

Analyse 3D en temps réel et *in situ* des mécanismes de (dé)consolidation dans les composites thermoplastiques renforcés lors de leur thermo-estampage

3D real time and in situ analysis of (de)consolidation mechanisms in fibre-reinforced thermoplastic composites during thermostamping

Yassine Lakroune^{1,2}, Laurent Orgéas¹, Pierre Dumont³, Florian Martoia³, Sabine Rolland du Roscoat¹, Frédéric Jacquemin⁴, Pascal Casari⁴, Olivier Guiraud⁵

1 : Univ. Grenoble Alpes – CNRS – Grenoble INP,
Laboratoire Sols, Solides, Structures, Risques (3SR Lab)
F-38000 Grenoble, France
e-mail : laurent.orgéas@3sr-grenoble.fr

2 : Institut de Recherche Technologique Jules Verne,
Chemin du Chaffault, 44340, Bouguenais, France

3 : Univ. Lyon – INSA Lyon – CNRS,
Laboratoire de Mécanique des Contacts et des Structures (LaMCoS),
site d'Oyonnax, F-69621 Lyon, France

4 : Univ. Nantes – Ecole Centrale de Nantes – CNRS
Institut de Recherche en Génie Civil et Mécanique (GeM),
site de Saint Nazaire, 44600 Saint-Nazaire, France

5 : Novitom, 3 Avenue Doyen Louis Weil, 38000 Grenoble

Résumé

Nous avons étudié la (dé)croissance des porosités ainsi que les déformations mésoscopiques des renforts fibreux au cours des phases de chauffage et de mise en forme de pré-imprégnés pour thermo-estampage, constitués de sergés de mèches de fibres de verre et de polyamide 66. Pour cela, nous avons réalisé des expériences représentatives de chauffage puis de compression à chaud sur des échantillons extraits de ces pré-imprégnés. Ces expériences ont été effectuées sur le microtomographe de la ligne ID19 du synchrotron de l'ESRF. Des images 3D des échantillons ont été réalisées à haute résolution spatiale et des vitesses d'acquisition très rapide de 2 secondes tout au long des essais. Elles montrent pour la première fois un suivi 3D, *in situ* et en temps réel de l'évolution des formes et des mésostructure des échantillons.

Abstract

In this work, we studied the growth and the decrease of pores as well as the mesoscopic deformations of the fibrous reinforcements, during the heating and compression phases, of prepreps used for thermo-stamping and made of woven glass fibers and polyamide 66. For this purpose, we carried out representative heating experiments and then compression on samples extracted from the prepreps. These experiments were carried out in the microtomograph of the ID19 beamline of the ESRF synchrotron (Grenoble, France). 3D images of the samples were made at a high spatial resolution and with very fast acquisition time of 2 s. They show, for the first time, a 3D *in situ* and real-time monitoring of the evolution of the shape and the mesostructure of the samples.

Mots Clés : Composites à matrices thermoplastiques et renforts textiles, Thermo-estampage, Imagerie 3D *in situ*, Tomographie Rx synchrotron

Keywords : Textile-reinforced thermoplastic composites, Thermostamping, 3D *in situ* imaging, X-ray synchrotron tomography

1. Introduction

Lors de leur thermo-estampage, les pré-imprégnés à matrice polymère thermoplastique et renforts fibreux tissés, utilisés dans les industries des transports automobiles et aéronautiques, sont sujets à plusieurs mécanismes de déformation à l'échelle des renforts. Ces mécanismes restent encore mal appréhendés et induisent des défauts néfastes dans les pièces produites, telles que les porosités,

contraintes ou déformations internes et résiduelles, ou bien encore des placements ou déformations non contrôlés des renforts fibreux.

Dans ce travail, nous nous sommes focalisés sur la nucléation, la croissance et la décroissance des porosités ainsi qu'aux déformations mésoscopiques des renforts fibreux au cours des phases de chauffage [1] et de mise en forme de pré-imprégnés constitués d'empilements de sergés de mèches de fibres de verre et de polyamide 66. Pour cela, nous avons réalisé des expériences représentatives de chauffage, puis de compression à chaud, à différentes vitesses de déformation et températures, sur des échantillons extraits de ces pré-imprégnés. Ces expériences ont été réalisées sur une mini-presse de grande capacité, équipée d'un four à induction et montée sur le microtomographe de la ligne ID19 du synchrotron de l'ESRF. Ainsi, des images 3D des échantillons ont été réalisées à haute résolution spatiale et des vitesses d'acquisition très rapide tout au long des essais [2-3]. Elles montrent pour la première fois un suivi 3D, *in situ* et en temps réel de l'évolution des formes et des mésostructures des échantillons qui sont discutées.

2. Matériau et Méthodes

Le matériau d'étude est un pré-imprégné fourni par Solvay (Saint-Fons, France) et constitué :

- d'une matrice thermoplastique semi-cristalline de PA66 dont la température de fusion est inférieure à 275°C, la température de recristallisation inférieure à 250°C, et dont la viscosité, au-delà de cette température et à l'état fondu, peut être considérée comme newtonienne avec une viscosité en cisaillement μ qui suit une loi d'Arrhenius :

$$\mu = \mu_0 e^{\beta \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right)}, \quad (\text{Eq. 1})$$

où $\mu_0 \approx 43 \text{ Pa s}$, $\beta \approx 2800 \text{ K}$ et où $T_0 = 553 \text{ K}$,

- d'un empilement de quatre couches $[0^\circ/90^\circ/0^\circ/90^\circ]$ de sergés 2×2 de mèches de fibres de verre E (12 k, diamètre des fibres de 14 μm).

Il se présente sous forme de plaques pré-consolidées denses d'une épaisseur h_0 de $2 \pm 0.2 \text{ mm}$ et dont les fractions volumiques initiales de fibres et de mésopores ϕ_0 sont respectivement de l'ordre de 0.5 et de 0.08 (cette valeur est estimée par imagerie 3D, cf. ci-dessous). Nous avons découpé dans ces plaques une série d'échantillons cylindriques de diamètre $d_0 = 25 \text{ mm}$ (découpe au jet d'eau).

Pour étudier les phénomènes de (dé)consolidation, ces échantillons ont été positionnés dans une mini-presse de compression de forte capacité (équipée d'une cellule de force de 2 kN) avec un système de chauffage à induction pour permettre des montées rapides et représentatives de la température des mors de compression et des échantillons (Fig. 1). Ainsi, des essais de déconsolidation ont été réalisés à force nulle, en chauffant à environ $25^\circ\text{C min}^{-1}$ les échantillons jusqu'à 300°C, *i.e.*, bien au-delà de la température de fusion, pour se positionner ensuite aux températures de mise en forme : 280, 290 et 300°C. De là, les échantillons préchauffés ont été comprimés jusqu'à 2

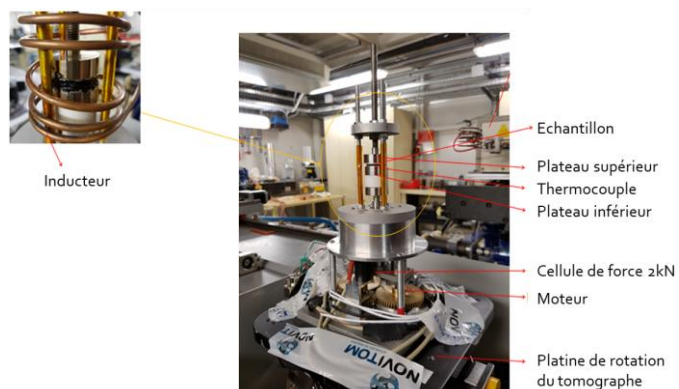


Fig. 1 : Photographie de la mini-presse et de son four à induction monté sur le tomographe de la ligne ID19 du synchrotron de l'ESRF (Grenoble).

kN à températures et vitesses de compression \dot{h} constantes, *i.e.*, à des vitesses de déformation initiales $\dot{\epsilon}_0 = \dot{h}/h_0$ de $5 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$, $1 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ et de $5 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$.

Pendant ces séquences d'essais, nous avons réalisé des images 3D des échantillons et de leur mésostructure. Pour cela, la mini-presse a été montée sur un des tomographes à rayons X de la ligne ID19 de l'ESRF (Grenoble, France). Les images 3D ont été réalisées (i) à une taille de voxels de $22^3 \mu\text{m}^3$ et un grand champ de vue (2000 radiographies de 2000×2000 pixels), (ii) en utilisant le mode Paganin [4] pour augmenter le contraste entre les phases du pré-imprégné, (iii) avec des temps de scans très rapides, de 2 s, autorisant l'acquisition des images en temps réel.

Une fois les images reconstruites et segmentées, nous avons estimé tout au long des essais et par analyse d'images automatiques des cartes locales d'épaisseur $h(x_1, x_2)$ et de mésoporosité $\phi(x_1, x_2)$ dans le plan principal ($\mathbf{e}_1, \mathbf{e}_2$) des échantillons [5], ainsi la surface moyenne \bar{s} de chaque échantillon. Pour cette dernière mesure, nous avons segmenté la carte d'épaisseur, perçue comme une leaset. Avec les valeurs moyennes \bar{h} et \bar{s} , nous avons également évalué les déformations macroscopiques de (dé)consolidation dans l'épaisseur des plaques $\epsilon_h = \ln(\bar{h}/\bar{h}_0)$, dans leur plan principal $\epsilon_s = \ln(\bar{s}/\bar{s}_0)$ et leur déformation macroscopique volumique $\epsilon_v = \epsilon_h + \epsilon_s$. Nous avons enfin estimé manuellement (à partir d'une centaine de mesures dans chaque image 3D) les déformations surfaciques des sections droites des mèches de fibres de verres à l'aide des dimensions principales moyennes de leur forme quasi-elliptique \bar{l}_1 et \bar{l}_2 , soit $\epsilon_b = \ln(\bar{l}_1/\bar{l}_{10}) + \ln(\bar{l}_2/\bar{l}_{20})$.

3. Résultats & Discussion

3.1 Phase de chauffage – Déconsolidation

Les images 3D reportées sur la Fig. 2 montrent l'évolution de la structure fibreuse d'un échantillon au cours de son chauffage à 300°C et sa stabilisation à 280°C (*cf.* graphe reporté sur cette même Fig.). Elles montrent une déconsolidation anisotrope induite par l'architecture fibreuse du renfort et son orientation : augmentation très forte de l'épaisseur des échantillons ($\epsilon_h \approx 0.6$) avec en même temps une très faible évolution de leur surface ($\epsilon_s \approx 0.0$) et une forte augmentation des mésopores (Fig. 3).

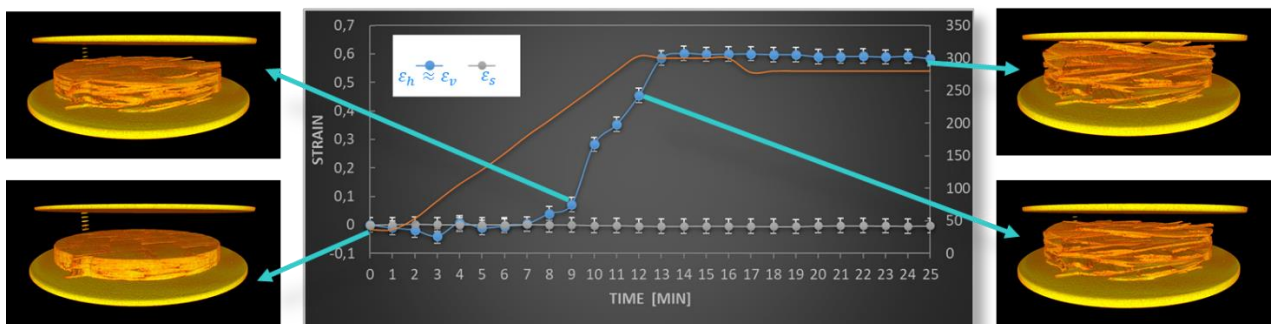


Fig. 2 : Evolution au cours du chauffage (courbe rouge) des déformations de déconsolidation dans l'épaisseur et dans le plan d'un échantillon dont la structure fibreuse 3D est reportée à différents instants.

Cette déconsolidation provient de la perte des propriétés viscoélastiques de la matrice qui autorise le retour élastique des renforts fibreux vers leur configuration « sèche ». Ce retour se produit d'abord par flexion des mèches de fibres. On peut également voir à une échelle plus fine que cette déconsolidation se produit également à l'échelle des sections des mèches, qui augmentent également sensiblement au cours du chauffage (Fig. 4). Comme le montrent les graphes de cette figure, ces phénomènes de déconsolidation se produisent essentiellement lors de la première rampe de chauffage et ne semblent pas dépendre des températures de stabilisation atteinte après montée à 300°C .

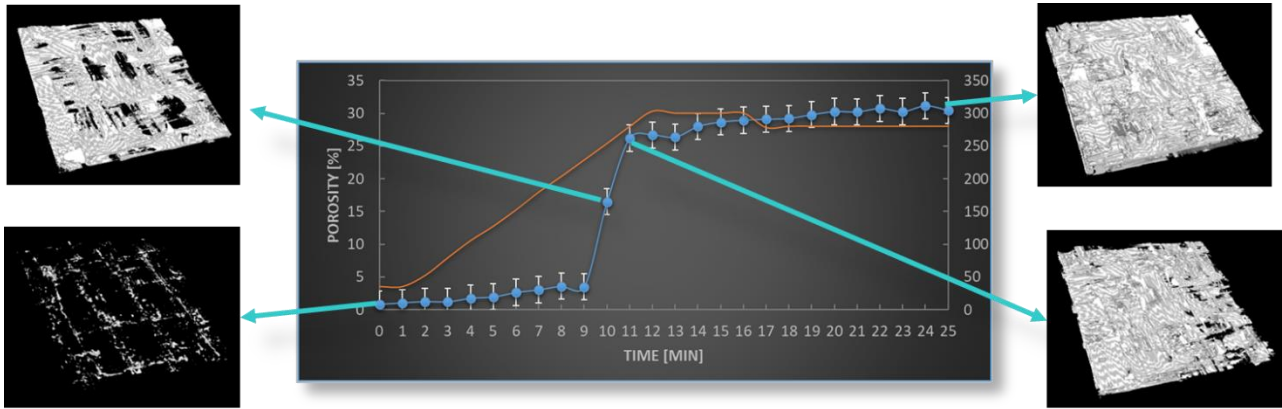


Fig. 3 : Evolution au cours du chauffage (courbe rouge) de la fraction volumique de mésopores et de l'architecture 3D des pores.

3.2 Phase de compression – Consolidation

La Fig. 5 montrent l'évolution de l'architecture des renforts fibreux et de la mésoporosité ϕ au cours de la compression d'un échantillon à 280°C et à $\dot{\epsilon}_0 = 1 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$: le réseau fibreux est consolidé et induit une diminution probante de ϕ jusqu'à des valeurs proches de sa valeur initiale ϕ_0 et ce, quelles que soient les conditions de compression. La consolidation se produit par déflexion des mèches mais aussi par la consolidation de leurs sections droites dont les surfaces retournent quasiment dans leur valeur initiale.

La Fig. 6 donne les déformations rémanentes (après compression) surfaciques ϵ_s^r (a) et axiales ϵ_h^r (b) pour différentes conditions d'essais :

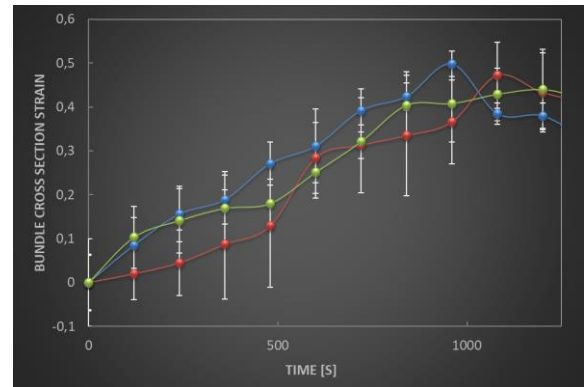


Fig. 4 : Evolution de la déformation des sections droites des mèches de fibres ϵ_b pour trois chauffages à 300°C et descente aux trois températures de compressions.

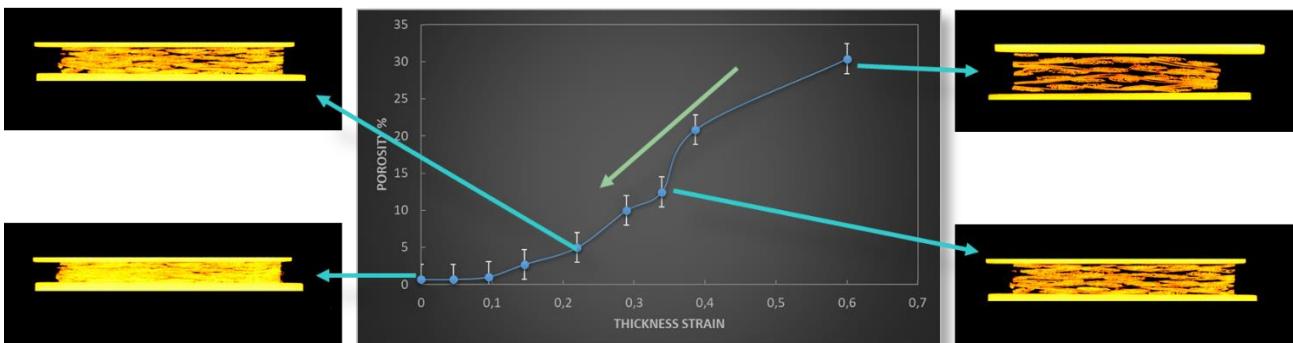


Fig. 5 : Compression à 280°C et à $1 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$: Evolution de la fraction volumique de mésopores en fonction de la déformation dans l'épaisseur, avec vues en coupes verticales de la structure fibreuse à différents instants.

- Le graphe de gauche montre que ϵ_s^r est faible (comprise entre 0.0125 et 0.03), augmente légèrement avec la température d'essais et semble peu affectée par la vitesse de déformation. Elle atteste d'un écoulement, certes limité, des échantillons dans leur plan principal. Son augmentation avec la température est sans doute liée aux pertes de propriétés mécaniques de la matrice avec la température (Eq. 1).

- Les tendances observées sur le graphe de droite sont plus difficiles à interpréter. A faible vitesse de déformation, elles montrent que la compression ramène à peu près les échantillons à leur épaisseur initiale. A plus forte vitesse de déformation, elle peut induire une surcompression qui augmente avec la température de l'essai jusqu'à environ -0.2 à 300°C .

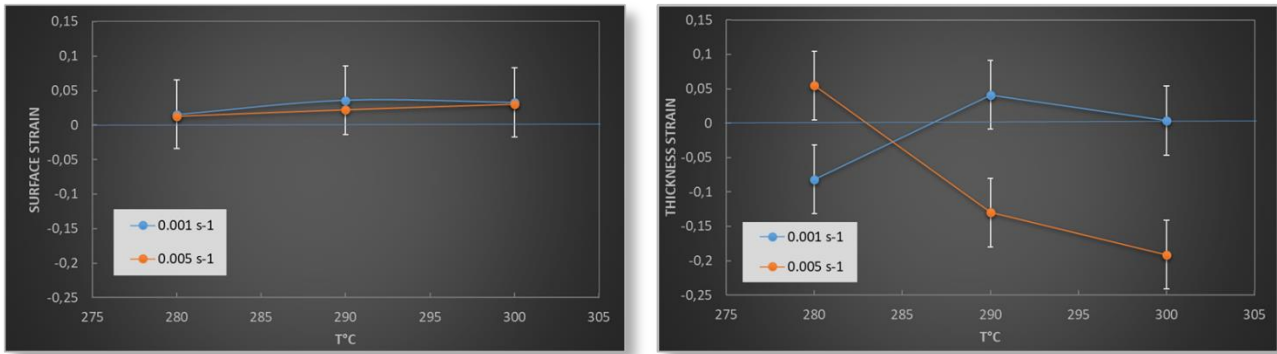


Fig. 6 : Evolution des déformations rémanentes de surface ϵ_s^r (à gauche) et dans l'épaisseur ϵ_h^r (à droite) après des compressions à différentes températures et vitesses de déformation.

L'observation détaillée des clichés 3D obtenus en temps réel permet de mieux comprendre les tendances précédentes et montre la complexité des écoulements mis en jeu. En effet, dans la plus grande partie des cas, nous avons observé des consolidations hétérogènes avec des phénomènes de migrations de phases solides (fibres ou matrice), hors des échantillons. A faible température, ce sont plutôt les mèches de fibres qui sont extraites (Fig. 7 en haut à gauche), alors qu'à plus haute température, l'expulsion de la matrice polymère semble prédominer (Fig. 7 en bas à gauche) [6]. Par analyse d'images, nous avons quantifié les quantités de phases ayant migré. Ainsi, le graphe de la Fig. 7 montre que les phénomènes de migration s'atténuent avec l'augmentation de la température d'essai. Cette tendance est principalement due à une importante diminution de l'expulsion des fibres, car à l'inverse, plus la température est élevée, plus les phénomènes de migration de matrice sont importants.

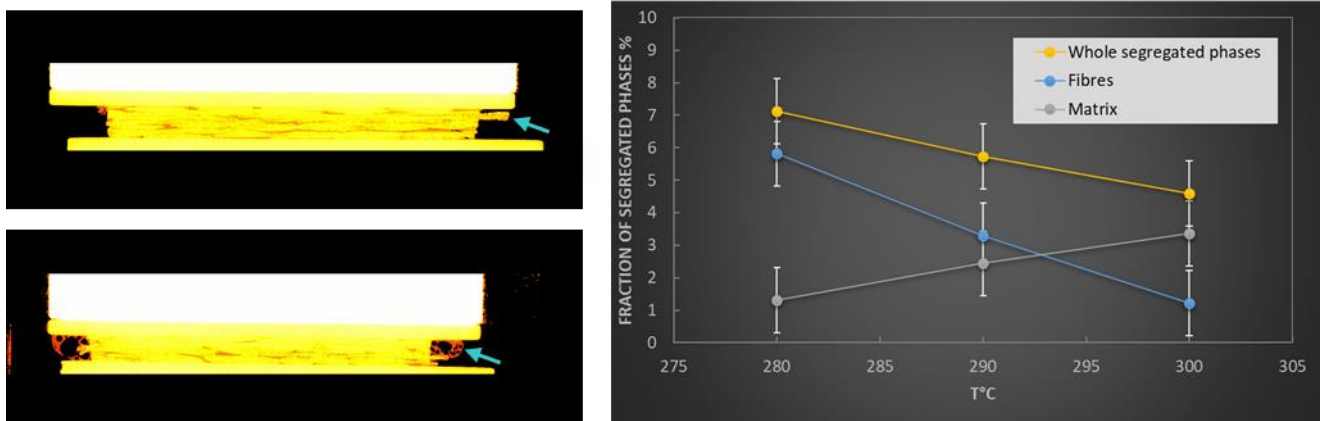


Fig. 6 : Phénomènes de ségrégation observés au cours de la compression : expulsion d'une mèche de fibres (en haut à gauche) et de la matrice (en bas à gauche). Le graphe quantifie les fractions volumiques de matière solide expulsée des échantillons en fonction des températures d'essais.

4. Conclusion

Avec l'imagerie 3D en temps réel par tomographie Rx synchrotron, la base de données expérimentales présentée dans ce travail permet pour la première fois d'observer, *in situ*, les macro et méso-mécanismes de déformation se produisant dans des pré-imprégnés thermoplastiques à

renforts fibreux textiles au cours de leur chauffage (au-dessus de leur température de fusion) et de leur compression, *i.e.*, dans des conditions de chargement thermomécanique proches de celles du procédé de thermo-estampage. Le chauffage des échantillons induit une forte déconsolidation dont l'importante anisotropie est héritée de l'architecture du renfort fibreux. La déconsolidation provient de la chute des propriétés mécaniques de la matrice au chauffage, ce qui laisse les mèches de fibres se fléchir et se déconsolider vers une nouvelle configuration d'équilibre à forte porosité. La compression consécutive au chauffage permet de revenir partiellement à la configuration structurelle initiale. Cependant, des phénomènes de migration de phase fibreuses et polymériques ont été observés *in situ* puis quantifiés, altérant l'architecture du pré-imprégné.

Remerciements

Cette étude a été menée dans le cadre du projet COMMANDO Stamp géré par l'IRT Jules Verne. Les auteurs souhaitent associer les partenaires industriels et académiques de ce projet : IPC Laval, PSA Group, SAFRAN, SOLVAY, 3SR Lab, GeM, LaMCoS, LTeN. Le 3SR Lab est membre du LabEx Tec 21 (Investissements d'Avenir - grant agreement ANR-11-LABX-0030) et de l'Institut Carnot PolyNat (Investissements d'Avenir - grant agreement ANR-11-CARN-030-01).

Références

- [1] J. Wolfrath, V. Michaud, J.-A.E. Manson “Deconsolidation in glass mat thermoplastic composites: Analysis of the mechanisms” *Compos Part A* **36** (2005) 1608–16.
- [2] T. Laurencin, L. Orgéas, P.J.J. Dumont, S. Rolland du Roscoat, P. Laure, S. Le Corre, L. Silva, R. Mokso, M. Terrien “3D real-time and *in situ* characterisation of fibre kinematics in dilute non-Newtonian fibre suspensions during confined and lubricated compression flow” *Compos Sci Technol* **134** (2016) 258-66.
- [3] D. Ferré Sentis, L. Orgéas, P.J.J. Dumont, S. Rolland du Roscoat, M. Sager, P. Latil “3D *in situ* observations of the compressibility and pore transport in Sheet Moulding Compounds during the early stages of compression moulding” *Compos Part A* **92** (2017) 51-61.
- [4] Paganin, D., Mayo, S. C., Gureyev, T. E., Miller, P. R. & Wilkins, S. W. “Simultaneous phase and amplitude extraction from a single defocused image of a homogeneous object” *J Microscopy* **206** (2002) 33–40.
- [5] V. Krasnoshlyk , S. Rolland du Roscoat , P.J.J. Dumont , P. Isaksson , E. Ando, A. Bonnin « Three-dimensional visualization and quantification of the fracture mechanisms in sparse fibre networks using multiscale X-ray microtomography” *Proc Royal Soc A* **474** (2018).
- [6] Odenberger P, Andersson H, Lundström T. “Experimental flow-front visualisation in compression moulding of SMC” *Compos Part A* **35** (2004) 1125–34.