir du point de départ peut être divisée en 4 stades Si (Figure 139) :

1. du point de départ au PL,
2. du PL au PG,
3. du PG au PV,
4. du PV jusqu'à la fin de cuisson.

L'évolution de  $\alpha=f(|Z|)$  et celle de sa fonction réciproque sont données à la Figure 140 en tenant en compte ces 4 stades.

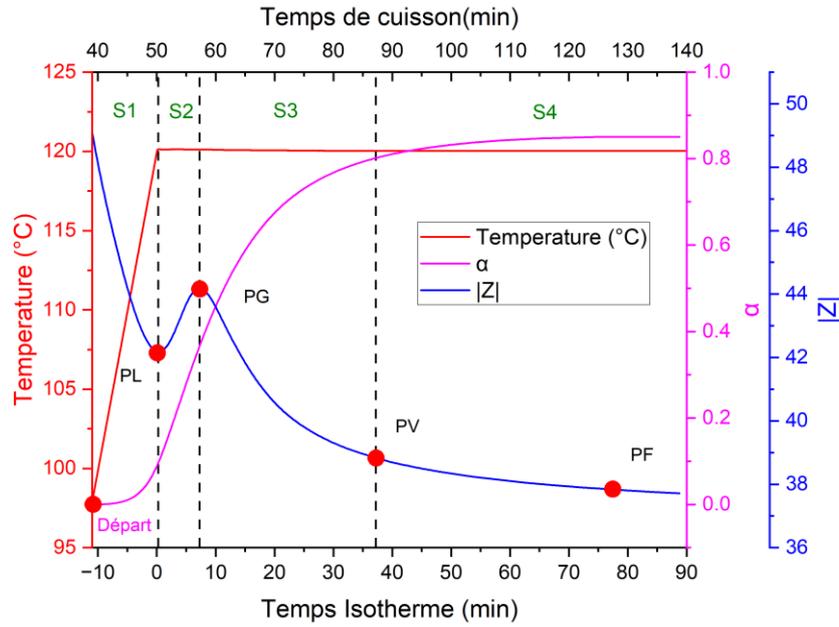


Figure 139 Division de  $|Z|(t)$  à 10 kHz dans le sens DT et  $\alpha(t)$  en 4 stades monotones pour le stratifié  $[0^{\circ}_8]$  NC66/NA1808

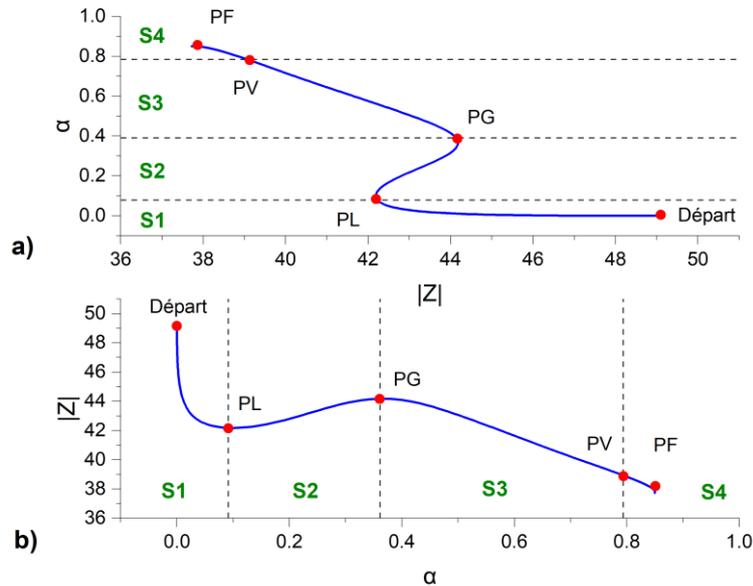


Figure 140 Fonction de corrélation globale  $\alpha=f(|Z|)$  à 10 kHz dans le sens DT et sa fonction de réciproque  $|Z|=f(\alpha)$  pour le stratifié  $[0^{\circ}_8]$  NC66/NA1808

L'approximation par des lois d'ajustement de  $\alpha=f(|Z|)$  pour les 4 stades est présentée dans la Figure 141.

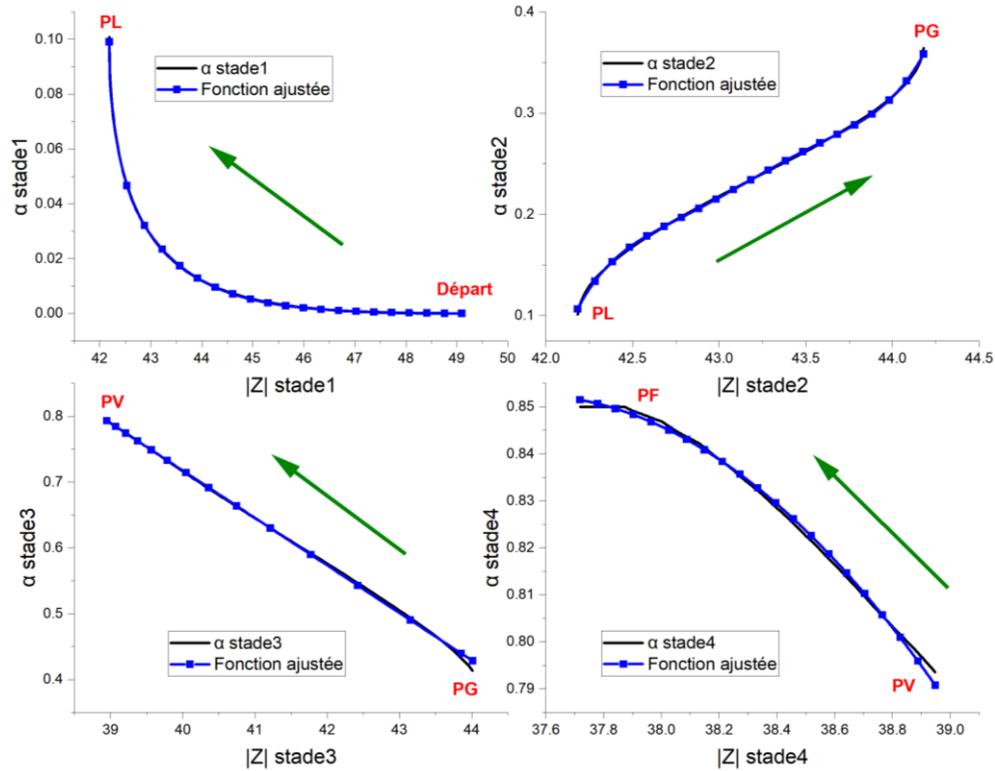


Figure 141  $\alpha=f(|Z|)$  à 10 kHz dans le sens DT (en noir) avec les fonctions d'approximation (avec carré bleu) pour les quatre stades monotones pour le stratifié  $[0^\circ_8]$  NC66/NA1808 (la direction de la réaction indiquée par la flèche)

Dans le stade 1,  $\alpha$  augmente rapidement lorsque  $|Z|$  diminue, et la tendance générale est conforme à une fonction exponentielle (Eq. 33). Cette décroissance de  $|Z|$  provient comme expliqué au chapitre 3, de la diminution de la viscosité  $\mu$  de la résine qui atteint un minimum autour du PL. La conduction ionique dans la résine est maximale. Ainsi,  $|Z|$  diminue jusqu'à PL.

$$\alpha = A_0 + A_1 * e^{-(|Z| - Z_{|0|})/t_1} + A_2 * e^{-(|Z| - Z_{|0|})/t_2} + A_3 * e^{-(|Z| - Z_{|0|})/t_3} \quad \text{Eq. 33}$$

Avec  $A_i$  et  $t_i$  des paramètres à déterminer.

Dans le stade 2,  $\alpha$  et  $|Z|$  augmentent ( $\mu$  la viscosité croît rapidement dans le stade de gélification). La mobilité ionique change car les monomères réagissent entre eux pour polymériser. Le temps de relaxation diélectrique augmente, la conductivité chute. De plus, les phénomènes de rotation dipolaire apparaissent et viennent accentuer ce phénomène. Ainsi, l'effet de la résine reste prédominant sur les fibres à ce stade et la conductivité globale du stratifié diminue.  $|Z|$  augmente de PL à PG.  $\alpha=f(|Z|)$  évolue de

façon polynomiale (de 3<sup>ème</sup> ordre ici, Eq. 34).

$$\alpha = B_0 + B_1 * |Z| + B_2 * |Z|^2 + B_3 * |Z|^3 \quad \text{Eq. 34}$$

Avec  $B_i$  des paramètres à déterminer.

Dans le stade 3, la vitesse d'augmentation de la viscosité de la résine diminue fortement, la rotation dipolaire devient prédominante. La vitesse de diminution de la conductivité ralentit fortement (plus de mobilité ionique) et l'effet des fibres apparaît par la mise en place et la réorganisation du réseau de percolation. Ceci est dû à un effet de contraction de par la généralisation de la réticulation dans la résine au fur et à mesure que la polymérisation approche de PV. Ainsi,  $\alpha$  augmente et  $|Z|$  diminue.  $\alpha=f(|Z|)$  évolue de façon linéaire dans cette stade (Eq. 35).

$$\alpha = C_0 + C_1 * |Z| \quad \text{Eq. 35}$$

Avec  $C_i$  des paramètres à déterminer.

Dans le stade 4, les variations dans  $\alpha$  et  $|Z|$  sont extrêmement faibles, ce qui correspond au long du passage de PV à PF. La rotation dipolaire est la seule à s'exprimer. Les phénomènes de contraction existents toujours tendent à disparaître. Le réseau de percolation évolue donc plus faiblement. L'évolution d' $\alpha$  peut être modélisée par une fonction parabolique, comme la montre Eq. 36.

$$\alpha = D_0 + D_1 * |Z| + D_2 * |Z|^2 \quad \text{Eq. 36}$$

Avec  $D_i$  des paramètres à déterminer.

Les 4 fonctions d'approximation sont validées avec un coefficient de détermination  $R^2 > 0,99$ . Les valeurs exactes des paramètres sont détaillées en Annexe-vii. Evidemment, les valeurs des paramètres sont cycles et échantillons dépendants. Mais les lois restent de la même forme. La valeur de  $|Z|$  pourrait être normalisée pour proposer des lois généralisées pour les différents échantillons (stratifié de 16 plis UD, monopli, etc.), afin de mieux prédire le degré d'avancement  $\alpha$ .

La tendance globale de  $|Z|(t)$  du stratifié dans le sens DT est décroissante avant PL ou après PG et sa valeur est stabilisée à la fin de cuisson. Dans ce contexte, la valeur de

$|Z|(t)$  à la fin de cuisson est notée comme  $|Z|_{\infty}$  et utilisée pour normaliser  $|Z|(t)$  évoluant en cours de cuisson :  $|Z|_N(t) = \frac{|Z|(t)}{|Z|_{\infty}}$ . Les résultats de la corrélation entre  $\alpha$  et  $|Z|$  normalisé du stratifié  $[0^{\circ}_{16}]$  et du stratifié  $[0^{\circ}_8]$  sont présentés sur la Figure 142 et comparés dans le Tableau 40.

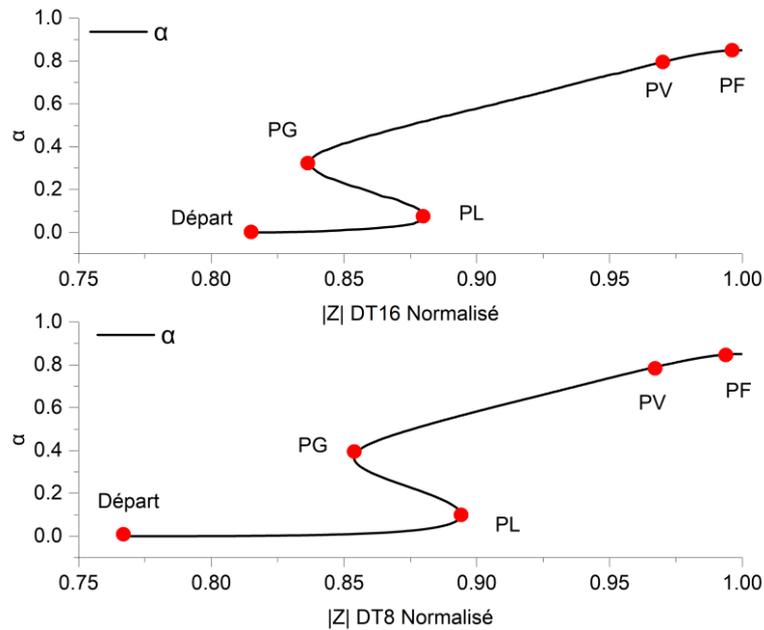


Figure 142 Comparaison des lois de corrélation globale  $\alpha=f(|Z|_N)$  à 10 kHz dans le sens DT pour des stratifiés  $[0^{\circ}_8]$  et  $[0^{\circ}_{16}]$  NC66/NA1808

Les deux fonctions ajustées ont la même forme et la même tendance globale. L'effet du nombre de plis peut être observé sur les valeurs de  $|Z|_N$  au point de départ (la valeur initiale). Cependant, à partir de PL, les valeurs de  $|Z|_N$  de deux fonctions aux mêmes points caractéristiques sont quasi-identiques avec un écart inférieur à 1%. Ces résultats permettent de pouvoir généraliser dans de futurs travaux des lois de corrélation proposées sur les stratifiées UD multiplis de NC66/NA1808.

$ Z $ Normalisé	Départ	PL	PG	PV	PF
<b>DT16</b>	0.768	0.88	0.845	0.97	0.995
<b>DT8</b>	0.816	0.894	0.85	0.968	0.992
<b>Écart</b>	5.8%	1.6%	0.6%	0.2%	0.3%

Tableau 40 Comparaison des lois de corrélation globale  $\alpha=f(|Z|_N)$  pour le stratifié  $[0^\circ_8]$  et  $[0^\circ_{16}]$   
NC66/NA1808

Les lois de corrélation des dérivées secondes de  $\alpha$  et  $|Z|$  par rapport au temps peuvent être étudiées avec la même approche. Les fonctions globales  $|Z|''(t)$  et  $\alpha''(t)$  sont divisées cette fois-ci en 5 stades monotones sur la Figure 143 car il existe un maximum local sur  $|Z|''(t)$  entre PG et PV correspondant au point d'inflexion de  $|Z|$ . Ce point peut être corrélé à la fin de la gélification, qui est identifié comme un maximum local de la partie réelle de  $\bar{\epsilon}$  comme expliqué au chapitre 3 et présenté dans la Figure 144.

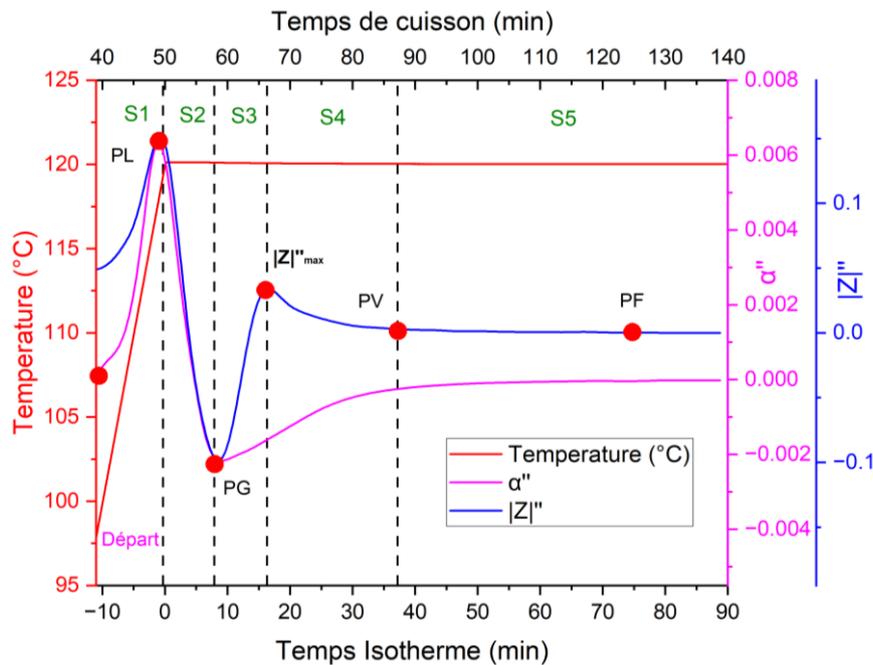


Figure 143 Division de  $|Z|''(t)$  à 10 kHz dans le sens DT et  $\alpha''(t)$  en cinq stades monotones pour le stratifié  $[0^\circ_8]$  NC66/NA1808

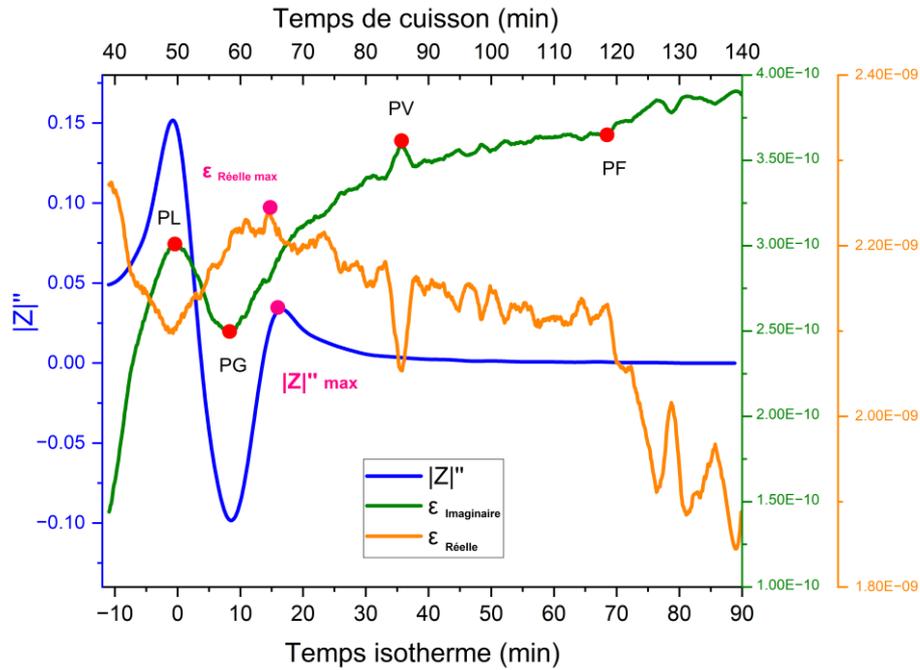


Figure 144 Corrélation entre  $|Z|''$  à 10 kHz et  $\bar{\varepsilon}$  pour le stratifié  $[0^\circ_8]$  dans le sens DT

Les fonctions ajustées partielles sont présentées dans la Figure 145. Dans les stades 1 et 2, l'évolution de  $\alpha''(|Z|'')$  peut être modélisée par deux fonctions linéaires. Dans les stades 3 et 5, elle peut être modélisée par trois fonctions polynomiales cubiques. Ces cinq fonctions ajustées sont validées avec un coefficient de détermination  $R^2 > 0,99$ . Les valeurs exactes des paramètres empiriques sont détaillées en Annexe-vii.

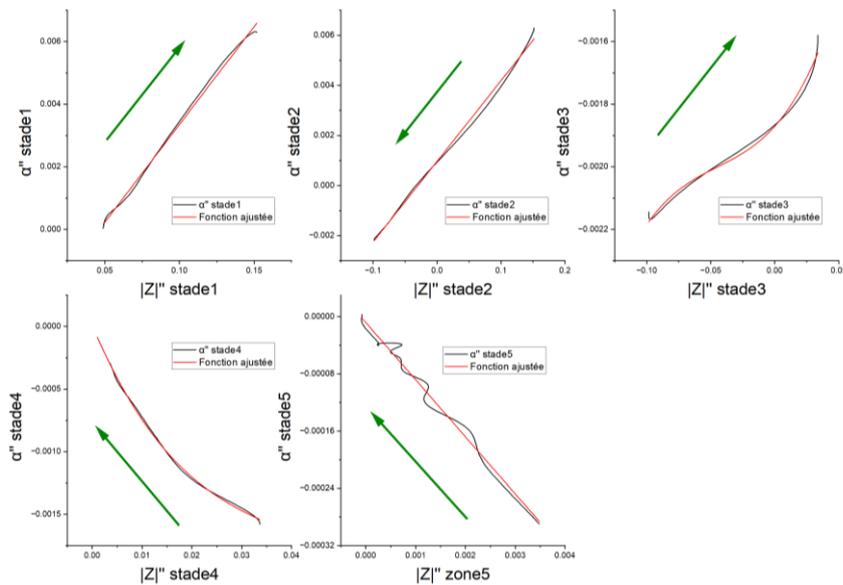


Figure 145  $\alpha''=f(|Z|'')$  (en noir) avec les fonctions ajustées (en rouge) en cinq stades monotones pour le stratifié  $[0^\circ_8]$  NC66/NA1808 (la direction de la réaction indiquée par la flèche)

#### 4.2.2.3 Lois de corrélation sur résine NA1808 non-renforcée

La résine NA1808 non-forcée est analysée par la même méthode appliquée sur le stratifié NC66/NA1808. Les coefficients de corrélation Pearson entre les paires de variables X-Y pour la résine NA1808 sont présentés dans le Tableau 41.

Coefficient de Pearson (r)	$\alpha$	$\alpha'$	$\alpha''$
$ Z $	<u>0.82</u>	<u>-0.63</u>	<u>-0.67</u>
$ Z '$	0.17	<u>0.61</u>	-0.32
$ Z ''$	-0.04	0.10	<u>0.71</u>
$\theta$	<u>-0.68</u>	<u>0.66</u>	<u>0.71</u>
$\theta'$	-0.20	-0.53	0.49
$\theta''$	0.04	-0.18	<u>-0.68</u>

Tableau 41 Coefficients de corrélation Pearson (r) entre les résultats des essais en DSC ( $\alpha$  et ses dérivées par rapport au temps) et les résultats de mesure IE ( $|Z|$ ,  $\theta$  et leurs dérivées par rapport au temps) de la résine NA1808

Contrairement au stratifié (effet de la présence des fibres), les coefficients de corrélation  $r$  (Eq. 32) liés aux différents ordres de dérivation restent plus cohérents pour la résine reste supérieur à 0,5 et notamment supérieur à 0,6). La forme gaussienne de  $|Z|$  et  $\theta$  assure également de forts coefficients permettant de définir une corrélation potentielle inter-ordre avec  $\alpha$ . Nous conserverons ici, la plus forte corrélation ( $r > 0,8$ ) entre  $|Z|(t)$  et  $\alpha(t)$ . Ainsi, les fonctions globales peuvent être divisés en seulement 2 stades monotones de part et d'autre de PL (Figure 146 et Figure 147).

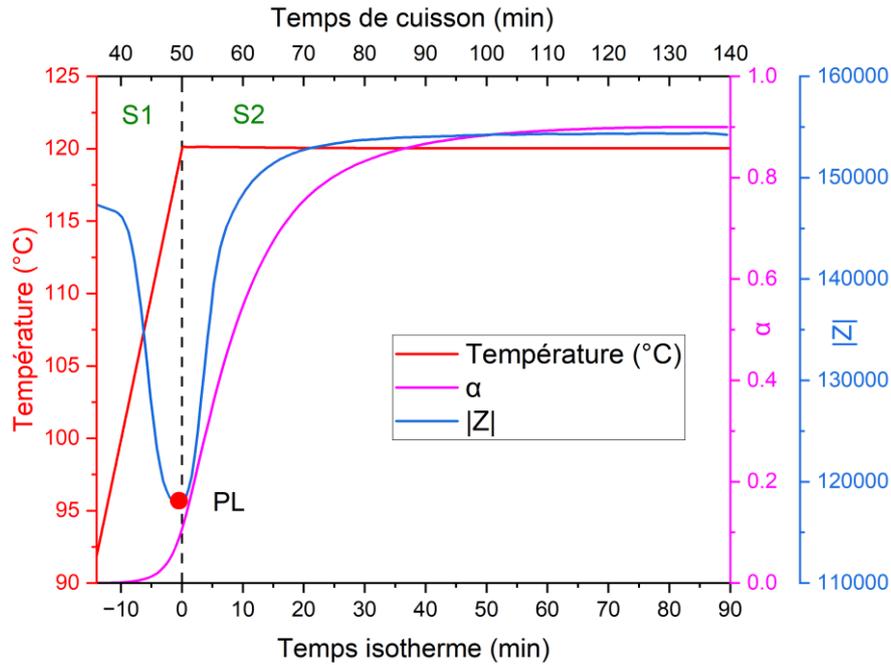


Figure 146 Division de  $|Z|(t)$  et  $\alpha(t)$  en deux stades monotones pour la résine autour de PL

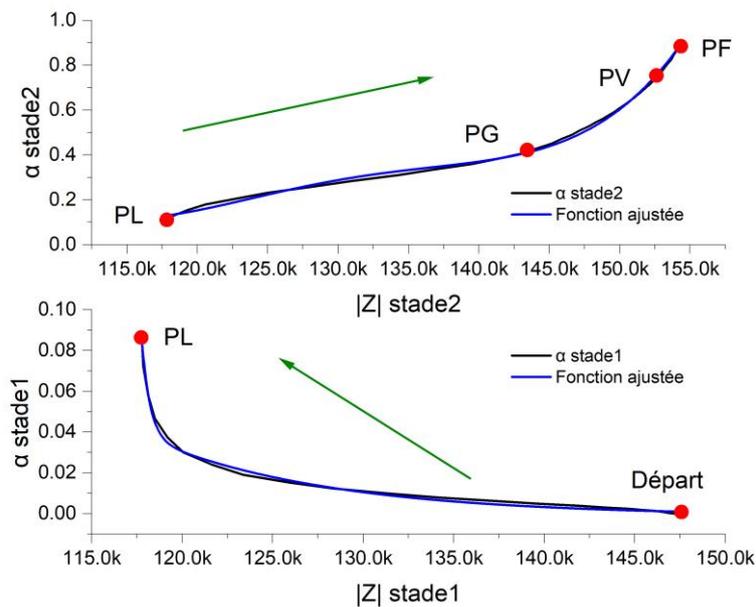


Figure 147  $\alpha=f(|Z|)$  (en noir) avec les fonctions ajustées (en bleu) en 2 stades monotones autour de PL pour la résine NA1808 non-renforcée (la direction de la réaction indiquée par flèche)

Avant PL, la fonction ajustée dans le stade 1 est une somme de deux fonctions exponentielles décroissantes qui est similaire à celle du stratifié NC66/NA1808. Après PL, la fonction ajustée peut être modélisée comme une fonction polynomiale de 4<sup>e</sup> ordre. PG et PV sont des points d'inflexion sur la courbe  $\alpha=f(|Z|)$ . Les valeurs exactes des

paramètres empiriques sont détaillées en Annexe-vii.

Il est à noter, que pour la résine, comme pour le stratifié, la corrélation rhéologique-électrique ne semble pas justifiée avant le point de départ ( $\alpha > 0$ ).

En conclusion, les lois de corrélation entre  $\alpha$  et  $|Z|$  permettent d'identifier différentes étapes de polymérisation du stratifié multiplis ou de la résine non-renforcée, puis d'estimer la valeur d' $\alpha$  à partir de la valeur normalisée de  $|Z|$ . En ce qui concerne ces fonctions ajustées, la signification physique de leurs paramètres empiriques doit être étudiée de manière plus approfondie.

Notre méthode d'analyse sur la base de la corrélation de Pearson peut être limitée par les deux inconvénients suivants.

- Premièrement, des données anormales peuvent interférer avec les résultats de l'évaluation de la corrélation.
- Deuxièmement, la méthode suppose que les données sont toutes homoscédastiques, auquel cas la variance des données est homogène dans l'ensemble de la plage des données.

Ainsi, pour affirmer la causalité entre les signaux étudiés ici, d'autres méthodes d'analyse des séries temporelles pourraient être utilisées, par exemple : analyse d'intercorrélation avec décalage temporel (TLCC pour Dynamic Time Lagged Cross Correlation en anglais), de la déformation temporelle dynamique (DTW pour Dynamic Time Warping en anglais) et de la synchronisation instantanée des phases. Un tel travail pourra être versé au nombre des perspectives de cette thèse.

### 4.3 Modélisation géométrique du CFRP en cours de cuisson

Afin de mieux comprendre la relation entre le comportement électrique du matériau et la cinétique de sa polymérisation, il est nécessaire de développer les modèles décrivant le changement des paramètres électriques du matériau de notre étude (stratifié multipli ou monopli de prepreg NC66/NA1808) en cours de cuisson. La méthodologie de la modélisation sur le matériau T700/M21 dans les travaux précédents à l'ICA [5, 7, 10, 11] nous sert de base pour notre étude sur le NC66/NA1808.

Sassi et al. [7] ont développé une approche de caractérisation multi-échelle du comportement électrique de matériau T700/M21 passant par l'échelle macro (échelle de la totalité de la structure), l'échelle méso (échelle des plis et inter-plis) et l'échelle micro (échelle des constituants de base du matériau) (Figure 148). Dans cette approche, les paramètres électriques des constituants de base du matériau (fibres et matrice + porosité) et les paramètres relatifs au procédé de fabrication sont corrélés. Cette corrélation permet de créer un modèle globale électrique de circuits RC parallèles pour estimer les variations de R et C équivalents en cours de cuisson.

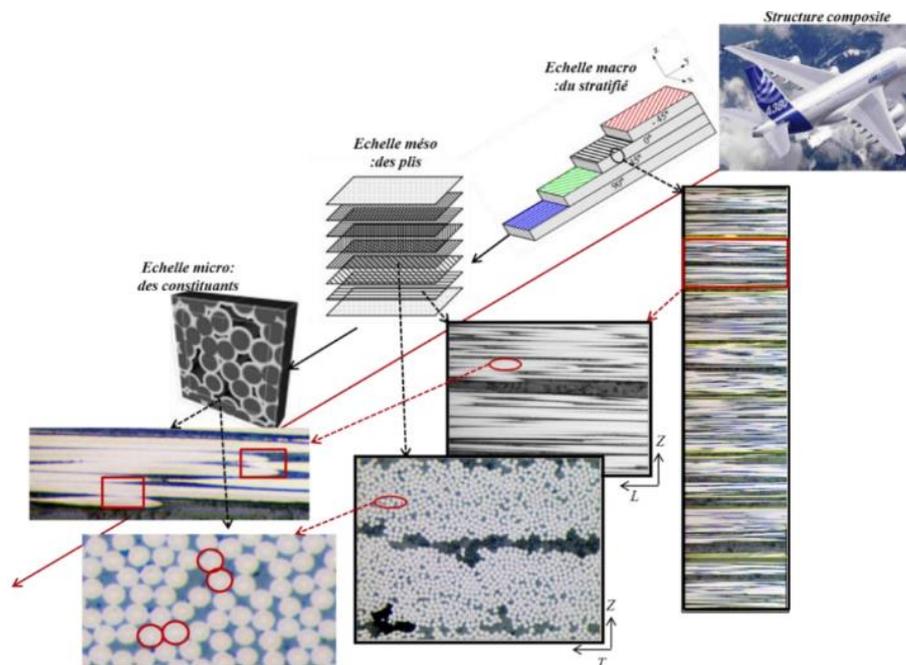


Figure 148 Caractérisation multi-échelle du comportement électrique du composite T700/M21 [7]

Compte tenu de la complexité des structures stratifiées CFRP, une modélisation homogénéisée permet de réduire considérablement les difficultés du calcul numérique.

Un volume élémentaire représentatif (VER) doit être défini pour homogénéiser le matériau étudié. Nous supposons que les fibres de carbone sont uniformément réparties dans le matériau avec certaine configuration de répartition.

Dans ce contexte, une modélisation d'un pli de prepreg NC66/NA1808 décrivant les changements électriques (le réseau de percolation inter-fibres) en fonction des changements géométriques est réalisée.

Selon différents plans d'observation microscopique, les paramètres géométriques d'intérêt d'un stratifié (Figure 149 et Figure 150) peuvent être distingués dans les trois plans suivants :

- Dans le plan L-T, la longueur de fibre ( $L_f$ ), l'ondulation transversale des fibres (présenté par l'angle d'azimut  $\theta_A$ ) et les distances de percolation ( $\delta_{ec}$  et  $\Delta_{ec}$ ).
- Dans le plan L-Z, l'ondulation des fibres dans la direction d'épaisseur (présenté par l'angle d'élévation  $\theta_E$ ) et les distances de percolation.
- Dans le plan T-Z, les fractions surfaciques de trois constitutions ( $S_f$  pour fibres,  $S_m$  pour matrice et  $S_p$  pour porosités), les configurations de la répartition des fibres (hexagonale, carrée ou aléatoire, voir Figure 36), le diamètre de fibre ( $D_f$  constante ou varie) et les points de contact inter-fibres ( $N_c$ ).

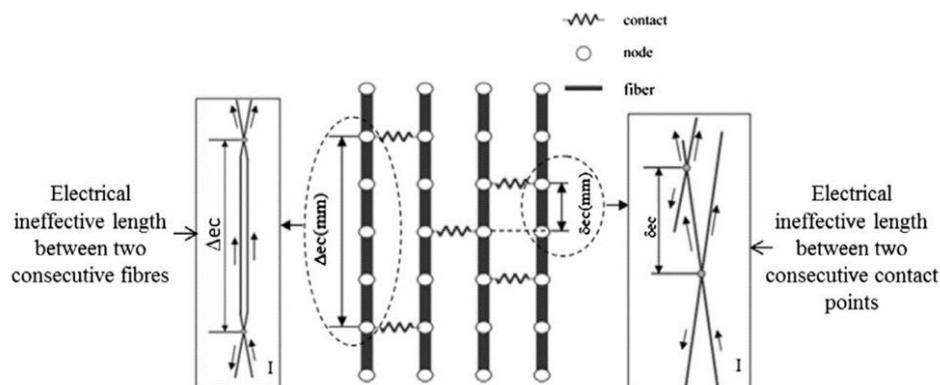


Figure 149 Réseau de percolation des points de contact inter-fibres au sein de composite avec deux différentes distances de percolation  $\delta_{ec}$  et  $\Delta_{ec}$  dans le plan (L,T) [5]

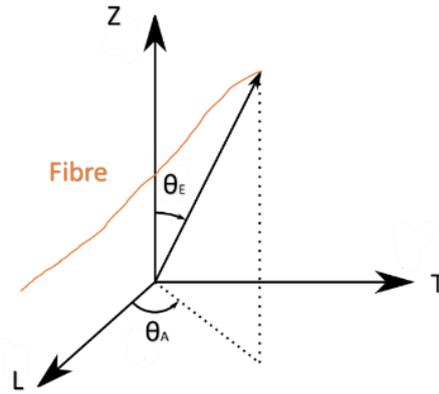


Figure 150 Ondulation d'une fibre de carbone avec l'angle d'azimut  $\theta_A$  et l'angle d'élévation  $\theta_E$

En supposant que le matériau observé soit homogène, les fractions volumiques de fibres ( $V_f$ ), de matrice ( $V_m$ ) et de porosité ( $V_p$ ) peuvent être estimés à partir des fractions surfaciques (Cf. Chapitre 2). Les travaux précédents ont montré que l'ensemble de ces paramètres dépend de  $V_f$  en cours de cuisson mais peuvent également être corrélés entre eux [3, 5, 15]. Par exemple, la distance de percolation  $\delta_{ec}$  dans le plan (L, T) est proportionnelle à celle dans le plan (L, Z) (Figure 151).

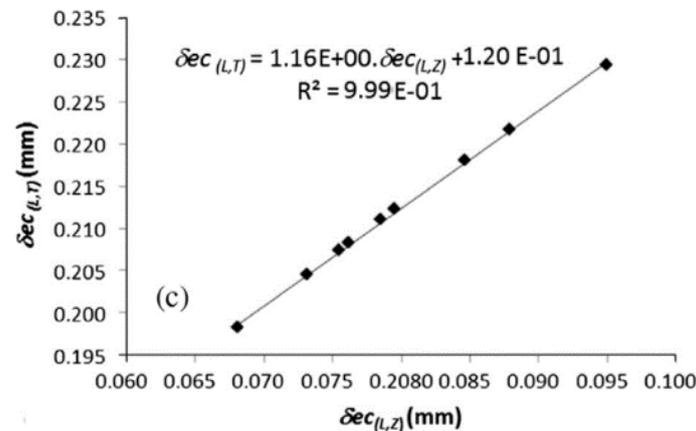
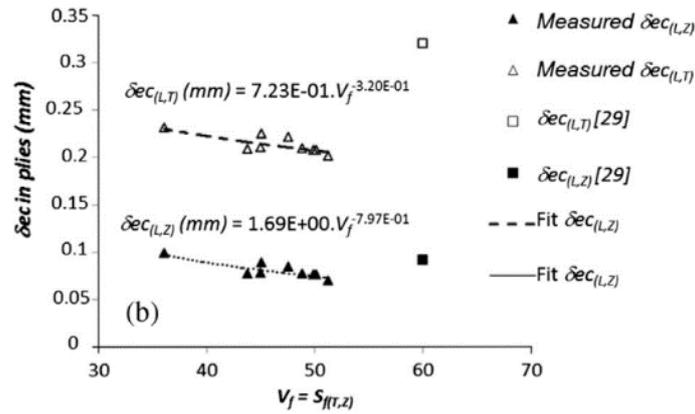
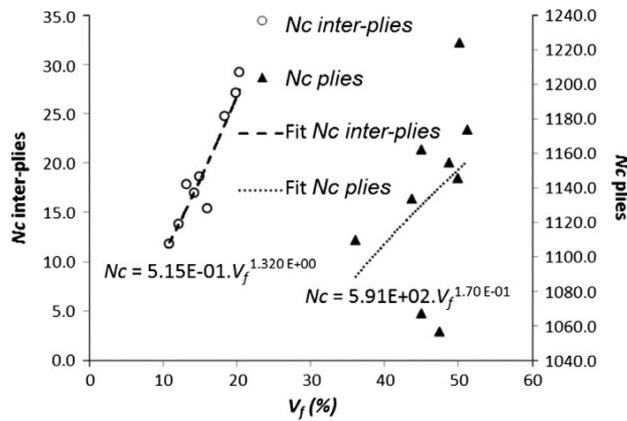


Figure 151 Loi de corrélation entre  $\delta_{ec}$  dans le plan (L, T) et celle dans le plan (L, Z) [7]

De plus, le nombre de contacts et les distances de percolation du matériau peuvent être corrélés avec  $V_f$ . Comme indiqué précédemment, le réseau de percolation inter-fibres du matériau dépend directement de  $N_c$ . Ainsi, les propriétés électriques du matériau sont liées à  $V_f$ . La relation entre la fraction volumique de fibres et la dimension du réseau de percolation inter-fibres permet de simuler la conduction électrique du matériau à partir d'une valeur de  $V_f$  imposée (Figure 152 et Figure 153).

Figure 152 Loi de corrélation entre  $\delta ec$  dans le plan (L, T) et  $V_f$  [7]Figure 153 Loi de corrélation entre  $Nc$  et  $V_f$  [7]

Dans le cadre de notre étude, nous désirons développer un modèle de matériau représentatif à partir de ces paramètres géométriques afin de représenter le réseau de percolation à l'échelle mésoscopique. L'approche préliminaire (à l'aide du logiciel Matlab) se base sur les données du matériau T700/M21 car il n'était pas possible de mettre en œuvre une analyse microstructurale de même ampleur pour le matériau NC66/NA1808. Un module a été développé pour simuler la répartition des fibres en tenant compte de valeurs présumées du diamètre des fibres (sous l'hypothèse d'une fibre à diamètre circulaire et non déformable), des distances de percolation, de l'ondulation et de la fraction volumique de fibres. Un module d'estimation de  $\bar{Z}$  est proposé à partir d'une simulation de la répartition des tensions au sein du réseau de percolation basé sur un algorithme de type Discret Kirchhoff–Monte Carlo.

### 4.3.1 Modélisation de la répartition des fibres

Dans le cadre de cette étude, une modélisation sous Matlab 3D de la répartition des fibres au sein d'un pli (généralisable au stratifié) a été développée en tenant compte du diamètre des fibres  $D_f$  (supposé constant) et de la fraction volumique de fibres  $V_f$  (supposée homogène dans le volume). Elle est basée sur un générateur de sections de fibres 2D permettant de simuler un ensemble de plans (T, Z) de dimensions identiques éloignés d'une distance tenant compte des distances de percolation ( $\delta_{ec}$  et  $\Delta_{ec}$ ) et de l'ondulation supposées des fibres en entrée du modèle ( $\Theta_E$  et  $\Theta_A$  supposés équivalents dans une première approche). Un logigramme de notre approche de modélisation est présenté dans la Figure 154.

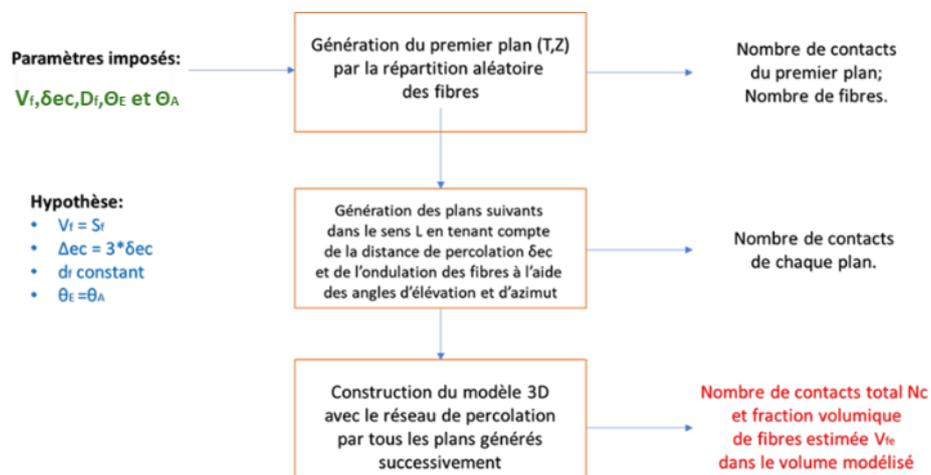


Figure 154 Logigramme de la modélisation géométrique 3D de la répartition des fibres d'un pli

Un plan de référence est tout d'abord généré. Les dimensions de ce plan sont définies en tenant compte du diamètre de la fibre et de la fraction volumique de fibres  $V_f$  visée, ramenée à une fraction surfacique dans le plan (T, Z). Une unité de maillage (UM) est alors définie en fonction du diamètre de la fibre afin de définir un maillage orthonormé du plan pour positionner les centres et définir les surfaces des fibres avec une résolution spatiale représentative (gestion des collisions et des contacts inter-fibres).

Ce plan peut être découpé en cellules élémentaires carrées ( $C_i$ ) plus petites permettant de forcer des configurations de fibres : carré, hexagonal ou aléatoire (dimensions des  $C_i$  en lien avec  $D_f$ ), et d'accélérer le processus de génération des fibres (Figure 155 et Figure 156). Concernant la configuration de répartition des fibres, elle dépend du

rapport entre la taille de la cellule élémentaire  $C_i$  et le diamètre de fibre  $D_f$ (Figure 157) :

- $C_i/D_f$  égal à 1, la tendance à une configuration carrée est forcée.
- $C_i/D_f$  égal à 2, la tendance à configuration hexagonale est forcée.
- $C_i/D_f$  supérieur à 2, la tendance à une configuration aléatoire globale devient prédominante.

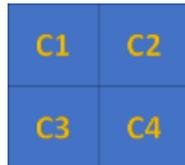


Figure 155 Un exemple d'unité de maillage (UM) composé de 4 cellules  $C_i$  élémentaires

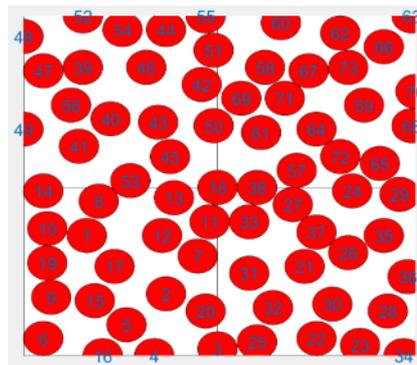


Figure 156 Répartition aléatoire et numérotation des fibres dans un plan (T, Z) avec  $V_f$  de 50%



Figure 157 Trois configurations de la répartition des fibres avec différents rapports  $C_i/D_f$

Dans ce premier plan, les coordonnées et la numérotation des centres de fibres (Figure 156) sont générées successivement (avec autorisation de centre généré au bord du plan

et des  $C_i$ ) par méthode aléatoire en tenant compte de la fraction volumique de fibre et en imposant des conditions de non-collision. Sous l'hypothèse de fibres non déformables, la collision est testée par la distance entre centres de fibres ne pouvant être inférieure à un diamètre de fibre. Différentes matrices sont générées pour répondre à cette problématique :

- matrice des centres contenant les coordonnées des centres du plan considéré ;
- matrice d'occupation des surfaces de fibres : maillage de 0 (libre) et 1 (occupé) permettant de calculer les distances entre les centres fibres (gestion des contacts) et le taux surfacique de fibres ;
- une matrice d'espace résiduel libre correspondant à la matrice d'occupation avec stade d'anticollision (ajout de 1 autour des surfaces de fibre sur une distance d'un rayon de fibre) permettant d'éviter les collisions.

Le nombre de fibres  $N_f$  et le nombre de contact inter-fibres sont ensuite déduits pour ce même plan.  $N_f$  restera constant d'un plan à un autre et ainsi, la fraction volumique de fibre estimée sera celle générée dans le plan initial. Le nombre de contacts entre fibres d'un plan à un autre sera variable.

Les plans suivants sont générés à partir de la matrice des centres des fibres de la surface précédente et placés à une distance de percolation  $\delta_{ec}$ . Les centres sont déplacés un à un par ordre de numérotation des fibres et en fonction de l'ondulation choisie (angle d'azimut et d'élévation) définissant un pas de déplacement en fonction de l'UM (Figure 158). Le sens de déplacement reste aléatoire autour de la position initiale mais reste borné à un stade maximal de déplacement définie par les distances de percolation ( $\delta_{ec}$  et  $\Delta_{ec}$ ). Si le déplacement dépasse ce stade maximal alors le déplacement est dévié de façon aléatoire. Chaque déplacement de fibre génère de nouvelles matrices (centres, occupation et espace résiduel libre) permettant de gérer les collisions et de dévier le déplacement si nécessaire.

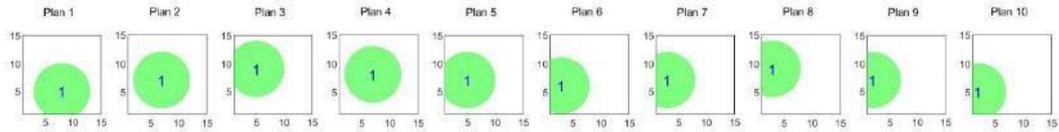


Figure 158 Ondulation d'une fibre observée dans des plans consécutifs avec  $V_f$  imposé de 50%

Cette opération est répétée pour tous les plans considérés. Finalement, chaque fibre est reliée d'un plan à l'autre par ses centres pour représenter la répartition 3D des fibres et une matrice des nœuds de contact inter-fibres est générée pour simuler le réseau de percolation en 3D (Figure 159 et Figure 160).

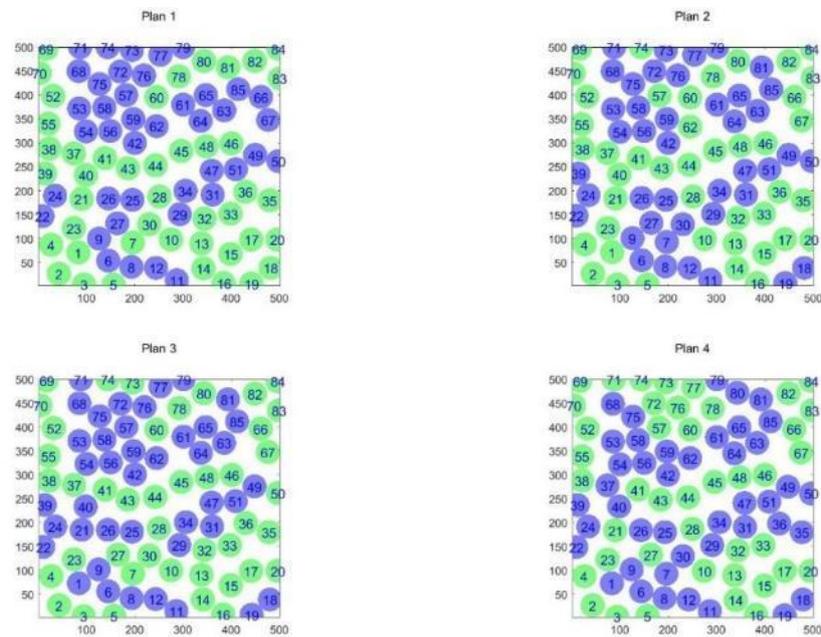


Figure 159 Répartition aléatoire des fibres dans les quatre plans (T, Z) avec  $V_f$  imposé 50%. Les fibres en contact en bleu et les fibres sans contact en vert

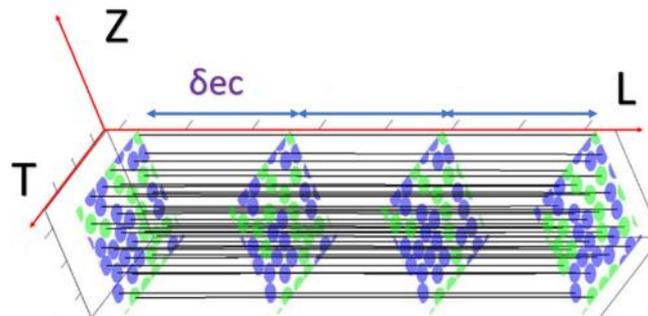


Figure 160 Répartition aléatoire des fibres dans le volume modélisé avec  $V_f$  imposé 50% (les fibres en contact en bleu et les non-contacts en vert, la porteuse de chaque fibre en trait noir)

### 4.3.2 Simulation de la conduction électrique

L'algorithme DKMC (Discret Kirchhoff–Monte Carlo) a été appliqué dans les travaux précédents pour la modélisation du comportement électrique des CFRP [7, 10, 11] (Cf. descriptif de l'algorithme dans le chapitre 1). Nous conservons cet algorithme pour notre étude. Il a été reprogrammé sous Matlab pour être adapté au générateur de fibres présenté ci-avant. Cependant, dans les travaux précédents, seule l'approche résistive du DKMC a été étudiée. Ici, nous intégrons l'approche résistive et y ajoutons l'approche capacitive de cet algorithme en utilisant une impédance de contact.

Dans le chapitre 1, un modèle électrique nommé « Kirchhoff–Monte Carlo (DKMC) » a été présenté. Il permet d'évaluer de manière discrète la distribution de la tension via chaque point de contact inter-fibres, selon l'équation rappelée ci-après (Eq. 37).

$$\frac{a_{ij}}{R_{ij}} [v_i(z_j) - v_i(z_{j+1})] + \frac{a_{i,j-1}}{R_{i,j-1}} [v_i(z_j) - v_i(z_{j-1})] + \sum_{n=1}^6 \frac{c_{i,n}^j}{R_c} [v_i(z_j) - v_n(z_j)] = 0 \quad \text{Eq. 37}$$

Avec,  $v_i(z_j)$  le potentiel électrique au niveau du nœud  $j$  de la  $i^{\text{ème}}$  fibre localisée à la position  $z_j$  et  $v_n(z_j)$  le potentiel électrique de  $n^{\text{ème}}$  fibre adjacente à la position longitudinal  $z_j$ .  $R_c$  est la résistance du contact entre deux fibres adjacentes et  $C_{i,n}^j$  est un indicateur de contact entre les fibres ( $C_{i,n}^j = 1$  dans le cas du contact et  $C_{i,n}^j = 0$  dans le cas contraire).

Selon ce modèle, la distribution tridimensionnelle de la tension dans un CFRP dépend de la configuration de la répartition des fibres et du positionnement des électrodes. Les paramètres géométriques (nombre et longueur de fibres,  $V_f$ ,  $d_f$ ,  $N_c$  et  $\Delta_{ec}$ ) dans le volume de simulation sont imposés et la distribution des points de contact est aléatoire. Une série de simulation avec différentes configurations a été réalisée dans les travaux précédents [7, 10, 11] et les résultats sont présentés dans la Figure 161.

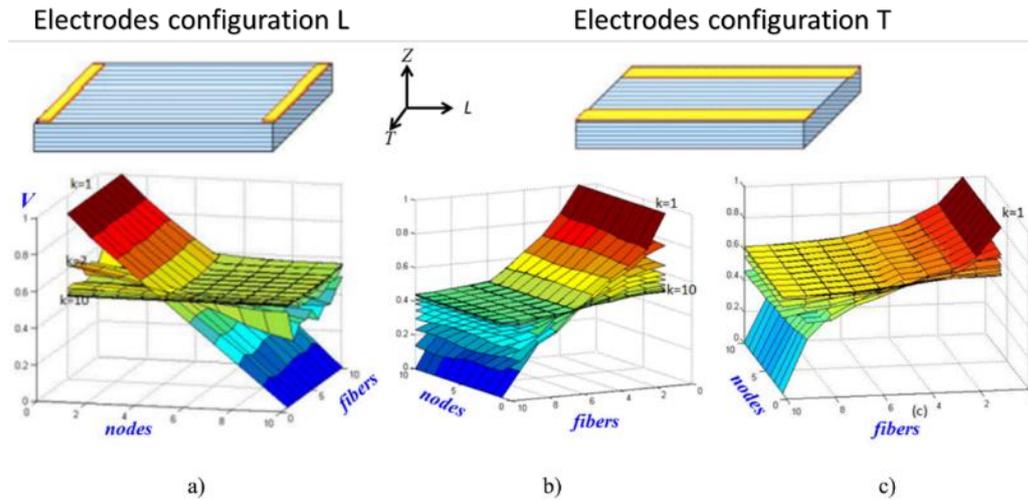


Figure 161 Distribution de la tension en 3D (10 nœuds de potentiel par fibre, 10 fibres, 10 couches de fibres et 500 contacts) dans la direction longitudinale L (a) et dans la direction transversale T pour les configurations des répartition carrée (b) et hexagonale (c) [11]

Ce résultat de simulation est basé sur un modèle purement résistif, non capable de décrire la réponse électrique du CFRP lors d'une excitation alternative. Dans le cadre de notre étude, un modèle DKMC complexe (résistif et capacitif) permettant de simuler un réseau des circuits RC parallèles au lieu d'un réseau purement résistif est proposé. Dans ce nouveau modèle, les termes de la conduction longitudinale de fibre  $R_{ij}$  restent cependant résistifs (fibres considérées comme conducteurs purs). Cependant, l'impédance électrique de non-contact inter-fibres (dans le stade de résine entre fibres) est représentée par  $Z_c = \frac{1}{j\omega C}$ . L'indicateur de contact  $C_{i,n}^j$  n'est plus utilisé. Les deux modèles DKMC sont comparés dans le Tableau 42.

Modèle DKMC	Conduction Transversale	Distinction de contact et non-contact
Résistif	$R_c$	$C=1$ pour contact ; $C=0$ pour non-contact.
Complexe (résistif+capacitif)	$Z_c$	$Z_c=R_c$ pour contact ; $Z_c = \frac{1}{j\omega C}$ pour non-contact.

Tableau 42 Comparaison des modèles DKMC résistif et complexe

Par conséquent, les valeurs caractéristiques des composants électriques équivalents (la résistante de contact inter-fibres  $R_c$ , la résistance longitudinale unitaire de la fibre  $R_f$  et la capacité du stade de résine sans contact inter-fibres  $C_n$ ) sont estimées (provenant de la littérature) pour simuler la distribution de tension dans le volume et quantifier  $|Z|$  et  $\theta$  ( Figure 162).

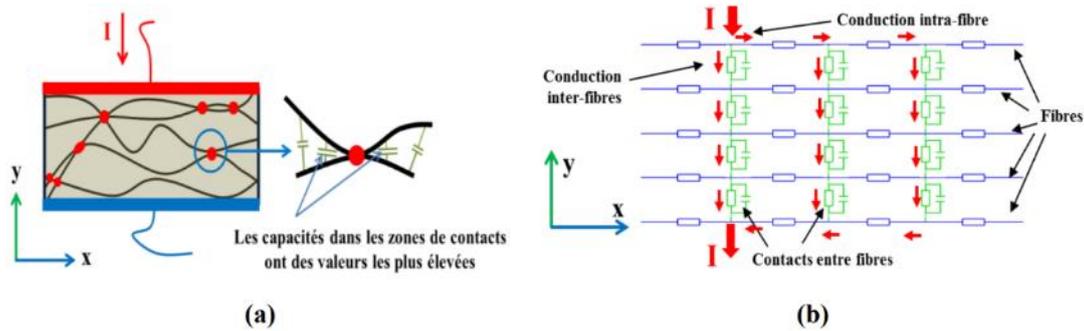


Figure 162 a) Conduction électrique dans le matériau et détail du modèle électrique d'un point de contact inter-fibres ; b) Modèle 2D de la conduction transversale intra-ply (T) [10]

Nous utiliserons ici les caractéristiques électriques et géométriques du matériau T700/M21 cuit car nous n'avons pas assez de données à ce jour concernant les caractéristiques du préimprégné NC66/NA1808.

Dans le cas d'une distance de contact entre deux même fibres ( $\Delta_{ec} = 40 \text{ mm}$  [5]) et sachant que le diamètre d'une fibre est de l'ordre de  $7 \mu\text{m}$ , nous pouvons déduire la résistance longitudinale de la fibre entre ces deux points, qui vaut  $1,56 \cdot 10^{-11} \Omega$  (Eq. 38). Cette valeur est prise comme résistance des fibres entre les différents plans définis par le modèle de répartition des fibres.

$$R_f = \rho \frac{L}{S} \quad \text{Eq. 38}$$

Avec  $\rho$  la résistivité longitudinale,  $L$  la longueur et  $S$  la section de fibre.

La résistance de contacts inter-fibres  $R_c$  entre fibres adjacentes de carbone T700 a été caractérisée par Yu et al.[78-80]. Elle est de l'ordre de  $10 \Omega$  à  $100 \Omega$  à l'échelle macroscopique. Cependant, à l'échelle microscopique,  $R_c$  est calculée à partir des paramètres géométriques (Cf. Chapitre 1) et sa valeur estimée est de l'ordre de  $10^{-8} \Omega$  dans le volume de simulation ( $2 \cdot 10^{-8} \Omega$  pour une configuration carrée et  $2,4 \cdot 10^{-8} \Omega$  pour une configuration hexagonale, pour rappel Eq. 39).

$$R_c = \rho \frac{\beta (\delta_{ec})^2}{N_{th} \cdot L} \quad \text{Eq. 39}$$

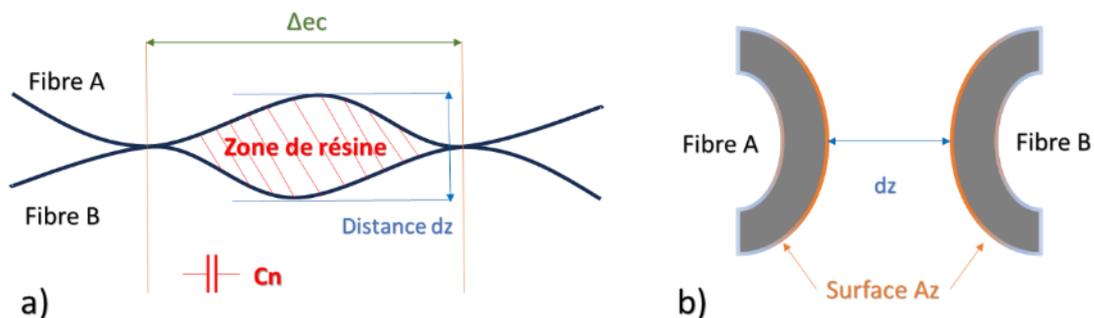
Avec  $\rho$  la résistivité longitudinale,  $L$  la longueur section de fibre,  $N_{th}$  nombre de contact dans le sens de l'épaisseur,  $\beta$  le coefficient de contacte ( $\beta = 2$  pour la configuration carré et  $\beta = 2,4$  pour la configuration hexagonale de fibres) .

Dans les parties sans contact inter-fibres, nous pouvons définir une approximation d'un stade caractéristique de résine (maille définie par les fibres) et en déduire la valeur de la capacité équivalente. Cette valeur pour la résine à l'état cuit est difficile à calculer car la permittivité diélectrique absolue de la résine est température- et fréquence-dépendante. Dans notre étude, nous nous plaçons à température ambiante et à basse fréquence ( $f < 1\text{MHz}$ ). Dans ces mêmes conditions, les constantes de la permittivité diélectrique de différentes résines époxy non-renforcées ont été mesurés [109-111] et les valeurs convergent vers  $\epsilon_r = 3$  (adimensionnelle). Ainsi, nous pouvons estimer que la permittivité diélectrique de la résine M21 est de l'ordre  $\epsilon = 2,65 \cdot 10^{-11} \text{ F/m}$  (Eq. 40). L'analyse tensorielle sur la permittivité diélectrique des matériaux isolants [112] n'est pas appliquée dans cette approche. Un modèle simplifié de la capacité équivalente  $C_n$  d'une maille entre deux fibres adjacentes est proposé dans la Figure 163.  $A_z$  est la section efficace des fibres simulant les plaques chargées d'un condensateur. La distance moyenne  $d_z$  entre les deux fibres est déterminée à l'aide de l'analyse microscopique des travaux précédents [5].  $C_n$  peut être calculée par l'équation Eq. 41 et vaut  $1,23 \cdot 10^{-12} \text{ F}$  avec  $A_z = 0,28 \text{ mm}^2$ ,  $d_z = 6 \mu\text{m}$ .

$$\epsilon = \epsilon_r * \epsilon_0 \quad \text{Eq. 40}$$

où  $\epsilon_0$  est la permittivité du vide =  $8,854 \cdot 10^{-12} \text{ F/m}$ .

$$C_n = \epsilon \frac{A_z}{d_z} \quad \text{Eq. 41}$$



Pour la détermination de la réponse fréquentielle, nous avons choisi l'intervalle utilisé lors des travaux précédents pour les mesures IE à savoir [10 Hz ; 1 MHz]. La

distribution des tensions au sein du réseau de percolation du pli est définie par les points de contacts inter-fibres du volume  $N_c$  générés préalablement, et en considérant un placement des électrodes choisi en entrée. Les fibres en contact avec l'électrode d'entrée sont chargées à  $V_{cc}$  (1.84 V pour PmodIA) et celles en contact avec l'électrode de sortie sont chargées à  $-V_{cc}$ . La distribution de tension est représentée à l'aide de cartographies 2D ou 3D.

A partir du modèle de répartition de fibres, nous définissons :

- un pli 2D comme un volume pouvant contenir une seule couche de fibres au maximum;
- un pli 3D équivalent à 17 couches de fibres : on considère ici un pli réel de 125  $\mu\text{m}$  d'épaisseur pris comme référence avec un empilement continu de fibres dans l'épaisseur ( $D_f = 7 \mu\text{m}$ ).

Les résultats de simulation de la conduction électrique 2D sont présentés dans les Tableau 43 et Tableau 44, avec variation des fractions volumiques de fibres de la fréquence d'excitation et de la configuration d'électrodes (L et T uniquement). Nous prendrons trois valeurs de fractions volumiques : 40%, 50% et 60%, afin de considérer des cas classiques de CFRP cuits en étuve et autoclave (50% et 60%) mais également prendre en compte le seuil de percolation dans les CFRP qui est de l'ordre de 40% [113] (Figure 164). Un exemple de résultats 2D avec  $V_f=0,5$ ,  $f=10$  kHz et pour les configurations L et T est présenté dans la Figure 165.

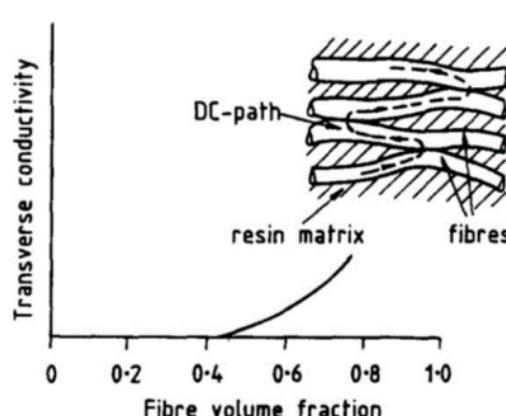


Figure 164 Augmentation de la conductivité électrique transverse en fonction de la fraction volumique des fibres avec le seuil de percolation pour  $V_f \approx 0,4$  [113]

D'après le Tableau 43, à 10kHz (fréquence optimale déterminée pour rendre compte des parties résistives et capacitives de  $\bar{Z}$  [11]), pour de fractions volumiques des fibres faibles, proches du seuil de percolation, la conduction est fortement capacitive dans le sens transverse (configuration T ou DT) et la valeur du module d'impédance est très élevée. Il faut atteindre 60% de fibres pour tendre vers une conduction plus fortement résistive. Dans le sens transverse, la conduction se fait via le réseau de percolation électrique constitué par les fibres de renfort en carbone de façon résistive et via la conduction capacitive des condensateurs équivalents ( $C_n$ ). La distribution de tension est beaucoup moins homogène (Figure 165 en bas). Naturellement, dans le sens longitudinal, les fibres participent directement à la conduction (peu d'effet du réseau de percolation et de la conduction via les condensateurs équivalents) et la réponse globale reste résistive avec des valeurs du module de  $Z$  très basses. La répartition en tension est donc lissée (Figure 165 en haut).

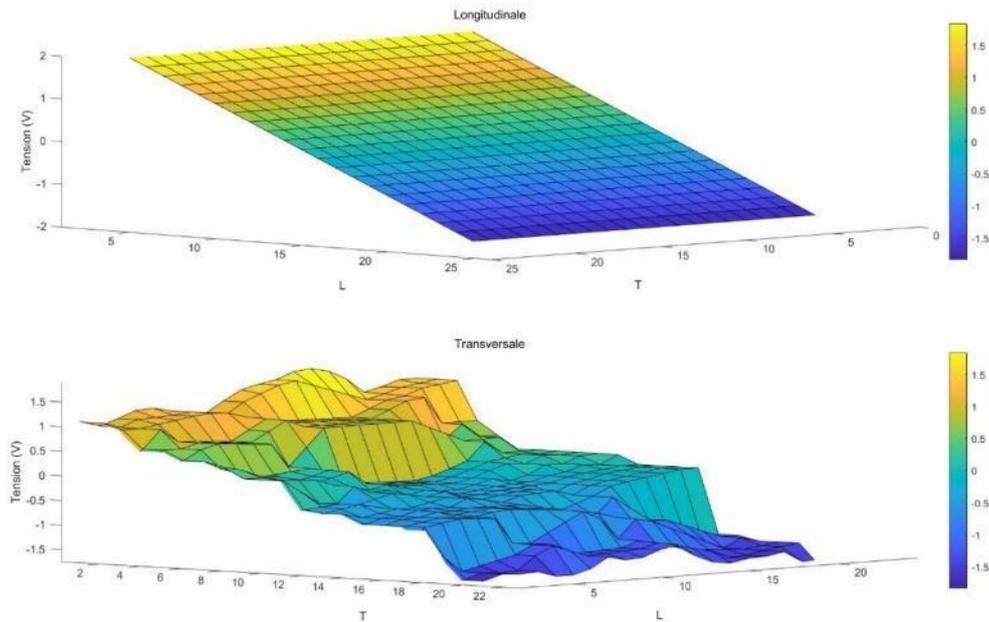
Pour mettre en évidence l'effet de la conduction capacitive, une simulation complémentaire est présentée avec  $V_f=0,1$  (sans réseau de percolation). Les résultats de simulation aux fréquences d'excitation de 10Hz (réponse en très basse fréquence) et 1MHz (réponse en haute fréquence) sont respectivement présentés dans la Figure 166 et Figure 167. Dans la configuration L, la distribution de tension reste homogène et linéaire décroissante entre les électrodes. Dans la configuration T, elle reste décroissante et plus ou moins homogène mais non-linéaire entre les électrodes. Des ondulations locales au niveau de potentiel électrique (une distribution hétérogène de tension électrique) apparaissent avec l'augmentation de la fréquence.

Dans le Tableau 44, pour une fraction volumique proche d'une valeur obtenue en étuve (soit  $V_f=50\%$ ), la simulation fréquentielle permet de mettre en évidence qu'en conduction longitudinale (suivant l'axe L) la réponse est très peu dépendante de la fréquence, contrairement à la conduction transverse (suivant l'axe T) qui elle est nettement dépendante de la fréquence.

Configuration d'électrodes	Vf	Fréquence d'excitation (Hz)	$ Z $ équivalent ( $\Omega$ )	$\theta$ équivalent ( $^\circ$ )
L	0,4	10 k	0,029	-5,5
L	0,5	10 k	0,025	-2,1
L	0,6	10 k	0,021	-1,5
T	0,4	10 k	35,94	-68
T	0,5	10 k	16,55	-29
T	0,6	10 k	8,61	-13

Tableau 43 Résultats de simulation 2D en  $|Z|$  et  $\theta$  avec  $f=10\text{kHz}$  en fonction de Vf

Configuration d'électrodes	Vf	Fréquence d'excitation (Hz)	$ Z $ équivalent ( $\Omega$ )	$\theta$ équivalent ( $^\circ$ )
L	0,5	10	0,028	-1.9
L	0,5	1 k	0,026	-1.6
L	0,5	10 k	0,025	-2,1
L	0,5	1M	0,019	-1.4
T	0,5	10	318,64	-10.5
T	0,5	1 k	79,75	-20
T	0,5	10 k	16,55	-29
T	0,5	1M	8,95	-87

Tableau 44 Résultats de simulation 2D de  $|Z|$  et  $\theta$  avec  $Vf=0,5$  en fonction de la fréquenceFigure 165 Distribution des tensions en 2D dans la direction longitudinale (axe L) et la transversale (axe T) avec  $Vf=0,5$  et  $f=10\text{kHz}$

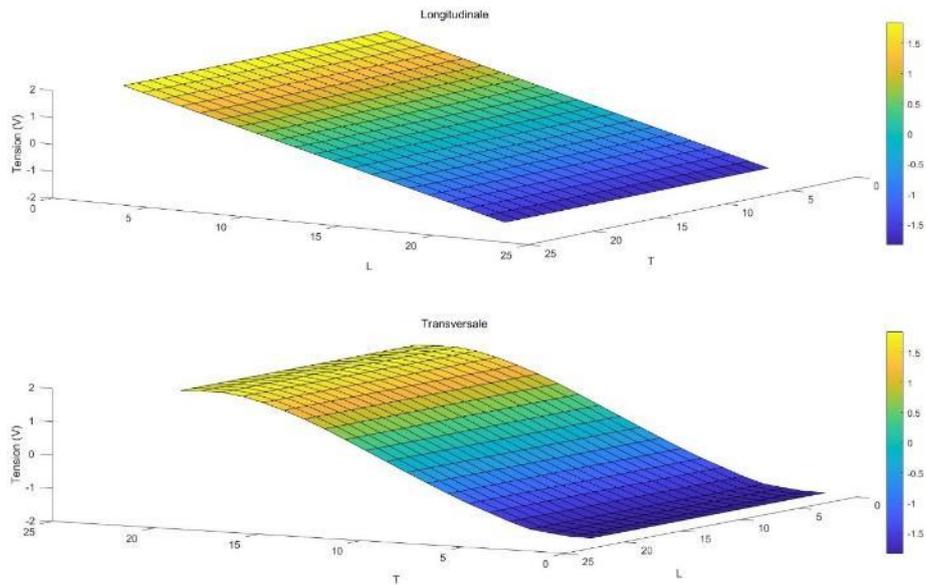


Figure 166 Distribution des tensions en 2D dans la direction longitudinale (axe L) et la transversale (axe T) avec  $V_f=0,1$  et  $f=10$  Hz

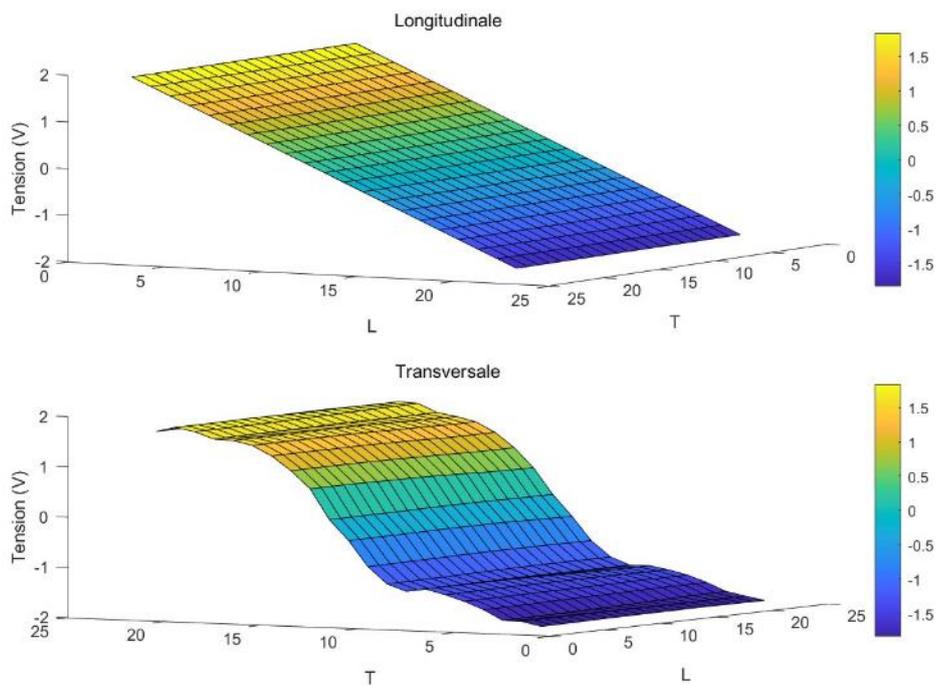


Figure 167 Distribution des tensions en 2D dans la direction longitudinale (axe L) et la transversale (axe T) avec  $V_f=0,1$  et  $f=1$  MHz

La distribution de tension 3D dans la direction T, L, DT et DL (voir Figure 82) au sein d'un seul pli (17 couches de fibres) est présenté dans la Figure 168 (vue isométrique avec l'axe H indiquant le nombre de couche de fibres) et Figure 169 (vue en tension) pour  $V_f=0,5$ ,  $f=10$  kHz et avec une répartition carrée.

Dans le cas de la configuration T, les 4 premières couches de fibres supérieures sont

excitées, les autres restent proches ou égales à 0V. Dans le cas de la configuration L, seule la première couche est excitée. En revanche, la conduction électrique dans le cas DT est volumique et diagonale avec toutes les couches excitées. En d'autres termes, les mesures électriques dans la direction DT fournissent des informations volumiques sur le pli CFRP. Dans le cas de la configuration DL, la conduction électrique est verticale dans le sens d'épaisseur (chaque couche de fibres est équipotentielle). Les figures de la configuration de la réparation hexagonale ne sont pas présentées car la tendance globale de la distribution de tension reste identique par rapport à cette dernière. Une comparaison entre ces deux configurations avec  $f=10$  kHz et  $V_f=0,5$  sont présentés dans le Tableau 45. La configuration aléatoire n'a pas été testée car le taux volumique de fibres reste inférieur à 50% et ne représente pas les fractions obtenues expérimentalement pour les deux matériaux de l'étude. Dans la configuration hexagonale, le réseau de percolation est plus important par rapport à celui de la configuration carrée. Ainsi, la réponse électrique dans les directions T, DT et DL est plus résistive ( $|Z|$  et  $\theta$  plus petite). En revanche, les réponses électriques de deux configurations dans la direction L sont identiques équivalent en  $|Z|$  et  $\theta$ .

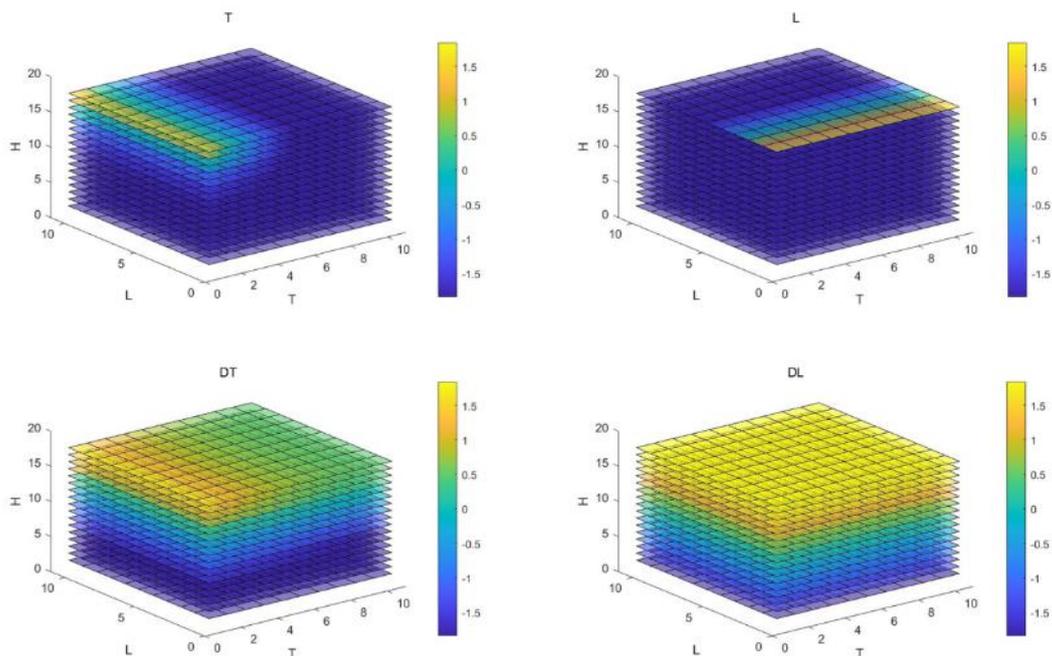


Figure 168 Distribution de tension 3D (vue isométrique avec l'axe H indiquant le nombre de couche de fibres) dans la direction T, L, DT et DL pour un pli avec  $V_f=0,5$  et  $f=10$  kHz avec la configuration forcée en distribution carré

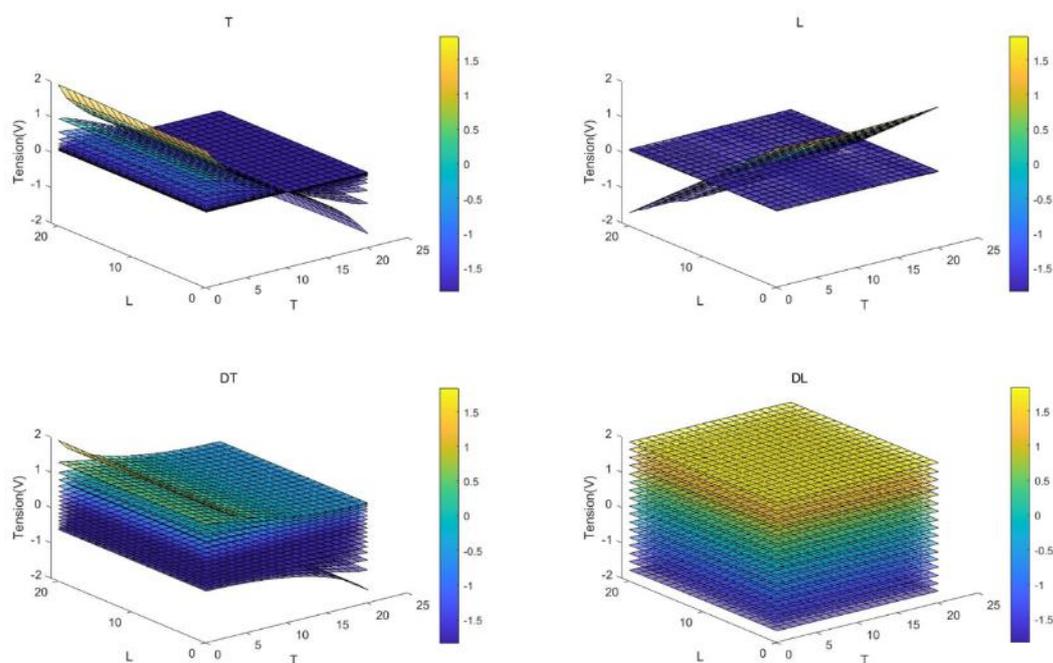


Figure 169 Distribution de tension 3D (vue en tension) dans la direction T, L, DT et DL pour un pli avec  $V_f=0,5$  et  $f=10$  kHz avec la configuration forcée en distribution carré

Configuration de la répartition de fibres	Direction de mesure	$ Z $ équivalent	$\theta$ équivalent
Carré	T	218,41	-23,5
Carré	L	0,025	-1,5
Carré	DT	857,91	-47
Carré	DL	494,33	-33
Hexagonal	T	165,92	-18,9
Hexagonal	L	0,022	-1,8
Hexagonal	DT	649,23	-41,8
Hexagonal	DL	327,55	-26,9

Tableau 45 Résultats de simulation 3D en  $|Z|$  et  $\theta$  pour les configurations carré et hexagonale avec  $f=10$  kHz et  $V_f=0,5$

Afin de tester l'homogénéité de la répartition des fibres dans tout le volume du pli simulé les électrodes sont placées entre les couches 8 et 9 et sur le premier pli (Figure 170) dans les configurations T et L pour la modélisation. Les réponses du premier et du dernier plis (Figure 168) restent semblables. La réponse transverse indique un parcours sur les plis supérieurs et inférieurs de façon symétrique pour les couches excitées à cœur. La réponse longitudinale, elle, se répartie de sur les deux plis contactés.

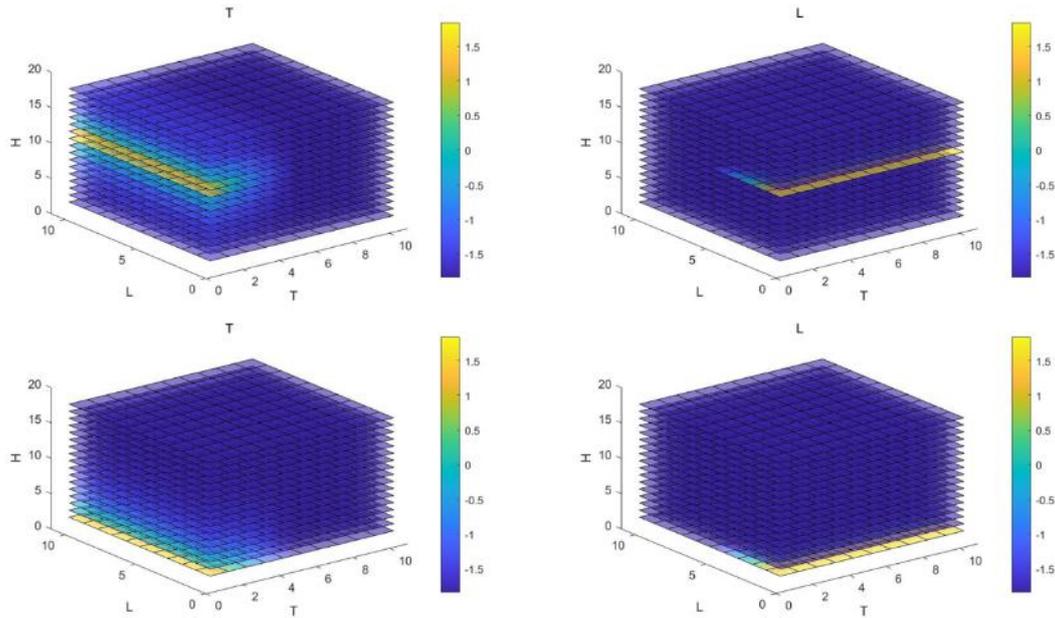


Figure 170 Distribution de tension 3D (vue isométrique) dans la direction T et L avec différents placements des électrodes pour un pli avec  $V_f=0,5$  et  $f=10$  kHz avec la répartition carrée

Les résultats de la simulation dépendent des valeurs caractéristiques des composants électriques équivalents estimés. Concernant, le matériau NC66/NA1808, nous ne pouvons pas discuter davantage de la relation quantitative entre la simulation et les résultats de mesure IE expérimentale tant que des études plus approfondies de la microstructure du matériau n'auront pas été réalisées.

Dans une future étude - et c'est là une perspective - une modélisation décrivant le changement  $\bar{Z}$  en cours de cuisson devra être développée en tenant compte des changements du réseau de percolation (partie résistive dans le sens transversale) et de la permittivité diélectrique de résine (partie capacitive dans le sens transversale). Cette modélisation devra donc intégrer la variation du degré d'avancement  $\alpha$  et de la fraction volumique  $V_f$  en fonction du temps.

## 4.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons proposé une approche de la corrélation rhéologique - électrique de la cinétique de polymérisation d'un CFRP et une modélisation géométrique-électrique sur CFRP en post-cuisson.

Un modèle Kamal-Sourour a été utilisé afin de décrire la cinétique de polymérisation de la résine NA1808. D'après les résultats du test de corrélation de Pearson entre  $\alpha$ ,  $|Z|$ ,  $\theta$  et leurs dérivées premières et secondes, l'homogénéité dimensionnelle entre  $|Z|$  et  $\alpha$  a été démontrée. Ceci a permis d'établir empiriquement des fonctions explicites de corrélation entre ces deux grandeurs en lien avec les transitions de phases de la résine.

Une analyse sur le changement de la permittivité diélectrique  $\epsilon(t)$  (extraction de la partie capacitive de  $\bar{Z}$ ) pendant la cuisson a été réalisée à partir des résultats de mesure IE en  $|Z|$  et  $\theta$ . Elle a permis d'identifier le point de départ de la polymérisation (premier point d'intégration du flux de chaleur) qui ne peut pas être directement détecté sur les courbes  $|Z|(t)$  et  $\theta(t)$  et leurs dérivées (Cf. Chapitre 3).

La modélisation électrique du CFRP en post-cuisson a été développée en deux étapes :

- Une modélisation de la distribution des fibres au sein d'un pli simulé à partir de paramètres d'entrée géométriques tels que la fraction volumique de fibres, les distances de percolation et l'ondulation des fibres (les informations sur le matériau T700/M21 ont été utilisées dans ce cadre) ;
- Une modélisation de la distribution de la tension électrique se basant sur un modèle de type DKMC (Discret Kirchhoff–Monte Carlo) intégrant les aspects résistifs et capacitifs du réseau de percolation induit dans le pli simulé.

Le pli de référence a été simulé selon trois configurations de répartition de fibres en forçant une distribution carrée, hexagonale ou aléatoire de celles-ci. Le nombre de contacts inter-fibres  $N_c$ , donc le réseau de percolation induit, est déterminé en tenant compte des paramètres d'entrée imposés. Des simulations de conduction électrique en 2D (1 couche de fibres) et en 3D (17 couches de fibres représentant un pli caractéristique de 125  $\mu\text{m}$  d'épaisseur) ont été réalisées sur le volume du pli généré. Différentes configurations de placement des électrodes (L et T pour la conduction 2D;

L, T, DL et DT pour la conduction 3D) ont été testées. Les effets de la fraction de volume et des fréquences d'excitation ont également été discutés.

Globalement, les résultats obtenus restent cohérents avec ceux des travaux précédents [5, 7, 10, 11]. La conduction dans le sens longitudinal est portée par les fibres dans une seule couche de fibres et se fait de façon équipotentielle entre plusieurs couches. Dans le sens transversal, la répartition des tensions dépend du réseau de percolation en 2 et 3D, mais, nous montrons ici, en plus, l'effet de la condition capacitive qui, contrairement aux travaux précédents, a été intégrée. Ceci permet de modéliser un comportement électrique complexe d'un pli en-dessous ou au-dessus du seuil de percolation dépendant du taux volumique de fibres et d'intégrer une analyse fréquentielle. De plus, la variation de la permittivité diélectrique de la résine en fonction du degré d'avancement pourra être intégrée à ce modèle pour un suivi de cuisson plus représentatif.

## **Chapter 5 Perspectives**

## 5.1 Introduction

Ce chapitre est une présentation succincte de perspectives potentielles liées à notre approche IE.

Dans la première partie, une étude thermographique sur structures en CFRP excitées par excitation électrique est présentée. La réponse thermique est observée et localisée en temps réel à l'aide d'une caméra de thermographie infrarouge. L'élévation de la température et la puissance dissipée par effet Joule sont quantifiées afin de montrer faisabilité d'utilisation le matériau comme actionneur (fonctionnalisation active), par exemple pour assurer du contrôle non destructif (CND) actif ou le dégivrage de pièces soumises à des températures très basses (surfaces de vol sur les avions par exemple).

L'utilisation de fibres de carbone comme électrodes de mesure peut trouver un intérêt en remplacement de mèches de cuivre. Ainsi, dans la seconde partie, une étude préliminaire sur le suivi de la réponse IE d'une mèche de carbone en cours de cuisson est présentée. L'objectif ici est de vérifier si la fibre de carbone seule ne subit aucun autre effet dans sa réponse IE en  $|Z|$  et  $\theta$  que celui de la température pendant le cycle.

La réponse d'un échantillon monopli de NC66/NA1808 sous flexion manuelle est abordée dans une dernière partie pour mettre en évidence la réponse IE à une sollicitation mécanique simple. La relation entre la flèche de l'échantillon monopli et les changements en  $|Z|$  et  $\theta$  est déterminée.

## 5.2 Analyse thermographique à l'aide de la caméra infrarouge

La thermographie infrarouge est souvent utilisée pour le suivi des essais mécaniques [14] ou la détection de l'endommagement de structure en CFRP [60]. Dans le cadre de cette thèse, une approche thermographique à l'aide d'une caméra de thermographie infrarouge est proposée pour la mesure en post-cuisson afin de montrer la faisabilité d'une fonctionnalisation active du matériau. Deux échantillons monopli ( $[0^\circ_1]$  et  $[90^\circ_1]$ ), placés dans une chambre noire, sont excités par une alimentation de laboratoire CPX400D Aim-TTi en mode continue et leurs réponses sont observées à l'aide d'une caméra FLIR X6800sc en temps réel. Les configurations d'électrodes DL et DT sont respectivement appliquées afin d'obtenir une information thermique volumique.

### 5.2.1 Etude thermographique dans le sens DT de l'échantillon $[90^\circ_1]$

L'état initial de l'échantillon  $[90^\circ_1]$  avant l'introduction d'un courant électrique continue dans la direction DT est présenté dans la Figure 171 et la Figure 172. La zone d'acquisition est notée Box1 encadrée en rouge. La référence de température d'environnement est notée Box2 encadrée en vert. Le champ de température de l'échantillon est quasi-homogène dans l'échantillon  $[90^\circ_1]$ .

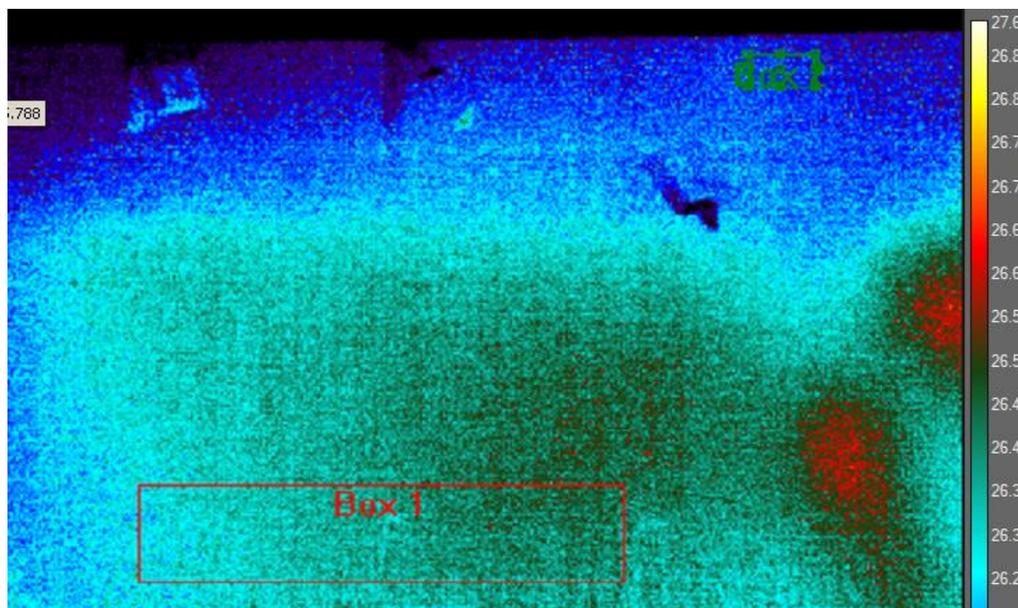


Figure 171 Etat initial de l'échantillon monopli  $[90^\circ_1]$  avant excitation électrique dans le sens DT

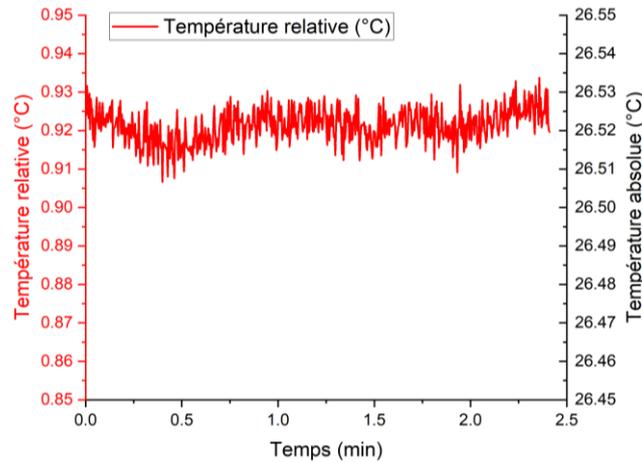


Figure 172 Température relative de Box1 sur monopli  $[90^{\circ}_1]$  avant excitation électrique

Un exemple de thermographie infrarouge pour l'échantillon monopli  $[90^{\circ}_1]$  avec une tension d'excitation de 25V est présenté dans la Figure 173. Les autres thermographies sont en Annexe-viii.

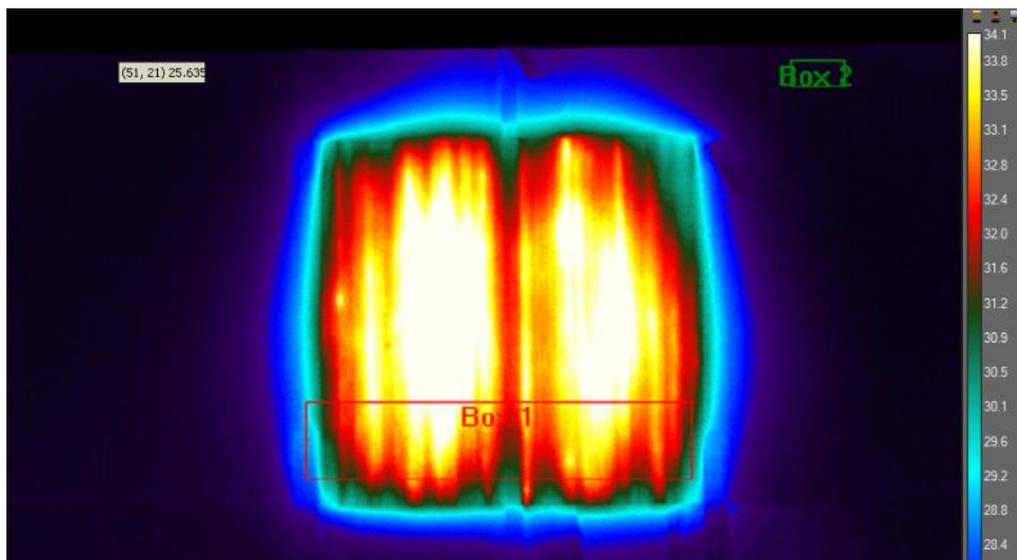


Figure 173 Thermographie d'un échantillon  $[0^{\circ}_1]$  avec une tension d'excitation de 25 V en configuration DT

D'après les thermographies obtenues avec les différentes tensions d'excitation, la réponse thermique de l'échantillon  $[90^{\circ}_1]$  est toujours quasi-homogène dans le sens de mesure DT. Ainsi, nous pouvons définir une quantification de l'effet Joule en considérant une réponse uniformément répartie en tenant compte du courant et de la tension aux bornes de l'échantillon (nous supposons que la puissance dissipée de l'échantillon égale à la puissance de sortie de l'alimentation de laboratoire). La

corrélation entre la puissance dissipée  $P$  et l'élévation de la température  $\Delta T$  est présentée dans le Tableau 46 et la Figure 174.

Courant (mA)	Tension (V)	Puissance (W)	Température REF(°C)	Température de la zone (°C)	$\Delta T$ (°C)
0	2	0	25.7	26.2	0
2	3	0.006	25.7	26.2	0.5
4	4	0.016	25.7	26.2	0.5
7	5	0.035	25.7	26.3	0.6
9	6	0.054	25.8	26.3	0.5
12	7	0.084	25.8	26.5	0.7
14	8	0.112	25.8	26.6	0.8
17	9	0.153	25.9	26.8	0.9
19	10	0.19	25.9	27	1.1
30	15	0.45	25.9	27.9	2
42	20	0.84	26	30.1	4.1
54	25	1.35	26.1	32.2	6.1
69	31	2.139	26.2	35.4	9.2

Tableau 46 Variation de la puissance dissipée  $P$  et élévation de la température dans le sens DT

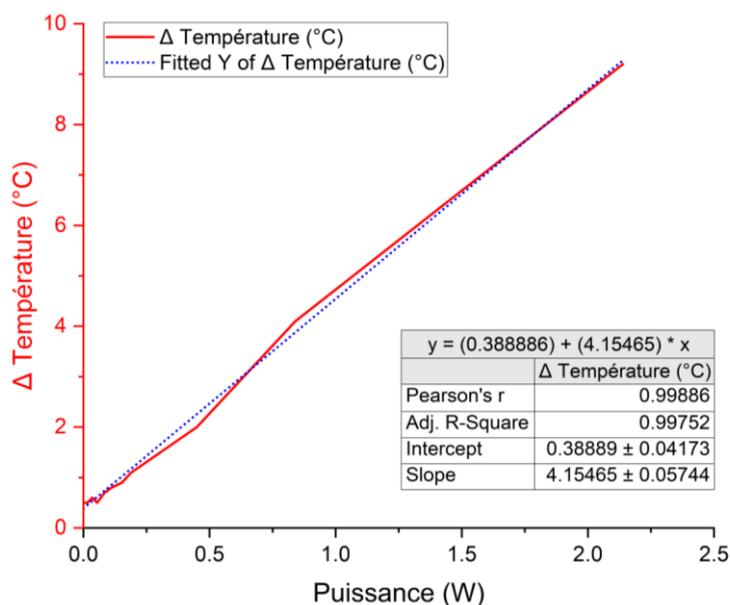


Figure 174 Relation entre la puissance dissipée et l'élévation de la température dans le sens DT

Dans cette configuration de mesure (DT) tout le réseau de percolation dans le sens transverse du monoplis est engagé dans la conduction électrique. Ainsi, il paraît faisable de générer une source thermique homogène sur l'un des plis d'un stratifié CFRP (en surface ou à cœur), permettant d'enclencher une signature thermique détectable au sens

du CND classique mais difficile d'obtenir de l'élévation de température suffisante (borné à 9°C) pour provoquer un dégivrage global sur la zone concernée.

### 5.2.2 Etude thermographique dans le sens DL de l'échantillon [0°<sub>1</sub>]

L'échantillon [0°<sub>1</sub>] mesuré dans la direction DL est présenté dans la Figure 175. La zone d'acquisition est notée Box1 et la référence de température d'environnement est notée Box2. A l'état initial, le champ de température de l'échantillon n'est pas complètement uniforme en raison de la courbure de la surface de l'échantillon. Un écart de 0,5°C peut être observé entre le centre (en rouge) et le bord (en bleu) de l'échantillon.

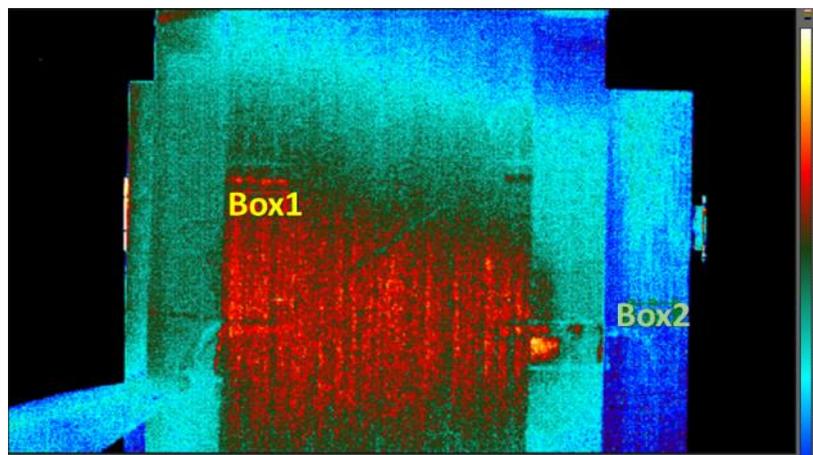


Figure 175 Etat initial de l'échantillon monopli avant excitation électrique en configuration DL

Contrairement à l'échantillon [90°<sub>1</sub>] la réponse thermique de l'échantillon [0°<sub>1</sub>] est limitée à la zone située entre les deux électrodes d'excitation (Figure 176).

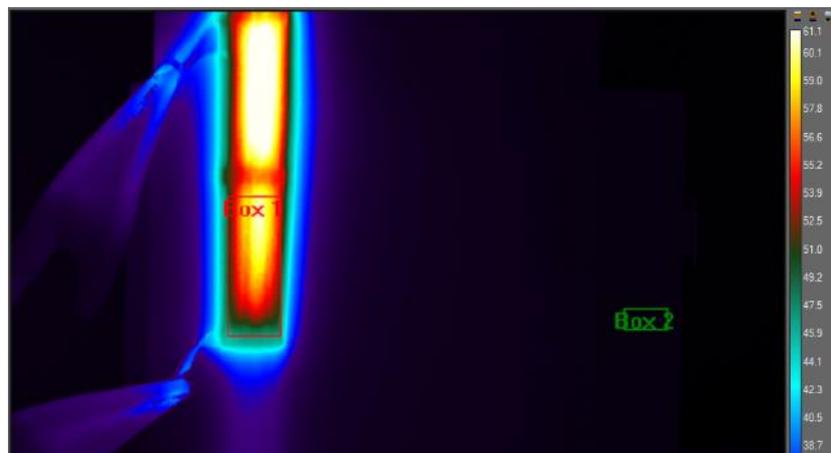


Figure 176 Thermographie d'un échantillon [0°<sub>1</sub>] avec une tension d'excitation de 2V en configuration DL

La résistance équivalente de la zone excitée est beaucoup plus petite par rapport à celle de l'échantillon entier quand le courant est introduit en configuration DT, de sorte qu'une tension d'excitation faible (3V) est suffisante pour provoquer un courant important (3000 mA) et une élévation de température significative. Les résultats de mesure sont présentés dans le Tableau 47 et la Figure 177.

Courant (mA)	Tension (V)	Puissance (W)	Température REF(°C)	Température de la zone (°C)	$\Delta T$ (°C)
0	0	0.00	24.4	24.8	0.4
100	0.1	0.01	24.6	25	0.4
200	0.25	0.05	24.6	25	0.4
300	0.35	0.11	24.7	25.7	1
400	0.47	0.19	24.7	26.3	1.6
502	0.57	0.29	24.8	27.3	2.5
603	0.69	0.42	24.8	28.3	3.5
703	0.81	0.57	24.9	29.5	4.6
798	0.92	0.73	24.9	30.9	6
899	1.03	0.93	25	32.3	7.3
1000	1.16	1.16	25.2	34.5	9.3
1100	1.26	1.39	25.2	36	10.8
1200	1.34	1.61	25.3	37.8	12.5
1501	1.67	2.51	25.3	44	18.7
2003	2.17	4.35	25.9	55.4	29.5
3005	3.11	9.3558	26	85	59

Tableau 47 Variation de la puissance dissipée et élévation de la température dans le sens DL

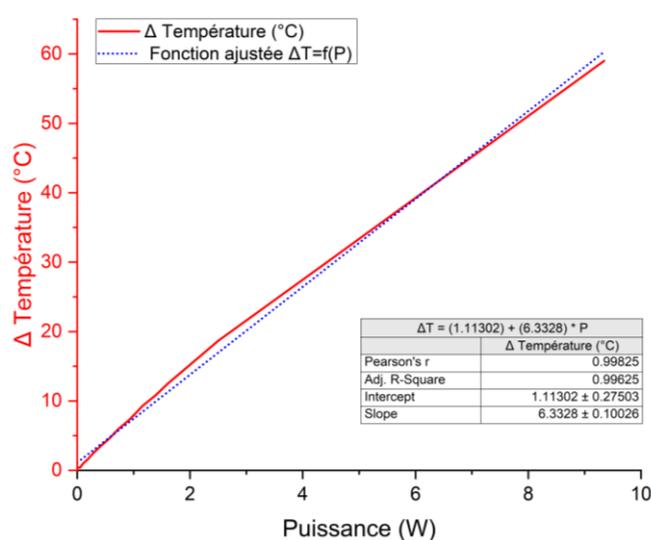


Figure 177 Relation linéaire de la puissance de sortie P et l'élévation de la température  $\Delta T$

Dans cette configuration de mesure (DL) seules les fibres contactées par les électrodes participent pleinement à la conduction électrique. Ainsi, le champ thermique généré ne s'étend pas à la surface totale de l'échantillon mais reste cantonné à une zone spécifique. Contrairement au cas précédent, le marquage thermique reste localisé et permettrait de cibler une zone particulière de contrôle actif ou de dégivrage. De plus, l'élévation de température à puissance dissipée est plus élevée, permettant des sollicitations thermiques plus fortes (jusqu'à 60°C ici) et pouvant assurer une fonction de dégivrage contrairement à la configuration DT.

Ainsi, en fonction du besoin, l'une ou l'autre des configurations pourraient être adaptée afin de solliciter des zones structurelles plus ou moins étendues ou plus ou moins ciblées pour assurer un contrôle santé matière actif ou un dégivrage de surface. Afin de positionner notre potentiel système de dégivrage dans un cadre permettant la comparaison avec d'autres technologies, nous exprimons les puissances électriques nécessaires par unité de surface de stratifié pour élever la température jusqu'à 9°C et jusqu'à 60°C (pour les seuls stratifiés [0°<sub>1</sub>]). Le Tableau 48 donne ces informations.

Configuration d'électrodes	Puissance surfacique pour une élévation de 9°C (W/m <sup>2</sup> )	Puissance surfacique pour une élévation de 60°C (W/m <sup>2</sup> )
DT	7,13	-
DL	7,25	58,43

Tableau 48 Puissances surfaciques nécessaires pour une élévation de température de 9°C et de 60°C avec différentes configurations d'électrodes

### 5.3 Réponse thermique de la mèche de fibres

Afin de remplacer les électrodes de cuivre par un matériau compatible avec les CFRP, il paraît légitime de penser à la fibre de carbone elle-même comme électrode. Ceci permettrait de baisser encore plus les risques d'intrusivité lors de son insertion entre préimprégnés. N'ayant pas de mèche NC66 à disposition, il a été décidé d'utiliser une mèche de fibre de carbone de longueur de 150mm disponible à l'ICA (80K Fortafil 51 TOHO CARBON FIBERS, INC.) présentée dans la Figure 178.



Figure 178 Mèche de fibre de carbone 80K Fortafil 51 de 150mm de longueur

Un cycle de cuisson comprenant une rampe de  $2^{\circ}\text{C}/\text{min}$  durant 50 min, un palier isotherme de  $120^{\circ}\text{C}$  durant 90min et un refroidissement à  $1^{\circ}\text{C}/\text{min}$  durant 30 min est appliqué afin de caractériser la mèche de fibre de carbone (Figure 179). Quatre cycles identiques ont été testés. Les réponses électriques de la mèche restent semblables d'un cycle à l'autre. Les résultats sur un seul cycle sont présentés ci-après.

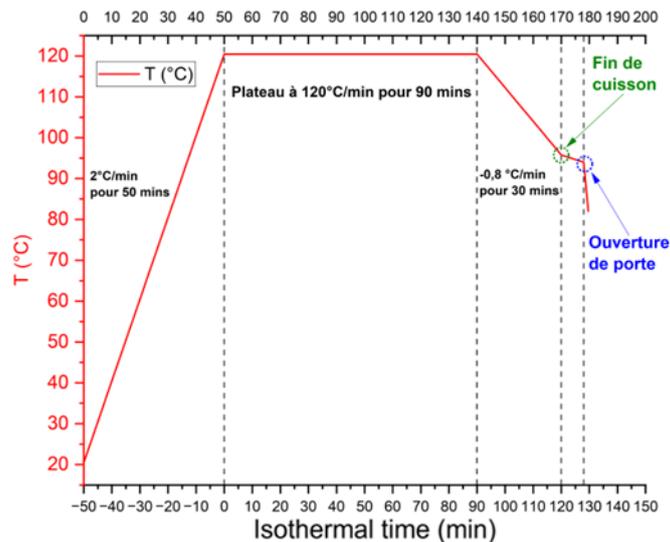


Figure 179 Cycle de cuisson en étuve pour caractériser la réponse électrique d'une mèche de fibres de carbone

La réponse fréquentielle de la mèche de fibres de carbone de 5 kHz à 50 kHz est illustrée dans la Figure 180. La mèche présente une propriété inductive dans la bande à haute fréquence (à 50kHz,  $\theta > 5^{\circ}$ ) mais la valeur de  $|Z|$  varie de façon quasiment indépendante de la fréquence. La mèche agit ici comme un capteur inversé de température. Ainsi, l'effet de l'inertie de l'étuve au début du palier isotherme est nettement marqué. Toutes les transitions en température (dynamique-stationnaire, stationnaire-dynamique, fin de cuisson et ouverture de porte) pendant la cuisson peuvent être corrélées aux transitions en  $|Z|$  et  $\theta$  (changement de pente).

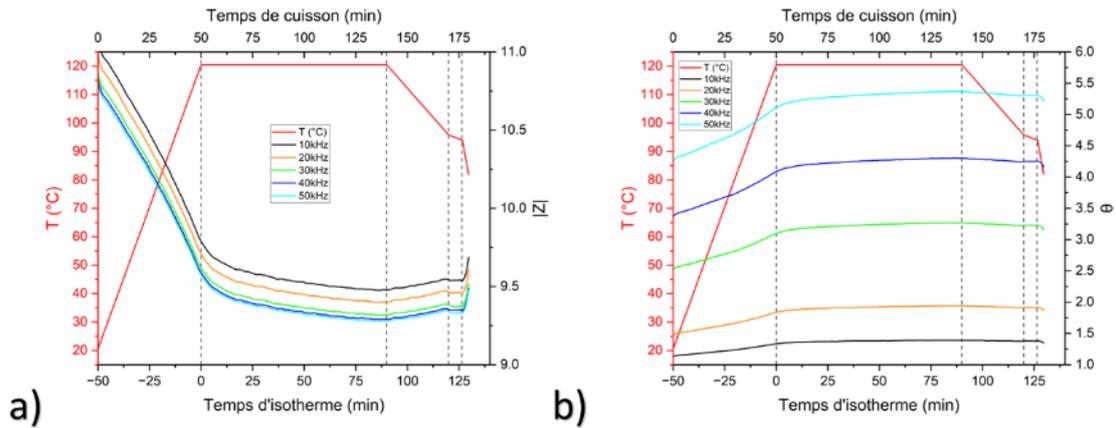


Figure 180 Réponses en fréquence de  $|Z|$  (a) et  $\theta$  (b) de la mèche de fibres de carbone

Faute de temps, nous n'avons pu tester une configuration avec mèche intégrée au sein d'un stratifié. L'idée était de pouvoir mesurer sur une même mèche de carbone la réponse électrique séparée dans une partie libre (variation IE en lien avec la variation thermique du cycle) et dans la partie intégrée (variation IE en lien avec les variations physico-chimiques) représentée sur la Figure 181. Ici nous n'avons étudié que la partie libre (voie 1) pour mesurer la variation de  $|Z|$  et  $\theta$ . Les travaux futurs devront finaliser cette approche avec une mèche de fibres de carbone initialement sèche et noyée dans un stratifié carbone/époxy (voie 2).

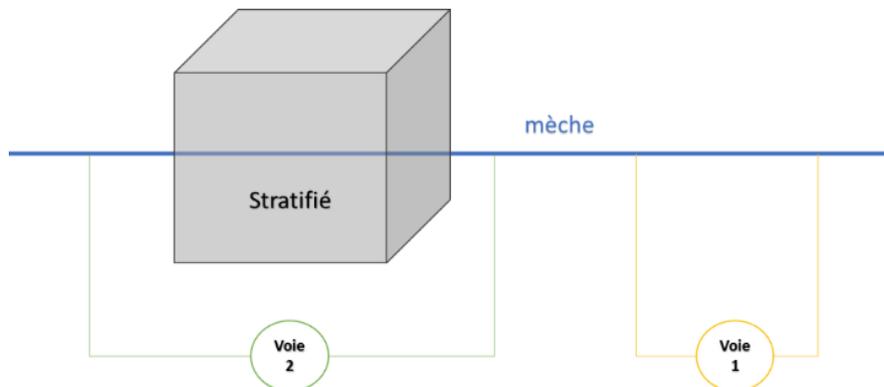


Figure 181 Schéma expérimental de mesure IE avec la mèche intégrée. Les variations physico-chimiques sont mesurées via la voie 1 et la variation de  $|Z|$  et  $\theta$  sous les effets de la température thermique via la voie 2

## 5.4 Variation de $\bar{Z}$ d'un échantillon $[0^\circ_1]$ soumis à une sollicitation de flexion

Afin de montrer la faisabilité du suivi d'une sollicitation mécanique du CFRP par

mesure IE avec la fréquence d'excitation à 10 kHz, une plateforme monopli NC66/NA1808  $[0^\circ_1]$  de 300mm x 100mm (125 $\mu$ m d'épaisseur) (Cf. chapitre 3) est testé dans la configuration d'électrodes T (pour obtenir l'information de conduction électrique surfacique). Le monopli étant cuit sur une face d'une plaque PCB, la plateforme est naturellement courbée (Cf. 3.3.1 et 3.3.3.3, Figure 101 et Figure 120). La plateforme est sollicitée en flexion trois points dans le sens bas (Figure 182).

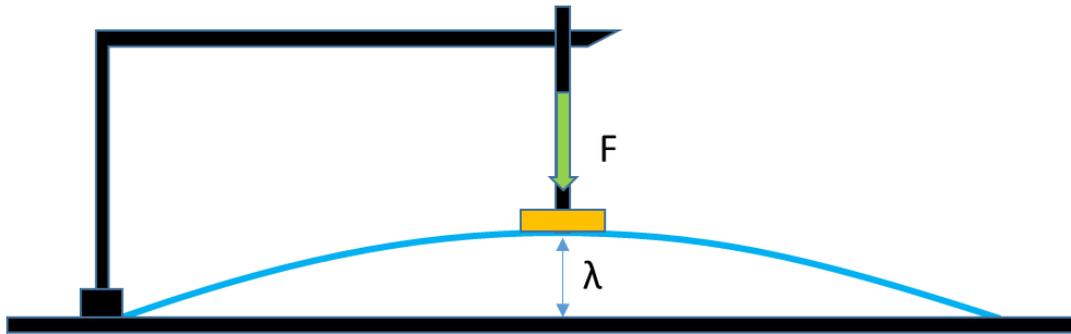
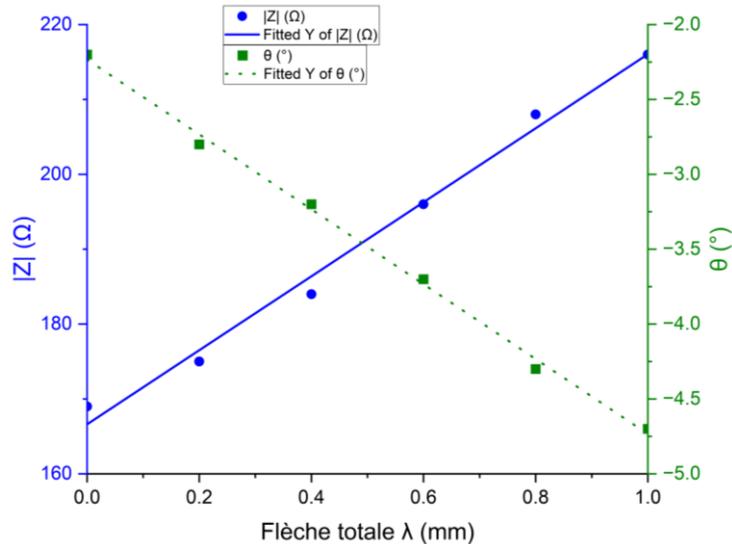


Figure 182 Schéma simplifié de l'échantillon  $[0^\circ_1]$  soumis à une flexion pseudo-punctuelle (axe d'appui réglable via un déplacement par vis - précision de 0,05 mm - en hauteur fixée sur une potence et disque isolant en téflon en bout d'axe ; plaque PCB en appui simple d'un côté et en glissement libre de l'autre ; mesure de la flèche par écart à la position « zéro » quand la plateforme est horizontale)

La relation entre la flèche totale  $\lambda$  et la réponse électrique en  $|Z|$  et  $\theta$  est présentée dans le Tableau 49 et la Figure 183. Des relations linéaires sont obtenues avec un très bon coefficient de corrélation ( $R^2 > 0,99$ ). Les électrodes étant positionnées entre la surface inférieure du préimprégné NC66/NA1808 et la plaque PCB, la zone de conduction transverse (quelques couches de fibres concernées uniquement) subit des contraintes de compression et le réseau de percolation s'affaiblit. La réponse électrique de l'échantillon  $[0^\circ_1]$  change dans le sens capacitif, ce qui se manifeste par une augmentation de  $|Z|$  et une diminution de  $\theta$ . Les fonctions d'ajustement  $|Z|=f(\lambda)$  et  $\theta=f(\lambda)$  sont en Annexe-x.

$\lambda$ (mm)	$ Z $ ( $\Omega$ )	$\theta$ ( $^\circ$ )
1	216	-4.7
0.8	208	-4.3
0.6	196	-3.7
0.4	184	-3.2
0.2	175	-2.8
0	169	-2.2

Tableau 49 Réponse de la flexion manuelle d'échantillon  $[0^\circ_1]$  en  $|Z|$  et  $\theta$ .Figure 183 Réponse de la flexion manuelle de l'échantillon monopli  $[0^\circ_1]$  en  $|Z|$  et  $\theta$  en fonction de la flèche  $\lambda$ .

Cette expérience simple démontre la faisabilité d'une surveillance des matériaux CFRP en temps réel par mesure IE lors d'essais mécaniques. Le banc développé dans cette thèse est capable de suivre la réponse IE de l'ordre de quelques millisecondes. Dans les études futures, une série d'expériences mécaniques devra être réalisée sur différents échantillons en CFRP (monopli, stratifié multiplis UD ou QI) : traction, compression, cisaillement, vieillissement et fatigue. L'effet des électrodes de cuivre intégrées au sein des échantillons au cours du processus de production (drapage) sur la réponse mécanique doit faire l'objet d'une étude plus approfondie (analyse d'intrusivité).

## 5.5 Conclusion

Ce chapitre est une synthèse des perspectives associées à notre approche IE.

Une étude thermographique sur les échantillons monopli sous une excitation électrique à l'aide d'une caméra infrarouge a été présentée. La réponse thermique dans le sens DT est homogène et répartie sur l'ensemble de l'échantillon, avec une faible élévation de la température. En revanche, la réponse thermique dans le sens DL est concentrée dans la zone située entre les deux électrodes et le réchauffement est suffisamment important ( $60^{\circ}\text{C}$ ) pour permettre une fonction de dégivrage de surface. Cette approche démontre la faisabilité d'utiliser le matériau instrumenté comme actionneur pour effectuer du contrôle non destructif (CND) actif et du dégivrage. Les études futures pourront porter sur des échantillons de CFRP de plus grandes dimensions et de formes plus irrégulières, en utilisant différentes configurations des électrodes.

Une étude préliminaire sur le suivi de la réponse IE d'une mèche de carbone en cours de cuisson a été présentée. La mesure de  $|Z|$  et  $\theta$  d'une fibre de carbone est capable d'indiquer le changement de température en temps réel et de détecter tous les événements de cuisson (fin de cuisson, ouverture de la porte, etc.), sans autre effet dans sa réponse IE en  $|Z|$  et  $\theta$ . Une mèche de fibre de carbone intégrée au sein du stratifié pourra être utilisée comme électrodes dans de futures travaux. La réponse électrique pourrait être séparée dans une partie libre et dans la partie intégrée dans un composite (changement IE en lien avec les variations physico-chimiques).

Une plateforme monopli  $[0^{\circ}_1]$  a été sollicitée en flexion trois point et des mesure IE ont été effectuées. Une corrélation linéaire entre la flèche de l'échantillon et les mesures IE a été déterminée. Une série d'expériences mécaniques pourra être réalisée sur différents échantillons en CFRP dans les études à venir. Une modélisation du CFRP basée sur la corrélation géométrique-mécanique-électrique pourra ainsi être développée et les résultats numériques pourront être comparés à des résultats expérimentaux tirés d'essais mécaniques.

En conclusion, les études réalisées dans ce chapitre ont montré les différentes potentialités associées à l'utilisation de l'approche IE dans diverses applications, en soulignant à la fois les avantages et les limites associées de cette approche.

## Conclusion générale

Dans le cadre de cette thèse, nous nous sommes intéressés au suivi de cuisson par impédancemétrie électrique de matériaux composites stratifiés NC66/NA1808 et leur matrice non-renforcée, en utilisant les matériaux eux-mêmes comme capteur, à l'aide d'un banc ad-hoc développé au sein de laboratoire ICA. Ce banc a été conçu pour être portable, peu coûteux, robuste et facilement transférable vers l'industrie. Le premier but de notre étude est de valider la méthodologie d'impédancemétrie électrique développée dans les travaux précédents en utilisant le nouveau banc et un nouveau matériau afin de montrer que l'approche n'est ni matériau, ni instrumentation dépendante. Les objectifs principaux de notre approche IE sont de réduire le coût de production du CFRP, de pouvoir détecter les anomalies pendant les cuissons, d'optimiser la qualité des produits et de fonctionnaliser le CFRP en service avec le même système que celui mis en œuvre pour le suivi de cuisson. Les électrodes utilisées restant dans la structure CFRP après la fin de cuisson peuvent être employées également pour la surveillance de structures en service afin de répondre à un objectif de SHM. De plus, nous nous sommes intéressés à la corrélation entre les changements physico-chimiques et la réponse électrique du CFRP et la matrice non-renforcée en cours de cuisson, en tenant compte de l'effet de la présence des fibres de carbone. Cette étude permet d'amorcer une modélisation optimisée du CFRP dans différentes échelles visant à l'avenir la simulation d'un matériau virtuel.

Le banc ad-hoc a été conçu et développé au sein du laboratoire ICA en tenant compte de spécifications telles que la portabilité, le faible coût, le taux d'échantillonnage élevé, la précision de mesure et l'adaptation de différentes configurations de mesures électriques. Huit canaux basés sur des analyseurs d'impédance électrique peu coûteux PmodIA et 2 canaux basés sur le thermocouple de type K permettent au banc d'effectuer des mesures multi-physiques (IE + température) de façon synchrone. L'ensemble du nouveau banc représente environ 15% du coût du premier banc utilisé qui avait été développé autour d'un seul analyseur d'impédance électrique HIOKI IM3570 et des composants ad-hoc. Tous les composants électroniques sont disponibles dans le commerce et très faciles à remplacer en cas de défaillance. Le nouveau banc permet aux utilisateurs d'ajouter différents plugins pour différents besoins (tels que

l'augmentation de la gamme de mesure, l'augmentation de la plage de fréquence d'excitation et l'amélioration de la précision de la mesure). Dans le cadre de cette thèse, un circuit d'Analog-Front-End a été conçu, réalisé et connecté au banc afin d'augmenter la gamme de mesure pour de faibles impédances.

Par la suite, différents échantillons de préimprégnés fibres de carbone et matrice époxy NC66/NA1808 et de résine NA1808 non-renforcée ont été caractérisés suivant les analyses conventionnelles thermiques et rhéologiques : DSC, Vanhographe, TGA et rhéomètre à plateaux parallèles. Cette campagne de caractérisation a permis de mettre en évidence les transitions physico-chimiques de la résine au cours d'un cycle spécifique de polymérisation. Les points critiques rhéologiques ont été identifiés et les quatre points principaux ont été choisis pour faire une comparaison avec l'approche de caractérisation par mesure d'impédance électrique (IE) : le point de liquéfaction (PL), le point de gélification (PG), le point de vitrification (PV) et la fin de la réaction (PF). Dans ce contexte, plusieurs échantillons de monopli préimprégné, de stratifiés multiplis UD (100 cm<sup>2</sup> de surface) et de résine non-renforcée (environ 1 g) ont été cuits en étuve. Le suivi de cuisson par mesure IE a été effectué en utilisant le même cycle de polymérisation. La cuisson autoclave n'a pu être mise en œuvre faute de temps. Cependant, la validation de l'approche en étuve suffit ici pour démontrer sa faisabilité (condition non optimale en pression) comme démontré dans les travaux précédents. Des électrodes en cuivre ont été intégrés au sein des échantillons de CFRP et aux surfaces des échantillons de résine, afin d'accéder au matériau utilisé ici en tant que capteur de son propre état, sans changement significatif dans le processus global de la fabrication (compactage et mise sous vide).

Une analyse sur les résultats IE a été effectuée en tenant compte des changements dans le module d'impédance  $|Z|$  et son argument  $\theta$ , en prenant en compte les informations locales et globales données par les lignes asymptotiques et tangentes et les dérivées premières et secondes par rapport au temps. Ces résultats obtenus ont mis en évidence une bonne concordance dans la définition de PL, PG, PV et PF. Quelques écarts temporels dans la définition de ces points entre les échantillons de DSC et de suivi de cuisson en étuve par IE ont été observés. Ils peuvent être attribués à la différence de taille des échantillons et à l'effet potentiel d'inertie thermique du cycle en étuve. L'effet de la présence des fibres de carbone entre échantillons de résine non-renforcée et de

préimprégnés a été discuté.

Les formes et tendances globales des résultats de mesure IE sont en bonne concordance avec celles obtenues dans les travaux préliminaires sur des échantillons produits avec un autre système carbone/époxy T700/M21 à l'aide du premier banc utilisant un analyseur d'impédance spécifique Hioki IM3570. Le suivi de cuisson peut être facilité par l'approche proposée afin de définir des signatures typiques sur CFRP. De plus, notre approche IE a montré la faisabilité de la détection des défauts pendant le cycle de cuisson par deux tests différents : une rupture de vide et une interruption de quelques minutes au cours de la polymérisation. Une signature électrique complètement différente a été obtenue dans le premier cas et un décalage dans le domaine temporel a été mis en évidence dans le second.

Une approche de la corrélation rhéologique-électrique de la cinétique de polymérisation d'un CFRP a été effectuée. Tout d'abord, la cinétique de polymérisation de la résine NA1808 est simulée par un modèle Kamal-Sourour. Ensuite, une série de lois de corrélation entre le degré d'avancement  $\alpha$  et les résultats de mesure IE a été proposée avec des fonctions explicites empiriques. Une analyse sur le changement de la permittivité diélectrique  $\varepsilon(t)$  (extraction de la partie capacitive de l'impédance électrique complexe) pendant la cuisson a été réalisé à partir des résultats de mesure IE en  $|Z|$  et  $\theta$ . Le point de départ de la polymérisation (premier point d'intégration du flux de chaleur) a été détecté par analyse de la permittivité, mais n'a pas pu être détecté sur les courbes  $|Z|(t)$  et  $\theta(t)$  et leurs dérivées. Ceci nous indique que l'approche IE doit se faire sur l'ensemble des paramètres définissant l'impédance électrique mesurée : approche incluant ou séparant les parties résistives et capacitives.

Une modélisation électrique du CFRP en post-cuisson a été proposée afin de décrire la corrélation électrique-géométrique du CFRP cuit au niveau d'un pli unidirectionnel. Le matériau T700/M21 cuit a été utilisé comme référence dans ce cadre. La distribution des fibres au sein d'un pli a été simulée à partir de paramètres d'entrée géométriques tels que la fraction volumique de fibres, les distances de percolation et l'ondulation des fibres. Trois configurations de répartition de fibres ont été étudiées en forçant une distribution carrée, hexagonale ou encore aléatoire. Ceci permet de viser une fraction volumique de fibres spécifique et de déterminer le nombre de contacts inter-fibres  $N_c$  définissant le réseau de percolation induit en 2D et 3D.

Par la suite, la distribution de la tension électrique au sein de CFRP a été simulée sur un modèle de type DKMC (Discret Kirchhoff–Monte Carlo) en intégrant les aspects résistifs et capacitifs du réseau de percolation induit dans le pli simulé. Dans le volume d'un pli, des simulations de conduction électrique en 2D (1 couche de fibres) et en 3D (17 couches de fibres représentant un pli caractéristique de 125  $\mu\text{m}$ ) ont été réalisées sur le volume du pli généré. Différentes configurations de placement des électrodes (longitudinale L et transverse T pour la conduction 2D ; L, T, diagonale-longitudinale DL et diagonale transverse DT pour la conduction 3D) ont été testées. Les effets de la fraction volumique de fibres et des fréquences d'excitation ont également été discutés. Les résultats obtenus par les nouvelles modélisations sont cohérents avec ceux des travaux préliminaires. La conduction dans le sens longitudinal est assurée par les fibres dans une seule couche de fibres et se fait de façon équipotentielle entre plusieurs couches. Cependant, en 2D et 3D dans le sens transversal, la répartition des tensions dépend non seulement du réseau de percolation mais également de la conduction capacitive dans les zones riches en résine (plus-value de cette approche face à l'approche précédente purement résistive). Ceci a permis de décrire un comportement électrique complexe (résistif et capacitif) d'un pli en-dessous ou au-dessus du seuil de percolation (en fonction de la fraction volumique de fibres) et d'intégrer une analyse fréquentielle. La variation de la permittivité diélectrique de la résine en fonction du degré d'avancement pourra être intégrée à ce modèle pour un suivi de cuisson plus représentatif.

Pour finir, différentes possibilités de l'utilisation de notre approche IE dans diverses applications ont été analysées. Les réponses thermiques du CFRP sous une excitation électrique ont été étudiés à l'aide de la thermographie infrarouge. Cette étude a permis de montrer la faisabilité d'utiliser le matériau instrumenté comme actionneur pour effectuer du contrôle non destructif actif et du dégivrage dans une zone ciblée (surfaces de vol des avions par exemple). La faisabilité d'utiliser une mèche de fibre de carbone comme indicateur de température en cours de cuisson et électrode pour mesure IE a été discutée. Dans les recherches à venir, une mèche de fibre de carbone pourrait être intégrée au sein du stratifié comme électrodes pour réduire l'intrusivité (en comparaison avec les tissus en cuivre utilisées dans notre approche). Finalement, la corrélation entre la flèche en flexion 3 points sur une plateforme monopli  $[0^{\circ}_1]$  et la mesure électrique du CFRP a été montrée. Il a permis de montrer la faisabilité de suivre l'état de la

structure en CFRP par mesure IE non seulement en cours de cuisson mais également lors d'une sollicitation mécanique.

Les études futures pourraient se concentrer sur les aspects suivants. Tout d'abord, une modélisation optimisée sur la base de la corrélation rhéologique-thermique-électrique-mécanique du CFRP pourra être développée afin de généraliser l'approche sur les CFRP. Un matériau virtuel pourra être conçu pour décrire les changements du matériau non seulement pendant la polymérisation mais aussi pendant le chargement mécanique (en service). Des essais mécaniques devront être réalisées sur différents échantillons en CFRP, pour différentes stratifications et moyens de fabrication : traction, compression, cisaillement, vieillissement et fatigue. L'effet des électrodes de cuivre (ou de la mèche de fibres de carbone) -intégrées au sein des échantillons au cours du processus de production- sur la réponse mécanique devra être intégré à une analyse d'intrusivité. Si les résultats expérimentaux et numériques font apparaître une bonne corrélation, un modèle inverse pourra être proposé à des fins d'optimisation des matériaux et pour pouvoir réaliser un asservissement des procédés de cuisson. Finalement, l'étude du matériau instrumenté utilisé comme actionneur devra être approfondie. Les simulations thermiques et les expériences à l'aide de thermographie infrarouge pourront être mises en œuvre à cette fin.

## Annexe

### i. Identification des points caractéristiques de la polymérisation de M21

Un ensemble de 14 points caractéristiques rhéologiques (dont PL, PG, PV et PF) en  $\alpha$ ,  $\mu$ ,  $G'$ ,  $G''$  et  $\tan \delta$  ont été sélectionnés pour décrire l'évolution de ces paramètres en cours de polymérisation. Ces points ont été sélectionnés afin de voir la corrélation possible avec la variation des paramètres d'impédancemétrie électrique tels que :  $R_p$ ,  $C_p$ ,  $|Z|$  et  $\theta$ . Ces points ont été exprimés en fonction d'un temps de cuisson référencé au départ de l'isotherme afin d'amoindrir les effets de masse des échantillons et d'inertie de cycle lors de la comparaison avec les mesures IE sur des stratifiés cuits en étuve et autoclave, présente, entre autres, l'ensemble des temps des points sélectionnés de A à N (Figure 184 et Tableau 50).

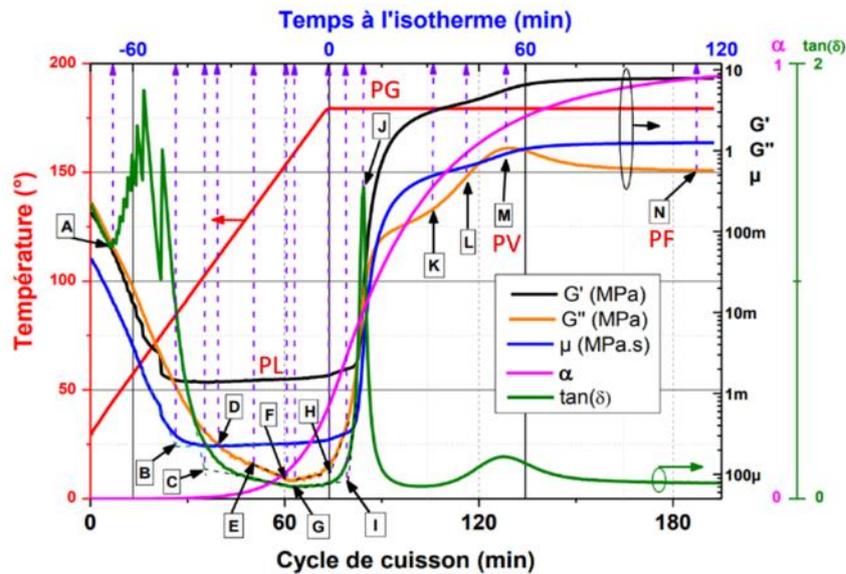


Figure 184 Ensemble des points caractéristiques de la polymérisation de M21

Points caractéristiques avant l'isotherme	$\tan(\delta)_{\min}$	$P_{T_{g1}}$	$\tan(\delta)_1$	$PG''_1$	$PG''_{Trans1}$	PL	$\tan(\delta)_{\min2}$	$T_{Isotherme}$
Label	A	B	C	D	E	F	G	
Température Rhéomètre (°C)	41	85	104	110	133	155	157	73min

Points caractéristiques à l'isotherme	$PG''_2$	$\tan(\delta)_2$	PG	$PG''_3$	$PG''_{Trans2}$	PV	PF
Label	H	I	J	K	L	M	N
Temps Rhéomètre (min)	1	6	10	30	40	55	105

Tableau 50 Ensemble des points caractéristiques de la polymérisation de M21

Avec :

- A : Premier minimum de la courbe  $\tan(\delta)$
- B : Premier changement de pente de la courbe de la viscosité  $\mu$
- C : Premier changement de pente de la courbe  $\tan(\delta)$
- D : Premier changement de pente de la courbe de  $G''$
- E : Premier changement transitoire de la pente du  $G''$
- F (PL) : Minimum de l'évolution du  $G''$
- G : Second minimum de la courbe  $\tan(\delta)$
- H : Second changement de la pente du  $G''$
- I : Second changement de la pente de  $\tan(\delta)$
- J (PG) : Pic de la courbe de  $\tan(\delta)$  correspondant
- K : 3<sup>ème</sup> point d'inflexion de la courbe de  $G''$
- L : Second changement transitoire de la pente du  $G''$
- M (PV) : Pics des courbes du  $G''$  et  $\tan(\delta)$
- N (PF) : Fin de la polymérisation quand  $\alpha$  se stabilise à une valeur maximale.

La comparaison entre les résultats de rhéomètre et ceux de la mesure IE est présentée dans la Tableau 51.

Points caractéristiques avant l'isotherme	$\tan(\delta)_{\min}$	$P_{Tgi}$	$\tan(\delta)_1$	$PG''_1$	$PG''_{Trans1}$	PL	$\tan(\delta)_{\min2}$	$T_{Isotherme}$
Label	A	B	C	D	E	F	G	
Température Rhéomètre (°C)	41	85	104	110	133	155	157	73min
Température Impédancemètre  Z <sub>Z</sub>   (°C)	42	85	110	129	135	159	167	83 à 87min

Points caractéristiques à l'isotherme	$PG''_2$	$\tan(\delta)_2$	PG	$PG''_3$	$PG''_{Trans2}$	PV	PF
Label	H	I	J	K	L	M	N
Temps Rhéomètre (min)	1	6	10	30	40	55	105
Temps Impédancemètre  Z <sub>Z</sub>   (min)	2	11	14	23	42	55	112

Tableau 51 Ensemble des points caractéristiques de la polymérisation de M21

## ii. Fiches techniques du système de la mesure IE

1) Fiche technique HIOKI IM3570

[https://www.hioki.com/euro-en/products/lcr-meters/3-ghz/id\\_5772](https://www.hioki.com/euro-en/products/lcr-meters/3-ghz/id_5772)

2) Fiche technique AD5933

<https://www.analog.com/media/en/technical-documentation/data-sheets/AD5933.pdf>

## 3) Fiche technique Multiplexeur

<https://www.ti.com/lit/ds/symlink/tca9548a.pdf>

## 4) Fiche technique DAQ NI

<https://www.ni.com/docs/en-US/bundle/ni-845x-hw-dsw-getting-started/resource/371746e.pdf>

### iii. Bilan matériel pour la réalisation de l'AFE

ID	Name	Designator	Footprint	Quantity
1	10uF	C1,C3,C6,C8,C10	C0603	5
2	0.1uF	C2,C4,C7,C9,C11	C0603	5
3	0.1uF	C5	CASE-A_3216	1
4	Header-Male-2.54_1x2	H1	HDR-1H_2P-P2.54-V-M-1	1
5	2k	R1,R3,R8,R10	R0603	4
6	470	R2,R4	R0603	2
7	24	R5	R0603	1
8	11.11k	R6	R0603	1
9	5k	R7	R0603	1
10	220	R9,R11	R0603	2
11	100	R12	R0603	1
12	SMA-KE901	RF1,RF2,RF3,RF4	SMA-TH_SMA-KE901	4
13	AD623ARMZ-REEL7	U2	MSOP-8_13.0-W3.0-P0.65-L54.9-BL	1
14	ADP150AUJZ-3.3-R7	U4	SOT-23-5_L3.0-W1.7-P0.95-L52.8-BR	1
15	ADB606ARZ	U1,U3	SOIC-8_14.9-W3.9-P1.27-L56.0-BL	2

Tableau 52 Bilan matériel pour la réalisation de l'AFE

### iv. Identification des points critiques de NA1808 à l'aide des essais en DSC

L'identification des points critiques de l'échantillon de résine NA1808 non-renforcée en utilisant la méthode d'asymptote et de dérivées sur les résultats de l'essai en DSC est présenté dans la Figure 185 et le Tableau 53. La référence du temps zéro ( $t=0$ ) est le début du palier isotherme ( $T=120^{\circ}\text{C}$ ).

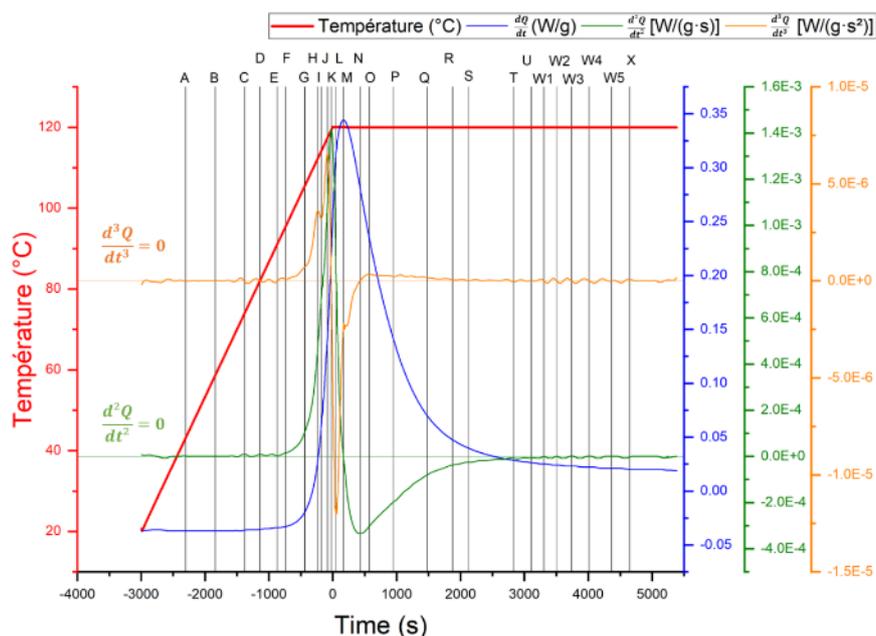


Figure 185 Ensemble des points caractéristiques de la polymérisation de NA1808

Point	Temps (s)	T (°C)	Commentaire
A	-2304	43.12	Début du 1 <sup>e</sup> régime stationnaire $\alpha'$
B	-1840	58.56	Milieu du 1 <sup>e</sup> régime stationnaire $\alpha'$
C	-1377	74.2	Fin du 1 <sup>e</sup> régime stationnaire $\alpha'$
D	-1140	82.02	Point de décrochage $\alpha'$
E	-866	91.24	Point de décrochage $\alpha''$ Début d'intégration $\alpha'$
F	-733	95.65	Point de décrochage $\alpha'''$
G	-439	105.48	Point d'inflexion $\alpha'''$
H	-233	112.69	Maximum local $\alpha'''$
I	-180	114.09	Maximum local $\alpha'''$
J	-82	117.3	Maximum globale $\alpha'''$
K	-37	119.5	Maximum globale $\alpha''$ Intersection ASP $\alpha$
L	53	120	Minimum globale $\alpha'''$
M	167	120	Maximum globale $\alpha'$
N	360	120	Minimum globale $\alpha''$
O	569	120	Maximum local $\alpha'''$
P	948	120	Point d'inflexion $\alpha'''$ Intersection ASP $\alpha$
Q	1476	120	Point d'inflexion $\alpha'''$
R	1876	120	Point d'inflexion $\alpha'''$

Tableau 53 Ensemble des points caractéristiques de la polymérisation de NA1808

v. Réponse fréquentielle des stratifiés de T700/M21

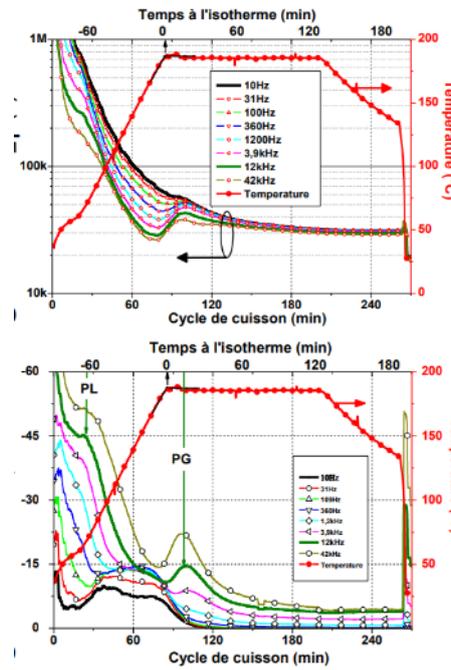


Figure 186 Réponses fréquentielle de 10 Hz à 42 kHz dans la direction T d'un monoplé T700/M21

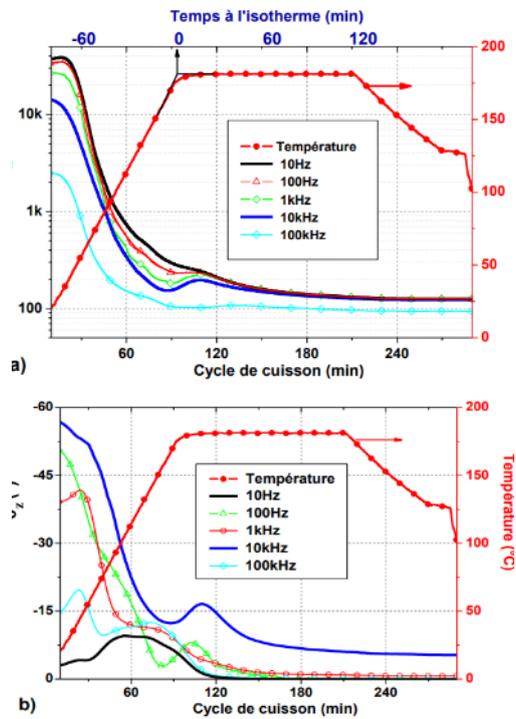


Figure 187 Réponses fréquentielle de 10 Hz à 100 kHz dans la direction DT d'un stratifié [0<sup>8</sup>] de préimprégné T700/M21

vi. **Algorithme d'optimisation pour la détermination des paramètres du modèle Kamal-Sourour**

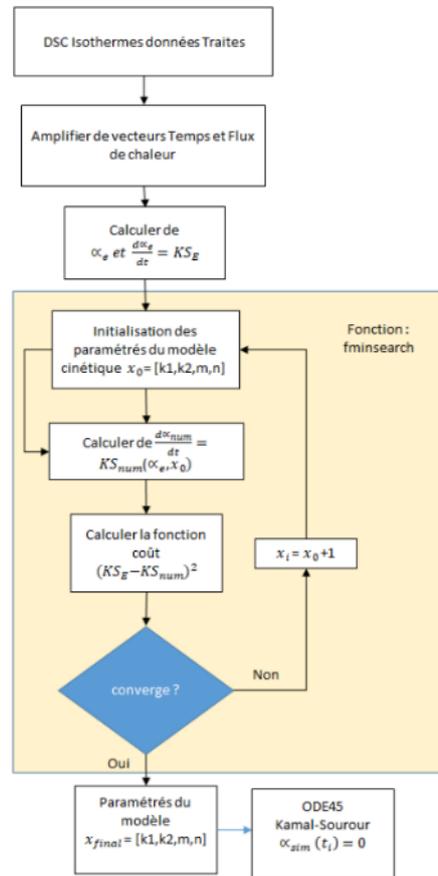


Figure 188 Algorithme d'optimisation pour la détermination des paramètres du modèle Kamal-Sourour

vii. **Fonction d'ajustement de la corrélation DSC-IE**

**Fonction d'ajustement  $\alpha=f(|Z|)$  primitif du stratifié [0°] en 4 stades monotones :**

Entre le point de départ et PL :

$y = y_0 + A1*\exp(-(x-x_0)/t1) + A2*\exp(-(x-x_0)/t2) + A3*\exp(-(x-x_0)/t3)$	
Adj. R <sup>2</sup>	0.9997
y <sub>0</sub>	-1.58308E-4 ± 1.48054E-4
x <sub>0</sub>	42.17112 ± 30166.54448
A1	0.04049 ± 117137.98808
t1	0.01043 ± 0.00152
A2	0.03118 ± 5230.46139
t2	0.1798 ± 0.01274
A3	0.05769 ± 1483.58133
t3	1.17295 ± 0.02571

Entre PL et PG :

$y = y_0 + B1 * x + B2 * x^2 + B3 * x^3$	
Adj. R <sup>2</sup>	0.99766
y0	-3861.39937 ± 301.06293
B1	268.0698 ± 20.92211
B2	-6.20475 ± 0.4846
B3	0.04789 ± 0.00374

Entre PG et PV :

$y = y_0 + C1 * x$	
Adj. R <sup>2</sup>	0.99944
y0	3.60065 ± 0.006
C1	-0.07208 ± 1.47334E-4

Entre PV et PF :

$y = y_0 + D1 * x + D2 * x^2$	
Adj. R <sup>2</sup>	0.99682
y0	-42.52867 ± 0.71792
D1	2.31172 ± 0.03753
D2	-0.0308 ± 4.90558E-4

**Fonction d'ajustement  $\alpha'' = f(|Z|)$  primitif du stratifié [0°s] en 5 stades monotones :**

Entre le point de départ et PL :

$y = (-0.00290077) + (0.0625416) * x$	
	$\alpha''$ stade1
Pearson's r	0.99863
Adj. R-Square	0.99721
Intercept	-0.0029 ± 4.28384E-5
Slope	0.06254 ± 4.62873E-4

Entre PL et PG :

$y = (0.000967015) + (0.0322221) * x$	
	$\alpha''$ stade2
Pearson's r	0.99833
Adj. R-Square	0.99659
Intercept	9.67015E-4 ± 2.46493E-5
Slope	0.03222 ± 2.74891E-4

Entre PG et maximum local:

$y = (-0.00187) + (0.00459) * x + (0.05652) * x^2 + (0.42051) * x^3$	
	$\alpha''$ stade3
Adj. R-Square	0.99052
Intercept	-0.00187 ± 5.73778E-6
B1	0.00459 ± 1.27741E-4
B2	0.05652 ± 0.00548
B3	0.42051 ± 0.05398

Entre maximum local et PV :

$y = (6.8112E-6) + (-0.09314) * x + (1.97762) * x ^ 2 + (-17.13996) * x ^ 3$	
	$\alpha$ stade4
Adj. R-Square	0.99903
Intercept	6.8112E-6 $\pm$ 2.55417E-6
B1	-0.09314 $\pm$ 9.97422E-4
B2	1.97762 $\pm$ 0.08104
B3	-17.13996 $\pm$ 1.70323

Entre PV et PF :

$y = (-2.17248E-5) + (-0.01731) * x + (0.55641) * x ^ 2 + (-8.17515) * x ^ 3$	
	$\alpha$ stade5
Adj. R-Square	0.99769
Intercept	-2.17248E-5 $\pm$ 6.2529E-7
B1	-0.01731 $\pm$ 2.44181E-4
B2	0.55641 $\pm$ 0.01984
B3	-8.17515 $\pm$ 0.41697

**Fonction d'ajustement  $\alpha=f(|Z|)$  primitif de la résine non-renforcée divisée en 2 stades :**

Avant PL : une somme des fonctions exponentielles.

$y = y0 + A1 * \exp(-(x-x0)/t1) + A2 * \exp(-(x-x0)/t2)$	
	$\alpha$ stade1
Reduced Chi-Sqr	3.05911E-6
Adj. R-Square	0.99474
y0	-0.00105 $\pm$ 0.00119
x0	117681.8555 $\pm$ 1.35982E9
A1	0.05703 $\pm$ 171661.74352
t1	451.72761 $\pm$ 54.73552
A2	0.03938 $\pm$ 5313.63735
t2	10076.68571 $\pm$ 1431.64611

Après PL : une fonction polynomiale de 4<sup>e</sup> ordre.

$y = (499.75336) + (-0.01549) * x + (1.79424E-7) * x ^ 2 + (-9.2082E-13) * x ^ 3 + (1.76781E-18) * x ^ 4$	
	$\alpha$ stade2
Adj. R-Square	0.99851
Intercept	499.75336 $\pm$ 37.6225
B1	-0.01549 $\pm$ 0.0011
B2	1.79424E-7 $\pm$ 1.20517E-8
B3	-9.2082E-13 $\pm$ 5.84383E-14
B4	1.76781E-18 $\pm$ 1.0595E-19

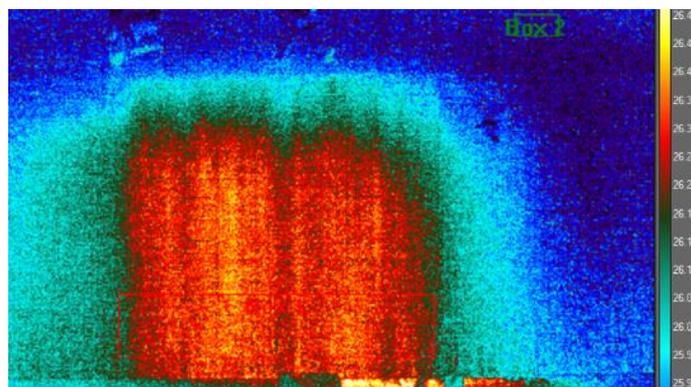
**viii. Thermographies infrarouges de  $[90^{\circ}_1]$  dans le sens DT**

Figure 189 Réponse thermique dans la condition de la tension de 6V

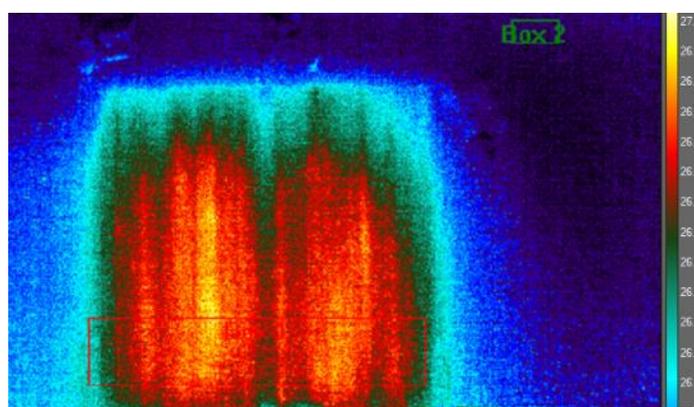


Figure 190 Réponse thermique dans la condition de la tension de 8V

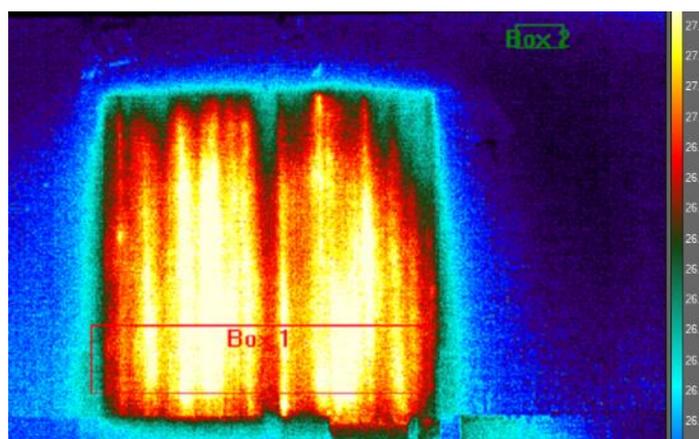


Figure 191 Réponse thermique dans la condition de la tension de 10V

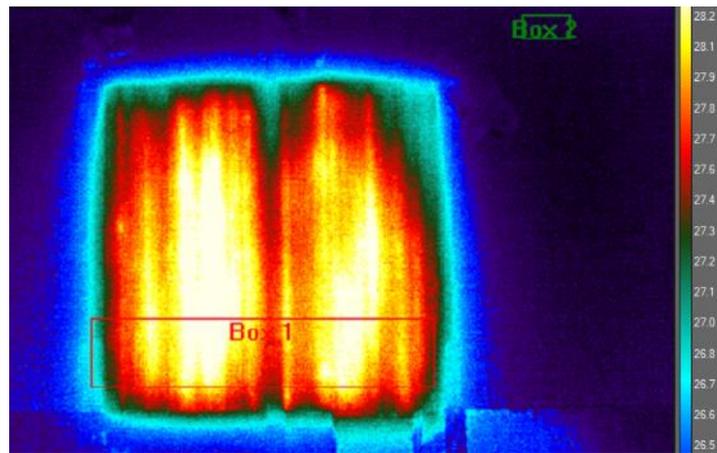


Figure 192 Réponse thermique dans la condition de la tension de 15V

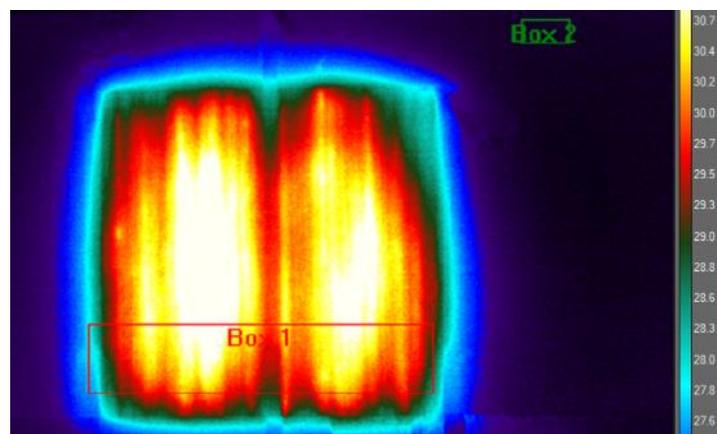


Figure 193 Réponse thermique dans la condition de la tension de 20V

**ix. Thermographies infrarouges de  $[0^{\circ}_1]$  dans le sens DL**

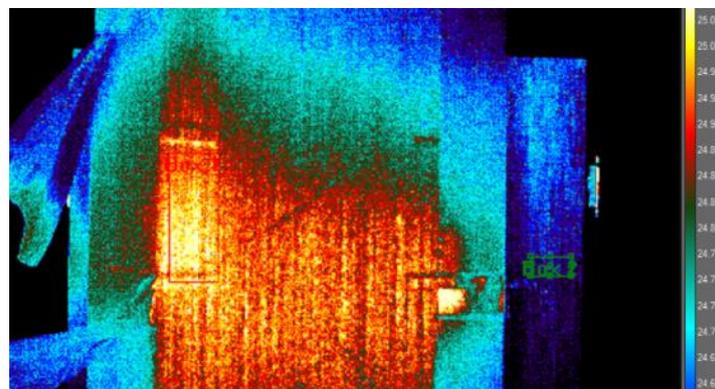


Figure 194 Réponse thermique dans la condition du courant de 100mA

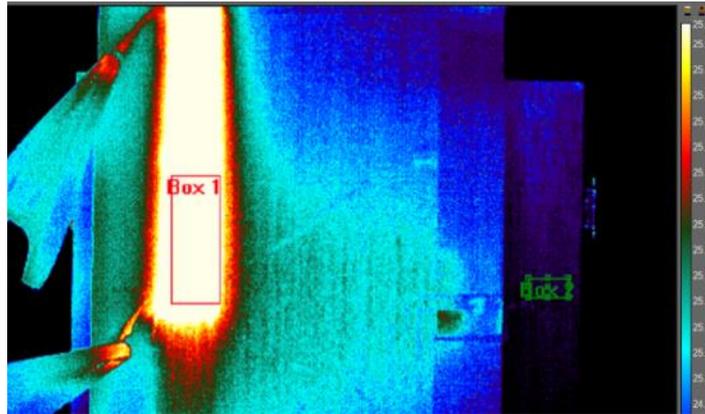


Figure 195 Réponse thermique dans la condition du courant de 400mA

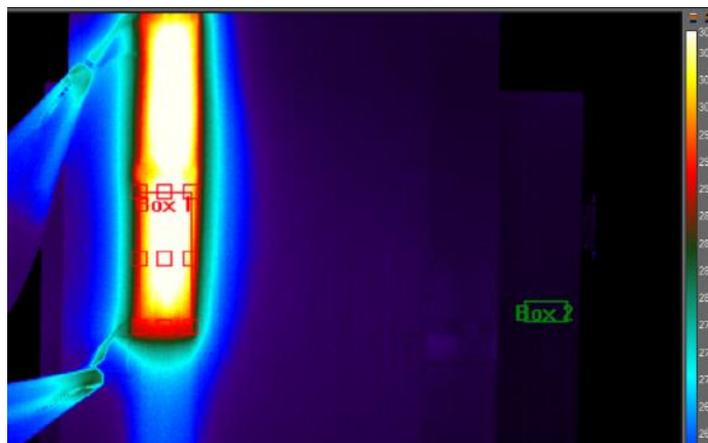


Figure 196 Réponse thermique dans la condition du courant de 800mA

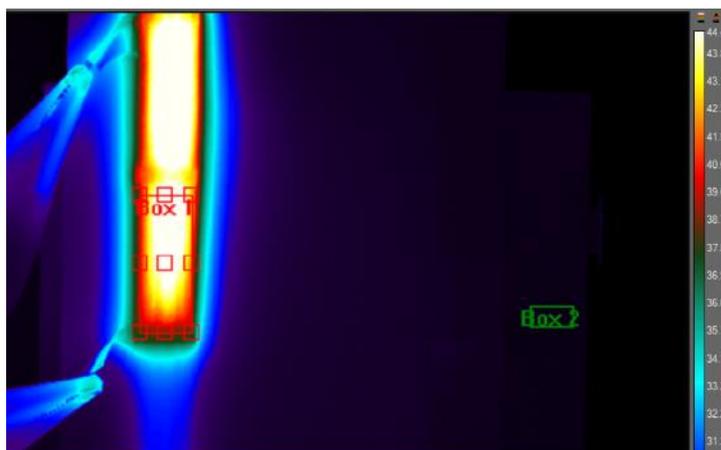


Figure 197 Réponse thermique dans la condition du courant de 1500mA

**x. Fonction d'ajustement de la corrélation flexion-IE**

$\lambda = f(|Z|)$  :

$y = (166.619) + (49.4286) * x$	
Z  (Ω)	
Pearson's r	0.99504
Adj. R-Square	0.98762
Intercept	166.61905 ± 1.49663
Slope	49.42857 ± 2.47161

$\lambda = f(\theta)$  :

$y = (-2.23333) + (-2.5) * x$	
θ (°)	
Pearson's r	-0.99848
Adj. R-Square	0.9962
Intercept	-2.23333 ± 0.04179
Slope	-2.5 ± 0.06901

## Références Bibliographiques

- [1] N. W. A. Trilaksono, A. Kondo, H. Hoshi, Y. Iwahori, "Automatic Damage Detection and Monitoring of a Stitch Laminate System Using a Fiber Bragg Grating Strain Sensor," vol. 4, ed: Open Journal of Composite Materials, 2014.
- [2] C. H. J. Bachmann, S. Bricout, "Environmental analysis of innovative sustainable composites with potential use in aviation sector—A life cycle assessment review," *Science China Technological Sciences*, 2017.
- [3] P. M. S. Sassi, T. Camps, M. Mounkaila, P. Olivier, "Cure Monitoring and SHM of Carbon Fiber Reinforced Polymer Part II : Multi-Physical Correlations," 2014.
- [4] P. M. S. Sassi, T. Camps, and P. Olivier, "Suivi de cuisson de composites Carbone/Epoxy par impédancemétrie électrique," Nantes, France, 2013.
- [5] S. Sassi, P. Marguerès, P. Olivier, and R. Le Begue, "Determination of anisotropic geometrical parameters for the electrical characterization of carbon/epoxy composite during oven curing," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 80, pp. 204-216, 2016, doi: 10.1016/j.compositesa.2015.10.022.
- [6] P. Margueres, P. Olivier, M. Mounkaila, T. Camps, and S. Sassi, "Carbon fibres reinforced composites. Electrical impedance analysis: a gateway to smartness," *International Journal of Smart and Nano Materials*, vol. 11, no. 4, pp. 417-430, 2020, doi: 10.1080/19475411.2020.1843559.
- [7] S. Sassi, "Instrumentation distribuée résidente pour l'optimisation de la fabrication et le suivi de matériaux composites pour pièces structurales pour l'aéronautique et le spatial," Thèse, Université Toulouse III Paul Sabatier, 2016.
- [8] P. Marguerès, T. Camps, M. Viargues, and P. Olivier, "Preliminary experimental study on the electrical impedance analysis for in-situ monitoring of the curing of carbon/epoxy composite material for aeronautical and aerospace structures," *Measurement Science and Technology*, vol. 24, no. 9, 2013.
- [9] P. Marguerès, T. Camps, and P. Olivier, "Impédancemétrie électrique pour le monitoring de composites carbone/époxy," *Revue des composites et des matériaux avancés*, vol. 24, no. 2, pp. 207-220, 2014, doi: 10.3166/rcma.24.207-220.
- [10] M. Mounkaila, "Analyse impédancemétrie pour le suivi de cuisson ou de santé des structures composites carbone/époxyde : Vers des matériaux intelligents pour le PHM des structures composites," Université Toulouse 3 Paul Sabatier (UT3 Paul Sabatier), 2016. [Online]. Available: <https://hal.laas.fr/tel-01813627>
- [11] M. Mounkaila *et al.*, "Modelling the electrical behaviour of carbon/epoxy composites and monitoring changes in their microstructure during oven and autoclave curing using electrical impedancemetry," *Smart Materials and Structures*, vol. 27, no. 8, 2018, doi: 10.1088/1361-665X/aacd8a.
- [12] C. Paris, "Étude et modélisation de la polymérisation dynamique de composites à matrice therm durcissable," Institut National Polytechnique de Toulouse, 2011.
- [13] P. Margueres, J. Lopez Torres, J.-N. Perie, M. Kashif Syed, and F. Collombet, "Combined Approach for the Characterization of Composites Manufactured by RFI and Industrial Application," *Journal of Composite Materials*, vol. 42, no. 2, pp. 189-209, 2008, doi: 10.1177/0021998307086200.
- [14] P. Marguerès, J.-N. Périé, J. G. Perez, F. Collombet, and Y.-H. Grunevald, "Characterization of a composite structure obtained by RFI using HexFIT® semi-products," *Composites Science and Technology*, vol. 69, no. 1, pp. 117-124, 2009, doi: 10.1016/j.compscitech.2007.10.059.
- [15] T. C. M. Mounkaila, S. Sassi, P. Marguerès, P. Olivier, C. Escriba, J.-Y. Fourniols, "Cure Monitoring and SHM of Carbon Fiber Reinforced Polymer Part I : Impedance Analysis and Multiphysic Sensitivity," 2014.
- [16] M. Monthieux, F. Soutric, and V. Serin, "Recurrent correlation between the electron energy loss spectra and mechanical properties for carbon fibers," *Carbon*, vol. 35, no. 10, pp. 1660-1664, 1997/01/01/ 1997, doi: <https://doi.org/10.1016/S0008->

- 6223(97)82796-0.
- [17] L. Laffont, M. Monthieux, and V. Serin, "Plasmon as a tool for in situ evaluation of physical properties for carbon materials," *Carbon*, vol. 40, no. 5, pp. 767-780, 2002/04/01/ 2002, doi: [https://doi.org/10.1016/S0008-6223\(01\)00196-8](https://doi.org/10.1016/S0008-6223(01)00196-8).
- [18] K. Acatay, "Carbon Fiber," *Fiber Technology for Fiber-Reinforced Composites*, 2017.
- [19] E. Fitzer, W. Frohs, and M. Heine, "Optimization of Stabilization and Carbonization Treatment of PAN-Fibers and Structural Characterization of the Resulting Carbon Fibers," *Carbon*, vol. 24, pp. 387-395, 01/01 1986.
- [20] L. P. K. I. S. Deev, "Carbon fibres: structure and mechanical properties," 1997.
- [21] C. L. B. S.P. Moussally, R. Vincent, M. Guimon, F. Roos, "Les fibres de carbone et de graphite," *Documents pour le Médecin du Travail*, vol. N° 92, 2002.
- [22] P. B. V. WATT W., "Strong Fibres," *Handbook of composites*, vol. 1, 1985.
- [23] F. D. M. C. Barrère, "Résine époxy réticulées par des polyamines: structure et propriétés," *REVUE DE L'INSTITUT FRANÇAIS DU PÉTROLE*, vol. VOL. 52, no. N° 3, 1997.
- [24] J. K. G. J.B. Enns, "Time-temperature-transformation (TTT) cure diagram: Modeling the cure behavior of thermosets," *Applied Polymer Science*, vol. 28, no. 8, pp. 2567-2591, 1983.
- [25] B. Sillon, "Matrices thermostables dans les composites," in *Initiation à la CHIMIE et à la PHYSICO-CHIMIE MACROMOLECULAIRES*, vol. 7. CEMOTA, Lyon: Groupe Français d'étude et d'applications des Polymers, 1999, ch. II, pp. 143-170.
- [26] N. B. J.-M. Haudin, B. Monasse, "Cristallisation des thermoplastiques semi-cristallins dans les composites," in *Initiation à la CHIMIE et à la PHYSICO-CHIMIE MACROMOLECULAIRES*, vol. 7. Ecole des Mines, Sophia Antipolis: Groupe Français d'étude et d'applications des Polymers, 1999, pp. 315-351.
- [27] B. L. and J. L. de la Fuente, "Non-isothermal DSC and rheological curing of ferrocene-functionalized, hydroxyl-terminated polybutadiene polyurethane," *Reactive and Functional Polymers*, vol. 107, pp. 60-68, 2016/10/01/ 2016, doi: <https://doi.org/10.1016/j.reactfunctpolym.2016.08.002>.
- [28] K. Sawicz-Kryniger *et al.*, "Performance of FPT, FTIR and DSC methods in cure monitoring of epoxy resins," *European Polymer Journal*, vol. 162, p. 110933, 2022/01/05/ 2022, doi: <https://doi.org/10.1016/j.eurpolymj.2021.110933>.
- [29] R. Polanský *et al.*, "Development of a measuring system for on-line in situ monitoring of composite materials manufacturing," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 90, pp. 760-770, 2016, doi: 10.1016/j.compositesa.2016.09.006.
- [30] S.-S. Hwang, S. Y. Park, G.-C. Kwon, and W. J. Choi, "Cure kinetics and viscosity modeling for the optimization of cure cycles in a vacuum-bag-only prepreg process," *The International Journal of Advanced Manufacturing Technology*, vol. 99, no. 9, pp. 2743-2753, 2018/12/01 2018, doi: 10.1007/s00170-018-2467-y.
- [31] L. de Halleux, "Analyse des propriétés physico-chimiques de résines époxy biosourcées," Master [120] : ingénieur civil en chimie et science des matériaux, Université catholique de Louvain, 2019 Master [120] : ingénieur civil en chimie et science des matériaux, Ecole polytechnique de Louvain, Université catholique de Louvain (UCL), 2019. [Online]. Available: Handle: <http://hdl.handle.net/2078.1/thesis:19534>
- [32] O. Guiraud, P. J. J. Dumont, L. Orgéas, and D. Favier, "Rheometry of compression moulded fibre-reinforced polymer composites: Rheology, compressibility, and friction forces with mould surfaces," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 43, no. 11, pp. 2107-2119, 2012/11/01/ 2012, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2012.06.006>.
- [33] H. T. Pham and E. A. Meinecke, "Squeeze film rheology of polymer melts: Determination of the characteristic flow curve," *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 53, no. 3, pp. 257-264, 1994/07/18 1994, doi: <https://doi.org/10.1002/app.1994.070530301>.
- [34] L. Merad, P. Bourson, Y. Guedra, F. Jochem, and B. Benyoucef, "Kinetic study of the

- RTM6/TiO<sub>2</sub> by DSC/TGA for improved hardness of resin," *Journal of the Association of Arab Universities for Basic and Applied Sciences*, vol. 11, no. 1, pp. 37-44, 2012/04/01/ 2012, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jaubas.2011.12.002>.
- [35] C. Lu, W. Ma, S. Ba, and D. Zhang, "Resin content calculation of carbon fiber/poly (ether ether ketone) by thermogravimetric analysis," *Polymer Testing*, vol. 117, p. 107861, 2023/01/01/ 2023, doi: <https://doi.org/10.1016/j.polymertesting.2022.107861>.
- [36] R. Hardis, J. L. P. Jessop, F. E. Peters, and M. R. Kessler, "Cure kinetics characterization and monitoring of an epoxy resin using DSC, Raman spectroscopy, and DEA," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 49, pp. 100-108, 2013, doi: 10.1016/j.compositesa.2013.01.021.
- [37] Y. Zhang, R. Fang, H. Xue, J. Xia, and Q. Lin, "Investigation of DSC curing kinetic model fitting and rheological behavior of urushiol/IPDI system," *Thermochimica Acta*, vol. 711, p. 179210, 2022/05/01/ 2022, doi: <https://doi.org/10.1016/j.tca.2022.179210>.
- [38] A. Djabali, L. Toubal, R. Zitoune, and S. Rechak, "An experimental investigation of the mechanical behavior and damage of thick laminated carbon/epoxy composite," *Composite Structures*, vol. 184, pp. 178-190, 2018, doi: 10.1016/j.compstruct.2017.09.069.
- [39] J.-F. Maire, "Académie de l'Air et de l'Espace," ONERA, 20 MAY 2015.
- [40] S. R. White, P. T. Mather, and M. J. Smith, "Characterization of the cure-state of DGEBA-DDS epoxy using ultrasonic, dynamic mechanical, and thermal probes," *Polymer Engineering & Science*, vol. 42, no. 1, pp. 51-67, 2002/01/01 2002, doi: <https://doi.org/10.1002/pen.10927>.
- [41] G. Kister and E. Dossi, "Cure monitoring of CFRP composites by dynamic mechanical analyser," *Polymer Testing*, vol. 47, pp. 71-78, 2015/10/01/ 2015, doi: <https://doi.org/10.1016/j.polymertesting.2015.08.009>.
- [42] C. Li, N. Zobeiry, K. Keil, S. Chatterjee, and A. Poursartip, "Advances in the characterization of residual stress in composite structures," presented at the International SAMPE Technical Conference, 01/01, 2014.
- [43] N. Ersoy *et al.*, "Development of the properties of a carbon fibre reinforced thermosetting composite through cure," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 41, no. 3, pp. 401-409, 2010/03/01/ 2010, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2009.11.007>.
- [44] M. Mulle, F. Collombet, P. Olivier, and Y. H. Grunevald, "Assessment of cure residual strains through the thickness of carbon-epoxy laminates using FBGs, Part I: Elementary specimen," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 40, no. 1, pp. 94-104, 2009, doi: 10.1016/j.compositesa.2008.10.008.
- [45] M. Mulle *et al.*, "Assessment of cure-residual strains through the thickness of carbon-epoxy laminates using FBGs Part II: Technological specimen," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 40, no. 10, pp. 1534-1544, 2009, doi: 10.1016/j.compositesa.2009.06.013.
- [46] J. Huang *et al.*, "Real-time monitoring for the CFRP/aluminium-alloy bonding structure during curing process using encapsulated fiber Bragg grating sensor," *Optical Fiber Technology*, vol. 57, 2020, doi: 10.1016/j.yofte.2020.102216.
- [47] S.-H. Yoo, M.-G. Han, J.-H. Hong, and S.-H. Chang, "Simulation of curing process of carbon/epoxy composite during autoclave degassing molding by considering phase changes of epoxy resin," *Composites Part B: Engineering*, vol. 77, pp. 257-267, 2015, doi: 10.1016/j.compositesb.2015.03.042.
- [48] Q. Wang *et al.*, "Numerical analysis and fiber Bragg grating monitoring of thermocuring processes of carbon fiber/epoxy laminates," *Polymer Testing*, vol. 62, pp. 287-294, 2017, doi: 10.1016/j.polymertesting.2017.07.014.
- [49] S. Takeda, Y. Aoki, and Y. Nagao, "Damage monitoring of CFRP stiffened panels under compressive load using FBG sensors," *Composite Structures*, vol. 94, no. 3, pp. 813-819, 2012, doi: 10.1016/j.compstruct.2011.02.020.
- [50] K. Kesavan, K. Ravisankar, R. Senthil, and A. K. Farvaze Ahmed, "Experimental studies on performance of reinforced concrete beam strengthened with CFRP under

- cyclic loading using FBG array," *Measurement*, vol. 46, no. 10, pp. 3855-3862, 2013, doi: 10.1016/j.measurement.2013.07.031.
- [51] S. Jiang, J. Wang, Q. Sui, and Q. Ye, "Measurement of CFRP elastic modulus based on FBG reflectance spectrum analysis," *Measurement*, vol. 77, pp. 240-245, 2016, doi: 10.1016/j.measurement.2015.09.012.
- [52] X. Geng *et al.*, "Sensing characteristics of FBG sensor embedded in CFRP laminate," *Measurement*, vol. 98, pp. 199-204, 2017, doi: 10.1016/j.measurement.2016.12.003.
- [53] S. Yan, J. Zhang, B. Sun, and B. Gu, "In situ measurement of strains at different locations in 3-D braided composites with FBG sensors," *Composite Structures*, vol. 230, 2019, doi: 10.1016/j.compstruct.2019.111527.
- [54] G. Szebényi, Y. Blöchl, G. Hegedüs, T. Tábi, T. Czigany, and R. Schledjewski, "Fatigue monitoring of flax fibre reinforced epoxy composites using integrated fibre-optical FBG sensors," *Composites Science and Technology*, vol. 199, 2020, doi: 10.1016/j.compscitech.2020.108317.
- [55] M. Mulle, "Eprouvettes technologiques instrumentées à cœur par réseau de Bragg pour l'analyse du matériau composite dans la structure," Génie mécanique, Université Toulouse III-Paul Sabatier, Toulouse, 2007.
- [56] Y. Yu, X. Liu, X. Cui, Y. Wang, and X. Qing, "In-situ cure monitoring of thick CFRP using multifunctional piezoelectric-fiber hybrid sensor network," *Composites Science and Technology*, vol. 240, p. 110079, 2023/07/28/ 2023, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2023.110079>.
- [57] X. Liu, J. Li, J. Zhu, Y. Wang, and X. Qing, "Cure monitoring and damage identification of CFRP using embedded piezoelectric sensors network," *Ultrasonics*, vol. 115, p. 106470, Aug 2021, doi: 10.1016/j.ultras.2021.106470.
- [58] A. Can-Ortiz, J. L. Abot, and F. Avilés, "Electrical characterization of carbon-based fibers and their application for sensing relaxation-induced piezoresistivity in polymer composites," *Carbon*, vol. 145, pp. 119-130, 2019, doi: 10.1016/j.carbon.2018.12.108.
- [59] D. Wang and D. D. L. Chung, "Through-thickness piezoresistivity in a carbon fiber polymer-matrix structural composite for electrical-resistance-based through-thickness strain sensing," *Carbon*, vol. 60, pp. 129-138, 2013, doi: 10.1016/j.carbon.2013.04.005.
- [60] C. Garnier, M.-L. Pastor, F. Eyma, and B. Lorrain, "The detection of aeronautical defects in situ on composite structures using Non Destructive Testing," *Composite Structures*, vol. 93, no. 5, pp. 1328-1336, 2011, doi: 10.1016/j.compstruct.2010.10.017.
- [61] Z. Zhang, M. Liu, Q. Li, and Y. Ang, "Visualized characterization of diversified defects in thick aerospace composites using ultrasonic B-scan," *Composites Communications*, vol. 22, 2020, doi: 10.1016/j.coco.2020.100435.
- [62] S. D. Senturia and N. F. Sheppard, "Dielectric analysis of thermoset cure," in *Epoxy Resins and Composites IV*, Berlin, Heidelberg, K. Dušek, Ed., 1986// 1986: Springer Berlin Heidelberg, pp. 1-47.
- [63] J. Mijović, J. Kenny, A. Maffezzoli, A. Trivisano, F. Bellucci, and L. Nicolais, "The principles of dielectric measurements for in situ monitoring of composite processing," *Composites Science and Technology*, vol. 49, no. 3, pp. 277-290, 1993/01/01/ 1993, doi: [https://doi.org/10.1016/0266-3538\(93\)90109-T](https://doi.org/10.1016/0266-3538(93)90109-T).
- [64] J. Mijović *et al.*, "Impedance spectroscopy of reactive polymers. 3. Correlations between dielectric, spectroscopic, and rheological properties during cure of a trifunctional epoxy resin," *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics*, <https://doi.org/10.1002/polb.1996.885> vol. 34, no. 2, pp. 379-388, 1996/01/30 1996, doi: <https://doi.org/10.1002/polb.1996.885>.
- [65] M. Matsuo, "Electric, Dielectric and Magnetic Properties of Polymer and Carbon Fillers," 2008. Graduate School of Humanities and Sciences Nara Women's University.
- [66] P. P. Das, V. Vadlamudi, and R. Raihan, "Dielectric state variables as qualitative indicators of moisture absorption-caused mechanical property degradation in GFRP composite structures," *Composites Part C: Open Access*, vol. 9, p. 100295, 2022/10/01/ 2022, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jcomc.2022.100295>.
- [67] W. Nsengiyumva *et al.*, "Theoretical and experimental analysis of the dielectric

- properties of 3D orthogonal woven GFRP composites in the terahertz frequency range," *Optik*, vol. 260, p. 169105, 2022/06/01/ 2022, doi: <https://doi.org/10.1016/j.ijleo.2022.169105>.
- [68] R. A. Pethrick, G. S. Armstrong, W. M. Banks, R. L. Crane, and D. Hayward, "Dielectric and mechanical studies of the durability of adhesively bonded aluminium structures subjected to temperature cycling. Part 1: Examination of moisture absorption," *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part L: Journal of Materials: Design and Applications*, vol. 218, no. 3, pp. 169-182, 2004/07/01 2004, doi: 10.1177/146442070421800301.
- [69] A. Vassilikou-Dova and I. M. Kalogeras, "Dielectric analysis (DEA)," 2008, pp. 497-613.
- [70] G. M. N. Pantelidis, C. Hakme, , *Process monitoring of thermoplastic reactive composite moulding using durable sensors*. 2007.
- [71] Y. Han, J. Wang, H. Zhang, S. Zhao, Q. Ma, and Z. Wang, "Electrochemical impedance spectroscopy (EIS): An efficiency method to monitor resin curing processes," *Sensors and Actuators A: Physical*, vol. 250, pp. 78-86, 2016/10/15/ 2016, doi: <https://doi.org/10.1016/j.sna.2016.08.028>.
- [72] D. E. S. Nikolaos Athanasopoulos, Th. Panidis, Vassilis Kostopoulos, "Numerical Investigation and Experimental Verification of the Joule - heating Effect of Polyacrylonitrile (PAN) Based Carbon Fiber Tows Under High Vacuum Conditions," *Composite Materials*, 2012.
- [73] C. P. Pantelides, "Rehabilitation of cracked aluminum components using fiber-reinforced polymer (FRP) composites," 2014.
- [74] X. L. G. Yuan, Z. Dong, X. Xiong, B. Rand, Z. Cui, Y. Cong, J. Zhang, Y. Li, Z. Zhang, and J. Wang, "Pitch-based ribbon-shaped carbon-fiber-reinforced one-dimensional carbon/carbon composites with ultrahigh thermal conductivity," *Carbon*, vol. vol. 68, 2014.
- [75] Y. Zare and K. Y. Rhee, "Correlation of tunneling diameter between neighboring carbon nanotubes in polymer nanocomposites to interphase depth, tunneling factors and the percentage of networked nanoparticles," *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, vol. 142, 2020, doi: 10.1016/j.jpics.2020.109467.
- [76] Y. Zare and K. Y. Rhee, "Polymer tunneling resistivity between adjacent carbon nanotubes (CNT) in polymer nanocomposites," *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, vol. 147, 2020, doi: 10.1016/j.jpics.2020.109664.
- [77] S. Yang and V. Chalivendra, "Theoretical modeling and experimental validation of electro-shear behavior of carbon nanotubes embedded epoxy nanocomposite," *International Journal of Mechanical Sciences*, vol. 177, 2020, doi: 10.1016/j.ijmecsci.2020.105594.
- [78] H. Yu, D. Heider, and S. Advani, "A 3D microstructure based resistor network model for the electrical resistivity of unidirectional carbon composites," *Composite Structures*, vol. 134, pp. 740-749, 2015, doi: 10.1016/j.compstruct.2015.08.131.
- [79] H. Yu, D. Heider, and S. Advani, *Micro-Mechanics Based Modeling of Joule Heating Induced Damage Propagation in Carbon Composite Laminates*. 2018.
- [80] H. Yu, J. Sun, D. Heider, and S. Advani, "Experimental investigation of through-thickness resistivity of unidirectional carbon fiber tows," *Journal of Composite Materials*, vol. 53, p. 002199831880983, 11/22 2018, doi: 10.1177/0021998318809837.
- [81] H. Yu, S. Advani, and D. Heider, "Impact of resin-rich layer on the through-thickness resistivity of carbon fiber reinforced polymers," *Journal of Composite Materials*, vol. 53, p. 002199831984236, 04/10 2019, doi: 10.1177/0021998319842369.
- [82] H. Yu, "Modeling and characterization of electrical resistivity of carbon composite laminates," Thèse, University of Delaware, 2018.
- [83] Z. Xia, T. Okabe, J. B. Park, W. A. Curtin, and N. Takeda, "Quantitative damage detection in CFRP composites," *Composites Science and Technology*, vol. 63, no. 10, pp. 1411-1422, 2003, doi: 10.1016/s0266-3538(03)00083-6.
- [84] Z. Xia and W. Curtin, "Modeling of mechanical damage detection in CFRPs via

- electrical resistance," *Composites Science and Technology*, vol. 67, no. 7-8, pp. 1518-1529, 2007, doi: 10.1016/j.compscitech.2006.07.017.
- [85] Z. H. Xia and W. A. Curtin, "Damage detection via electrical resistance in CFRP composites under cyclic loading," *Composites Science and Technology*, vol. 68, no. 12, pp. 2526-2534, 2008, doi: 10.1016/j.compscitech.2008.05.007.
- [86] J. Wen, Z. Xia, and F. Choy, "Damage detection of carbon fiber reinforced polymer composites via electrical resistance measurement," *Composites Part B: Engineering*, vol. 42, no. 1, pp. 77-86, 2011, doi: 10.1016/j.compositesb.2010.08.005.
- [87] W. A. Curtin, "Stochastic Damage Evolution and Failure in Fiber-Reinforced Composites," in *Advances in Applied Mechanics*, vol. 36, E. van der Giessen and T. Y. Wu Eds.: Elsevier, 1998, pp. 163-253.
- [88] J. B. Park, "Electromechanical modeling of unidirectional CFRP composites under tensile loading condition," *Composite Structures*, vol. 33, Part A, pp. 267-275, 2002.
- [89] S. V. L. V. Romanov, Y. Swolfs, S. Orlova, L. Gorbatikh, and I. Verpoest, "Statistical analysis of real and simulated fibre arrangements in unidirectional composites," *Composites Science and Technology*, vol. Vol.87, 2013.
- [90] M. Khebbab, "Contribution à l'étude du CND par Courants de Foucault de matériaux hétérogènes faiblement conducteurs à base d'éléments finis," Thèse, Université de Constantine, 2016.
- [91] T. Y. R. Higuchia, T. Nagashimab, T. Aokia, "Evaluation of mechanical properties of noncircular carbon fiber reinforced plastics by using XFEM-based computational micromechanics," ed: Composites Part A, 2019.
- [92] Hioki. *IM3570 Single Device Solution for High Speed Testing and Frequency Sweeping*.
- [93] Q. G. A.-T. LE, A.SANGAR, P.BOULANGER, S.RIVALLANT, P.OLIVIER, T.CUTARD, "Imprégnation et transfert de tapis de Nanotubes de Carbone Alignés Verticalement sur du préimprégné," Bordeaux INP, 2019.
- [94] J. Ferreira, F. Seoane, A. Ansedé, and R. Bragos, "AD5933-based spectrometer for electrical bioimpedance applications," *Journal of Physics: Conference Series*, vol. 224, 2010, doi: 10.1088/1742-6596/224/1/012011.
- [95] C. J. Chen, J. T. Liu, S.-J. Chang, M.-W. Lee, and J.-Z. Tsai, "Development of a portable impedance detection system for monitoring the growth of mouse L929 cells," *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, vol. 43, no. 5, pp. 678-684, 2012/09/01/2012, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jtice.2012.04.008>.
- [96] G. Yingzhong, G. Liang, W. Liguang, and Z. Liye, "Two-channel and differential dielectric spectroscopy characterization of lubricating oil," *Sensors and Actuators A: Physical*, vol. 241, pp. 74-86, 2016/04/15/ 2016, doi: <https://doi.org/10.1016/j.sna.2016.02.013>.
- [97] K. Dheman, P. Mayer, M. Eggimann, S. Schuerle, and M. Magno, "ImpediSense: A long lasting wireless wearable bio-impedance sensor node," *Sustainable Computing: Informatics and Systems*, vol. 30, 2021, doi: 10.1016/j.suscom.2021.100556.
- [98] T. Wandowski, P. H. Malinowski, and W. M. Ostachowicz, "Improving the EMI-based damage detection in composites by calibration of AD5933 chip," *Measurement*, vol. 171, 2021, doi: 10.1016/j.measurement.2020.108806.
- [99] F. Seoane, J. Ferreira, J. J. Sanchez, and R. Bragos, "An analog front-end enables electrical impedance spectroscopy system on-chip for biomedical applications," *Physiol Meas*, vol. 29, no. 6, pp. S267-78, Jun 2008, doi: 10.1088/0967-3334/29/6/S23.
- [100] C. Margo, J. Katrib, M. Nadi, and A. Rouane, "A four-electrode low frequency impedance spectroscopy measurement system using the AD5933 measurement chip," *Physiol Meas*, vol. 34, no. 4, pp. 391-405, Apr 2013, doi: 10.1088/0967-3334/34/4/391.
- [101] F. Noveletto, P. Bertemes-Filho, and D. Dutra, "Analog Front-End for the Integrated Circuit AD5933 Used in Electrical Bioimpedance Measurements," in *II Latin American Conference on Bioimpedance*, (IFMBE Proceedings, 2016, ch. Chapter 13, pp. 48-51.
- [102] I. Baran, K. Cinar, N. Ersoy, R. Akkerman, and J. H. Hattel, "A Review on the Mechanical Modeling of Composite Manufacturing Processes," *Archives of Computational Methods in Engineering*, vol. 24, no. 2, pp. 365-395, 2017/04/01 2017,

- doi: 10.1007/s11831-016-9167-2.
- [103] T. Poumadère, "Etude du couplage procédé/propriétés d'un matériau à fibres discontinues de carbone et à matrice époxy mis en oeuvre par un procédé innovant d'injection/transfert," 2013. [Online]. Available: <http://www.theses.fr/2013ESAE0003/document>
- [104] M. R. Kamal and S. Sourour, "Kinetics and thermal characterization of thermoset cure," *Polymer Engineering & Science*, <https://doi.org/10.1002/pen.760130110> vol. 13, no. 1, pp. 59-64, 1973/01/01 1973, doi: <https://doi.org/10.1002/pen.760130110>.
- [105] S. Nakouzi, "Modélisation du procédé de cuisson de composites infusés par chauffage infra rouge," 2012. [Online]. Available: <http://www.theses.fr/2012TOU30241/document>
- [106] T. I. G. A.A.C.Silva, B.D.P.Martins, R.B.R.Garcia, L.D.S.Cividanes, E.Y.Kawachi, "New Insights in Adhesive Properties of Hybrid Epoxy-Silane Coatings for Aluminum Substrates: Effect of Composition and Preparation Methods," *Journal of Inorganic and Organometallic Polymers and Materials*, vol. 30, 08/01 2020, doi: 10.1007/s10904-020-01468-y.
- [107] G. Voto, L. Sequeira, and A. A. Skordos, "Formulation based predictive cure kinetics modelling of epoxy resins," *Polymer*, vol. 236, p. 124304, 2021/11/30/ 2021, doi: <https://doi.org/10.1016/j.polymer.2021.124304>.
- [108] M. C. Kazilas and I. K. Partridge, "Exploring equivalence of information from dielectric and calorimetric measurements of thermoset cure—a model for the relationship between curing temperature, degree of cure and electrical impedance," *Polymer*, vol. 46, no. 16, pp. 5868-5878, 2005/07/25/ 2005, doi: <https://doi.org/10.1016/j.polymer.2005.05.005>.
- [109] P. Savi, M. Miscuglio, M. Giorcelli, and A. Tagliaferro, "Analysis of microwave absorbing properties of epoxy MWCNT composites," *Progress In Electromagnetics Research Letters*, vol. 44, pp. 63-69, 01/01 2014, doi: 10.2528/PIERL13102803.
- [110] H. Wen, P. Xiao, H. Luo, and Z. Li, "Microwave axial dielectric properties of carbon fiber," *Scientific Reports*, vol. 5, 10/19 2015, doi: 10.1038/srep14927.
- [111] C. P. T. Mai, X.Nguyen, H.Pham, D.Martin, I.Carriere,, "Enhancement of Polarization Property of Silane-Modified BaTiO<sub>3</sub> Nanoparticles and Its Effect in Increasing Dielectric Property of Epoxy/BaTiO<sub>3</sub> Nanocomposites," *Journal of Science: Advanced Materials and Devices*, vol. 1, pp. 90-97, 04/01 2016, doi: 10.1016/j.jsamd.2016.04.005.
- [112] P. Selva, O. Cherrier, V. Budinger, F. Lachaud, and J. Morlier, "Smart monitoring of aeronautical composites plates based on electromechanical impedance measurements and artificial neural networks," *Engineering Structures*, vol. 56, pp. 794-804, 2013/11/01/ 2013, doi: <https://doi.org/10.1016/j.engstruct.2013.05.025>.
- [113] M. Kupke, S. Karl, and R. Schüler, "Non-Destructive Testing of FRP by d.c. and a.c. Electrical Methods," *Composites Science and Technology*, vol. 61, pp. 837-847, 05/01 2001, doi: 10.1016/S0266-3538(00)00180-9.

## Résumé

Dans le contexte de la fabrication de structures en polymères renforcés de fibres de carbone (CFRP), les techniques conventionnelles du suivi de cuisson sont sur la base de systèmes de mesure généralement coûteux utilisant des capteurs dédiés. Dans cette thèse, une méthode innovante de suivi de cuisson en temps réel utilisant l'impédancemétrie électrique (IE) et le matériau lui-même comme capteur est développée. Cette approche vise à réduire le coût de production du CFRP, à pouvoir détecter les anomalies pendant les cuissons, d'optimiser la qualité des produits et de fonctionnaliser le CFRP en service avec le même système de surveillance. Un banc ad-hoc, peu coûteux, robuste, multivoies et multiphysique (mesure électrique et thermique) a été conçu et développé au sein du laboratoire ICA pour suivre la cuisson de différents échantillons CFRP (NC66/NA1808) et sa matrice non-renforcée. Les matériaux ont été caractérisés par les analyses conventionnelles thermiques et rhéologiques afin de mettre en évidence les transitions physico-chimiques de la résine au cours d'un cycle spécifique de polymérisation. Les points critiques rhéologiques identifiés par analyses conventionnelles ont été comparés avec les résultats de mesure IE dans le même cycle de cuisson en étuve. Une corrélation importante entre les changements physico-chimique (au niveau du degré d'avancement  $\alpha$ ) des matériaux en cours de cuisson et ceux de paramètres électriques (en module  $|Z|$ , argument  $\theta$  et leurs dérivées temporelles) a été observée. Une approche de la corrélation rhéologique-électrique de la cinétique de polymérisation d'un CFRP en utilisant le modèle Kamal-Sourour a été effectuée avec des fonctions explicites empiriques. Les formes et tendances globales de ces résultats de mesure IE sont en bonne concordance avec celles obtenues dans les travaux préliminaires sur des échantillons T700/M21 à l'aide du premier banc utilisant un analyseur d'impédance spécifique Hioki IM3570. L'approche proposée n'est ni matériau, ni instrumentation dépendante et peut être utilisée afin de définir des signatures typiques sur CFRP pour faciliter le suivi de cuisson. De plus, l'approche proposée permet non seulement de suivre la cuisson mais également de détecter les défauts pendant le cycle de cuisson tels une rupture de vide et une interruption de quelques minutes au cours de la cuisson. Une modélisation électrique du CFRP (basée sur l'étude de préimprégnés T700/M21) en post-cuisson a été proposée afin de décrire la corrélation électrique-géométrique du CFRP cuit au niveau d'un pli. Trois configurations de répartition de fibres en fonction de paramètres géométriques (la fraction volumique de fibres, les distances de percolation et l'ondulation des fibres) ont été appliqués en forçant une distribution carrée, hexagonale et aléatoire. Un modèle de type DKMC (Discret Kirchhoff-Monte Carlo) en intégrant les aspects résistifs et capacitifs a été développé afin de décrire un comportement électrique complexe d'un pli sous excitation électrique alternative, en-dessous ou au-dessus du seuil de percolation (en fonction de la fraction volumique de fibres), et d'intégrer une analyse fréquentielle. Les électrodes en toile de cuivre restant dans la structure CFRP après la fin de cuisson peuvent être utilisées pour la surveillance de la santé structurelle en service. La faisabilité de l'utilisation d'une mèche de fibre de carbone comme électrode a été abordée. De plus, la faisabilité d'utiliser le matériau instrumenté comme actionneur pour effectuer du contrôle non destructif actif et du dégivrage dans une zone ciblée a également été étudiée à l'aide d'observations par thermographie infrarouge. Les résultats de ce travail semblent transférables d'un point de vue industriel. Le banc développé au sein du laboratoire ICA ne représente que 15% du coût du précédent banc de mesure IE utilisant un Hioki IM3570. De plus, le banc développé permet aux utilisateurs d'ajouter différents plugins pour différents besoins de mesure et de remplacer facilement les composants électroniques en cas de défaillance.

## Abstract

In the context of manufacturing carbon fibre reinforced polymer (CFRP) structures, conventional cure monitoring techniques are usually based on expensive measurement systems using dedicated sensors. In this thesis, an innovative method of real-time cure monitoring using electrical impedancemetry (EI) and self-sensing material is developed, in order to reduce the cost of CFRP production, to be able to detect anomalies during curing, to optimise product quality and to functionalise in-service CFRP structures with the same instrumentation. An ad-hoc, low-cost, robust, multi-channel and multi-physics (electrical and thermal measurements) bench was designed and developed in the ICA laboratory to monitor the cure of various samples of CFRP (NC66/NA1808) and its unreinforced matrix. The materials were characterised using conventional thermal and rheological analysis to highlight the physico-chemical transitions of the resin during a specific cure cycle. The rheological critical points identified by conventional analysis were compared with the results of EI measurements during the same cure cycle in oven. A significant correlation between the physicochemical changes (in the degree of cure  $\alpha$ ) of the materials during curing and those of the electrical parameters (in the modulus  $|Z|$ , the argument  $\theta$  and their derivatives in time) was observed. A rheological-electrical correlation approach to CFRP polymerization kinetics using the Kamal-Sourour model has been carried out with explicit empirical functions. The general shape and trends of these EI measurement results are in good agreement with those obtained in preliminary work on T700/M21 samples using the first bench with a Hioki IM3570 specific impedance analyser. The proposed approach is neither material nor instrumentation dependent and can be used to define typical signatures on CFRP to facilitate cure monitoring. In addition, the proposed approach not only monitors curing, but also detects faults during curing as a vacuum break and an interruption of a few minutes during curing. Electrical modelling of post-cure CFRP (T700/M21) was proposed to describe the electrical-geometric correlation of CFRP cured on a ply. Three configurations of fibre distribution as a function of geometric parameters (fibre volume fraction, percolation distances and fibre waviness) were applied, in order to obtain square, hexagonal, or random distributions. A DKMC (Discrete Kirchhoff-Monte Carlo) model integrating resistive and capacitive aspects was developed to describe the complex electrical behaviour of a ply under AC electrical excitation, below or above the percolation threshold (depending on the fibre volume fraction), and to integrate a frequency analysis. Copper fabric electrodes that remain in the CFRP structure after curing can be used to monitor the health of in-service structures. The feasibility of using a carbon fibre wick as an electrode was examined. In addition, the feasibility of using the instrumented material as an actuator to perform active non-destructive testing and de-icing in a targeted area (e.g. aircraft flight surfaces) was investigated using infrared thermography observations. The results of this work are interesting for industrial applications and can be easily transferred. The bench developed in the ICA laboratory represents only 15% of the cost of the previous IE measurement bench using a Hioki IM3570 and allows users to add different plug-ins for different measurement needs, and easily replace electronic components in the event of failure.