

# Thèse de Doctorat

## Mael PERON

*Mémoire présenté en vue de l'obtention du  
grade de Docteur de l'Université de Nantes  
sous le label de L'Université Nantes Angers Le Mans*

**École doctorale : SPIGA**

**Discipline :** *Energétique et Génie des Procédés*

**Spécialité :** *Thermique*

**Unité de recherche :** *Laboratoire de Thermocinétique de Nantes, UMR 6607*

**Soutenue le : 29 mars 2016**

## Mesure et modélisation des phénomènes de retraits anisotropes dans les matériaux composites durant leur mise en forme

### JURY

Président:	<b>Jean-Luc BATTAGLIA,</b>	Professeur,	Université de Bordeaux
Rapporteurs :	<b>Philippe OLIVIER, Michel QUINTARD,</b>	Professeur, Directeur de Recherche CNRS,	Université Toulouse 3, Paul Sabatier IMFT
Examineurs :	<b>Michel BELLET, Nicolas BOYARD, Frédéric JACQUEMIN, Vincent SOBOTKA,</b>	Professeur, Chargé de Recherche CNRS, Professeur, Maître de Conférences,	MINES ParisTech Université de Nantes Université de Nantes Université de Nantes
Directeur de Thèse :	<b>Steven LE CORRE,</b>	Professeur,	Université de Nantes



# REMERCIEMENTS

Qui l'eut cru? Après plusieurs mois à rédiger le document qui suit, il apparaît plus difficile d'exprimer ces quelques remerciements que d'écrire le chapitre introductif. La problématique ici est d'être original et de remercier chaque personne qui a pu contribuer, de près comme de loin, à l'accomplissement de ces travaux. Il est probable que j'ai, par mégarde, oublié certaines personnes alors, d'avance, merci à elles!

Quand on y pense, faire une thèse c'est un peu comme apprendre à faire du vélo. On se fixe un but et, pour y arriver, le chemin est long et parfois semé d'embûches. Heureusement, on n'est pas tout seul sur ce chemin et on peut compter sur un certain nombre de personnes que je me dois de remercier.

Tout d'abord, et parce qu'il a accepté de me confier cette entreprise qui n'était pas gagnée d'avance, je remercie Steven Le Corre pour avoir dirigé ces travaux de recherche. Les nombreux échanges constructifs que l'on a pu partager, les moments de doutes levés, une touche d'humour au bon moment, tout cela a permis de maintenir le cap et regarder droit devant avec confiance.

Deux autres éminents chercheurs ont co-encadré ces travaux, m'aidant à passer progressivement les vitesses jusqu'à maîtriser parfaitement le sujet. Nicolas, roi des calembours et contrepèteries en tous genres, j'ai apprécié ton organisation, ta rigueur et tes qualités humaines. Attention, néanmoins, il arrive que le chercheur soit fatigué après une belle thèse. Vincent, ton habileté au second degré et à l'ironie, mais également tes qualités pédagogiques et ton suivi attentif dès les premiers instants de cette thèse ont permis de travailler efficacement dans une ambiance détendue. Pour toutes ces qualités, je vous suis extrêmement reconnaissant!

Parce qu'ils ont consenti à l'évaluation de ces travaux, je souhaite également faire part de ma plus sincère gratitude aux membres du jury. Notamment, merci à Jean-Luc Battaglia pour l'avoir présidé, à Philippe Olivier et Michel Quintard qui ont endossé la lourde tâche d'émettre un rapport concernant le manuscrit, ainsi qu'à Michel Bellet et Frédéric Jacquemin pour avoir examiné cette thèse. Vos remarques judicieuses, faisant preuve de l'intérêt que vous avez porté à ces travaux, m'ont aidées à prendre encore plus de recul vis-à-vis de ces travaux.

Après des débuts incertains voire difficiles et qui n'ont pas été facilités par une chute de vélo, deux personnes m'ont aidé à me remettre en selle. Sans elles, la poursuite de ces travaux n'aurait pas été possible. Aussi, je souhaite joindre chaleureusement Cathy Castelain et Didier Delaunay à ces remerciements.

Il arrive que l'on ait besoin d'outils et de compétences afin de réparer sa monture. C'est là qu'intervient le SEF du LTN auquel je dois une fière chandelle. Je pense notamment à Nicolas (et sa confiance inégalable quand on commence à développer une « manip' de merde »), à Julien (le roi du LabView) et à Gwen'.

Quand on commence à maîtriser son sujet et qu'on souhaite présenter ses travaux à l'étranger et explorer de nouveaux horizons, on peut faire entièrement confiance à Brigitte et Christine. Merci à vous pour votre accompagnement dans ces différentes démarches.

Nathalie, merci pour ton assistance informatique inconditionnelle, pour nos discussions pas toujours sérieuses et pour tes chaussures qui font « *pschit* ».

## Remerciements

---

Ces trois années et quelques mois n'auraient pas été identiques sans la présence des autres doctorants, des post-doctorants, des stagiaires et des autres membres du laboratoire. J'adresse en particulier mes remerciements aux collègues avec qui j'ai cohabité : Boussad, Simon, Cyril et Baptiste. Je joins à ces remerciements un florilège de personnes : Maxime, Xavier, Denis, Maryam, Basile, Fabien, Ugo, Jalal, Donia, Kevin, Arthur, Gaëlle, Benjamin, Arab, Romain, Violaine, Florian, Yoann, et tant d'autres! Aux midis passés à tracer des courbes de couleur, au classement Elo, aux brochettes, aux projets pseudo-artistiques engagés, au « Wall of Fail », aux jeux de mots, aux mots croisés et fléchés, aux soirées pizza dans le labo, aux révélations mystiques... Bref, à tous ces moments qui ont permis de décompresser de temps en temps: « Merci à tous d'être là, super sympa! ».

4 années de vie commune et communautaire, ça marque. Alors merci à tous les colocs (anciens et actuels) avec qui j'ai pu vivre, partager des moments super et qui nous ont subis moi et mes jeux de mots à deux balles.

J'adresse une attention particulière pour Elise qui m'a supporté et soutenu pendant ces quelques mois de rédaction ainsi que pendant la préparation de la soutenance.

Durant tout ce chemin parcouru, d'autres personnes ont été présentes et n'ont pas manqué de m'encourager. Je pense bien évidemment à ma famille et à mes amis. Pour cela, je souhaite remercier Marie-Annick, ma mère, ainsi que Nolwenn et Lénaïg, mes sœurs, pour leur présence et leur soutien sans faille.

Enfin, qu'ils viennent de Nantes ou de Navarre, les amis ont été les petites (voire grandes) roues qui m'ont permis de ne pas chuter. Alors merci à Jéjé, Teeful, Steyla, Yaggo, Audrey, Martin, Olivier et tous les autres d'être toujours présents et disponibles!

# SOMMAIRE GENERAL

## TABLE DES MATIERES

<b>Introduction générale.....</b>	<b>1</b>
<b>Chapitre 1 - Contexte et problématique.....</b>	<b>5</b>
1.1 Contexte.....	7
1.1.1 Les matériaux composites .....	7
1.1.2 La matrice.....	8
1.1.3 Les fibres et la microstructure .....	10
1.1.4 Retraits et développement des contraintes résiduelles.....	10
1.2 Verrous et problématiques.....	11
1.2.1 Mesure des propriétés de la résine.....	12
1.2.2 Mesure des propriétés des fibres .....	16
1.2.3 Estimation des propriétés équivalentes du matériau composite .....	18
1.2.4 Modélisation des phénomènes de retraits.....	21
1.2.5 Mesure des propriétés du matériau composite .....	24
1.2.6 Mesure du tenseur de retrait chimique .....	28
1.3 Positionnement de ces travaux de recherche.....	40
Bibliographie.....	42
<b>Chapitre 2 - Mesure du module de compressibilité de la résine au cours de la transformation..</b>	<b>55</b>
2.1 Introduction.....	57
2.2 Le dispositif PvT $\alpha$ .....	59
2.2.1 Description du dispositif.....	59
2.2.2 Utilisation conventionnelle.....	60
2.2.3 Utilisation en cycles de pression .....	60
2.2.4 Hypothèses posées.....	61
2.3 Caractérisation mécanique de l'élastomère.....	61
2.3.1 Module de Young .....	61
2.3.2 Module de compressibilité .....	62
2.4 Simplification géométrique et introduction au modèle .....	65
2.5 Modélisation thermo-chimique .....	66
2.5.1 Description du modèle.....	66
2.5.2 Résolution du problème.....	67

<u>2.6</u>	<u>Modélisation mécanique.....</u>	<u>70</u>
2.6.1	Modélisation mécanique de la capsule .....	70
2.6.2	Modélisation mécanique de l'échantillon .....	74
<u>2.7</u>	<u>Modélisation du contact entre la capsule et l'échantillon .....</u>	<u>77</u>
2.7.1	Contact parfait collant entre les deux solides .....	78
2.7.2	Traitement du décollement .....	79
<u>2.8</u>	<u>Schéma de l'algorithme de résolution du problème global .....</u>	<u>80</u>
<u>2.9</u>	<u>Matériaux et méthode .....</u>	<u>81</u>
2.9.1	L'élastomère.....	81
2.9.2	La résine RTM6.....	81
2.9.3	Protocole.....	84
<u>2.10</u>	<u>Validation du modèle .....</u>	<u>84</u>
2.10.1	Convergence en maillage et en temps .....	84
2.10.2	Comportement thermo-mécanique de l'élastomère .....	87
2.10.3	Evolution du volume de l'échantillon .....	88
2.10.4	Densités de flux de chaleur pendant la réticulation.....	89
2.10.5	Profil latéral de l'échantillon.....	89
<u>2.11</u>	<u>Application à la mesure du module de compressibilité de la résine .....</u>	<u>90</u>
2.11.1	Etat de contraintes autour de l'échantillon.....	90
2.11.2	Vérification de la première hypothèse.....	91
2.11.3	Comportements en cycle de pression .....	93
2.11.4	Méthode de détermination du module de compressibilité.....	95
2.11.5	Application aux résultats des expériences numériques .....	97
2.11.6	Discussions.....	100
<u>2.12</u>	<u>Prise en compte du glissement entre la capsule et l'échantillon .....</u>	<u>102</u>
<u>2.13</u>	<u>Conclusion.....</u>	<u>105</u>
	<u>Bibliographie.....</u>	<u>107</u>

**Chapitre 3 - Homogénéisation du problème thermo-chimique durant la mise en forme d'un matériau composite .....** **111**

<u>3.1</u>	<u>Introduction aux méthodes d'homogénéisation et aux développements asymptotiques.....</u>	<u>113</u>
<u>3.2</u>	<u>Un exemple simple - Transferts de chaleur par conduction .....</u>	<u>116</u>
3.2.1	Description du problème. ....	116
3.2.2	Adimensionnement.....	117
3.2.3	Développements asymptotiques .....	118
3.2.4	Homogénéisabilité.....	121

<b>3.3</b>	<b>Prise en compte de propriétés thermo-dépendantes .....</b>	<b>122</b>
3.3.1	Description du problème traité .....	122
3.3.2	Mise en œuvre. ....	123
3.3.3	Application .....	125
3.3.4	Discussion .....	133
<b>3.4</b>	<b>Homogénéisation du problème thermo-chimique couplé.....</b>	<b>133</b>
3.4.1	Description du problème traité .....	134
3.4.2	Adimensionnement.....	135
3.4.3	Développements asymptotiques .....	135
3.4.4	Adimensionnement de la température .....	138
3.4.5	Les modèles cinétiques et le temps caractéristique de la réaction chimique.....	139
3.4.6	Ordres de grandeur des nombres adimensionnels .....	143
3.4.7	Application à des cas concrets.....	143
<b>3.5</b>	<b>Conclusions et perspectives.....</b>	<b>150</b>
<b>Bibliographie .....</b>		<b>152</b>
<b>Chapitre 4 - Mesure des retraits anisotropes dans les matériaux composites .....</b>		<b>157</b>
<b>4.1</b>	<b>Introduction .....</b>	<b>159</b>
<b>4.2</b>	<b>Présentation du dispositif conçu.....</b>	<b>159</b>
4.2.1	Principe de fonctionnement.....	160
4.2.2	L'échantillon .....	161
4.2.3	Contrôle de l'état mécanique .....	161
4.2.4	Système de chauffe.....	163
4.2.5	Mesure des déformations de l'échantillon .....	164
4.2.6	Capteurs de flux.....	165
4.2.7	Chaîne de pilotage et d'acquisition.....	165
<b>4.3</b>	<b>Protocole expérimental.....</b>	<b>166</b>
4.3.1	Préparation et découpe de l'échantillon .....	166
4.3.2	Mise en place de l'échantillon et fermeture du moule .....	168
4.3.3	Application de la pression et contrôle du piston.....	169
4.3.4	Démarrage de l'essai.....	170
<b>4.4</b>	<b>Méthode d'analyse des résultats et validation.....</b>	<b>170</b>
4.4.1	Mesure à travers l'épaisseur.....	170
4.4.2	Mesure latérale .....	171
4.4.3	Capteurs de flux.....	172

4.5	Matériaux et méthodes .....	174
4.5.1	Matériau SMC .....	174
4.5.2	Matériau UD fibres de carbone/époxy T700/M21 .....	175
4.6	Résultats et discussions .....	176
4.6.1	Matériau SMC - Premier cycle.....	176
4.6.2	Matériau SMC - Deuxième cycle .....	187
4.6.3	Matériau UD fibres de carbone/époxy T700/M21 .....	189
4.7	Conclusions et perspectives.....	193
	Bibliographie.....	196
	<b>Conclusion générale et perspectives.....</b>	<b>199</b>
	<b><u>Annexe A - Discrétisation du modèle éléments finis du PvT<math>\alpha</math>.....</u></b>	<b><u>203</u></b>
	<b><u>Annexe B - Traitement numérique du décollement .....</u></b>	<b><u>213</u></b>
	<b><u>Annexe C - Homogénéisation et couplages multiphysiques.....</u></b>	<b><u>231</u></b>
	<b><u>Annexe D - Corrections optiques pour la mesure de déformations latérales.....</u></b>	<b><u>251</u></b>





# INTRODUCTION GENERALE

Le contexte économique et environnemental actuel a éveillé dans la conscience collective le souci de réaliser des économies d'énergie dans de nombreux domaines et ce, aussi bien dans sa façon de vivre, de consommer ou de se déplacer. Dans le domaine des transports, il apparaît nécessaire d'améliorer notamment les performances des véhicules routiers et aériens afin d'augmenter leur rendement énergétique.

On remarque cette tendance depuis quelques dizaines d'années, d'une part dans l'industrie aéronautique où les avions modernes consomment jusqu'à quatre fois moins d'énergie par passager qu'en 1960<sup>1</sup>. En plus de cette amélioration significative, les enjeux environnementaux prennent une part grandissante dans le développement des nouvelles technologies. L'un des objectifs fixé par l'ACARE (Advisory Council for Aviation Research in Europe) pour 2050 est de réduire de 75% les émissions de CO<sub>2</sub> par passager et par kilomètre, ainsi que de 90% celles de NO<sub>x</sub><sup>2</sup>.

Dans le secteur automobile, les émissions de véhicules représentaient, en 2012, 12% des émissions mondiales de CO<sub>2</sub><sup>3</sup>. Une réduction drastique de 40% des émissions de CO<sub>2</sub> d'ici à 2020 est envisagée par l'ERTRAC (European Road Transport Research Advisory Council), visant ainsi une émission maximale de 95g/km de CO<sub>2</sub> par véhicule. Il est à noter qu'un allègement de masse de 100kg dans un véhicule automobile représente une diminution de 10g/km d'émissions de CO<sub>2</sub><sup>4</sup>.

Une volonté et une nécessité commune d'allègement des structures animent ces deux secteurs industriels. Lors de la conception de véhicules ou d'avion, les constructeurs s'orientent de plus en plus vers les matériaux composites. Ces matériaux présentent de nombreux avantages face aux alliages métalliques, notamment en ce qui concerne leur rigidité spécifique plus élevée, ce qui en fait des matériaux de choix dans l'allègement des structures. Il existe d'ailleurs une forte corrélation entre l'augmentation de l'utilisation des matériaux composites et la diminution de la consommation d'énergie des avions.

Bien que très intéressants d'utilisation, les matériaux composites sont des matériaux récents par rapport aux alliages métalliques. Les procédés de mise en forme associés ne sont pas toujours maîtrisés totalement. Bien souvent les deux derniers items du triptyque coût-qualité-temps de production nécessaire à l'industrie ne peuvent être optimisés sans détérioration de l'un ou de l'autre. Ils sont pourtant essentiels pour respecter les cadences de production de l'industrie automobile, ou bien encore les exigences en terme de certification de la qualité des pièces dans l'industrie aéronautique.

On se demande alors comment maîtriser les différentes étapes du procédé de mise en forme afin d'assurer une excellente qualité finale de la pièce et ce dans des temps raisonnables de production? La réponse à cette question n'est pas unique. Une des pistes possibles provient de la connaissance du matériau considéré et des différentes physiques intervenant durant sa mise en forme. A ce titre, la chaire de recherche COMPETH de l'IRT Jules Verne, portée par le Laboratoire de Thermocinétique de Nantes (LTN), et en partenariat avec plusieurs industriels que sont Airbus Group, Airbus Group Innovation, Daher et Solvay, vise à mieux comprendre et caractériser les transferts thermiques durant la mise en forme des matériaux composites. Elle s'intéresse également à des sujets présentant un lien

---

<sup>1</sup> source: IATA, the International Air Transport Association, 2015

<sup>2</sup> source: rapport ACARE Flightpath 2050, 2011

<sup>3</sup> source: ADEME, 2012

<sup>4</sup> source: ARKEMA, 2012

fort avec ces transferts tels que l'identification des cinétiques de transformation de la matrice, la caractérisation des propriétés radiatives des matériaux, l'analyse des transferts thermiques dans les procédés de mise en forme par autoclave, la dépose de bandes thermoplastiques assistée par laser ou encore la mesure et la prédiction des phénomènes de retraits dans les composites à matrice thermodurcissables.

Les retraits dans les matériaux composites à matrice thermodurcissable ont deux origines. Le retrait de réticulation de la matrice, traduisant son passage de l'état cru à l'état cuit et qui s'accompagne du développement de ses propriétés mécaniques. Le retrait thermique, quant à lui, a lieu durant la phase de refroidissement de la pièce jusqu'à la température ambiante. De par la présence de fibres dont la structure est orientée dans l'espace, ces phénomènes sont souvent anisotropes et leur intensité dépend de la direction d'étude.

Ces retraits sont une des principales causes de l'apparition de contraintes résiduelles dans les matériaux composites durant leur mise en forme, phénomène qui a un impact direct sur les propriétés mécaniques et les formes finales des pièces réalisées. De nombreux efforts ont été apportés ces 30 dernières années afin de mesurer et modéliser le développement de ces contraintes mais, de nombreux phénomènes ayant lieu simultanément, il est parfois difficile de remplir ces objectifs. Il apparaît alors indispensable, afin de maîtriser les procédés de mise en forme des matériaux composites, de caractériser ces retraits afin de mieux comprendre leur implication dans le développement des contraintes résiduelles et donc dans la santé finale des pièces composites, et également de modéliser ces retraits afin de prédire la forme finale de ces pièces.

En résumé, des modèles prédictifs sont nécessaires afin d'estimer les formes et propriétés finales des pièces durant le cycle de mise en forme. Ces modèles, s'ils décrivent avec précision les différents phénomènes intervenant pendant la mise en forme des matériaux composites, vont permettre d'optimiser les paramètres du procédé de mise en forme afin d'assurer une qualité suffisante de la pièce en un temps minimum de fabrication. Cela représente un gain considérable en temps et en coût de développement, comparé à une méthode empirique d'essai-erreur. Pour alimenter ces modèles, il est nécessaire de connaître les propriétés du matériau composite. Ces propriétés peuvent être soit estimées à partir des propriétés des constituants du matériau composite (*i.e.* les fibres et la matrice) et d'une méthode d'homogénéisation, soit mesurées directement sur le matériau composite. Enfin, pour valider ces modèles il faut recourir à des approches expérimentales qui permettent de comparer le comportement réel des matériaux composites avec ceux issus des modèles développés.

Ces travaux de thèse s'articulent en quatre chapitres, chacun venant apporter une contribution à un point spécifique du paragraphe précédent. Le premier chapitre dresse un état de l'art de la caractérisation des propriétés des matrices et des fibres, des méthodes d'homogénéisation, des outils de mesure des propriétés des matériaux composites, notamment des retraits, et des modèles permettant de prédire les retraits dans ces matériaux. Dans le deuxième chapitre, on s'intéresse plus particulièrement à la mesure des propriétés mécaniques de la matrice et à leur développement durant la polymérisation. Un dispositif de caractérisation des résines thermodurcissables, développé au laboratoire, y est modélisé afin de valider la mesure du module de compressibilité de la résine au cours de sa réticulation. Le troisième chapitre aborde l'homogénéisation du problème thermo-chimique couplé lors de la mise en forme des matériaux composites. L'homogénéisabilité du problème y est discutée et plusieurs cas concrets y sont traités. Ce chapitre s'étend en annexe C à la prédiction des retraits durant cette même phase. Enfin, le dernier chapitre concerne la mesure des retraits anisotropes dans les matériaux composites. Un nouveau dispositif y est présenté, permettant la mesure simultanée des retraits suivant deux directions, de la température, de l'avancement de la réaction et de la pression.





# CHAPITRE 1

## CONTEXTE ET PROBLEMATIQUES

Après un bref rappel du contexte de l'étude, les différentes problématiques liées à la mesure et la modélisation des phénomènes de retraits anisotropes dans les matériaux composites durant leur mise en forme sont décrites. Le positionnement de ces travaux relativement aux problématiques déterminées est ainsi proposé.

### TABLE DES MATIERES

1.1	Contexte.....	7
1.1.1	Les matériaux composites .....	7
1.1.2	La matrice.....	8
1.1.3	Les fibres et la microstructure .....	10
1.1.4	Retraits et développement des contraintes résiduelles.....	10
1.2	Verrous et problématiques.....	11
1.2.1	Mesure des propriétés de la résine.....	12
1.2.1.1	Mesure des propriétés thermo-physiques de la résine durant sa transformation .....	12
1.2.1.2	Mesure des variations volumiques de la résine durant sa transformation .....	12
1.2.1.3	Mesure des propriétés mécaniques de la résine durant la réticulation.....	13
1.2.1.4	Le dispositif PvT $\alpha$ .....	15
1.2.2	Mesure des propriétés des fibres .....	16
1.2.3	Estimation des propriétés équivalentes du matériau composite .....	18
1.2.3.1	Encadrement des propriétés effectives à l'aide de bornes.....	18
1.2.3.2	Approches auto-cohérentes .....	19
1.2.3.3	Approches pour les structures complexes ou aléatoires .....	19
1.2.3.4	Approches pour les structures périodiques.....	20
1.2.4	Modélisation des phénomènes de retraits.....	21
1.2.4.1	Approches thermo-élastiques .....	21
1.2.4.2	Approches thermo-chémo-élastiques .....	22
1.2.5	Mesure des propriétés du matériau composite .....	24
1.2.5.1	Mesure des propriétés thermiques.....	24

1.2.5.2	Mesure des propriétés mécaniques.....	26
1.2.5.3	Mesure du tenseur de dilatation thermique.....	27
1.2.6	Mesure du tenseur de retrait chimique .....	28
1.2.6.1	Mesures volumiques.....	29
1.2.6.2	Mesures directionnelles .....	30
1.2.6.3	Récapitulatif et limitations .....	36
1.3	Positionnement de ces travaux de recherche.....	40
	Bibliographie.....	42

## 1.1 CONTEXTE

Les matériaux composites, bien que récents comparés aux alliages métalliques, connaissent depuis quelques dizaines d'années un engouement grandissant de la part de plusieurs secteurs industriels. A titre d'exemple, leur proportion dans la conception des avions Airbus connaît un développement quasiment exponentiel depuis les années 1970, atteignant ainsi 53% de la masse totale de l'A350-900 XWB (Figure 1.1).

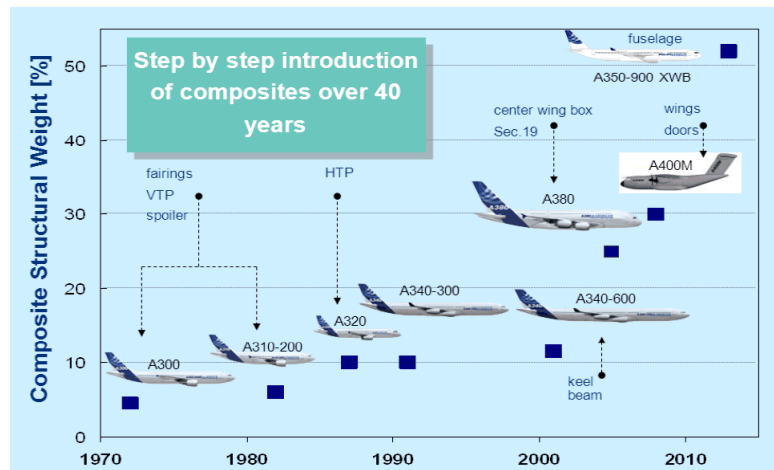


Figure 1.1: Utilisation des matériaux composites dans la conception des avions Airbus. Source: EADS 2011

Cet intérêt se justifie par les propriétés intéressantes de ces matériaux. Bien que leurs propriétés mécaniques soient, certes, parfois inférieures à celles des alliages métalliques, le ratio de ces propriétés avec leur masse volumique, appelé rigidité spécifique, est bien souvent plus élevé. A propriétés mécaniques égales, les matériaux composites auront alors une masse plus faible. Leur rigidité spécifique en fait donc des matériaux de choix dans le but d'alléger les structures.

### 1.1.1 LES MATERIAUX COMPOSITES

Un matériau composite est constitué de deux matériaux ou plus dont les propriétés sont supérieures aux propriétés des constituants pris indépendamment. Plus précisément, dans le cas des matériaux composites à base de polymères renforcés, les principaux constituants sont les fibres, qui peuvent être naturelles (lin, chanvre, coton, ...) ou synthétiques (carbone, verre, aramide,...), et la matrice (ou résine) polymère, qui peut être de type polyester, époxy, vinylester, PEEK, ...

Si l'on classe les matériaux composites en fonction de la nature de leur matrice, on peut distinguer deux grandes familles:

- les matériaux composites à matrice thermoplastique, et
- les matériaux composites à matrice thermodurcissable.

La seconde famille sera l'objet de cette étude. On y retrouve notamment le matériau composite composé de fibres de carbone et d'une matrice époxy qui est très utilisé dans des secteurs tels que l'industrie aéronautique et le spatial.

On peut trouver les matériaux composites sous différentes formes, brutes, ou semi-produits, afin de fabriquer une pièce. Entre autres, il est possible de choisir indépendamment les fibres et la résine à associer ensemble. Il faudra alors, au moment de fabriquer la pièce, draper les fibres dans le moule et

les imprégner afin d'obtenir le matériau composite. On retrouve cette solution dans les procédés LCM (pour Liquid Composite Moulding) tels que le procédé RTM (pour Resin Transfer Moulding) ou encore l'infusion sous bêche à vide. Il est également possible d'utiliser des fibres déjà préimprégnées de résine, que l'on appelle simplement préimprégné. Ces préimprégnés sont alors directement drapés dans la préforme, manuellement ou de façon robotisée. Par la suite, le procédé d'imprégnation du matériau avant sa transformation ne sera pas considéré et on s'intéressera seulement aux phénomènes ayant lieu dans le matériau totalement imprégné.

Une fois le matériau drapé et imprégné, celui-ci est généralement compacté, par exemple sous l'effet de la bêche et de la pompe à vide dans le cas de l'infusion ou de l'utilisation de préimprégnés, auquel peut s'ajouter la pression d'un autoclave. Ce compactage permet de conformer le matériau à la préforme et de chasser les possibles bulles d'air. La transformation du matériau s'en suit, permettant la consolidation du matériau. C'est cette dernière étape, où le matériau acquiert sa forme et ses propriétés définitives, à laquelle nous nous intéressons.

### 1.1.2 LA MATRICE

Les matrices thermodurcissables se différencient des thermoplastiques par l'irréversibilité de leur changement d'état. A l'état initial et à température ambiante, elles sont généralement liquides et composées de pré-polymères. Lors de leur transformation (aussi appelée réaction de réticulation), des liaisons chimiques sont créées entre les chaînes macromoléculaires, formant petit à petit un réseau compact et solide.

Lorsque la matrice est activée chimiquement, ce qui est le cas dans les préimprégnés, les procédés LCM et pour beaucoup de résines, on élève la température afin d'accélérer la réticulation de la pièce. La réaction de la résine s'accompagne d'un dégagement d'énergie, appelé enthalpie de réaction. La réaction est donc exothermique et, puisqu'elle s'accélère avec l'élévation de la température, il peut arriver qu'elle s'auto-entretienne dans des pièces massives où la chaleur reste confinée au cœur de la pièce. La température peut être pilotée durant la transformation afin de limiter l'exothermie tout en assurant une transformation homogène et totale du matériau. Cette exothermie permet cependant, dans certains dispositifs expérimentaux, de quantifier l'avancement de la réaction.

Le comportement volumique de la résine durant sa transformation est fortement lié à la réaction de réticulation. L'élévation de température entraîne une dilatation thermique de la résine. Le coefficient de dilatation thermique linéaire  $\alpha$  permet de relier le volume instantané  $V$  de la résine à une température  $T$  au volume initial  $V_0$  à la température  $T_0$ :

$$V = V_0(1 + 3\alpha(T - T_0)) \quad (1.1)$$

Le coefficient de dilatation thermique de la matrice n'est pas constant durant toute la transformation et dépend fortement de son état. Il est plus grand à l'état liquide qu'à l'état polymérisé, ce qui s'explique par la perte de mobilité des molécules liée à la formation du réseau de chaînes de polymères. De plus, deux états polymérisés distincts existent et la transition entre les deux s'effectue autour de la température de transition vitreuse  $T_g$ . Au dessus de cette température la résine se trouve à l'état caoutchoutique et en dessous à l'état vitreux. Ce dernier se caractérise par une mobilité moléculaire réduite, induisant une raideur plus élevée et une dilatation thermique plus faible.

La formation du réseau tridimensionnel de chaînes de polymères s'accompagne également d'une perte de volume que l'on appelle retrait chimique ou retrait de polymérisation. Celui-ci s'explique par la formation de liaisons entre les chaînes macromoléculaires et la conformation du réseau

tridimensionnel ainsi créé qui tendent à rapprocher les chaînes les unes des autres. Une évolution classique du volume d'une matrice thermdurcissable est représentée en Figure 1.2. Son procédé de mise en forme est divisé en trois zones comprenant chacune un phénomène prédominant. La première est celle où a majoritairement lieu l'expansion thermique de la matière avant polymérisation, la seconde le retrait chimique et la troisième le retrait thermique après polymérisation et pendant le refroidissement.

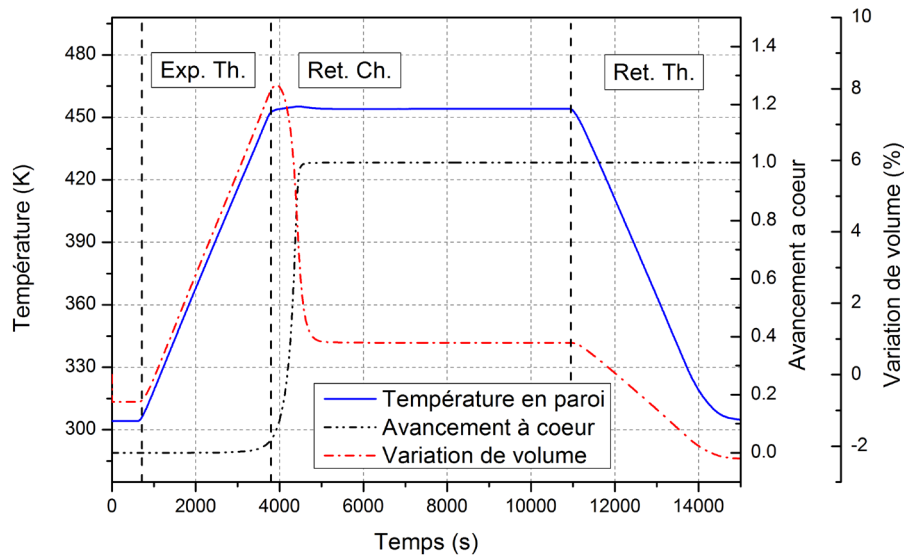


Figure 1.2: Variation de volume d'une résine au cours de sa transformation, avec la température et l'avancement de la réaction

En parallèle des variations de volume, la transformation de la résine s'accompagne du développement de ses propriétés mécaniques. A l'état liquide, elle est incapable de supporter le moindre effort cisailant et se comporte comme un fluide visqueux. Le début du développement de ses propriétés est repéré par le point de gel (Figure 1.3). Il s'agit du degré d'avancement de la réaction à partir duquel la viscosité de la résine tend vers une valeur infinie et où la résine peut supporter un effort de cisaillement minimal.

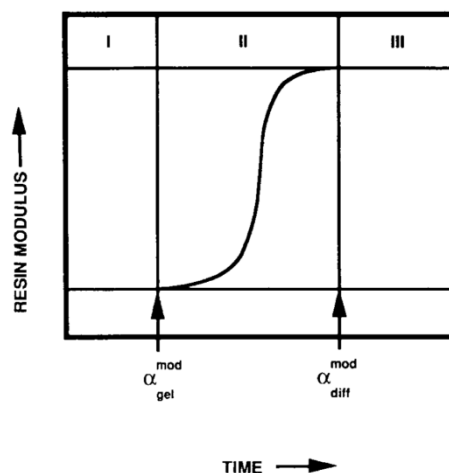


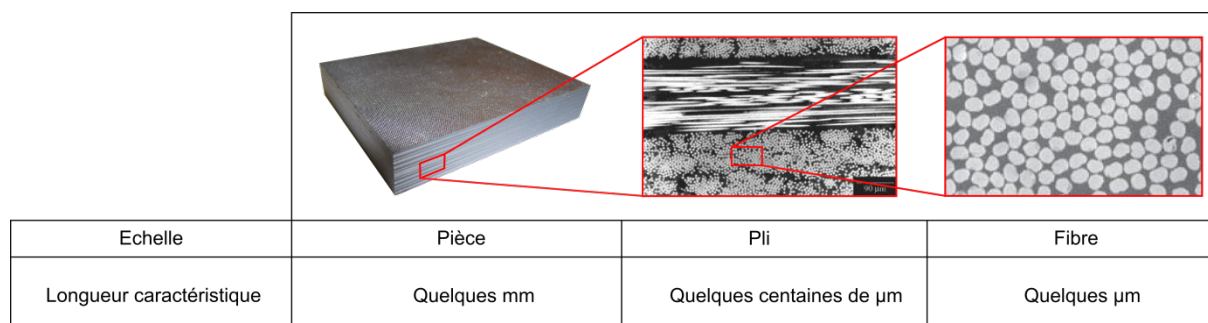
Figure 1.3: Evolution du module d'élasticité de la résine au cours de la transformation [1]

Enfin, la résine est considérée comme un matériau homogène et isotrope. Son comportement peut donc être décrit de la même façon en chaque point, quelle que soit la direction de sollicitation.

### 1.1.3 LES FIBRES ET LA MICROSTRUCTURE

Le comportement des fibres durant la mise en forme des matériaux composites est plus simple que celui de la résine. Généralement, leurs propriétés sont considérées comme constantes sur la gamme de température correspondant à la mise en forme du matériau. Elles ne sont cependant pas toujours considérées comme homogènes et isotropes, leur structure étant parfois complexe. A titre d'exemple, les propriétés thermiques et mécaniques des fibres de carbone dépendent de la direction d'étude [2–4]. Le comportement de la fibre de carbone est ainsi considéré comme isotrope transverse.

Les fibres seules sont généralement rassemblées en mèches ou torons, contenant plusieurs milliers de fibres. Ces torons sont ensuite organisés et constituent la base des structures fibreuses. La structure la plus simple est le laminé unidirectionnel (UD). Dans cette structure, toutes les fibres sont orientées dans la même direction. Il existe d'autres structures plus complexes où les torons sont tissés suivant deux ou trois dimensions. Enfin, en fonction des propriétés voulues et des spécifications géométriques, plusieurs plis sont empilés avec une orientation bien définie afin d'obtenir la pièce finale. Le matériau final est alors complexe et sa structure est définie à plusieurs échelles dont les dimensions peuvent être très différentes (Figure 1.4).



**Figure 1.4: Différentes échelles dans les matériaux composites réalisés à partir de laminés UD.**

On comprend alors que lorsque les fibres et la matrice sont assemblées afin d'obtenir le matériau composite, la structure des fibres, leur orientation, leur assemblage en plis et l'empilement des plis ont un fort impact sur le comportement du matériau. Les coefficients d'expansion thermique et de retrait chimique du matériau composite sont par conséquent anisotropes, tout comme ses propriétés mécaniques et thermiques, et évoluent fortement durant la mise en forme du matériau.

### 1.1.4 RETRAITS ET DEVELOPPEMENT DES CONTRAINTES RESIDUELLES

La nature anisotrope et hétérogène des matériaux composites mène au développement de contraintes résiduelles dans les pièces réalisées. Si elles ne sont pas maîtrisées, ces contraintes peuvent être la cause de phénomènes parfois désastreux sur la pièce finale. Elles peuvent modifier les propriétés mécaniques macroscopiques du matériau [5], ce qui peut être bénéfique si elles contribuent à leur augmentation ou, à l'inverse, négatif. Localement, les contraintes résiduelles induisent parfois une ondulation des fibres, ce qui dégrade les propriétés mécaniques du matériau. Elles sont également la cause de délaminage entre les plis du matériau ou de dégradation voire de fracture de la matrice [6]. Lors de la fabrication de pièces, et même si leur structure est symétrique, les contraintes résiduelles provenant de l'interaction pièce-moule [7], ou de gradients de température et d'avancement, entraînent une déformation de la pièce au moment de la sortie du moule. Dans les pièces présentant des surfaces courbes, les contraintes résiduelles induites par le retrait chimique et la contraction thermique

entraînent une diminution des angles entre ces surfaces, phénomène appelé "spring-in" [8–10]. On observe ce phénomène sur les angles droits de la pièce présentée en Figure 1.5.

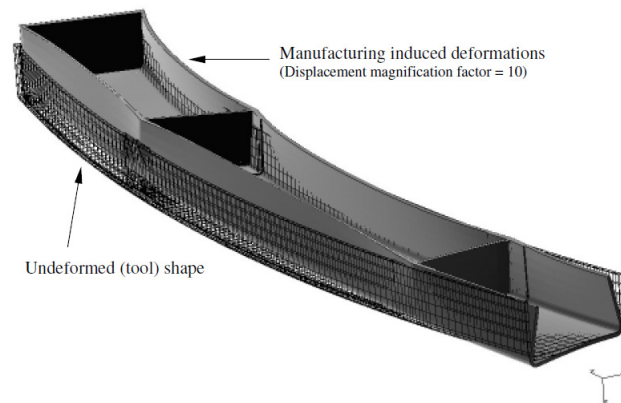


Figure 1.5: Exemple de déformations induites durant la mise en forme d'une pièce composite [11]

Afin d'obtenir une pièce avec les spécificités requises en terme de propriétés mécaniques et de dimensions finales, il est courant d'avoir recours à une méthode d'essai-erreur permettant de déterminer le bon jeu de paramètres procédé. Cette méthode est coûteuse, à la fois en temps, en ressources et en analyse. Il devient alors intéressant, voire nécessaire, de pouvoir prédire le comportement du matériau afin de le prendre en compte lors de la conception et de la fabrication des pièces. Une bonne description du comportement des matériaux composites permet alors de calculer les états mécaniques induits lors de la mise en forme des pièces. L'objectif est, *in fine*, de minimiser les contraintes résiduelles par optimisation de la mise en forme de la pièce, ce qui permet d'améliorer la santé finale de celle-ci.

De nombreuses études s'intéressent aux mécanismes de formation des contraintes résiduelles, à leur observation, leur caractérisation et leur modélisation. Il est extrêmement difficile d'étudier finement et en une seule fois ces contraintes devant le nombre important de causes identifiées [4,6–8,10,12] parmi lesquelles on retrouve la différence de propriétés entre les constituants du matériau, les interactions pièce-outillage, les gradients d'avancement et de température et bien d'autres encore. Certaines causes sont fortement couplées et ont lieu à différentes échelles dans le matériau. Il semble plus prudent d'avancer par étapes et d'investiguer chacune des causes le plus indépendamment possible. A ce titre, les phénomènes de retraits chimique et thermique dans les matériaux composites ont un fort impact dans le développement des contraintes résiduelles et ont fait l'objet de plusieurs études durant les trente dernières années. Leur mesure et leur modélisation posent cependant toujours plusieurs verrous scientifiques et techniques qu'il reste à lever.

## 1.2 VERROUS ET PROBLEMATIQUES

On trouve de nombreuses modélisations du comportement thermo-chémo-mécanique des matériaux composites durant leur mise en forme. Celles-ci sont alimentées par les propriétés du matériau composite (tenseur de rigidité, coefficients de dilatation thermique et de retrait chimique, propriétés thermiques, ...) et leur évolution avec la réaction et la température. Deux solutions sont alors possibles pour déterminer ces propriétés. On peut, à partir des propriétés des différents constituants et de la microstructure, estimer les propriétés équivalentes des plis et remonter ainsi par passages successifs à l'échelle supérieure aux propriétés du matériau. Cela nécessite de caractériser individuellement la

résine et les fibres et d'employer des méthodes d'homogénéisation. L'autre solution est de mesurer directement les propriétés des matériaux composites. De nombreux coefficients sont toutefois nécessaires afin d'alimenter les modèles, notamment pour la matrice de rigidité mécanique du matériau ou son tenseur de conductivité thermique.

Dans un premier temps, on s'intéresse à la mesure des propriétés de la résine ainsi que celles des fibres. Puis, nous verrons quelles sont les méthodes d'estimation des propriétés équivalentes en thermique et en mécanique, ainsi que les modèles de prédiction du comportement du matériau durant sa transformation. Enfin, on s'intéressera à la mesure des propriétés des composites ainsi qu'à la caractérisation des phénomènes de retraits.

## 1.2.1 MESURE DES PROPRIETES DE LA RESINE

### *1.2.1.1 MESURE DES PROPRIETES THERMO-PHYSIQUES DE LA RESINE DURANT SA TRANSFORMATION*

La détermination des propriétés thermo-physiques de la résine durant sa transformation n'est pas le sujet principal de ces travaux. Aussi, nous ne donnerons pas de détails concernant les méthodes de caractérisation de la conductivité thermique, de la masse volumique et de la capacité thermique massique de la résine au cours de sa transformation. Bien que de nombreuses méthodes de caractérisation existent, les plus courantes sont l'utilisation d'un appareil de type DSC afin de déterminer la capacité thermique massique [4,13] et de la plaque chaude gardée [14] pour déterminer la conductivité thermique de la résine au cours de sa transformation. Il est à noter que l'utilisation de la DSC permet également d'étudier la cinétique de réaction de la résine ainsi que l'enthalpie de réaction [4,15]. La masse volumique est obtenue classiquement par pesée de la résine et mesure de l'évolution de son volume au cours de la transformation, ce qui fait l'objet de la section suivante.

### *1.2.1.2 MESURE DES VARIATIONS VOLUMIQUES DE LA RESINE DURANT SA TRANSFORMATION*

La détermination des variations volumiques de la résine au cours de sa transformation a fait l'objet de nombreuses études. On retrouve un large panel des méthodes utilisées pour le retrait chimique dans [16]. Ces méthodes permettent souvent une mesure des coefficients de dilatation thermique de la résine dans les états cru et réticulé. Elles peuvent être scindées en deux catégories: les méthodes non-volumiques et les méthodes volumiques.

Sans trop rentrer dans les détails, la plupart des méthodes non-volumiques ne peuvent s'appliquer qu'à des échantillons partiellement réticulés, car elles nécessitent l'emploi de matériaux pouvant supporter des efforts de traction ou de cisaillement. Leur principal défaut est donc de ne donner qu'une partie de l'information, à partir du point de gel de la résine.

Les méthodes volumiques ont l'avantage de s'appliquer durant tout le cycle de mise en forme de la résine ce qui permet une mesure complète. Parmi celles-ci, on retrouve l'utilisation de dilatomètres volumiques à piston. L'intérêt de ces appareils est de reproduire les conditions industrielles de mise en forme de la résine, à savoir de "hautes" températures et pressions. Ils consistent en une cavité où l'échantillon est placé. Un piston applique une pression autour de l'échantillon, par l'intermédiaire d'un fluide ou d'un matériau élastique se rapprochant d'un fluide. Dans le cas du dispositif PvT $\alpha$  [17–20], l'échantillon est placé dans une capsule en élastomère, dont le module de cisaillement est faible.

### 1.2.1.3 MESURE DES PROPRIETES MECANIQUES DE LA RESINE DURANT LA RETICULATION

Le module de cisaillement et le module de Young de la résine traduisent sa capacité à supporter un effort de cisaillement ou de traction, respectivement. Ces propriétés commencent à se développer à partir du point de gel de la résine et passent d'une valeur quasiment nulle au point de gel à plusieurs MPa, voire GPa. Leur influence sur le comportement du matériau composite est importante car ces modules traduisent la capacité de la résine à transmettre des efforts aux fibres. Le module de compressibilité de la résine caractérise la variation de volume de la résine pour un incrément de pression donné lorsqu'elle est soumise à une pression hydrostatique. Son évolution avec l'avancement de la réaction n'est pas aussi importante que pour le module de cisaillement, mais n'est pas non plus négligeable. Sa valeur caractéristique est de quelques GPa et elle augmente au cours de la réticulation de la résine.

Afin de mesurer le module de cisaillement, il est courant d'utiliser un rhéomètre [21,22] ou un dispositif de type DMA (pour Dynamic Mechanical Analyser) [4,23–26]. Dans leur étude, Suh *et al.* [22] utilisent ainsi un rhéomètre afin de caractériser l'évolution du module de cisaillement d'une résine polyester insaturée. A l'état cru, le module de cisaillement est bien nul et tend vers une valeur de 0.45 MPa à la fin de la transformation. L'utilisation d'un rhéomètre présente de nombreuses limitations. En effet, le couple maximal admissible sur ce type d'appareil est souvent faible devant le module que l'on souhaite mesurer, ce qui rend la mesure impossible à partir d'un certain avancement de la réaction. Yang *et al.* [26] ont utilisé une DMA afin de mesurer l'évolution du module de cisaillement d'une résine époxy au cours de la transformation. Le module mesuré évolue d'une valeur de 0.0 à 4.2 MPa entre l'état cru et l'état réticulé de la résine en l'absence de charges, et de 0.0 à 10.2 MPa en présence de 40% en volume de charges sphériques de verre (Figure 1.6). Ils proposent également un modèle de l'évolution du module de compressibilité de la résine en fonction de l'avancement, mais ne mesurent qu'une valeur de 0.2 GPa de ce module à l'état réticulé en l'absence de charges.

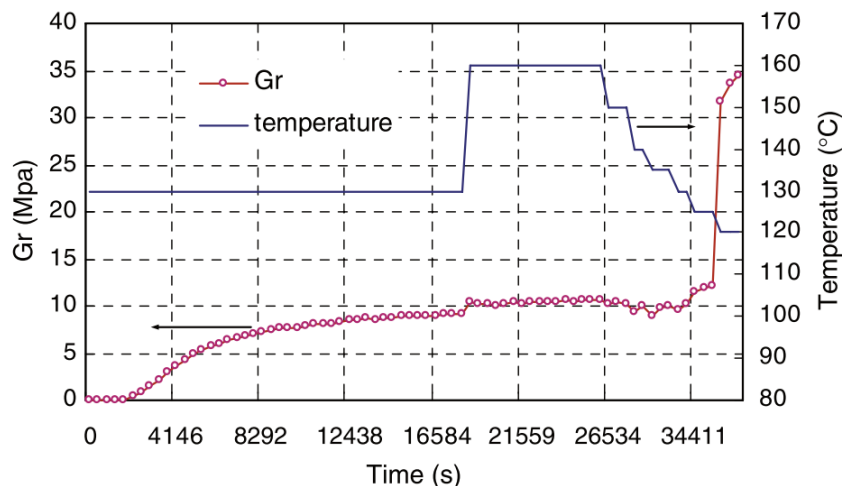


Figure 1.6: Evolution du module de cisaillement de la résine au cours de la transformation [26]

Niwa *et al.* [27] se sont intéressés au développement des propriétés de la résine durant sa transformation à l'aide de capteurs à fibre optique. La température de l'échantillon est contrôlée et peut atteindre 100°C et la pression appliquée est de 0.1 MPa. Deux capteurs à réseaux de Bragg de longueur différente ont été placés dans un échantillon de matériau composite à fibres de carbone et matrice époxy. La différence de réponse entre les deux capteurs est directement liée aux propriétés mécaniques de la résine entourant les capteurs. En couplant leur mesure à une modélisation par

élément finis, il leur a été possible d'identifier l'évolution du module de Young de la résine durant la réticulation. Leurs résultats sont comparés à une mesure effectuée par DMA sur le matériau composite et l'application d'un modèle auto-cohérent afin d'en extraire le module de la résine. Le module de Young de la résine époxy qu'ils étudient évolue alors entre 0.0 et 1.0 GPa au cours de la transformation. Cependant, le nombre d'étape nécessaire à l'estimation de cette propriété étant conséquent, cette méthode souffre des biais de mesure ou d'estimation successifs de ces différentes étapes. La valeur déterminée par DMA est jusqu'à 7 fois plus importante que celle issue de la mesure par capteur à fibre optique durant la transformation.

Plusieurs études [28–30] proposent l'utilisation d'ondes ultrasoniques afin de déterminer le module de cisaillement et le module de compressibilité de résines thermodurcissables durant leur transformation. Ils utilisent à la fois des ondes longitudinales et cisailantes, ce qui permet d'en déduire les deux modules. Ainsi, Lindrose [28] a déterminé les modules d'élasticité d'une résine époxy durant sa transformation, à une température avoisinant 22°C et sous pression atmosphérique. Le module de compressibilité déterminé passe ainsi d'une valeur de 2.46 à 4.54 GPa, et le module de cisaillement de 0.0 à 1.46 GPa, de l'état cru à l'état réticulé respectivement. Il a également observé une relation linéaire entre les deux modules au cours de la transformation, d'où il a émis l'hypothèse que ces deux modules élastiques pouvaient probablement évoluer linéairement avec l'avancement de la réaction. Dans leur étude, Freemantle et Challis [29] se sont intéressés à la caractérisation de différentes résines araldite. Les valeurs des modules à l'état cru n'ont pu être déterminées grâce à leur dispositif, celles à l'état réticulé avoisinent en moyenne 4.5GPa et 1.0GPa pour le module de compressibilité et le module de cisaillement, respectivement. Leur dispositif est capable de réaliser des essais isothermes jusque 70°C sous pression atmosphérique. Dixon *et al.* [30] ont caractérisé trois résines époxy différentes à 22°C et sous pression atmosphérique. Les modules élastiques qu'ils ont identifiés évoluent de 3.0 GPa à 4.9 GPa pour le module de compressibilité et de 0.0 à 1.3 GPa pour le module de cisaillement, de l'état cru à l'état réticulé respectivement. D'autres travaux [31] ont permis de déterminer l'évolution d'un module apparent de la résine au cours de sa réticulation à l'aide d'ondes ultrasoniques. Cependant, aucune distinction n'a été faite entre les ondes longitudinales et cisailantes. Le module apparent est donc composé du module de compressibilité et du module de cisaillement de la résine. Toutes les méthodes employant une mesure par ondes ultrasoniques présentent l'inconvénient majeur d'être limitées à des cycles isothermes tout en limitant au maximum les phénomènes exothermiques. En effet, la propagation des ondes est très sensible aux variations de température. Elles ne sont par conséquent pas adaptées à des résines réactives, comme certaines résines polyesters.

Meng *et al.* [32] ont utilisé un dilatomètre pressurisable afin de mesurer l'effet de la température et de la pression sur le module de compressibilité et le coefficient de dilatation thermique de résines thermoplastiques. La température peut être pilotée entre 35 et 230°C et la pression appliquée est comprise entre la pression atmosphérique et 250 MPa. Dans le cas du polystyrène, les auteurs ont observé que le module de compressibilité augmente linéairement avec la pression et diminue avec la température. A titre d'exemple, ce module a une valeur de 3.0 GPa à une température de 35°C et une pression de 10 MPa, et il diminue pour atteindre 1.5 GPa à 160°C et 10 MPa. Aucune application de ce dispositif à l'étude des résines thermodurcissables n'est présentée dans la littérature.

Aucune des méthodes présentées jusqu'à présent ne permet cependant de caractériser l'avancement de la réaction, et les auteurs ont eu recours à un appareil de type DSC lorsque la cinétique de réaction leur était nécessaire. Récemment, Nawab *et al.* [18] ont utilisé le PvTα afin de déterminer le module de compressibilité de la résine et son évolution au cours de la réticulation. Le dispositif, un dilatomètre volumique à piston, est présenté dans la section suivante. La pression appliquée à l'échantillon est comprise entre 0.75 et 6.0 MPa, et le cycle de température est compris entre 25 et 180°C. Ils ont étudié

une résine vinyloxy et déterminé une évolution faiblement non-linéaire du module de compressibilité avec l'avancement de la réaction, celui-ci passant d'une valeur de 0.25 GPa à 2.5 GPa, de l'état cru à l'état réticulé, respectivement. L'analyse des résultats expérimentaux est réalisée à l'aide d'une méthode directe, c'est à dire qu'elle ne nécessite que les données issues des différents capteurs. La présence possible de gradients de température et d'avancement au sein de l'échantillon n'est donc pas prise en compte, mais peut avoir un impact non négligeable sur l'obtention des résultats.

Au vu des différentes méthodes de caractérisation des propriétés mécaniques de la résine au cours de la transformation, il semble que l'utilisation d'un appareil de type DMA soit une méthode courante de détermination du module de cisaillement de la résine. En ce qui concerne la mesure du module de compressibilité de la résine au cours de sa transformation, la multiplicité des méthodes indique qu'il n'y a pas de consensus et que la mesure de cette propriété fait toujours l'objet d'études et de développements. Une méthode précise de caractérisation de ce module, dans des conditions proches de celles rencontrées industriellement, *i.e.* une plage de température allant de 20 à 200°C et une pression pouvant atteindre 1.0 MPa, prenant en compte l'état thermique et chimique de l'échantillon est nécessaire. L'utilisation du dispositif PvT $\alpha$  semble remplir ces différents critères, mais la méthode de détermination du module de compressibilité ne prend pas en compte les possibles gradients de température et d'avancement au sein de l'échantillon. Une question vient alors: est-il possible de mesurer directement et précisément le module de compressibilité de la résine au cours de sa transformation?

#### 1.2.1.4 LE DISPOSITIF PvT $\alpha$

Le PvT $\alpha$  (Figure 1.7) est un outil de caractérisation multifonctionnel, permettant l'étude de résines thermodurcissables et des matériaux composites associés. Il s'agit d'un dilatomètre volumique à piston, permettant la mesure simultanée du volume de l'échantillon, la densité de flux échangée entre l'échantillon et le moule (et donc l'avancement de la réaction par intégration), et la température en surface de l'échantillon, lorsque celui-ci est soumis à une pression fixée.

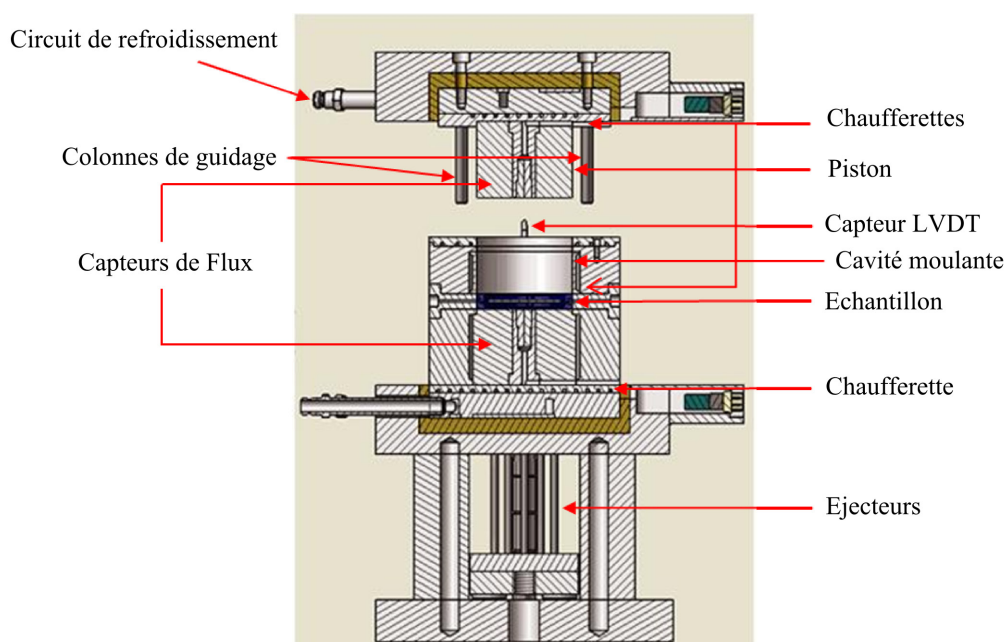


Figure 1.7: Vue en coupe du dispositif PvT $\alpha$

L'échantillon est contenu dans une capsule en élastomère dont le module de cisaillement est faible. Cette capsule est considérée comme un solide incompressible, la pression appliquée est donc considérée comme parfaitement transmise à l'échantillon. Plus de détails concernant ce dispositif sont donnés dans le Chapitre 2.

Afin d'analyser les mesures, plusieurs modélisations du dispositif ont été réalisées. Ainsi, un algorithme inverse [33] permet d'avoir accès aux densités de flux sortant de l'échantillon et se basent sur un modèle 1D des transferts thermiques. Lors des premiers développements du dispositif, Millischer [34] a proposé une modélisation thermo-chimique et mécanique simple du comportement de l'échantillon, dans le cas de l'étude d'un BMC (pour Bulk Molding Compound). Le modèle thermo-chimique couplé est basé sur l'équation de la chaleur en 1D à travers l'épaisseur de l'échantillon. Le modèle mécanique se base sur les effets purement volumiques dans l'échantillon. Dans ses travaux, Aduriz [35] a utilisé le même modèle thermo-chimique couplé. La modélisation mécanique qu'il a mise en place ne prend également que les effets volumiques et traite ce problème en 0D. Agazzi [36] et Tardif [37] proposent quant à eux un nouveau modèle thermo-chémo-mécanique basé sur la méthode des volumes finis. L'échantillon est discrétisé à l'aide de mailles cylindriques de masse constante. Les transferts thermiques se font toujours en 1D à travers l'épaisseur de l'échantillon. Ils appliquent cette méthode à l'identification de propriétés thermo-physiques de résines thermoplastiques. En utilisant la même méthode, Nawab [38] estime les gradients de température et d'avancement à travers l'épaisseur de l'échantillon afin d'affiner l'estimation du retrait volumique de résines thermodurcissables et des composites associés [19].

De manière générale, les modélisations déjà entreprises permettent de prendre en compte les gradients de température et d'avancement dans l'échantillon et ainsi analyser plus finement les données expérimentales. Elles se basent sur une description du problème de thermique en 1D à travers l'épaisseur de l'échantillon. Cette description a été validée grâce à de multiples essais de caractérisation. Dans toutes les études réalisées sur ce dispositif [18–20,35–38], la capsule élastomère, contenant l'échantillon, a toujours été considérée comme un solide dont le comportement mécanique se rapproche d'un fluide quasi-incompressible. Cela permet de dépouiller facilement les essais. Or, comme tout matériau, le silicone composant la capsule est compressible. Son module de cisaillement est faible, certes, mais il n'est pas incompressible. On peut donc se demander si le comportement mécanique de la capsule a un impact sur les résultats et leur interprétation. Par conséquent, la méthode de mesure directe du module de compressibilité décrite dans [18] peut également être influencée par le comportement de la capsule.

### 1.2.2 MESURE DES PROPRIETES DES FIBRES

Bien que n'étant pas le cœur du sujet de ces travaux, la mesure des propriétés des fibres est essentielle à l'estimation des propriétés équivalentes des matériaux composites. Aussi, nous ne développerons pas cette section en détails mais aborderons quelques méthodes de mesure des propriétés des fibres. Ces propriétés sont souvent considérées comme constantes sur la plage de température que l'on retrouve dans l'étude des matériaux à résine thermodurcissable, c'est à dire de la température ambiante à environ 250°C. Aucune réaction chimique n'intervient au sein des fibres sur cette gamme de température, elles sont donc chimiquement inertes. Par conséquent, l'étude des fibres semble plus simple que celle de la résine car elle peut se ramener à une mesure à température ambiante pour chacune des propriétés. Néanmoins, certaines fibres telles que les fibres de carbone ou d'aramide ont un comportement isotrope transverse, et la mesure des propriétés dans la direction transverse est parfois difficile du fait du rayon micrométrique de ces fibres.

La section des fibres et ses dimensions sont généralement étudiées par microscopie [39], que ce soit la microscopie optique ou la microscopie électronique à balayage. Afin de déterminer la masse volumique des fibres à température ambiante, différentes méthodes de pesée sont proposées et normalisées [40–42]. Pour prédire les dilatations thermiques des fibres au cours de la mise en forme des matériaux composites, il est nécessaire de connaître leur coefficient de dilatation thermique. Lors de l'étude de matériaux isotropes et lorsque la structure des fibres est la même que le matériau massif, ce qui est le cas des fibres de verre, l'emploi d'un dilatomètre linéaire est une méthode normalisée de détermination du coefficient linéaire de dilatation thermique [43]. Lorsque les fibres présentent un comportement isotrope transverse et que le matériau massif n'est plus représentatif des fibres, l'estimation des composantes du tenseur de dilatations thermiques requiert des techniques plus fines. On retrouve à la fois des méthodes de mesure directes de ces composantes [44] et des méthodes indirectes [45], faisant intervenir une méthode inverse d'estimation des coefficients.

Parmi les propriétés thermophysiques des fibres indispensables à l'estimation des propriétés des composites qui nous intéressent, la capacité thermique massique des fibres peut être déterminée à l'aide d'un dispositif de type DSC. La détermination du tenseur de conductivité des fibres requiert, tout comme pour le tenseur de coefficient de dilatation thermique, différentes méthodes suivant que le matériau est isotrope ou non. Pour des matériaux isotropes tels que le verre, l'emploi des méthodes normalisées de la plaque chaude gardée [46] ou de la DSC modulée [47] sont envisageables. Encore une fois, lorsque la conductivité du matériau est isotrope transverse et que le matériau massif n'est plus représentatif des fibres, les méthodes normalisées présentées précédemment ne peuvent plus être utilisées. Des méthodes spécifiques permettent de déterminer les composantes du tenseur de conductivité à l'échelle de la fibre. Piraux *et al.* [48] proposent, par exemple, l'emploi d'un potentiomètre thermique afin de mesurer la conductivité longitudinale de fibres de diamètre micrométrique. Son principe se résume en l'application d'un gradient de température à la fibre et la mesure de sa réponse thermique en régime permanent. Cette méthode nécessite de parfaitement maîtriser l'état thermique de la fibre étudiée et de tout le système situé autour de cette fibre. D'autres méthodes ont été développées durant ces vingt dernières années, parmi lesquelles on retrouve la méthode du fil chaud [49], celle dite des  $3\omega$  [50], la méthode Angström [51] ou encore une méthode sans contact développée par Pradere *et al.* [52]. La grande diversité des méthodes proposées pour déterminer les composantes du tenseur de conductivité des fibres est due à la difficulté de réaliser une mesure précise à une échelle aussi petite. On retrouve ces mêmes problèmes dans l'étude des propriétés mécaniques des fibres.

Afin de prédire les retraits dans les matériaux composites, il est essentiel de connaître les propriétés mécaniques des fibres, et notamment les composantes du tenseur de rigidité élastique de celles-ci. Lorsque les fibres ont un comportement mécanique isotrope, seules deux grandeurs sont nécessaires pour alimenter le tenseur de rigidité élastique de la fibre. Le module de Young dans la direction longitudinale des fibres peut être déterminé par essai de traction sur une fibre seule. Cette méthode est normalisée [53,54]. Pour déterminer le second coefficient, on peut avoir recours à un essai de torsion sur fibre seule [55] afin de mesurer le module de cisaillement de la fibre. Lorsque le comportement de la fibre est isotrope transverse, il faut déterminer 5 grandeurs afin d'alimenter complètement le tenseur de rigidité élastique de la fibre. Pour ce faire, et en plus des méthodes précédemment citées, un essai de compression transverse [56–59] permet l'identification du module d'élasticité transverse de la fibre. En combinant à la fois essai de traction dans la direction longitudinale et essai de compression dans la direction transverse, il est possible de déterminer le coefficient de Poisson longitudinal de la fibre [58,60]. Une dernière méthode, proposée par Kawabata, permet de déterminer le coefficient de Poisson transverse aux fibres [55]. Il est ainsi théoriquement possible de caractériser l'ensemble des

grandeurs nécessaires à l'alimentation de la matrice de rigidité élastique des fibres. Cependant, un nombre conséquent d'essais est nécessaire et demande l'emploi de différents dispositifs. Ces différents dispositifs requièrent une précision élevée afin de mesurer des déformations de l'ordre du dixième de micron, ce qui n'est pas toujours chose aisée.

### 1.2.3 ESTIMATION DES PROPRIETES EQUIVALENTES DU MATERIAU COMPOSITE

Lorsque les propriétés de la résine et des fibres sont connues, soit à l'aide des méthodes de caractérisation présentées précédemment, soit à partir des données du fabricant, il est possible de déterminer les propriétés thermiques et mécaniques équivalentes du matériau composite. Un large éventail de méthodes existe, celles-ci étant plus ou moins précises. Elles permettent de déterminer les propriétés d'un matériau homogène dont le comportement global serait le même que celui du matériau hétérogène (Figure 1.8). De ce fait, on les appelle méthodes d'homogénéisation.

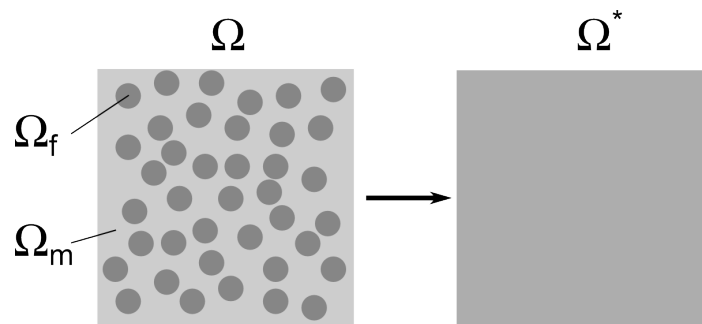


Figure 1.8: Principe de l'homogénéisation

#### 1.2.3.1 ENCADREMENT DES PROPRIETES EFFECTIVES A L'AIDE DE BORNES

Une première estimation peut être faite à l'aide de bornes d'encadrement. Elles donnent une plage des propriétés effectives à partir des propriétés des différents constituants et se basent sur des principes énergétiques. On retrouve ainsi les bornes de Voigt et Reuss [61,62], de Hashin-Shtrikman [63] quand le matériau peut être considéré comme isotrope, et bien d'autres encore. Elles ne prennent cependant en compte que les propriétés des constituants, leurs taux volumiques respectifs et quelques hypothèses simples sur la géométrie de la structure. A titre d'exemple, l'influence du taux de fibre sur la conductivité effective estimée par les bornes de Voigt, Reuss, Hashin-Shtrikman inférieure (HS-) et supérieure (HS+) est représentée en Figure 1.9. Le matériau est composé d'une matrice de conductivité égale à  $0.2 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et de fibres dont la conductivité est de  $1.0 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  ou de  $10.0 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ .

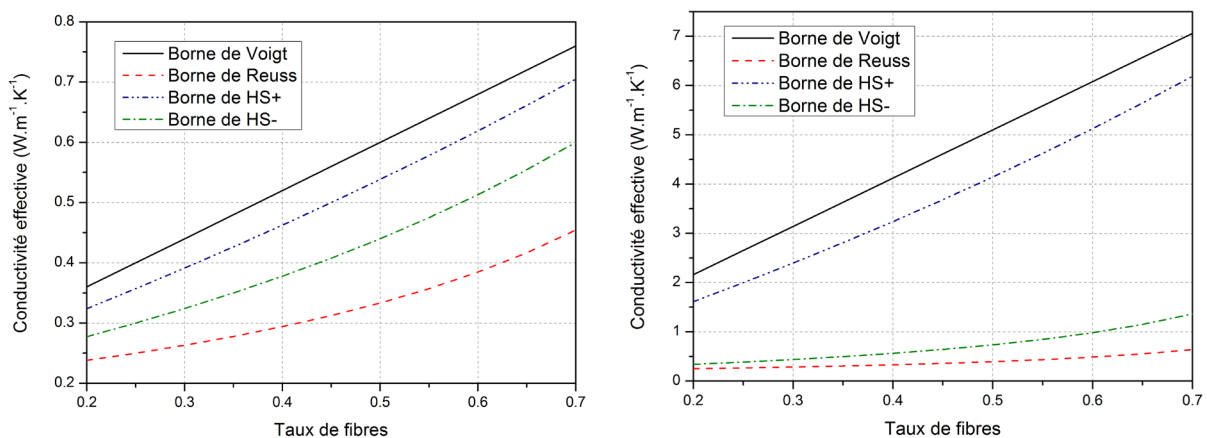


Figure 1.9: Conductivité équivalente pour une conductivité de fibre à  $1.0 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  (à gauche) et à  $10.0 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  (à droite)

A un taux de fibres fixé, on remarque alors que plus le contraste de propriétés entre les constituants est élevé et plus l'encadrement proposé par les bornes supérieures et inférieures est étendu. Ces bornes permettent d'obtenir une première approximation des propriétés effectives mais ne donnent malheureusement pas une valeur précise de celles-ci. Lorsque la structure fibreuse peut être idéalisée à l'aide de formes géométriques simples (sphères parfaites, cylindres, ...), ces méthodes pourront donner une valeur approchée des propriétés effectives. Elles ne seront généralement plus adaptées à l'étude de renforts à structure complexe, comme des matériaux tissés ou orientés aléatoirement dans l'espace. De plus, elles ne permettent pas de prendre en compte les possibles interactions entre fibres à l'échelle du volume élémentaire représentatif, qui peuvent avoir une grande influence sur les propriétés effectives.

### *1.2.3.2 APPROCHES AUTO-COHERENTES*

Lorsque la structure du matériau s'y prête, il est possible d'utiliser des approches auto-cohérentes développées à partir des théories de Kröner [64] et d'Eshelby [65]. Ces méthodes permettent le calcul de propriétés équivalentes d'un milieu continu (la matrice) contenant des inclusions cylindriques à surface elliptique (les fibres) ou sphériques (dans le cas de charges, par exemple). Elles ont fait leurs preuves dans l'étude de laminés UD à la fois en thermique pour estimer les conductivités thermiques [66,67] et en mécanique pour déterminer les tenseurs de rigidité [68,69]. Tout comme pour les bornes d'encadrement, ces méthodes sont appliquées à des structures idéalisées et simples, qui ne sont pas toujours représentatives des structures réelles.

### *1.2.3.3 APPROCHES POUR LES STRUCTURES COMPLEXES OU ALEATOIRES*

Lorsque la structure est complexe, les deux premières techniques ne peuvent s'appliquer ou donneront une valeur approchée des propriétés recherchées. Pour des structures aléatoires, les méthodes de prise de moyenne [70–72] permettent d'obtenir un comportement global du matériau en se basant sur un volume élémentaire représentatif (VER) du matériau hétérogène. A partir de ce VER, il est également possible d'appliquer les méthodes dites "Unit Cell" ou "Embedded Cell" [73]. La première méthode a d'abord été développée pour des inclusions se répétant périodiquement dans l'espace, puis a été adaptée en considérant des inclusions décentrées, multiples ou distribuées dans les trois dimensions de l'espace. Cette méthode numérique consiste à appliquer un gradient de température ou de déplacement à deux faces opposées du VER, à intégrer la densité de flux ou la contrainte sur les surfaces considérées et à déduire la conductivité thermique ou la rigidité mécanique associée à cette direction.

Avec la méthode "Embedded Cell", on place le VER au sein du milieu homogène équivalent dont on cherche les propriétés. Cette méthode est donc auto-cohérente car les hétérogénéités "voient" le milieu homogène présent autour d'elles. Le gradient de température ou de déplacement est alors appliqué sur le milieu homogène et on moyenne les densités de flux ou la contrainte autour du VER. On obtient alors une première estimation des propriétés homogènes équivalentes qui sont réinjectées dans le milieu homogène. Ce procédé est réitéré jusqu'à convergence des propriétés équivalentes. Il possède l'avantage de limiter l'influence des effets de bord autour du VER, qui pourraient altérer les propriétés équivalentes comme dans la méthode "Unit Cell".

La difficulté majeure de ces méthodes réside dans la détermination du VER. Celui-ci ne doit pas être trop petit, sans quoi les hétérogénéités se feraient trop ressentir dans l'estimation des propriétés équivalentes, ni trop grand pour ne pas alourdir les temps de calcul. De plus, le VER dépend de la propriété que l'on souhaite identifier, et le VER adapté à l'estimation du tenseur de conductivité thermique équivalente ne sera peut être pas le même que celui pour le tenseur de rigidité effective. Lorsque l'étude est réalisée sur un problème en deux dimensions, les calculs et la détermination du

VER peuvent être rapidement réalisés. L'étude d'un problème en trois dimensions alourdira considérablement les temps de calculs.

#### 1.2.3.4 APPROCHES POUR LES STRUCTURES PERIODIQUES

Enfin, lorsque la structure est périodique, ce qui peut être le cas dans les matériaux composites, il existe d'autres méthodes permettant d'avoir accès aux propriétés équivalentes du matériau. Le VER se limite alors à la cellule périodique. On retrouve une approche similaire à la méthode "Unit Cell" appliquée à l'estimation des propriétés mécaniques et thermiques de matériaux composites tissés dans le programme TEXCAD [74–76], mais basée sur un VER périodique.

La périodicité du VER dans le matériau hétérogène permet également d'utiliser la méthode des développements asymptotiques [77–79]. Ces méthodes se basent sur un formalisme théorique permettant d'étudier l'influence d'une petite perturbation  $\varepsilon$  sur la solution d'une équation aux dérivées partielles. Elles s'adaptent donc très bien à l'étude des problèmes de transferts de chaleur ou d'équilibre mécanique. Dans notre cas, la cellule périodique devient la petite perturbation à l'échelle macroscopique de la pièce. Le paramètre  $\varepsilon$  représente alors la séparation des échelles entre l'échelle microscopique de la cellule périodique et l'échelle macroscopique (Figure 1.10).

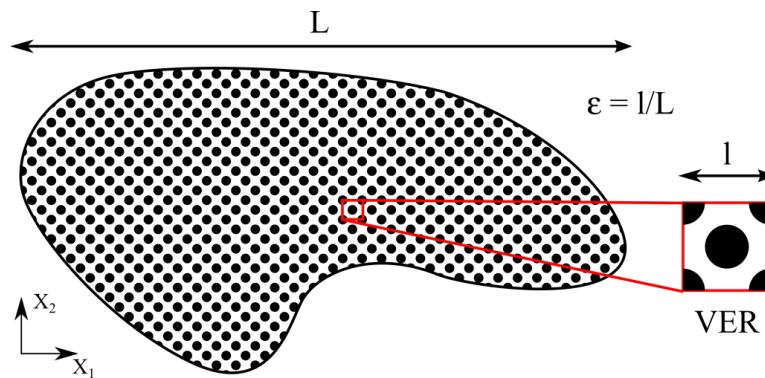


Figure 1.10: Séparation des échelles dans la méthode des développements asymptotiques

La méthode des développements asymptotiques présente de multiples avantages comparée aux autres méthodes. Elle est auto-consistante, ce qui signifie qu'elle ne pourra être appliquée que si le problème est homogénéisable. Elle est basée sur une description du problème à l'échelle microscopique, aucune hypothèse n'est faite quant au comportement du matériau à l'échelle macroscopique. Elle est indépendante des conditions aux limites appliquées au problème à l'échelle macroscopique. Enfin elle permet, lorsque le problème est homogénéisable, d'obtenir à la fois les propriétés du matériau homogène équivalent et la description de la physique à l'échelle macroscopique. Cette méthode possède tout de même des inconvénients, le premier étant de n'être applicable qu'à des structures périodiques. Bien souvent, les structures réelles sont donc idéalisées et simplifiées afin d'appliquer l'homogénéisation par développements asymptotiques. Son utilisation afin d'étudier des problèmes nouveaux est, d'après certains auteurs, parfois difficile à mettre en place [80], notamment comparée aux méthodes de prise de moyenne.

Cette méthode a néanmoins été largement employée dans l'étude des transferts thermiques par conduction dans les matériaux composites, à la fois en régimes permanent et transitoire. L'influence du déséquilibre des propriétés entre les constituants a été traité [62], de même que la prise en compte de résistances thermiques d'interface entre les constituants [81]. L'étude de la transformation des matériaux composites a été moins abordé et seules quelques récentes études [82–84] traitent du couplage thermo-chimique durant la mise en forme des matériaux composites. Ces travaux considèrent

que le problème est homogénéisable dès le départ et prouvent la convergence de la description homogénéisée vers la solution hétérogène lorsque la séparation d'échelle tend vers une valeur infinie. Il serait intéressant de déterminer quels sont les critères à vérifier afin que le problème soit homogénéisable.

L'homogénéisation par développements asymptotiques a également été employée en mécanique et en thermomécanique afin de déterminer les propriétés mécaniques et les coefficients de dilatation thermique équivalents du matériau composite à partir des propriétés des fibres et de la résine [85–87]. Ces méthodes restent néanmoins appliquées aux propriétés finales du matériau et ne s'intéressent pas à l'évolution des propriétés de la matrice durant la transformation, ni à l'estimation des retraits chimiques anisotropes dans le matériau. Là encore, des développements seraient à effectuer afin d'estimer les tenseurs de retrait chimique dans les matériaux composites durant leur mise en forme.

## 1.2.4 MODELISATION DES PHENOMENES DE RETRAITS

Lorsque les propriétés équivalentes du matériau composite ont été déterminées, elles peuvent être implantées dans un modèle de prédiction du comportement du matériau durant sa transformation. Les retraits à l'échelle du matériau composite sont régis par les états thermique, chimique et mécanique du matériau. Il convient donc de traiter ces différents problèmes afin d'obtenir une description complète de ces phénomènes de retraits. Différentes approches ont été développées en ce sens.

### 1.2.4.1 APPROCHES THERMO-ELASTIQUES

Historiquement, les premiers modèles développés [88] ne prenaient en compte que les contributions mécanique et thermique dans le calcul des déformations d'un matériau. Ces modèles thermo-élastiques ont fait l'objet de nombreuses études du refroidissement de pièces en composite afin de prédire leurs formes finales [88–91]. Ils sont décrits par la loi de comportement (1.2).

$$\boldsymbol{\sigma} = \mathbf{D}(\boldsymbol{\varepsilon} - \boldsymbol{\alpha}\Delta T), \quad (1.2)$$

où  $\boldsymbol{\sigma}$  est le tenseur des contraintes,  $\mathbf{D}$  est le tenseur de rigidité élastique,  $\boldsymbol{\varepsilon}$  est le tenseur des déformations,  $\boldsymbol{\alpha}$  est le tenseur de dilatation thermique et  $\Delta T$  est la différence de température avec la température de référence. Ces différents modèles se basent sur la théorie des plaques afin de décrire le comportement de laminés unidirectionnels.

Une modification de ces modèles permet de prendre en compte le développement des propriétés mécaniques de la résine durant la transformation du matériau [92,93]. Ceux-ci sont utilisés dans la simulation de la mise en forme de matériaux SMC (Sheet Molding Compound) à l'aide de la méthode des éléments finis. Ces différents travaux considèrent que la majeure partie des déformations est d'origine thermique et que, le retrait de la résine ayant lieu en grande partie lorsque celle-ci est à l'état cru, il peut être négligé dans la modélisation du comportement du matériau car la résine est alors incapable de transmettre le moindre effort aux fibres.

Cette hypothèse posée est très forte et questionnable. En effet, la résine est capable de transmettre des efforts aux fibres dès lors que ses propriétés mécaniques sont suffisantes. Or, celles-ci se développent à partir du point de gel de la matrice. Ce point de gel a généralement lieu vers 5~10% d'avancement pour les résines polyester et vers environ 50% d'avancement pour les résines époxy. Une partie non négligeable du retrait a donc lieu après le point de gel et est donc négligée par les modèles décrits plus tôt. Ces développements sont donc limités et la prise en compte du retrait semble inévitable.

1.2.4.2 APPROCHES THERMO-CHEMO-ELASTIQUES

Kim et Hahn [94] ont démontré l'importance de la prise en compte des retraits chimiques lors de l'analyse du comportement du matériau pendant la transformation. Par la suite, plusieurs auteurs [95–97] ont développé une approche thermo-chémo-visco-élastique en prenant en compte à la fois le retrait chimique et le développement des propriétés mécaniques du matériau au cours de la réaction. Ce modèle est traduit par la loi de comportement donnée en équation (1.3).

$$\sigma(t) = \int_{-\infty}^t \mathbf{D}(\tau)(\epsilon(\tau) - \tilde{\epsilon}(\tau))d\tau, \tag{1.3}$$

avec  $\tilde{\epsilon} = \alpha\Delta T + \beta\Delta x$ ,

où  $t$  est le temps,  $\beta$  est le tenseur de coefficients de retrait chimique et  $\Delta x$  la différence d'avancement avec l'avancement de référence.

Bogetti et Gillespie [1] ont développé un modèle basé sur une forme incrémentale de la théorie des plaques afin de calculer les dilatations thermiques et les retraits chimiques de laminés UD. L'état thermo-chimique de la matière est modélisé à l'aide d'un modèle 1D à travers l'épaisseur de la pièce et à propriétés thermo-physiques constantes. Les propriétés mécaniques de la résine dépendent de l'avancement de la réaction et les propriétés équivalentes du matériau sont déterminées à l'aide d'un modèle auto-cohérent. Cette approche se révèle malheureusement lourde en temps de calcul et en utilisation de mémoire et donc non adaptée à l'étude de cas concrets de grande échelle. De plus, les propriétés thermo-physiques du matériau varient généralement avec l'avancement de la réaction et la température, ce qui n'est pas pris en compte dans ce modèle.

Une approche différente est employée par Huang *et al.* [98] afin de modéliser le comportement de tissés. Le modèle employé est un modèle thermo-chémo-élastique dont l'équilibre est résolu à l'aide de la méthode des éléments finis. Les propriétés du composite dépendent encore de l'avancement mais sont calculées en deux étapes. Dans un premier temps, l'approche de Hill [99] permet de déterminer les propriétés d'une fibre entourée de résine et, par la suite, les propriétés équivalentes du VER du tissé sont obtenues à l'aide du programme TEXCAD [74,75] (Figure 1.11 a). Le modèle thermo-chimique repose sur une description en 2D des transferts thermiques et de l'avancement de la réaction. Ils modélisent la réticulation d'une plaque d'un pouce d'épaisseur (Figure 1.11 b), en prenant en compte l'interaction avec un moule en aluminium. La prise en compte des gradients de température et d'avancement leur a permis d'obtenir une pièce courbée en partant d'un empilement symétrique (Figure 1.11 c).

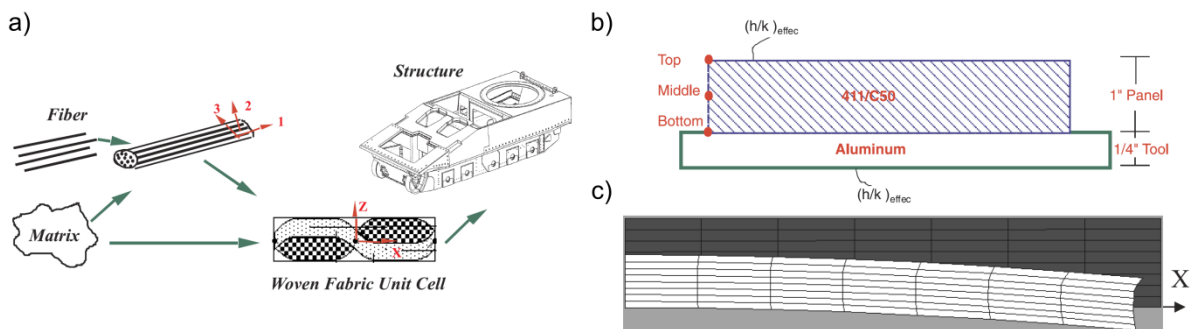


Figure 1.11: Modélisation des retraits dans un matériau tissé [98]. a) Prédiction des propriétés. b) Modélisation du problème résolu. c) Forme initiale (gris) et finale (blanc) de la pièce.

Svanberg et Holmberg [10,100] ont développé un modèle thermo-chémo-visco-élastique simplifié et sous forme incrémentale. Le comportement du matériau tel que décrit par leur modèle dépend alors de l'historique thermo-chémo-mécanique. Les propriétés des matériaux sont soit mesurées, soit estimées ou alors issues d'un modèle auto-cohérent. Les propriétés mécaniques de la résine varient avec l'avancement de la réaction alors que les propriétés thermiques sont constantes. Bien que présentant un avantage non négligeable en terme d'économie de temps de calcul comparé à l'approche de Bogetti et Gillespie [1], cette méthode s'avère moins précise dans la description du comportement du matériau. Ils ne considèrent pas non plus la dépendance à l'avancement de la réaction et à la température des propriétés thermo-physiques du matériau.

Une modification du modèle développé dans [1] est proposée par Ruiz et Trochu [25] afin de prédire le comportement thermo-chémo-élastique de pièces fines ou épaisses. Les propriétés thermiques et les coefficients de dilatation thermique effectifs sont obtenus par loi des mélanges, les propriétés mécaniques du composite à l'aide d'un modèle empirique ajusté à des données expérimentales mesurées par DTMA et le retrait chimique est considéré comme isotrope. Néanmoins, la dépendance des propriétés thermiques à l'avancement de la réaction ne sont pas considérées.

Dans leurs travaux [69], Abou Msallem *et al.* utilisent une description thermo-chémo-élastique (1.4) basée sur la théorie des plaques afin de décrire le comportement de laminés UD durant leur transformation. La description thermo-chimique est réalisée à l'aide d'un modèle des transferts de chaleur par conduction et un modèle de Bailleul [101] pour la cinétique de réaction. Les propriétés thermiques sont thermodépendantes et calculées à l'aide de lois des mélanges [4]. Les propriétés mécaniques de la résine sont mesurées à l'aide d'un DTMA et dépendent de l'avancement de la réaction. Enfin, les propriétés mécaniques, thermo-mécaniques et chémo-mécaniques sont déterminées à l'aide d'une approche auto-cohérente.

$$\boldsymbol{\sigma} = \mathbf{D}(T, x)(\boldsymbol{\varepsilon} - \boldsymbol{\alpha}(T, x)\Delta T - \boldsymbol{\beta}(T, x)\Delta x), \quad (1.4)$$

Les développements précédents considéraient une approche linéaire entre les déformations et les déplacements. Or, cette hypothèse n'est pas vérifiée dès lors que l'on étudie des pièces dont l'épaisseur est faible devant les autres dimensions. Nawab *et al.* [68] introduisent les non-linéarités des déformations afin de mieux décrire le comportement du matériau. Les propriétés sont calculées de la même façon que dans [69]. Ils font l'hypothèse que, l'épaisseur des pièces étudiées étant faible, la température et l'avancement de la réaction sont homogènes à travers l'épaisseur de la pièce. Leur étude ne prend donc pas en compte les possibles gradients thermiques ou chimiques pouvant avoir lieu durant la transformation. De plus, ils découplent le cycle de mise en forme en trois phases. La première phase est celle de montée en température, durant laquelle la résine est toujours à l'état liquide et ne transmet donc pas d'efforts aux fibres. Durant le palier isotherme, la réaction a lieu, entraînant la solidification de la résine ainsi que son retrait. Enfin, la phase de refroidissement s'intéresse au retrait thermique du matériau. La continuité entre ces deux dernières phases n'est pas assurée et pose la question de la relaxation des possibles contraintes résiduelles durant la mise en forme de la pièce.

Ces multiples modèles se basent généralement sur une description à l'échelle macroscopique de phénomènes ayant lieu aux différentes échelles du matériau. De plus, tous sont alimentés à l'aide de propriétés mesurées, calculées par loi des mélanges ou à l'aide de modèles empiriques, approchées à l'aide de bornes, ou calculées via une approche auto-cohérente ou "Unit Cell". Ces différents travaux mettent donc en œuvre deux voire plusieurs méthodes afin d'obtenir d'une part les propriétés équivalentes du matériau et d'autre part, décrire son comportement à l'échelle macroscopique.

L'utilisation de la méthode d'homogénéisation par développements asymptotiques se prêterait bien à l'étude de la physique de mise en forme des matériaux composites. Comme annoncé dans la section précédente, elle dispose de nombreux avantages et notamment celui de partir d'une description locale de l'interaction entre les constituants pour déterminer un comportement global sans aucune hypothèse sur celui-ci. Elle a déjà fait l'objet d'études dans le cadre de la thermo-mécanique [85–87] mais une seule étude fait référence à l'homogénéisation d'un modèle thermo-chémo-mécanique de mise en forme des composites [102]. Cette étude porte sur la convergence du procédé d'homogénéisation vers la solution hétérogène et aucune application concrète n'en est faite. Il serait donc intéressant d'appliquer cette méthode à la prédiction des phénomènes de retraits dans les matériaux composites durant leur mise en forme.

### 1.2.5 MESURE DES PROPRIETES DU MATERIAU COMPOSITE

Afin d'alimenter les modèles présentés précédemment, de nombreuses propriétés sont nécessaires et peuvent être obtenues soit par homogénéisation des propriétés des constituants, soit par une mesure directe. Ce deuxième point fait l'objet de cette section. La mise en place du modèle thermo-chimique nécessite la connaissance du tenseur de conductivité thermique du matériau  $\mathbf{K}$ , de sa capacité thermique  $\rho C_p$ , de l'enthalpie de réaction  $\Delta H_r$  et de la cinétique de la résine. Les propriétés thermiques dépendent généralement de l'avancement de la réaction et de la température, ce qu'il faut également caractériser. Le modèle thermo-chémo-mécanique a, dans le cas le plus simple de l'élasticité linéaire, besoin du tenseur de rigidité mécanique du matériau  $\mathbf{D}$ , des tenseurs de dilatation thermique  $\boldsymbol{\alpha}$  et de retraits chimiques  $\boldsymbol{\beta}$ , le tout en fonction de l'avancement de la réaction et de la température.

Lorsque le matériau est anisotrope, le tenseur de conductivité  $\mathbf{K}$  comporte 6 termes indépendants, le tenseur de rigidité  $\mathbf{D}$ , 21, les tenseurs de dilatation thermique  $\boldsymbol{\alpha}$  et de retrait  $\boldsymbol{\beta}$  chimique 6 chacun, ce qui fait un total de 39 coefficients indépendants à identifier. Dans le cas d'un matériau isotrope transverse tel qu'un matériau unidirectionnel idéalisé, les termes indépendants pour ces mêmes tenseurs sont au nombre de 2, 5, 2 et 2, respectivement, soit un total de 11 propriétés indépendantes.

Le nombre de valeurs à déterminer est toutefois conséquent et on comprend pourquoi, dans de nombreuses études, les auteurs préfèrent avoir recours à une méthode d'homogénéisation afin de déterminer les propriétés équivalentes du matériau à partir de celles des constituants. Leur mesure reste cependant nécessaire à la validation des modèles d'homogénéisation ainsi qu'à la compréhension des phénomènes réels ayant lieu durant la mise en forme des matériaux composites.

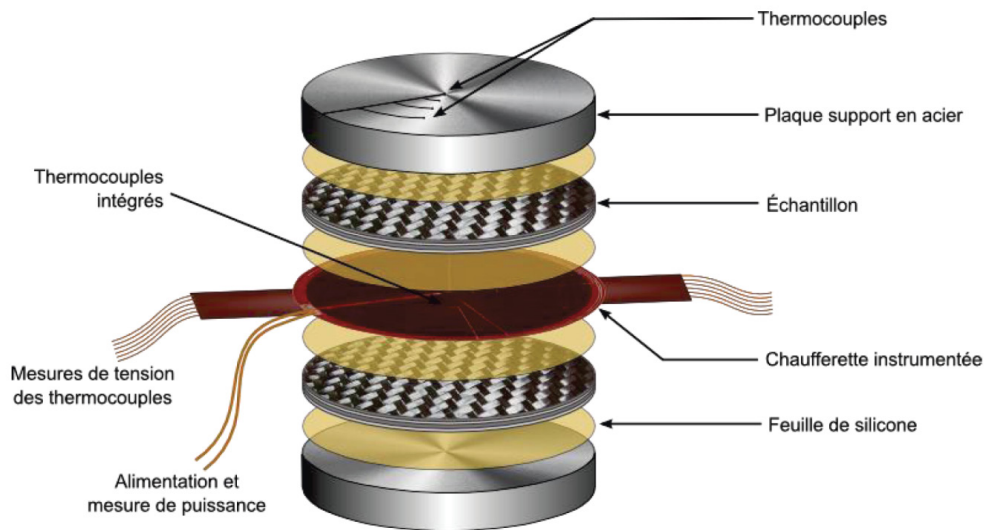
#### 1.2.5.1 MESURE DES PROPRIETES THERMIQUES

Bien que la mesure des propriétés thermiques des matériaux composites ne soit pas le sujet majeur de ces travaux, il est tout de même important de rappeler quelles sont les techniques permettant de les déterminer.

Il existe plusieurs méthodes permettant d'identifier les composantes du tenseur de conductivité d'un matériau anisotrope [103,104]. Citons en premier lieu la plaque chaude gardée [46], qui est une méthode normalisée de mesure de la conductivité transverse d'un matériau. Cette méthode consiste à dissiper un flux  $\varphi$  à travers l'épaisseur  $e$  de l'échantillon considéré, de surface  $S$ , et de mesurer la différence de température de part et d'autre de l'épaisseur de l'échantillon ( $T_1-T_2$ ). Il est possible en ayant ces différentes informations de calculer la conductivité transverse  $\lambda$  du matériau (Eq. (1.5)).

$$\lambda = \frac{\varphi e}{S} (T_1 - T_2) \quad (1.5)$$

Une seconde méthode originale [103,104] permet la caractérisation des différentes composantes du tenseur de conductivité sans connaissance préalable des directions principales de l'échantillon. A l'aide d'une chaufferette instrumentée (Figure 1.12) placée entre deux échantillons circulaires du matériau à mesurer, l'échantillon est sollicité thermiquement et sa réponse en température enregistrée à l'aide de thermocouples.



**Figure 1.12: Montage expérimental de la chaufferette instrumentée pour l'estimation du tenseur de conductivités de matériaux composites [103,104]**

Une première configuration de chauffage permet d'imposer un transfert thermique unidirectionnel à travers l'épaisseur de l'échantillon et, ainsi, d'identifier sa conductivité transverse et sa capacité thermique massique. Une deuxième configuration permet d'obtenir des transferts thermiques en 3D. En connaissant les propriétés précédemment identifiées et à l'aide d'une méthode inverse, les conductivités dans le plan suivant les directions principales du matériau sont déterminées. Plus de détails concernant la mesure des tenseurs de conductivité de matériaux anisotropes peuvent être trouvés dans les thèses de Thomas [103] et de Villière [104]. Ces travaux et les différentes méthodes qui y sont présentées soulignent la difficulté qui existe toujours aujourd'hui à mesurer précisément le tenseur de conductivité des matériaux composites durant leur transformation.

Un appareil de type DSC permet de mesurer la capacité thermique massique  $C_{p_m}$  de la résine dans ses différents états (liquide, caoutchoutique et vitreux) et ce pour de larges gammes de température. L'évolution de cette propriété est ensuite modélisée par loi des mélanges entre les différents états.

L'évolution de la masse volumique  $\rho$  ou du volume spécifique du matériau au cours de sa transformation est généralement mesurée par dilatométrie sur un échantillon de masse connue. La mesure de ces dilatations est présentée plus tard, en section 1.2.5.3.

En connaissant les propriétés des fibres et le taux de fibres, la capacité thermique du matériau est estimée à l'aide d'une loi des mélanges:

$$\rho C_p = v_f \rho C_{p_f} + (1 - v_f) \rho C_{p_m}, \quad (1.6)$$

où  $v_f$  est le taux volumique de fibres.

Enfin, le modèle cinétique de la résine et l'enthalpie de réaction sont également généralement déterminés à partir de mesures DSC.

Dans les modèles présentés précédemment, peu considèrent toutefois l'évolution des propriétés du matériau durant sa transformation. Elles ont pourtant un impact non-négligeable sur la prédiction des gradients d'avancement et de température et donc sur la déformation du matériau durant sa mise en forme, notamment dans les pièces épaisses [105].

### 1.2.5.2 MESURE DES PROPRIETES MECANQUES

Les propriétés mécaniques du matériau composite à l'état cuit peuvent être caractérisées de façon classique à l'aide d'essais normalisés de traction [106,107], de compression [108,109] et de flexion [110,111]. Lorsqu'un modèle viscoélastique est choisi pour décrire le comportement du matériau, l'utilisation d'un dispositif de type DMA [112] permet de déterminer l'influence de la fréquence de sollicitation sur les propriétés mécaniques du matériau et de remonter ainsi aux propriétés viscoélastiques. On se limitera à l'étude des propriétés élastiques des matériaux.

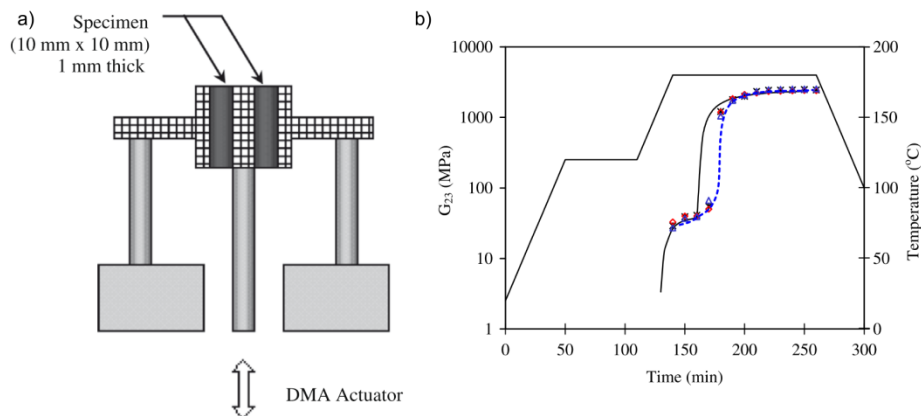
Johnston [113] a sollicité en torsion des échantillons sous forme de plaques rectangulaires d'un matériau unidirectionnel afin de déterminer l'évolution du module de cisaillement du matériau au cours de la réticulation. Les résultats obtenus pour un matériau à fibres de carbone et résine époxy indiquent que le module de cisaillement transverse à la direction des fibres est nul à l'état cru de la matière et atteint 4.25 GPa à l'état réticulé, pour un cycle isotherme à 135°C. La même valeur a été atteinte pour une isotherme à 160°C. La transformation totale de l'échantillon n'a cependant pas pu être réalisée du fait de la limitation en température du dispositif utilisé.

L'identification de ces propriétés durant la transformation pose toujours problème, notamment à cause de l'incapacité de la résine à supporter les contraintes non volumiques avant le point de gel. De plus, il est nécessaire de parfaitement contrôler l'état de contrainte ou de déformation du matériau et de connaître son état thermo-chimique afin de décorréler la participation de chacune des propriétés du matériau du comportement thermo-chimio-mécanique global.

Il est alors plus courant de caractériser le matériau une fois le point de gel de la résine passé. En utilisant des échantillons pré-cuits et un dispositif de type TMA, Ruiz et Trochu [25] ont déterminé les modules d'élasticité dans les deux directions principales du plan d'un matériau tissé déséquilibré à fibres de verre et résine polyester. Le module d'élasticité dans le plan à l'état réticulé est compris entre 19 et 20 GPa en fonction de la direction de sollicitation. Le comportement mécanique du matériau semble donc quasiment orthotrope. Ils ont pu adapter un modèle empirique à ces résultats expérimentaux afin d'avoir l'évolution des modules sur toute la gamme de degré d'avancement. L'utilisation de la TMA leur a également permis d'étudier l'influence de la température sur ces propriétés, et notamment leur diminution radicale à l'approche de la température de transition vitreuse. Cependant, l'influence de l'avancement sur les propriétés mécaniques a été étudiée à partir de deux valeurs d'avancement, l'un à 0.93 et l'autre à 1.0. A partir de ces deux points, il est difficile de déterminer une évolution des modules élastiques sur toute la gamme d'avancement comprise entre le point de gel et l'avancement maximum.

A l'aide d'un appareil de type DMA, Ersoy *et al.* [114] ont caractérisé le module de cisaillement d'un matériau unidirectionnel à fibres de carbone et résine époxy durant sa réticulation. Leurs résultats sont confrontés à deux modèles d'estimation par homogénéisation, permettant ainsi de les valider (Figure 1.13). Ils observent une augmentation du module de cisaillement transverse à la direction des fibres durant la transformation de la résine, qui ralentit à mesure que la température de transition vitreuse

augmente et se rapproche de la température de l'échantillon. Une fois la réaction terminée, la résine vitrifie et le module de l'échantillon augmente sensiblement, atteignant 4.6 GPa à 180°C.



**Figure 1.13: a) Principe de la DMA proposé dans [114]. b) Estimation du module de cisaillement d'un matériau UD carbone/époxy**

Durant sa thèse, Nawab [38] a entrepris de mesurer l'évolution du module d'élasticité transverse d'un matériau composite unidirectionnel à fibres de carbone et résine époxy durant sa réticulation à l'aide d'essais de traction cyclés. Les échantillons étaient composés de 8 plis de fibres imprégnées de résine et placées de part et d'autre d'une plaque d'aluminium. Le tout était clampé et monté sur une machine de traction équipée d'un four. Bien que la valeur obtenue à l'avancement maximum soit proche de celle donnée par le fabricant, respectivement 9.2 et 9.5 GPa, de nombreuses hypothèses ont été posées afin d'analyser les résultats et ne sont probablement pas vérifiées, notamment concernant l'interaction entre la plaque d'aluminium et le matériau composite. Cette interaction se retrouve probablement dans l'estimation du module d'élasticité du matériau à l'état cru, sa valeur n'étant pas nulle mais égale à 5.5 GPa, ce qui est anormalement élevé.

Ces différentes études restent néanmoins peu nombreuses et la détermination de l'évolution des propriétés mécaniques des matériaux composites durant leur transformation représente actuellement un verrou dans la compréhension du développement des contraintes résiduelles.

### 1.2.5.3 MESURE DU TENSEUR DE DILATATION THERMIQUE

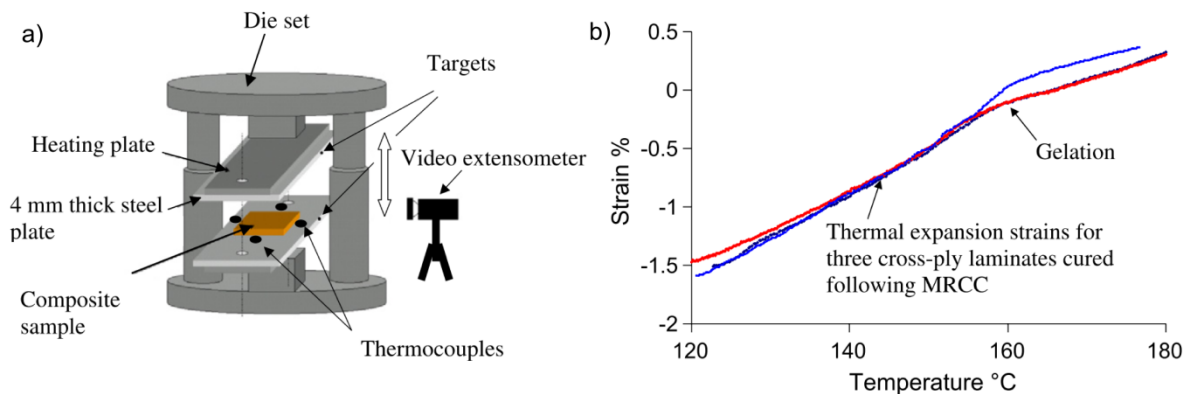
Tout comme pour les propriétés mécaniques, les coefficients de dilatation de matériaux composites anisotropes à l'état cuit peuvent être déterminés à l'aide de méthodes normalisées [115–117] se basant sur l'emploi d'un appareil de type TMA ou d'un dilatomètre linéaire.

La mesure de ces coefficients est également possible à l'aide de jauges d'extensométrie. Une utilisation de cette méthode est rapportée dans [90] pour la caractérisation des déformations thermiques d'un matériau à fibres de verre et matrice thermoplastique.

En utilisant une méthode de mesure par interférométrie, une équipe de chercheurs [118,119] a pu mesurer les coefficients de dilatation thermique d'un UD carbone/époxy sur une large gamme de température, ainsi qu'observer l'influence de l'orientation des fibres et du taux de fibres sur ces coefficients. Les valeurs qu'ils ont mesurées ont pu être comparées à des valeurs déterminées par des modèles prédictifs. Une bonne adéquation des différentes valeurs de coefficients a été trouvée.

Garstka *et al.* [120] ont, quant à eux, utilisé une presse à plateaux chauffants (Figure 1.14) afin de mesurer les coefficients de dilatation thermique d'un empilement d'UD croisés à fibres de carbone et

résine époxy à l'état cuit. Seul le coefficient de dilatation thermique dans la direction transverse à l'épaisseur a pu être estimé.



**Figure 1.14: a) Presse chauffante de mesure des dilatations transverses [120]. b) Mesure du coefficient de dilatation thermique transverse d'un empilement croisé d'UD carbone/époxy**

Tout comme pour les propriétés mécaniques du matériau, la mesure des coefficients de dilatation thermique des matériaux composite durant la transformation reste un verrou, la résine étant peu capable de soutenir les efforts de traction ou de cisaillement. On recense quelques mesures de ces coefficients durant la transformation. Ainsi, Ruiz et Trochu [25] proposent une caractérisation de deux matériaux, l'un à tissu déséquilibré de verre et résine polyester et l'autre à mat de verre et résine polyester, à l'aide d'un dispositif de type TMA. Les coefficients suivant les trois directions principales des matériaux ont été mesurés et modélisés à l'aide de lois des mélanges.

Olivier [121] utilise un dispositif similaire afin de caractériser le tenseur de dilatations thermiques d'un matériau UD à fibres de carbone et résine époxy avec un empilement unidirectionnel de 16 plis et suivant les directions principales du plan de l'échantillon. Les valeurs qu'il a déterminées sont en accord avec les données du fabricant pour les dilatations dans le sens des fibres.

Nawab *et al.* [122] ont caractérisé les coefficients de dilatation thermique d'un matériau carbone/époxy T700/M21 cuit à l'aide d'un dilatomètre linéaire. Les échantillons ont été réalisés dans une plaque dont l'empilement était croisé, d'une épaisseur de 40mm. Différentes orientations ont été analysées, permettant de remonter au tenseur de dilatation thermique. Les résultats expérimentaux ont été comparés à une approche auto-cohérente et les valeurs trouvées par les deux méthodes étaient très proches.

### 1.2.6 MESURE DU TENSEUR DE RETRAIT CHIMIQUE

Bien que faisant partie des propriétés des matériaux composites, la mesure du tenseur de retrait chimique fait l'objet d'une section à part entière car il présente une part non négligeable de ces travaux. Peu d'études existent afin de déterminer les retraits dans les matériaux composites à résine thermodurcissable durant leur cuisson, et un état de l'art a été réalisé en 2012 à ce sujet [16]. On peut séparer les méthodes de mesure en deux catégories. La première concerne les mesures volumiques, donnant ainsi un comportement global du matériau. La seconde catégorie contient les méthodes pouvant donner une information selon une direction donnée.

### 1.2.6.1 MESURES VOLUMIQUES

#### Dilatmètres volumiques à piston

Un dilatomètre à piston est généralement constitué d'une cavité contenant l'échantillon et d'un piston. Ce dernier exerce une pression sur un fluide englobant l'échantillon et suit les variations de volume du fluide (et de l'échantillon) avec la température. Différents types de dilatomètres à piston ont été utilisés afin de caractériser les retraits volumiques de matériaux composites.

L'utilisation du PvT GNOMIX est reportée dans [123,124]. La première étude [123] s'est intéressée aux dilatations et retraits de trois matériaux composites UD à fibres de carbone et résine époxy ou bismaleimide. Sadeghinia *et al.* [124] ont utilisé le même appareil afin de caractériser des EMC (Epoxy Moulding Compound), avec ou sans charges. Le retrait chimique total trouvé était de 2.1% ou 3.4%, avec ou sans charges respectivement. Ils ont mis en évidence une relation bilinéaire entre l'avancement de la réaction et le retrait chimique. Cette bilinéarité, se traduisant par un changement de pente au cours de la réaction, a déjà été observée dans l'étude du retrait de résine pure et a été attribué au passage de la température de transition vitreuse [125]. Ce dispositif permet d'atteindre de "hautes" pressions et températures (jusque 100MPa et 180°C respectivement), mais l'échantillon est contenu dans un bain de mercure ce qui rend son utilisation relativement dangereuse et prohibée en Europe.

Le PvT $\alpha$  est également un dilatomètre à piston, comme présenté dans le chapitre 2. De nombreuses études ont été réalisées grâce à ce dispositif, aussi bien sur des résines thermodurcissables pures que sur les composites associés [19,126,127]. Millischer et Delaunay [126] et Millischer [34] ont étudié, à l'aide de cet appareil, un matériau de type BMC (Bulk Moulding Compound) à fibres de verre et matrice polyester insaturé. L'influence de la pression sur le retrait du matériau a pu être observée. En utilisant le même dispositif de mesure, Nawab *et al.* [19] ont étudié l'influence du taux de fibres sur le retrait volumique d'un composite UD à fibres de verre et résine vinylester en prenant en compte les gradients thermiques. Le retrait volumique de la résine seule atteint 7.1% et évolue linéairement avec l'avancement de la réaction. Les valeurs de retrait pour des taux volumiques de 32% et 49% de fibres sont de 4.40% et 2.76%, respectivement (Figure 1.15).

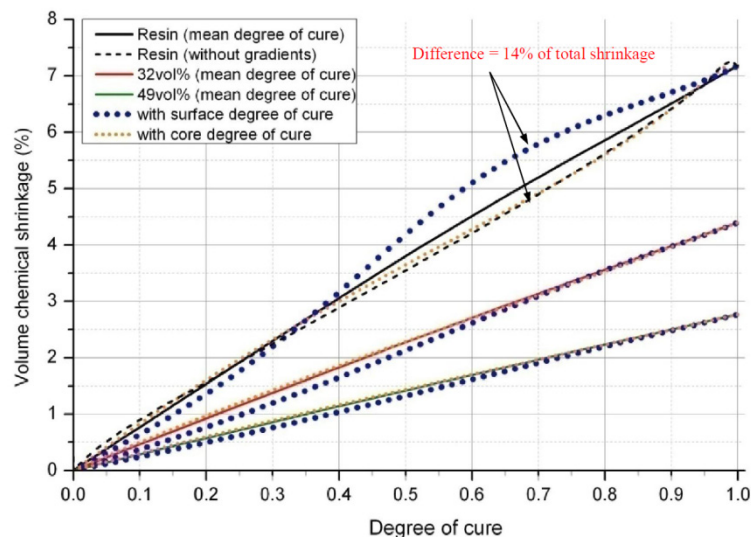


Figure 1.15: Evolution des retraits volumiques en fonction de l'avancement pour différents taux de fibres d'un matériau verre/vinylester [19]

Ces valeurs sont comparées à celles obtenues par loi des mélanges à partir du retrait de la résine seule. Les valeurs déterminées expérimentalement sont plus faibles que celles issues de ce modèle, ce qui

s'explique par le fait que les fibres bloquent une partie du retrait, phénomène qui participe au développement des contraintes résiduelles dans le matériau. Le dispositif de caractérisation PvT $\alpha$  permet d'appliquer une pression jusque 10MPa sur l'échantillon et d'atteindre une température de 200°C. Les mesures peuvent être réalisées aussi bien en isotherme qu'en rampe de température. Cependant, il n'est pas possible d'appliquer une pression trop faible sous peine de ne pas suivre parfaitement les dilatations de l'échantillon (cf. Chapitre 2).

Prasatya *et al.* [128] ont utilisé un dilatomètre pressurisable à soufflet afin de mesurer les retraits volumiques d'un composite graphite/époxy. Une pression de 5MPa était appliquée, ainsi qu'une température de 122°C. Tout comme pour le PvT GNOMIX, l'échantillon est contenu dans du mercure, rendant le dispositif techniquement contraignant à utiliser. De plus, l'échantillon était au contact direct du fluide, ce qui peut influencer le comportement du matériau, le fluide pouvant diffuser dans la matière et influencer la réticulation. Enfin, l'état thermo-chimique de l'échantillon n'est pas parfaitement connu, aucune instrumentation ne permettant de l'estimer.

### **Dilatromètres volumiques à capillarité**

Afin d'obtenir le retrait volumique de résine époxy avec ou sans charge, Holst *et al.* [129] utilisent un dilatomètre à capillarité doté d'un système de mesure laser. L'échantillon est placé au fond d'une cavité cylindrique en verre, avec un liquide inerte en suspension au dessus. La dilatation de l'échantillon est mesurée à l'aide d'un capteur laser. Bien que la mesure soit précise grâce à l'utilisation du capteur laser, les possibles microfissurations de la résine dues à l'adhérence de l'échantillon aux parois de la cavité peuvent fausser la mesure. Les mesures sont également limitées à la pression atmosphérique et à de faibles températures (environ 80°C) et sans réel contrôle thermique de l'échantillon.

#### *1.2.6.2 MESURES DIRECTIONNELLES*

Le comportement des matériaux composites est rarement isotrope. Ainsi, une mesure volumique ne donnera qu'une estimation globale du comportement du matériau qu'il faut compléter et préciser à l'aide d'une mesure directionnelle qui permettra de connaître la répartition des retraits suivant les différentes directions du matériau. Plusieurs études se sont intéressées à ces mesures et sont décrites dans les paragraphes suivants.

### **Par mesure manuelle**

Une méthode d'estimation des retraits dans la direction transverse d'un matériau composite UD graphite/bismaleimide est proposée dans [130]. La méthode consiste à cuire simultanément six plis de dimensions 25.4 mm x 152 mm dans un four, la direction transverse des fibres coïncidant avec la longueur de l'échantillon. Chaque échantillon est sorti individuellement du four à un temps donné, afin de mesurer la variation de longueur des échantillons en fonction du temps et donc de l'avancement de la réticulation. Le retrait mesuré évolue non-linéairement avec l'avancement de la réaction, augmentant en suivant une loi puissance avant un certain degré d'avancement où le retrait n'évolue plus. La valeur finale du retrait est de 2.9% dans la direction transverse aux fibres. Afin que cette méthode soit applicable, il est nécessaire que la réaction ne soit pas trop rapide, pour pouvoir contrôler la cuisson partielle de l'échantillon et maîtriser la valeur d'avancement intermédiaire obtenue.

### **Par déformation de l'échantillon et projection de franges**

Les retraits dans les matériaux composites peuvent induire, si la séquence d'empilement de l'échantillon est déséquilibrée ou en présence de gradients de transformation ou de température, un gauchissement de la surface de l'échantillon même si celui-ci est plan. Il est alors possible de mesurer les retraits dans l'échantillon en mesurant sa déformation au cours de la cuisson. En combinant cette

déformation à la projection de franges (dont le principe est rappelé en Figure 1.16a) et à un modèle basé sur la théorie des plaques, il est possible de quantifier les déformations d'un échantillon au cours de la totalité de sa cuisson. Ainsi, Daniel *et al.* [131] et Ifju *et al.* [132] utilisent un Moiré afin d'observer les déformations d'échantillons.

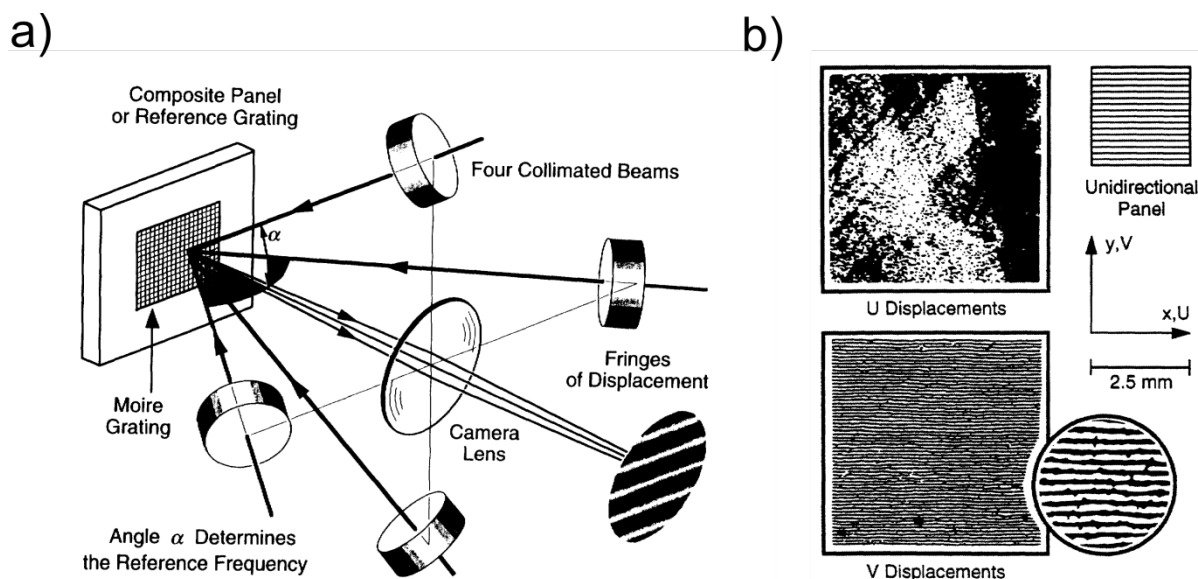


Figure 1.16: a) Principe de fonctionnement des projections de franges b) Résultats sur un UD carbone/époxy [132]

Dans [131], les auteurs empilent 16 plis d'un tissu préimprégné de fibres de verre et résine époxy non cuits sur 16 plis cuits. La différence de propriétés entre ces deux couches entraîne une déformation de l'échantillon durant la cuisson. L'analyse des franges donne une indication des déformations dans le plan de l'échantillon, suivant les deux directions principales. Ifju *et al.* [132] utilisent la même technique afin de caractériser les dilatations d'un UD à fibres de carbone et résine époxy (Figure 1.16b). Plusieurs séquences d'empilement ont été étudiées et leur influence sur les déformations observée. On retrouve également l'utilisation de cette technique pour l'étude d'EMC [133,134]. Cette méthode présente plusieurs avantages avec, entre autres, sa simplicité de mise en œuvre, la possibilité d'appliquer des hautes pressions (jusque 2.3 MPa dans [131]), de monter à haute température (jusque 260°C dans [133]) et de suivre les déformations durant tout le cycle de cuisson. Cependant, la quantification précise des retraits n'est pas aisée. En effet, l'analyse des résultats expérimentaux requiert un modèle basé sur la théorie des plaques. Les relations sont simples pour des empilements simples mais la décorrélation des différentes propriétés devient difficile dès que l'empilement se complexifie.

### Par jauges de déformation

Une autre méthode afin de mesurer les déformations d'un matériau consiste en l'utilisation de jauges extensométriques. Celles-ci sont placées en surface de l'échantillon et mesurent localement l'élongation suivant une direction donnée. Dans leurs travaux, Crasto et Kim [135] utilisent cette méthode afin de mesurer les déformations thermiques et chimiques de composites UD à fibres de carbone et résine époxy. Les échantillons étaient composés d'un empilement de 16 plis orientés à  $[0^\circ]$ . Des jauges permettent de mesurer les déformations suivant deux directions dans le plan de l'échantillon, *i.e.* la direction longitudinale parallèle aux fibres et la direction transverse. Kim [136] s'est servi de la même méthode dans son étude des déformations durant la cuisson d'échantillons de matériau UD à fibres de carbone et résine époxy. Les conditions des essais dans ces deux études se rapprochent fortement de celles rencontrées dans l'industrie, à savoir des températures de l'ordre de

180°C et une pression appliquée à l'aide d'un autoclave pouvant aller jusque 7 bars [135]. Bien que les résultats soient satisfaisants et en accord avec des modèles numériques, cette méthode n'est valable qu'à partir du moment où les propriétés de la résine sont suffisamment développées pour supporter un effort de cisaillement. Ces études se limitent donc à l'après gel de la résine. Par conséquent seule une partie du retrait peut être mesurée et celui-ci peut être perturbé par l'intrusivité des jauges de déformations.

### Par capteurs à fibre optique

Deux types de capteurs à fibre optique peuvent être utilisés afin de mesurer localement les déformations du matériau et ainsi déterminer les contributions thermique et chimique des variations dimensionnelles. Les premiers sont les capteurs à réseau de Bragg (ou FBG, pour Fiber Bragg Grating) et les seconds sont les capteurs à interféromètre extrinsèques de Fabry-Perot (ou EFPI, pour Extrinsic Fabry-Perot Interferometer). Le principe de fonctionnement de ces deux capteurs est rapidement rappelé et illustré.

Les capteurs de type EFPI sont généralement composés de deux fibres dont une extrémité est placée en vis à vis et de part et d'autre d'un tube capillaire rigide (Figure 1.17a). Ces fibres sont scellées à la cavité à l'aide de résine adhésive ou de silicone. Les extrémités des fibres, appelés réflecteurs, sont parallèles entre elles et perpendiculaires au chemin optique, et séparées par une lame d'air. Le capteur est placé dans le matériau. Les déformations locales de celui-ci, liées au chargement mécanique, aux dilatations thermiques ou chimiques, entraînent une déformation du capteur et donc de la longueur de la lame d'air entre les réflecteurs. Une source de lumière est transmise par une des fibres. Elle est en partie réfléchi à l'interface entre la fibre et le vide d'air, une autre partie étant réfléchi à l'interface entre la lame d'air et la seconde fibre. Un interféromètre permet alors, à partir de l'étude des ondes incidentes et réfléchies, de déterminer l'allongement de la lame d'air et donc de remonter à la déformation locale dans le matériau.

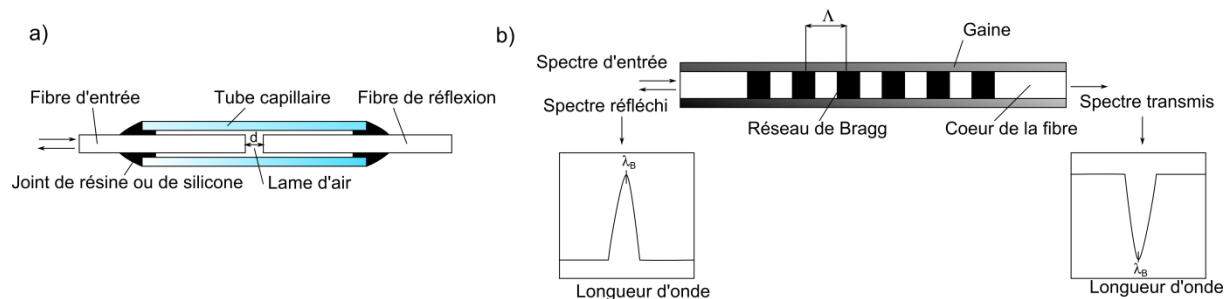
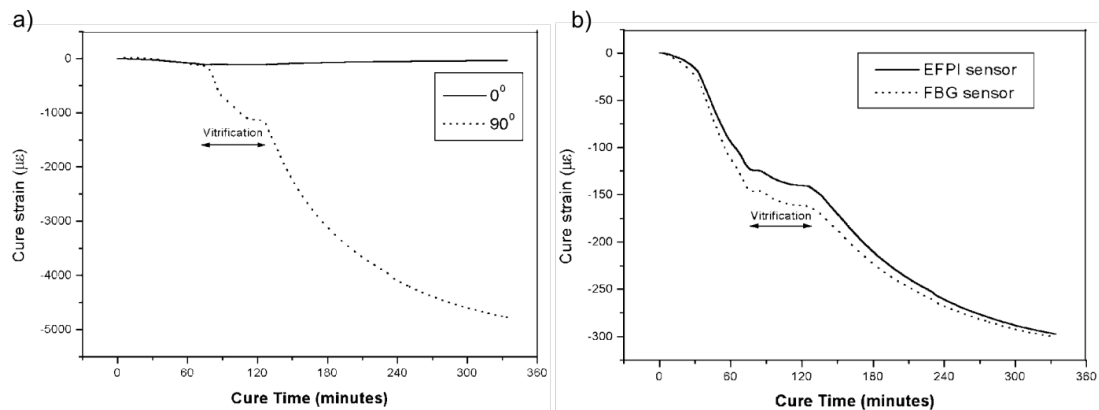


Figure 1.17: a) Schéma d'un capteur de type EFPI b) Schéma et signaux de sortie d'un capteur de type FBG

Les capteurs à réseau de Bragg sont, quant à eux, composés d'une fibre dans laquelle une modulation locale et périodique, de période  $\Lambda$ , de l'indice de réfraction de la fibre optique est réalisée (Figure 1.17b). C'est cette modulation que l'on appelle réseau de Bragg. Un faisceau de lumière est alors émis et transmis par une des extrémités de la fibre. Une partie du spectre de ce faisceau est réfléchi, l'autre est transmise par le réseau de Bragg. La longueur d'onde réfléchi est appelée longueur d'onde de Bragg  $\lambda_B$ . Elle est directement reliée à la période  $\Lambda$  entre deux modulations de l'indice optique. Une déformation du réseau provoquera alors une modification de la longueur d'onde de Bragg. La caractérisation de cette longueur d'onde permet alors de remonter à la déformation locale.

On retrouve l'utilisation de capteurs de type EFPI dans l'étude d'empilements de laminés à fibres de carbone et résine époxy [137,138]. La seconde étude [138] confirme le fait que, dans le cas d'un laminé unidirectionnel à fibres de carbone, les déformations dans la direction des fibres sont

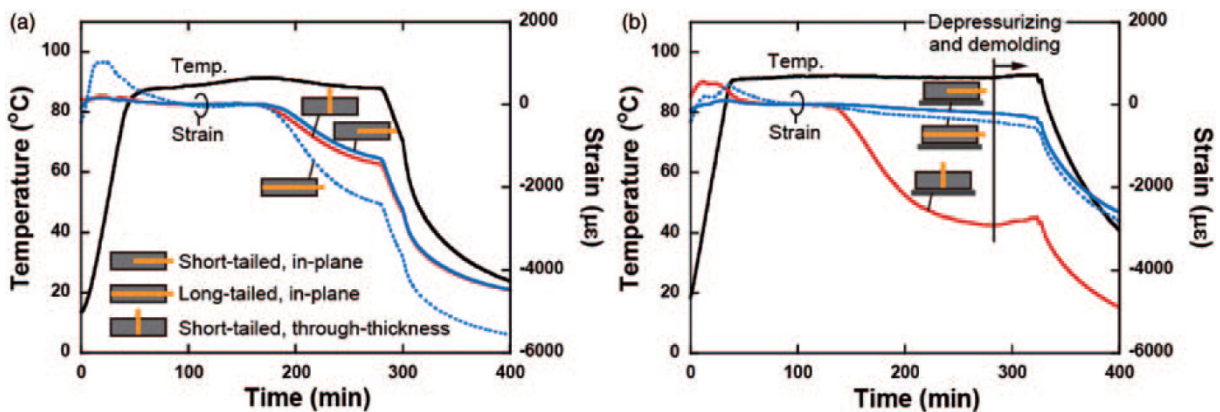
quasiment nulles comparées à celles dans la direction transverse des fibres (Figure 1.18a). Une comparaison des résultats obtenus avec deux issus d'un capteur de type FBG est également proposée (Figure 1.18b), montrant ainsi le bon accord entre ces deux méthodes.



**Figure 1.18: a) Déformations durant la cuisson d'un laminé unidirectionnel carbone/époxy suivant deux directions orthogonales dans le plan b) Comparaison entre le signal issu du capteur EFPI et du capteur FBG suivant la direction transverse aux fibres pour le même [138]**

L'utilisation des capteurs de type FBG a fait l'objet d'un nombre plus important d'études [139–145]. Cette solution est en effet plus séduisante que la précédente, les capteurs de type EFPI étant souvent fragiles [146]. On retrouve également l'utilisation de capteurs hybrides combinant un capteur à réseau de Bragg et un capteur de type EFPI [147,148].

Les études précédentes se sont concentrées sur les mesures dans le plan de l'échantillon. Or, une grande partie des retraits a lieu dans l'épaisseur de celui-ci. La caractérisation des déformations dans cette direction de l'échantillon à l'aide de capteurs à fibre optique est beaucoup plus ponctuelle. On la retrouve dans l'étude de Minakuchi [145], portant sur la caractérisation d'un matériau à fibres de carbone et résine époxy. En plus de comparer les déformations durant la cuisson de laminés unidirectionnels suivant différentes directions, il propose de vérifier l'influence de l'outillage sur les dilatations de l'échantillon. Les résultats sont en accord avec ceux issus d'une mesure à l'aide d'un dispositif de type TMA. Lorsque l'interaction avec l'outillage est limitée, les déformations dans la direction transverse aux fibres du plan et à travers l'épaisseur sont très proches (Figure 1.19a). Lorsque l'outillage interagit avec l'échantillon, le retrait chimique dans les directions du plan est quasiment nul et la totalité du retrait a lieu à travers l'épaisseur de l'échantillon (Figure 1.19b).



**Figure 1.19: a) Cycle de température et déformations issues de plusieurs capteurs sans l'interaction avec le moule b) Cycle de température et déformations avec l'interaction avec le moule [145]**

Bien que de nombreuses études aient été réalisées, et ce sur des matériaux connus, ces méthodes ne sont pas sans inconvénients. Elles sont d'abord intrusives, le diamètre des fibres optiques et des capteurs étant largement supérieurs à celui des fibres du matériau (Figure 1.20). Un amas de résine est alors présent autour du capteur, modifiant localement le comportement du matériau. La réponse donnée par le capteur n'est donc peut être pas représentative de ce qu'il se passe dans l'échantillon à proximité. Ces méthodes donnent également une information très locale du comportement du matériau, ce qui ne permet pas d'en déduire un comportement à l'échelle du composite. De plus, les déformations du matériau étant transmises au capteur à l'aide de la résine, le capteur ne se déformera qu'à partir du moment où celle-ci pourra transmettre un effort de cisaillement. Les mesures réalisées sont donc limitées à l'après point de gel de la résine.

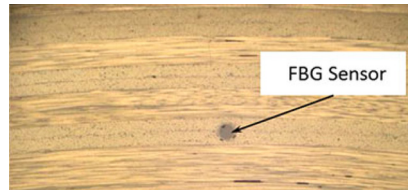


Figure 1.20: Coupe micrographique d'un capteur de type FBG dans un échantillon [149]

### Par analyse thermomécanique

Une étude exhaustive du comportement à la cuisson d'un matériau UD à fibres de carbone et matrice époxy a été réalisée par Olivier [121]. A cet effet, il emploie une TMA (Figure 1.21a) afin de caractériser les déformations dans le plan d'échantillons composés de deux à quatre plis avec différentes séquences d'empilement (Figure 1.21 b et c). Cette méthode a l'avantage de permettre un suivi des déformations durant toute la cuisson. Cependant, les échantillons étudiés sont nécessairement partiellement cuits, et les essais réalisés à pression atmosphérique. Les résultats sont toutefois en accord avec des mesures réalisées à l'aide de capteurs à fibre optique ainsi que par rapport à des valeurs théoriques basées sur une loi des mélanges entre les propriétés des fibres et de la résine.

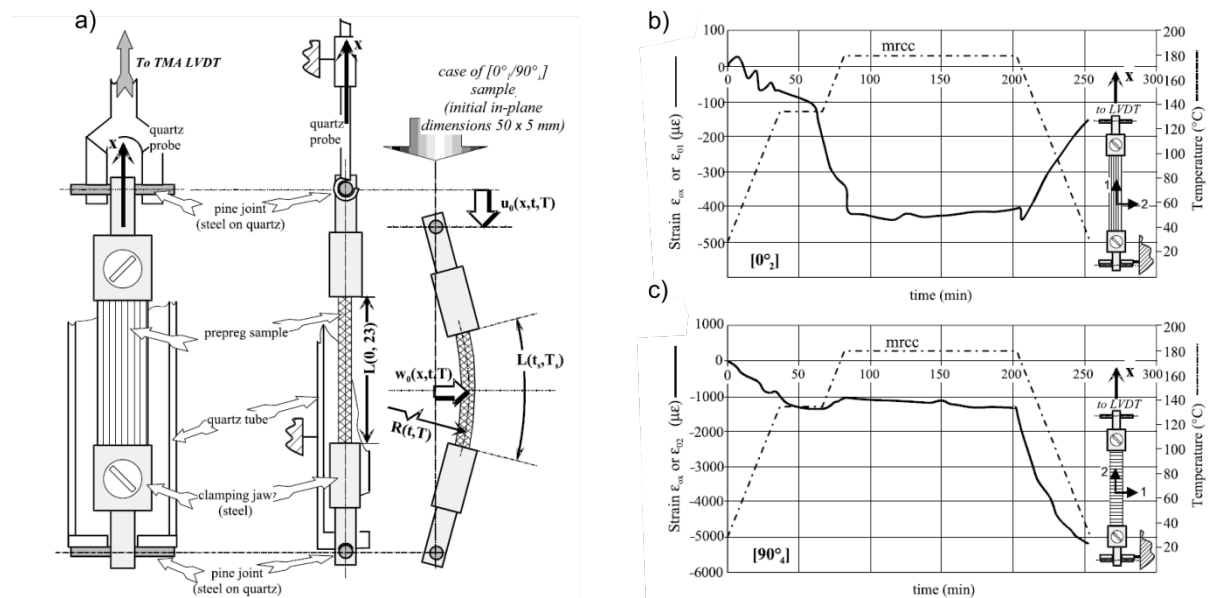


Figure 1.21: a) Principe de l'essai de type TMA [121] b) Résultats pour une éprouvette orientée dont les fibres sont orientées dans la direction de sollicitation c) Résultats pour une éprouvette orientée dont les fibres sont orientées perpendiculairement à la direction de sollicitation

Jakobsen *et al.* [150] utilisent également un appareil de type TMA équipé d'un module de tension et utilisée en modulation de température afin de caractériser un matériau à mat de verre et résine époxy. Leur étude indique qu'une partie du retrait est bloqué par les fibres. Cette méthode souffre des mêmes limitations que la précédente [121].

### **Par analyse mécanique dynamique**

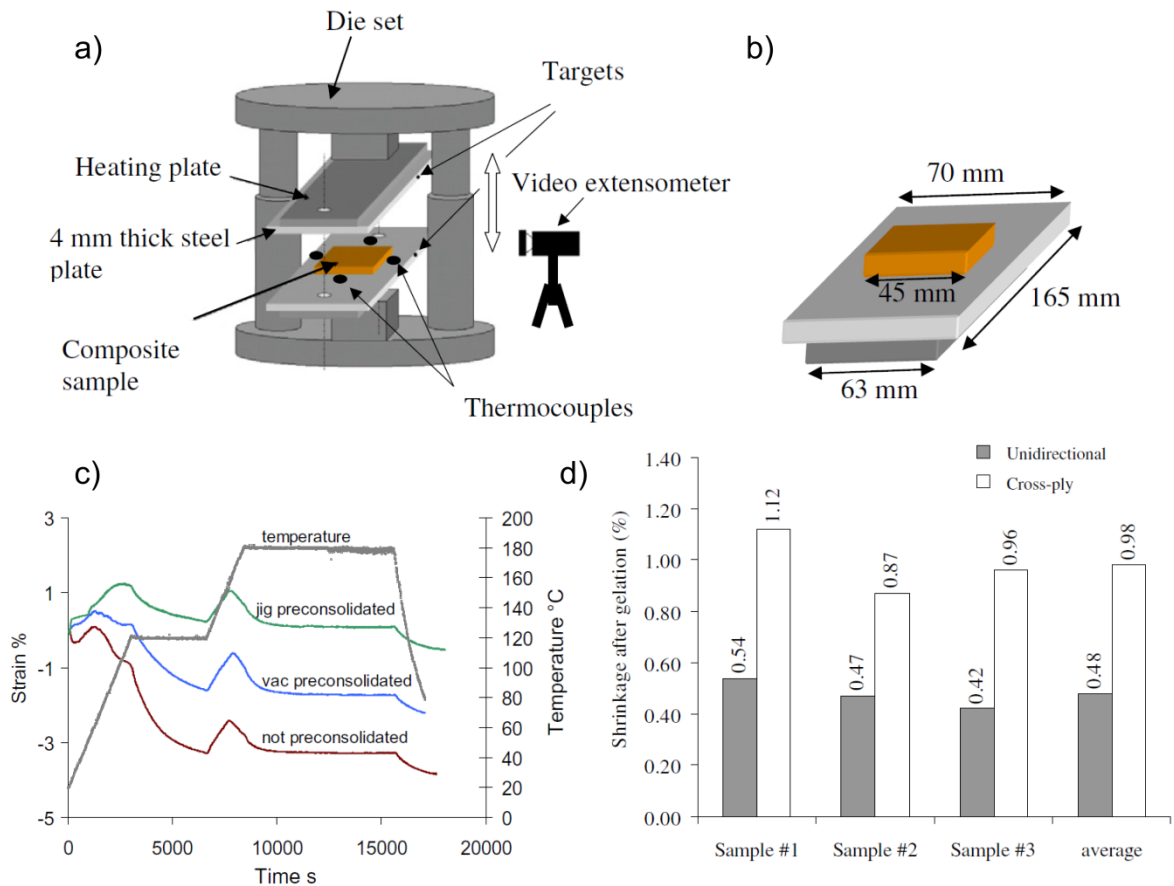
Une seconde méthode basée sur la sollicitation thermomécanique de l'échantillon est proposée par Ersoy *et al.* [151]. Dans leur étude, ils utilisent un appareil de type DMA (Dynamic Mechanical Analysis) en sollicitation par compression afin de mesurer les retraits à travers l'épaisseur du matériau. Les échantillons sont réalisés à partir de plis UD à fibres de carbone et résine époxy. Ils sont composés d'un empilement de 26 plis, soit orientés suivant la même direction, soit alternés entre un pli à  $[0^\circ]$  et un à  $[90^\circ]$ . Les échantillons étaient précurés à différents avancements, permettant d'identifier la relation entre l'avancement de la réaction et le retrait. Pour les deux empilements proposés, la relation est proposée comme linéaire, et les valeurs de retraits mesurées pour l'empilement alterné représentent environ le double de celles pour l'échantillon dont l'empilement est unidirectionnel.

### **Par essais de traction cyclés**

La mesure des retraits dans le plan de l'échantillon a été envisagée à l'aide d'essais de traction cyclés par Nawab [38] et Nawab *et al.* [152]. Un matériau UD à fibres de verre et résine vinylester dont l'empilement est unidirectionnel et orienté à  $[0^\circ]$  ou  $[90^\circ]$  fait l'objet de ces études. Les 8 plis composant l'échantillon sont répartis de part et d'autre d'une plaque d'aluminium. Les dimensions de l'échantillon sont de 330 mm x 50 mm. L'ensemble est compacté à une pression relative pouvant atteindre 1 bar à l'aide d'une bache à vide et d'un tirage au vide, comme pour le procédé d'infusion de résine, et maintenu aux extrémités à l'aide de pinces de serrage. Le tout est alors monté sur une machine de traction. Un four adapté permet d'appliquer un cycle de cuisson à l'échantillon. La mesure est réalisée durant la totalité du cycle de cuisson. Pour l'échantillon dont les fibres sont orientées perpendiculairement à la direction de sollicitation, la valeur de retrait maximale est de 1% et le retrait varie non-linéairement avec le degré d'avancement à partir du point de gel de la résine. La mesure réalisée dans l'autre direction aboutit à une valeur nulle de retrait. La valeur de retrait volumique pour le même composite est de 4.4% [152], les auteurs concluent que la majeure partie du retrait se passe à travers l'épaisseur de l'échantillon. De fortes interactions sont néanmoins possibles entre la plaque d'aluminium et l'échantillon, pouvant notamment contraindre le retrait. Ceci expliquerait les résultats peu probants que l'on retrouve dans l'étude d'un matériau unidirectionnel à fibres de carbone et résine époxy [38], où un retrait maximal de 0.1% est mesuré, alors que la valeur théorique de retrait serait de 0.5%.

### **Par essais de compression**

Garstka *et al.* [120] mesurent le retrait à travers l'épaisseur du matériau à l'aide d'une presse à compacter à plateaux chauffants (Figure 1.22a) dont les dimensions sont données en Figure 1.22b. Les variations d'épaisseur de l'échantillon sont enregistrées à l'aide d'une caméra. Les échantillons sont composés de 16 plis d'un unidirectionnel à fibres de carbone et résine époxy. Deux séquences d'empilement sont étudiées, à savoir  $[0^\circ]_{16}$  et  $[(0^\circ/90^\circ)_4]_8$ . L'influence du précompactage sur les variations d'épaisseur de l'échantillon durant la cuisson est observée (Figure 1.22c). L'évolution du retrait avec l'avancement suit une loi non linéaire, interpolée à l'aide d'un polynôme d'ordre 3. Les valeurs de retrait sont globalement indépendantes de la température de mise en forme. La valeur moyenne de retrait final pour l'empilement unidirectionnel est de 0.48% et de 0.98% pour l'empilement croisé (Figure 1.22d).



**Figure 1.22: a) Principe de l'essai de compression [120] b) Dimensions de l'échantillon et des plateaux chauffants c) Déformations à travers l'épaisseur pour différentes préconsolidations d) Résultats pour deux empilements différents**

### 1.2.6.3 RECAPITULATIF ET LIMITATIONS

Les différentes méthodes décrites précédemment sont résumées dans les tableaux 1.1, 1.2 et 1.3. Il y est décrit la méthode employée, la référence de l'étude, les matériaux utilisés, les dimensions de l'échantillon, les directions de mesure, les conditions de mise en œuvre ainsi que les limitations des méthodes actuelles.

Parmi ces limitations, de nombreuses méthodes ne permettent pas, par exemple, d'avoir une information sur les dilatations de l'échantillon durant toute la cuisson. Elles ne peuvent être réalisées que sur des échantillons de matériau pré-cuit, le point de gel de la résine étant dépassé, afin que celle-ci puisse transmettre des efforts. La plupart des méthodes proposées ne permettent pas de réaliser les essais dans des conditions proches des conditions industrielles, à savoir des températures jusque 200°C et une pression atteignant 1.0 MPa.

Le retrait chimique est fortement couplé au changement de coefficient de dilatation thermique du matériau lors du passage de l'état liquide à l'état solide, et ce par le biais de l'avancement de la réaction. De fait, on mesure généralement un retrait apparent duquel il faut distinguer la contribution purement thermique de celle purement chimique. Une bonne connaissance de l'état thermique de l'échantillon est nécessaire pour faire cette distinction. Peu de méthodes permettent d'estimer correctement l'état thermo-chimique de l'échantillon au cours de sa transformation.

Tableau 1.1: Comparaison des méthodes volumiques de mesure des retraits dans les composites

Catégorie	Volumiques			
	Dilatometre volumique à piston			Dilatometre volumique à capillarité
Méthodes	PvT Gnomix	PvT $\alpha$	Dilatometre volumique à soufflet	
Matériaux	UD Carbone Epoxy [123] EMC [124]	BMC [34] UD Verre-Vinylester [19]	Carbone-Epoxy [128]	Résine époxy chargée [129]
Dimensions et/ou masse de l'échantillon	1-2 grammes	41mm de diamètre, 6mm d'épaisseur		2 grammes
Pression max.	100 MPa	10 MPa	5 MPa	Atm
Température max.	180°C	200°C	122°C	80°C
Direction de mesure	Vol.			Vol.
Limitations/Inconvénients	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Mesure volumique</li> <li>- Emploi de mercure (sauf pour le PvT<math>\alpha</math>)</li> <li>- Pas d'information précise sur l'avancement (sauf pour le PvT<math>\alpha</math>).</li> </ul>			<ul style="list-style-type: none"> <li>- Mesure volumique</li> <li>- Pression atmosphérique</li> <li>- Pas d'information sur l'avancement</li> <li>- Risque d'adhésion entre le matériau et les parois du contenant</li> </ul>

Un échantillon de grande taille est nécessaire pour obtenir des retraits mesurables de façon précise. Plus l'échantillon aura de grandes dimensions et plus les gradients de température de d'avancement en son sein seront importants et influenceront le retrait. En effet, la réticulation de la résine est exothermique, ce qui peut induire des élévations de plusieurs dizaines de degrés dans des échantillons de résine pure de quelques millimètres d'épaisseur. La cinétique de réaction étant très fortement couplée à la température, en plus des gradients de température apparaissent des gradients d'avancement.

L'avancement de la réaction est donc essentiel à la mesure du retrait purement chimique du retrait apparent. Classiquement, la cinétique de réaction est mesurée à l'aide d'un dispositif externe. La mesure DSC (Differential Scanning Calorimeter) permet d'obtenir la cinétique de réaction et donc l'évolution de l'avancement avec le temps. Cependant, celle-ci est faite sur un échantillon de très petite taille comparée à la taille d'un échantillon de matériau composite. L'avancement au sein de l'échantillon de matériau composite n'est donc potentiellement pas parfaitement représentatif de l'état d'avancement enregistré par DSC.

Afin d'obtenir des résultats directement transposables aux pièces réalisées industriellement, il est nécessaire de conduire les essais dans des conditions proches de celles conseillées par les fabricants de matériaux pour la mise en forme de leurs produits. Ainsi, dans le cas de matériaux composites à matrice thermodurcissable, il est nécessaire d'atteindre des températures jusque 200°C et des pressions se rapprochant de la pression d'un autoclave, à savoir 0.7 MPa. Evidemment, tous les procédés de mise en forme des matériaux composites ne nécessitent pas d'appliquer ces conditions. De nombreux procédés hors autoclave se développent actuellement, avec des pressions relatives de mise en forme proches de 0.1 MPa.

Tableau 1.2: Comparaison des méthodes non volumiques de mesure des retraits dans les composites. Partie 1

Non-Volumiques				
Catégorie	Méthodes	Projexion de franges	Jauges de déformation	Capteur à fibre optique
Méthodes				EFPI Hybride (EFPI+FBG)
Matériaux	UD carbone-bismaleimide [130]	Tissé Verre-Epoxy [131] UD Carbone-Epoxy [132] EMC [133, 134]	UD carbone-epoxy [135,136]	UD Carbone-Epoxy [137,138] UD Carbone-Epoxy [142,144,145] Verre-Epoxy [139-141,143] UD Carbone-Epoxy [147,148]
Dimensions de l'échantillon		Quelques mm x quelques mm	152 mm x 152 mm [135]	200mm x 200mm, 20 plis [137] 240mm x 240mm, 2mm d'épaisseur [138] 180 mm x 180 mm, 24 plis
Pression maximum	Atm	2.3 MPa	0.7 MPa [135]	0.4 MPa
Température maximum		177°C	177°C [135]	180°C
Direction de mesure	Dans le plan, transverse	Dans le plan	Dans le plan, axial et transverse	Dans le plan, transverse et axial. A travers l'épaisseur [145]
Limitations /Inconvénients	Pression atmosphérique et mesure du retrait de cuisson, pas de décorrélation entre retrait chimique et thermique	Difficulté de décorrélater les différentes directions de déformation lorsque l'empilement devient complexe	Modification locale de la rigidité du matériau, valable seulement une fois le point de gel passé	Mesure locale, capteur intrusif, amas de résine autour du capteur pouvant modifier le comportement du matériau localement, sensible après le point de gel seulement

Tableau 1.3: Comparaison des méthodes non volumiques de mesure des retraits dans les composites. Partie 2

Non Volumiques							
<b>Catégorie</b>							
<b>Méthodes</b>	Analyse thermomécanique	Analyse mécanique dynamique	Essais de compression	Essais de traction cyclés			
<b>Matériaux</b>	UD Carbone-Epoxy [121] Mat de Verre-Epoxy [150]	UD carbone-epoxy [151]	UD carbone-epoxy [120]	UD verre-vinylester [152]			
<b>Dimensions de l'échantillon</b>	25 mm x 2.5 mm, 2 à 4 plis [121]	25 mm x 25 mm, 26 plis soit 5 mm d'épaisseur	45 mm x 45 mm, 16 plis	330 mm x 50 mm			
<b>Pression maximum</b>	Atm	Atm	Atm	0.1 MPa			
<b>Température maximum</b>	180°C	250°C	180°C	163°C			
<b>Direction de mesure</b>	Dans le plan	A travers l'épaisseur	A travers l'épaisseur	Dans le plan, transverse			
<b>Limitations /Inconvénients</b>	Echantillons partiellement cuits, pression atmosphérique, pas d'information directe sur l'avancement	Echantillons partiellement cuits, pas d'information directe sur l'avancement	Pas d'information sur le degré d'avancement,	Interaction échantillon-outillage possible, pas d'information sur le degré d'avancement			

Les matériaux composites sont des matériaux hétérogènes et très souvent anisotropes de par la présence de fibres dans la matrice. Le retrait chimique de la résine couplé à l'anisotropie des renforts induit un retrait anisotrope dans le matériau final. Il en est de même pour les dilatations et retraits thermiques. Une mesure volumique donnera la somme des retraits dans les différentes directions mais ne permettra pas de connaître leur distribution suivant les directions principales du matériau. La difficulté ici réside à pouvoir mesurer les retraits dans les matériaux composites suivant une ou plusieurs directions simultanément.

### 1.3 POSITIONNEMENT DE CES TRAVAUX DE RECHERCHE

Si l'on résume les différents points abordés dans ce chapitre, on arrive à la conclusion que les modèles décrivant le comportement des matériaux composites durant leur mise en forme ont besoin de valeurs précises des propriétés du matériau, de manière à être le plus représentatif possible de son comportement réel. Ces propriétés peuvent être estimées à l'aide de méthodes d'homogénéisation à partir des propriétés des différents constituants, qu'il faut pouvoir déterminer précisément. Il est également possible de mesurer directement les propriétés du matériau composite, ce qui se révèle fastidieux.

La mesure des propriétés thermo-mécaniques de la résine au cours de la transformation a fait l'objet de nombreux travaux de recherche, ceux-ci étant souvent limités à la caractérisation après le point de gel de la résine. A ce titre le PvT $\alpha$ , un dispositif conçu au LTN et utilisé depuis de nombreuses années, permet de caractériser de nombreuses propriétés de la résine au cours de sa transformation. Cependant, la capsule élastomère contenant l'échantillon a toujours été considérée comme se comportant à l'instar d'un fluide incompressible, suivant parfaitement les variations de volume de l'échantillon et appliquant une pression uniforme autour de celui-ci durant tout le cycle de mise en forme. Ces différentes hypothèses n'ont jamais été vérifiées. On peut donc se demander quel est l'effet de la capsule sur l'identification des propriétés réalisée sur le PvT $\alpha$ .

Ce dispositif a été adapté à l'identification du module de compressibilité de la résine au cours de sa transformation. De nombreuses hypothèses ont été posées afin d'estimer la valeur de ce module, notamment concernant le comportement mécanique de la capsule dans la cavité moulante. Puisqu'il n'est pas possible de vérifier ces hypothèses *in situ*, une modélisation du problème est nécessaire. La présentation du modèle multiphysiques du dispositif PvT $\alpha$  ainsi que sa validation à l'aide de résultats expérimentaux est faite dans le chapitre 2. Dans ce même chapitre, l'impact de la capsule sur la mesure des propriétés thermo-chémo-mécaniques de la résine est également discuté.

Une fois les propriétés des constituants déterminées, on peut avoir recours à une méthode d'homogénéisation afin d'obtenir les propriétés équivalentes du matériau composite. Ces propriétés seront ensuite implantées dans le modèle décrivant le comportement thermo-chimio-mécanique du matériau. Généralement, le modèle du comportement du matériau et la méthode d'obtention des propriétés sont bien distinctes. L'homogénéisation par développements asymptotiques présente l'intérêt de partir d'une description du problème à l'échelle microscopique afin de déterminer le modèle à l'échelle macroscopique et de donner également les propriétés équivalentes du matériau à cette échelle.

De nombreuses applications de cette méthode à l'étude des transferts thermiques dans les matériaux composites peuvent être trouvées dans la littérature, beaucoup moins concernant l'homogénéisation du problème thermo-chimique couplé. De plus, ces dernières partent du postulat que le problème est déjà homogénéisable. Une discussion sur l'homogénéisabilité de ce problème est réalisée dans le chapitre 3.

Afin de modéliser le comportement mécanique des matériaux composites durant leur transformation, la majeure partie des auteurs se basent sur la théorie des plaques et une approche auto-cohérente afin d'obtenir les propriétés équivalentes du matériau. L'homogénéisation par développements asymptotiques a de nombreuses fois été utilisée afin d'étudier le comportement thermo-mécanique de structures composites, on ne retrouve qu'une étude théorique portant sur l'homogénéisation d'un problème thermo-chémo-mécanique. L'utilisation de cette méthode dans l'étude du problème thermo-chémo-élastique de mise en forme d'un matériau composite et de modélisation des retraits est proposée en annexe C.

Enfin, la mesure des phénomènes de retrait représente toujours un verrou dans la compréhension du comportement des matériaux composites durant leur transformation. De multiples études ont été réalisées, aucune ne permettant une mesure suivant plusieurs directions en simultané et durant la totalité du cycle de transformation. Le développement d'un dispositif original de caractérisation des retraits anisotropes durant la transformation fait l'objet du chapitre 4.

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] T.A. Bogetti, J.W.J. Gillespie, Process-induced stress and deformation in thick-section thermoset composite laminates, *J. Compos. Mater.* 26 (1992) 626–660.
- [2] D.D. Edie, The effect of processing on the structure and properties of carbon fibers, *Carbon N. Y.* 36 (1998) 345–362.
- [3] M.W. Pilling, B. Yates, M.A. Black, P. Tattersall, The thermal conductivity of carbon fibre-reinforced composites, *J. Mater. Sci.* 14 (1979) 1326–1338.
- [4] Y. Abou Msallem, Caractérisation thermique et mécanique d'un matériau composite aéronautique pendant le procédé d'élaboration - Contribution à l'estimation des contraintes résiduelles, Thèse de Doctorat, Ecole Centrale de Nantes, 2008.
- [5] B. Fiedler, M. Hojo, S. Ochiai, The influence of thermal residual stresses on the transverse strength of CFRP using FEM, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 33 (2002) 1323–1326.
- [6] M.R. Wisnom, L.G. Stringer, R.J. Hayman, M.J. Hinton, Curing Stresses in Thick Polymer Composite Components, Part I: Analysis, in: *Comptes Rendus La Conférence ICCM 12*, 1999.
- [7] G. Twigg, A. Poursartip, Tool-part interaction in composites processing. Part I: experimental investigation and analytical model, *Met. Mater.* 35 (2004) 121–133.
- [8] N. Ersoy, K. Potter, M.R. Wisnom, M.J. Clegg, Development of spring-in angle during cure of a thermosetting composite, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 36 (2005) 1700–1706.
- [9] C. Albert, G. Fernlund, Spring-in and warpage of angled composite laminates, *Compos. Sci. Technol.* 62 (2002) 1895–1912.
- [10] J.M. Svanberg, J.A. Holmberg, Prediction of shape distortions. Part II. Experimental validation and analysis of boundary conditions, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 35 (2004) 723–734.
- [11] J.M. Svanberg, Predictions of manufacturing induced shape distortions: high performance thermoset composites, Thèse de doctorat, Lulea University of Technology, 2002.
- [12] M.R. Wisnom, M. Gigliotti, N. Ersoy, M. Campbell, K.D. Potter, Mechanisms generating residual stresses and distortion during manufacture of polymer-matrix composite structures, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 37 (2006) 522–529.
- [13] C. Schick, Differential scanning calorimetry (DSC) of semicrystalline polymers, *Anal. Bioanal. Chem.* 395 (2009) 1589–1611.

- 
- [14] D. Salmon, Thermal conductivity of insulations using guarded hot plates, including recent developments and sources of reference materials, *Meas. Sci. Technol.* 12 (2001) R89–R98.
- [15] M.R. Kamal, S. Sourour, Kinetics and thermal characterization of thermoset cure, *Polym. Eng. Sci.* 13 (1973) 59–64.
- [16] Y. Nawab, S. Shahid, N. Boyard, F. Jacquemin, Chemical shrinkage characterization techniques for thermoset resins and associated composites, *J. Mater. Sci.* 48 (2013) 5387–5409.
- [17] N. Boyard, M. Vayer, C. Sinturel, R. Erre, D. Delaunay, Analysis and modeling of PVTX diagram of an unsaturated polyester resin, thermoplastic additive, and mineral fillers blend, *J. Appl. Polym. Sci.* 88 (2003) 1258–1267.
- [18] Y. Nawab, P. Casari, N. Boyard, F. Jacquemin, Characterization of the cure shrinkage, reaction kinetics, bulk modulus and thermal conductivity of thermoset resin from a single experiment, *J. Mater. Sci.* 48 (2013) 2394–2403.
- [19] Y. Nawab, X. Tardif, N. Boyard, V. Sobotka, P. Casari, F. Jacquemin, Determination and modelling of the cure shrinkage of epoxy vinylester resin and associated composites by considering thermal gradients, *Compos. Sci. Technol.* 73 (2012) 81–87.
- [20] X. Tardif, A. Agazzi, V. Sobotka, N. Boyard, Y. Jarny, D. Delaunay, A multifunctional device to determine specific volume, thermal conductivity and crystallization kinetics of semi-crystalline polymers, *Polym. Test.* 31 (2012) 819–827.
- [21] J.L. Vilas, J.M. Laza, M.T. Garay, M. Rodríguez, L.M. León, Unsaturated polyester resins cure: kinetic, rheologic, and mechanical-dynamical analysis. I. Cure kinetics by DSC and TSR, *J. Appl. Polym. Sci.* 79 (2001) 447–457.
- [22] D.J. Suh, O.O. Park, K.H. Yoon, The properties of unsaturated polyester based on the glycolized poly(ethylene terephthalate) with various glycol compositions, *Polymer (Guildf)*. 41 (2000) 461–466.
- [23] C.-Y.M. Tung, P.J. Dynes, Relationship between viscoelastic properties and gelation in thermosetting systems, *J. Appl. Polym. Sci.* 27 (1982) 569–574.
- [24] J.S. Martin, J.M. Laza, M.L. Morrás, M. Rodríguez, L.M. León, Study of the curing process of a vinyl ester resin by means of TSR and DMTA, *Polymer (Guildf)*. 41 (2000) 4203–4211.
- [25] E. Ruiz, F. Trochu, Numerical analysis of cure temperature and internal stresses in thin and thick RTM parts, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 36 (2005) 806–826.
- [26] D.G. Yang, K.M.B. Jansen, L.J. Ernst, G.Q. Zhang, H.J.L. Bressers, J.H.J. Janssen, Effect of filler concentration of rubbery shear and bulk modulus of molding compounds, *Microelectron. Reliab.* 47 (2007) 233–239.

- [27] S. Niwa, K. Takagaki, S. Minakuchi, N. Takeda, High Accuracy Cure Process Simulation of Composites Based on in-Situ Measurement, in: 20th Int. Conf. Compos. Mater., 2015.
- [28] A.M. Lindrose, Ultrasonic wave and moduli changes in a curing epoxy resin, *Exp. Mech.* 18 (1978) 227–232.
- [29] R.J. Freemantle, R.E. Challis, Combined compression and shear wave ultrasonic measurements on curing adhesive, *Meas. Sci. Technol.* 9 (1999) 1291–1302.
- [30] S. Dixon, D. Jaques, C. Edwards, S.B. Palmer, The Development of Shear and Compression Elastic Moduli in Curing Epoxy Adhesives Measured Using Non-Contact Ultrasonic Transducers, *Rev. Quant. Nondestruct. Eval.* 22 (2003) 1049–1055.
- [31] S. V. Hoa, P. Ouellette, T.D. Ngo, Determination of Shrinkage and Modulus Development of Thermosetting Resins, *J. Compos. Mater.* 43 (2009) 783–803.
- [32] Y. Meng, P. Bernazzani, P.A. O’Connell, G.B. McKenna, S.L. Simon, A new pressurizable dilatometer for measuring the time-dependent bulk modulus and pressure-volume-temperature properties of polymeric materials., *Rev. Sci. Instrum.* 80 (2009) 053903.
- [33] J. Beck, B. Blackwell, C. Clair, *Inverse heat conduction*, Wiley, New York, 1985.
- [34] A. Millischer, *Transferts thermiques dans le procédé d’injection BMC (Bulk Molding Compound)*, Université de Nantes, 2000.
- [35] X.-A. Aduriz, *Suivi in-situ de la mise en forme de pièces composites par capteurs à fibres optiques*, Université de Nantes, 2007.
- [36] A. Agazzi, *Contribution à l’optimisation de la thermique des outillages dans le procédé d’injection des polymères thermoplastiques*, Université de Nantes, 2011.
- [37] X. Tardif, *Cristallisation et transferts thermiques dans un polymère thermoplastique semi-cristallin en refroidissement rapide sous pression*, (2012) 182.
- [38] Y. Nawab, *Characterization and modelling of cure dependent properties of thermoset composites - application to the simulation of residual stresses*, Université de Nantes, 2012.
- [39] Y. Huang, R. Young, Effect of fibre microstructure upon the modulus of PAN-and pitch-based carbon fibres, *Carbon N. Y.* 33 (1995) 97–107.
- [40] Standard test method for density of glass by buoyancy, ASTM C693-93. (1993).
- [41] Standard test method for density of high-modulus fibers, ASTM D3800-99. (1999).

- 
- [42] T.J. Rude, L.H.J. Strait, L.A. Ruhala, Measurement of fiber density by Helium pycnometry, *J. Compos. Mater.* 34 (2000) 1948–1958.
- [43] Standard test method for coefficient of linear thermal expansion of plastics between -30°C and 30°C with a vitreous silica dilatometer, ASTM D696-08e1. (2008).
- [44] C. Pradere, C. Sauder, Transverse and longitudinal coefficient of thermal expansion of carbon fibers at high temperatures (300-2500K), *Carbon N. Y.* 46 (2008) 1874–1884.
- [45] J.H. Lim, J.-B. Charpentier, D. Sohn, Numerical evaluation of the coefficients of thermal expansion of fibers in composite materials using a lamina-scale cost function with quasi-analytical gradients, *J. Mech. Sci. Technol.* 29 (2015) 1–11.
- [46] Isolation thermique - détermination de la résistance thermique et des propriétés connexes en régime stationnaire - méthode de la plaque chaude gardée, ISO 83021991. (1991).
- [47] Standard Test Method for Thermal Conductivity and Thermal Diffusivity by Modulated Temperature Differential Scanning Calorimetry, ASTM E1952-11. (2011).
- [48] L. Piraux, J.-P. Issi, P. Coopmans, Apparatus for thermal conductivity measurements on thin fibres, *Measurement.* 5 (1987) 6–9.
- [49] X. Zhang, S. Fujiwara, M. Fujii, Measurements of Thermal Conductivity and Electrical Conductivity of a Single Carbon Fiber, (2000) 965–980.
- [50] Z.L. Wang, D.W. Tang, W.G. Zhang, Simultaneous measurements of the thermal conductivity, thermal capacity and thermal diffusivity of an individual carbon fibre, *J. Phys. D. Appl. Phys.* 40 (2007) 4686–4690.
- [51] N.C. Gallego, D.D. Edie, B. Nysten, J.P. Issi, J.W. Treleven, G. V. Deshpande, Thermal conductivity of ribbon-shaped carbon fibers, *Carbon N. Y.* 38 (2000) 1003–1010.
- [52] C. Pradere, J.C. Batsale, J.M. Goyhénèche, R. Pailler, S. Dilhaire, Thermal properties of carbon fibers at very high temperature, *Carbon N. Y.* 47 (2009) 737–743.
- [53] Standard test method for tensile strength and Young's modulus for high-modulus single-filament materials, ASTM D3379-75. (1975).
- [54] Standard test method for tensile properties of single textile fibers, ASTM D3822-96. (1996).
- [55] S. Kawabata, Micromasurement of mechanical properties of single fibers, in: M. Raheel (Ed.), *Mod. Text. Charact. Methods*, Marcel Dek, New York, 1996: pp. 311–328.
- [56] T. Kotani, J. Sweeney, I.M. Ward, The measurement of transverse mechanical properties of

- polymer fibres, *J. Mater. Sci.* 29 (1994) 5551–5558.
- [57] J. Singletary, H. Davis, Y. Song, M.K. Ramasubramanian, W. Knoff, Transverse compression of PPTA fibers. Part II. Fiber transverse structure, *J. Mater. Sci.* 35 (2000) 583–592.
- [58] M. Cheng, W. Chen, T. Weerasooriya, Experimental investigation of the transverse mechanical properties of a single Kevlar KM2 fiber, *Int. J. Solids Struct.* 41 (2004) 6215–6232.
- [59] M. Cheng, W. Chen, T. Weerasooriya, Mechanical Properties of Kevlar® KM2 Single Fiber, *J. Eng. Mater. Technol.* 127 (2005) 197.
- [60] J. Lim, J.Q. Zheng, K. Masters, W.W. Chen, Mechanical behavior of A265 single fibers, *J. Mater. Sci.* 45 (2010) 652–661.
- [61] M. Bornert, T. Bretheau, P. Gilormini, *Homogénéisation en mécanique des matériaux, Tome 1: Matériaux aléatoires élastiques et milieux périodiques*, (2001).
- [62] J.-L. Auriault, C. Boutin, C. Geindreau, *Homogénéisation de phénomènes couplés en milieux hétérogènes*, Hermès Science Publications, 2009.
- [63] Z. Hashin, S. Shtrikman, A variational approach to the theory of the elastic behaviour of multiphase materials, *J. Mech. Phys. Solids.* 11 (1963) 127–140.
- [64] E. Kroner, Berechnung der Elastischen Konstant des Vielkristalls aus den Konstant des Einkristalls, *Z. Phys.* 151 (1958) 504–518.
- [65] J.D. Eshelby, The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion, and related problems, *Proc. R. Soc. London Ser. A Math. Phys. Sci.* 241 (1957) 376–396.
- [66] J.D. Felske, Effective thermal conductivity of composite spheres in a continuous medium with contact resistance, *Int. J. Heat Mass Transf.* 47 (2004) 3453–3461.
- [67] Z. Hashin, Assessment of the self consistent scheme approximation: conductivity of particulate composites, *J. Compos. Mater.* 2 (1968) 284–300.
- [68] Y. Nawab, F. Jacquemin, P. Casari, N. Boyard, V. Sobotka, Evolution of chemical and thermal curvatures in thermoset-laminated composite plates during the fabrication process, *J. Compos. Mater.* (2012).
- [69] Y. Abou Msallem, F. Jacquemin, A. Poitou, Residual stresses formation during the manufacturing process of epoxy matrix composites: resin yield stress and anisotropic chemical shrinkage, *Int. J. Mater. Form.* 3 (2010) 1363–1372.
- [70] S. Whitaker, Diffusion and dispersion in porous media, *AIChE J.* 13 (1967) 420–427.

- 
- [71] M. Quintard, S. Whitaker, Local Thermal Equilibrium for transient conduction: Theory and comparison with numerical experiments, *Int. J. Heat Mass Transf.* 38 (1995) 2779–2796.
- [72] M. Quintard, M. Kaviany, S. Whitaker, Two-medium treatment of heat transfer in porous media: numerical results for effective properties, *Adv. Water Resour.* 20 (1997) 77–94.
- [73] L.L. Mishnaevsky, S. Schmauder, Continuum Mesomechanical Finite Element Modeling in Materials Development: A State-of-the-Art Review, *Appl. Mech. Rev.* 54 (2001) 49.
- [74] R.A. Naik, Analysis of woven and braided fabric reinforced composites, Hampton, Virginia, 1994.
- [75] R.A. Naik, *TEXCAD-Textile Composite Analysis for Design Version 1.0 User's Manual*, Hampton, Virginia, 1994.
- [76] B.W. Rosen, S.N. Chatterjee, J.J. Kibler, An analysis model for spatially oriented fiber composites, *Compos. Mater. Test. Des. ASTM STP.* 617 (1977) 243–254.
- [77] A. Bensoussan, J.L. Lions, G. Papanikolaou, Asymptotic analysis for periodic structures, North-Holland Publishing Company, Amsterdam - New York - Oxford, 1978.
- [78] E. Sanchez-Palencia, *Non-Homogeneous Media And Vibration Theory*, Springer-Verlag, 1980.
- [79] J.S. Hubert, E.S. Palencia, *Introduction aux méthodes asymptotiques et à l'homogénéisation: application à la mécanique des milieux continus*, Masson, 1992.
- [80] Y. Davit, C.G. Bell, H.M. Byrne, L.A.C. Chapman, L.S. Kimpton, G.E. Lang, et al., Homogenization via formal multiscale asymptotics and volume averaging: How do the two techniques compare?, *Adv. Water Resour.* 62 (2013) 178–206.
- [81] J.-P. Vassal, *Contribution à la modélisation des propriétés physiques et rhéologiques des milieux fibreux application à la mise en forme et aux propriétés thermiques des matériaux composites à fibres courtes*, Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble, France, 2007.
- [82] Z. Abdessamad, S. Meliani, G. Panasenko, L. Paoli, Study of a thermo-chemical model of formation of a composite material, in: *Eur. Congr. Comput. Methods Appl. Sci. Eng.*, 2004: pp. 1–5.
- [83] S. Meliani, L. Paoli, Homogenization of a model of cure process for composites, *Nonlinear Anal.* 56 (2004) 385–413.
- [84] S. Meliani, L. Paoli, Numerical analysis of a model of cure process for composites, *Math.*

- Methods Appl. Sci. 30 (2007) 449–478.
- [85] P.W. Chung, K.K. Tamma, R.R. Namburu, Asymptotic expansion homogenization for heterogeneous media: Computational issues and applications, *Compos. - Part A Appl. Sci. Manuf.* 32 (2001) 1291–1301.
- [86] A. Dasgupta, R.K. Agarwal, S.M. Bhandarkar, Three-dimensional modeling of woven-fabric composites for effective thermo-mechanical and thermal properties, *Compos. Sci. Technol.* 56 (1996) 209–223.
- [87] J. Pinho-da-Cruz, J.A. Oliveira, F. Teixeira-Dias, Asymptotic homogenisation in linear elasticity. Part I: Mathematical formulation and finite element modelling, *Comput. Mater. Sci.* 45 (2009) 1073–1080.
- [88] H.T. Hahn, Residual stresses in polymer matrix composite laminates, *Adv. Eng. Sci. 13th Annu. Meet. Soc. Eng. Sci.* 10 (1976) 193–199.
- [89] W.J. Jun, C.S. Hong, Cured Shape of Unsymmetric Laminates with Arbitrary Lay-Up Angles, *J. Reinf. Plast. Compos.* 11 (1992) 1352–1366.
- [90] L.J.B. Peeters, P.C. Powell, L. Warnet, Thermally-Induced Shapes of Unsymmetric Laminates, *J. Compos. Mater.* 30 (1996) 603–624.
- [91] M.-L. Dano, M.W. Hyer, Thermally-induced deformation behavior of unsymmetric laminates, *Int. J. Solids Struct.* 35 (1998) 2101–2120.
- [92] T.A. Osswald, A Finite Element Analysis of the Thermomechanical Behavior of Fiber Reinforced Composites, *J. Thermoplast. Compos. Mater.* 4 (1991) 173–189.
- [93] S.-C. Tseng, T.A. Osswald, Predicting shrinkage and warpage of fiber-reinforced composite parts, *Polym. Compos.* 15 (1994) 270–277.
- [94] K.S. Kim, H.T. Hahn, Residual stress development during processing of graphite/epoxy composites, *Compos. Sci. Technol.* 36 (1989) 121–132.
- [95] S.R. White, H.T. Hahn, Process Modeling of Composite Materials: Residual Stress Development during Cure. Part II. Experimental Validation, *J. Compos. Mater.* 26 (1992) 2423–2453.
- [96] Y.K. Kim, S.R. White, Viscoelastic analysis of processing-induced residual stresses in thick composite laminates, *Mech. Compos. Mater. Struct. An Int. J.* 4 (1997) 361–387.
- [97] S.R. White, Y.K. Kim, Process-induced residual stress analysis of AS4/3501-6 composite material, *Mech. Compos. Mater. Struct. an Int. J.* 5 (1998) 153–186.

- 
- [98] X. Huang, J. John W. Gillespie, T. Bogetti, J.W. Gillespie, Process induced stress for woven fabric thick section composite structures, *Compos. Struct.* 49 (2000) 303–312.
- [99] R. Hill, Theory of mechanical properties of fibre-strengthened materials - III. Self-consistent model, *J. Mech. Phys. Solids*. 13 (1965) 189–198.
- [100] J.M. Svanberg, J.A. Holmberg, Prediction of shape distortions Part I. FE-implementation of a path dependent constitutive model, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 35 (2004) 711–721.
- [101] J.-L. Bailleul, Optimisation du cycle de cuisson des pièces épaisses en matériau composite. Application à un préimprégné résine époxyde/fibres de verre, Thèse de doctorat, Université de Nantes, 1997.
- [102] A. Amosov, I. Kostin, G. Panasenko, V.P. Smyshlyaev, Homogenization of a thermo-chemo-viscoelastic Kelvin-Voigt model, *J. Math. Phys.* 54 (2013) 081501.
- [103] M. Thomas, Propriétés thermiques de matériaux composites: caractérisation expérimentale et approche microstructurale, Thèse de doctorat, Université de Nantes, 2008.
- [104] M. Villiere, Analyse des transferts de chaleur couplés à la saturation pendant l'imprégnation d'un renfort fibreux, Thèse de doctorat, Université de Nantes, 2013.
- [105] S. Yi, H.H. Hilton, Effects of thermo-mechanical properties of composites on viscosity, temperature and degree of cure in thick thermosetting composite laminates during curing process, *J. Compos. Mater.* 32 (1998) 600–622.
- [106] Plastiques thermodurcissables renforcés au verre textile - Caractéristiques et méthodes d'essai, ISO 4899:1993. (1993).
- [107] Standard Test Method for Tensile Properties of Polymer Matrix Composite Materials, ASTM D3039. (2014).
- [108] Plastiques - Détermination des propriétés en compression, ISO 6042:2002. (2002).
- [109] Standard Test Method for Compressive Properties of Polymer Matrix Composite Materials Using a Combined Loading Compression (CLC) Test Fixture, ASTM D6641. (2014).
- [110] Composites plastiques renforcés de fibres - Détermination des propriétés de flexion, ISO 14125:1998. (1998).
- [111] Standard Test Method for Flexural Properties of Polymer Matrix Composite Materials, ASTM D7264. (2015).
- [112] J. Jakobsen, M. Jensen, J.H. Andreasen, Thermo-mechanical characterisation of in-plane

- properties for CSM E-glass epoxy polymer composite materials – Part 2: Young's modulus, *Polym. Test.* 32 (2013) 1417–1422.
- [113] A.A. Johnston, An integrated model of the development of process-induced deformation in autoclave processing of composite structures, University of British Columbia, 1997.
- [114] N. Ersoy, T. Garstka, K. Potter, M.R. Wisnom, D. Porter, M. Clegg, et al., Development of the properties of a carbon fibre reinforced thermosetting composite through cure, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 41 (2010) 401–409.
- [115] Plastiques - Analyse thermomécanique (TMA) - Partie 2: Détermination du coefficient de dilatation thermique linéique et de la température de transition vitreuse, ISO 11359-2:1999. (1999).
- [116] Standard Test Method for Linear Thermal Expansion of Solid Materials With a Push-Rod Dilatometer, ASTM E228 - 11. (2011).
- [117] Standard Test Method for Linear Thermal Expansion of Solid Materials by Thermomechanical Analysis, ASTM E831 - 14. (2014).
- [118] K.F. Rogers, L.N. Phillips, D.M. Kingston-Lee, B. Yates, M.J. Overy, J.P. Sargent, et al., The thermal expansion of carbon fibre-reinforced plastics - Part 1 The influence of fibre type and orientation, *J. Mater. Sci.* 12 (1977) 718–734.
- [119] B. Yates, M.J. Overy, J.P. Sargent, B.A. McCalla, D.M. Kingston-Lee, L.N. Phillips, et al., The thermal expansion of carbon fibre-reinforced plastics Part 2 The influence of matrix curing characteristics, *J. Mater. Sci.* 13 (1978) 433–440.
- [120] T. Garstka, N. Ersoy, K.D. Potter, M.R. Wisnom, In situ measurements of through-the-thickness strains during processing of AS4/8552 composite, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 38 (2007) 2517–2526.
- [121] P.A. Olivier, A note upon the development of residual curing strains in carbon/epoxy laminates. Study by thermomechanical analysis, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 37 (2006) 602–616.
- [122] Y. Nawab, F. Jacquemin, P. Casari, N. Boyard, Y. Borjon-Piron, V. Sobotka, Study of variation of thermal expansion coefficients in carbon/epoxy laminated composite plates, *Compos. Part B Eng.* 50 (2013) 144–149.
- [123] J.D. Russell, Cure shrinkage of thermoset composites, *SAMPE Q. (Society Aerosp. Mater. Process Eng. States)*. 24 (1993).
- [124] M. Sadeghinia, K.M.B. Jansen, L.J. Ernst, Characterization and modeling the thermo-mechanical cure-dependent properties of epoxy molding compound, *Int. J. Adhes. Adhes.* 32 (2012) 82–88.

- 
- [125] C. Li, K. Potter, M.R. Wisnom, G. Stringer, In-situ measurement of chemical shrinkage of MY750 epoxy resin by a novel gravimetric method, *Compos. Sci. Technol.* 64 (2004) 55–64.
- [126] A. Millischer, D. Delaunay, Experimental and Numerical Analysis of Heat Transfer in Bulk Molding Compound Injection Process, *J. Reinf. Plast. Compos.* 20 (2001) 495–512.
- [127] N. Boyard, a. Millischer, V. Sobotka, J.L. Bailleul, D. Delaunay, Behaviour of a moulded composite part: Modelling of dilatometric curve (constant pressure) or pressure (constant volume) with temperature and conversion degree gradients, *Compos. Sci. Technol.* 67 (2007) 943–954.
- [128] P. Prasatya, G.B. McKenna, S.L. Simon, A Viscoelastic Model for Predicting Isotropic Residual Stresses in Thermosetting Materials: Effects of Processing Parameters, *J. Compos. Mater.* 35 (2001) 826–848.
- [129] M. Holst, K. Schanzlin, M. Wenzel, J. Xu, D. Lellinger, I. Alig, Time-resolved method for the measurement of volume changes during polymerization, *J. Polym. Sci. Part B Polym. Phys.* 43 (2005) 2314–2325.
- [130] S.R. White, H.T. Hahn, Process Modeling of Composite Materials: Residual Stress Development during Cure. Part I. Model Formulation, *J. Compos. Mater.* 26 (1992) 2402–2422.
- [131] I.M. Daniel, T.-M. Wang, D. Karalekas, J.T. Gotro, Determination of chemical cure shrinkage in composite laminates, *J. Compos. Technol. Res.* 12 (1990) 172–176.
- [132] P.G. Ifju, B.C. Kilday, X. Niu, S.-C. Liu, A novel method to measure residual stresses in laminated composites, *J. Compos. Mater.* 33 (1999) 1511–1524.
- [133] G. Hu, J.-E. Luan, S. Chew, Characterization of Chemical Cure Shrinkage of Epoxy Molding Compound With Application to Warpage Analysis, *J. Electron. Packag.* 131 (2009) 1–6.
- [134] K. Oota, M. Saka, Cure shrinkage analysis of epoxy molding compound, *Polym. Eng. Sci.* 41 (2001) 1373–1379.
- [135] A.S. Crasto, R.Y. Kim, J.D. Russell, In situ monitoring of residual strain development during composite cure, *Polym. Compos.* 23 (2002).
- [136] Y.K. Kim, Process-induced residual stress analysis by resin transfer molding, *J. Compos. Mater.* 38 (2004) 959–972.
- [137] C.M. Lawrence, D. V. Nelson, T.E. Bennett, J.R. Spingarn, An embedded fiber optic sensor method for determining residual stresses in fiber-reinforced composite materials, *J. Intell. Mater. Syst. Struct.* 9 (1998) 788–799.

- [138] J.S. Leng, A. Asundi, Real-time cure monitoring of smart composite materials using extrinsic Fabry-Perot interferometer and fiber Bragg grating sensors, *Smart Mater. Struct.* 11 (2002) 249–255.
- [139] V. Dewynter-Marty, P. Ferdinand, E. Bocherens, R. Carbone, H. Beranger, S. Bourasseau, et al., Embedded fiber Bragg grating sensors for industrial composite cure monitoring, *J. Intell. Mater. Syst. Struct.* 9 (1998) 785–787.
- [140] E. Chehura, A.A. Skordos, C.-C. Ye, S.W. James, I.K. Partridge, R.P. Tatam, Strain development in curing epoxy resin and glass fibre/epoxy composites monitored by fibre Bragg grating sensors in birefringent optical fibre, *Smart Mater. Struct.* 14 (2005) 354.
- [141] R. Montanini, L. D’Acquisto, Simultaneous measurement of temperature and strain in glass fiber/epoxy composites by embedded fiber optic sensors: II. Post-cure testing, *Smart Mater. Struct.* 16 (2007) 1727–1735.
- [142] M. Mulle, R. Zitoune, F. Collombet, P. Olivier, Y.H. Grunevald, Thermal expansion of carbon-epoxy laminates measured with embedded FBGS - Comparison with other experimental techniques and numerical simulation, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 38 (2007) 1414–1424.
- [143] H. Hernández-Moreno, F. Collombet, B. Douchin, D. Choqueuse, P. Davies, J.L. González Velázquez, Entire life time monitoring of filament wound composite cylinders using Bragg grating sensors: II. Process monitoring, *Appl. Compos. Mater.* 16 (2009) 197–209.
- [144] M. Mulle, F. Collombet, P. Olivier, Y.H. Grunevald, Assessment of cure residual strains through the thickness of carbon-epoxy laminates using FBGs, Part I: Elementary specimen, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 40 (2009) 94–104.
- [145] S. Minakuchi, In situ characterization of direction-dependent cure-induced shrinkage in thermoset composite laminates with fiber-optic sensors embedded in through-thickness and in-plane directions, *J. Compos. Mater.* (2014) 0021998314528735–.
- [146] A.L. Kalamkarov, S.B. Fitzgerald, D.O. MacDonald, Use of Fabry Perot fiber optic sensors to monitor residual strains during pultrusion of FRP composites, *Compos. Part B Eng.* 30 (1999) 167–175.
- [147] H.-K. Kang, D.-H. Kang, H.-J. Bang, C.-S. Hong, C.-G. Kim, Cure monitoring of composite laminates using fiber optic sensors, *Smart Mater. Struct.* 11 (2002) 279–287.
- [148] H.-K. Kang, D.-H. Kang, C.-S. Hong, C.-G. Kim, Simultaneous monitoring of strain and temperature during and after cure of unsymmetric composite laminate using fibre-optic sensors, *Smart Mater. Struct.* 12 (2003) 29–35.
- [149] K. Takagaki, S. Minakuchi, N. Takeda, Fiber-optic-based life-cycle monitoring of through-thickness strain in thick CFRP pipes, *Adv. Compos. Mater.* 23 (2014) 195–209.

- [150] J. Jakobsen, M. Jensen, J.H. Andreasen, Thermo-mechanical characterisation of in-plane properties for CSM E-glass epoxy polymer composite materials – Part 1: Thermal and chemical strain, *Polym. Test.* 32 (2013) 1350–1357.
- [151] N. Ersoy, M. Tugutlu, Cure kinetics modeling and cure shrinkage behavior of a thermosetting composite, *Polym. Eng. Sci.* 50 (2010) 84–92.
- [152] Y. Nawab, P. Casari, N. Boyard, V. Sobotka, F. Jacquemin, In situ characterization of in-plane chemical shrinkage of thermoset laminated composites using a simple setup, *J. Reinf. Plast. Compos.* (2015).



# CHAPITRE 2

## MESURE DU MODULE DE COMPRESSIBILITE DE LA RESINE AU COURS DE LA TRANSFORMATION

La mesure du module de compressibilité de la résine au cours de la transformation à l'aide du dispositif PvT $\alpha$  est discutée dans ce chapitre. Plusieurs hypothèses ont été posées dans la méthode directe de détermination de cette propriété mais ne peuvent être vérifiées expérimentalement. Un modèle multiphysique prenant en compte les différents constituants du dispositif est proposé. Ce modèle est validé à l'aide de résultats expérimentaux. Son exploitation permet ensuite de vérifier les hypothèses expérimentales et d'estimer l'erreur commise sur l'identification du module. La présence de gradients de température et d'avancement dans l'échantillon semble être la source principale d'erreur.

### TABLE DES MATIERES

2.1	Introduction .....	57
2.2	Le dispositif PvT $\alpha$ .....	58
2.2.1	Description du dispositif.....	58
2.2.2	Utilisation conventionnelle.....	59
2.2.3	Utilisation en cycles de pression .....	59
2.2.4	Hypothèses posées.....	60
2.3	Caractérisation mécanique de l'élastomère.....	60
2.3.1	Module de Young .....	60
2.3.2	Module de compressibilité .....	61
2.4	Simplification géométrique et introduction au modèle .....	64
2.5	Modélisation thermo-chimique .....	65
2.5.1	Description du modèle.....	65
2.5.2	Résolution du problème.....	66
2.5.2.1	Formulation faible .....	66
2.5.2.2	Discrétisation.....	67
2.5.2.3	Schéma temporel .....	68
2.5.2.4	Résolution.....	68

2.6	Modélisation mécanique.....	69
2.6.1	Modélisation mécanique de la capsule .....	69
2.6.1.1	Présentation du modèle.....	69
2.6.1.2	Formulation faible .....	70
2.6.1.3	Discrétisation et écriture matricielle.....	71
2.6.2	Modélisation mécanique de l'échantillon .....	73
2.6.2.1	Le modèle retenu .....	73
2.6.2.2	Adaptation à la formulation mixte.....	74
2.6.2.3	Formulation faible .....	75
2.6.2.4	Discrétisation et écriture matricielle.....	76
2.7	Modélisation du contact entre la capsule et l'échantillon .....	76
2.7.1	Contact parfait collant entre les deux solides .....	77
2.7.2	Traitement du décollement .....	78
2.8	Schéma de l'algorithme de résolution du problème global.....	79
2.9	Matériaux et méthode .....	80
2.9.1	L'élastomère.....	80
2.9.2	La résine RTM6.....	80
2.9.2.1	Propriétés thermo-chimiques .....	80
2.9.2.2	Propriétés thermo-chimio-mécaniques .....	81
2.9.3	Protocole.....	83
2.10	Validation du modèle .....	83
2.10.1	Convergence en maillage et en temps .....	83
2.10.2	Comportement thermo-mécanique de l'élastomère .....	86
2.10.3	Evolution du volume de l'échantillon .....	87
2.10.4	Densités de flux de chaleur pendant la réticulation .....	88
2.10.5	Profil latéral de l'échantillon.....	88
2.11	Application à la mesure du module de compressibilité de la résine.....	89
2.11.1	Etat de contraintes autour de l'échantillon.....	89
2.11.2	Vérification de la première hypothèse.....	90
2.11.3	Comportements en cycle de pression .....	92
2.11.4	Méthode de détermination du module de compressibilité.....	94
2.11.5	Application aux résultats des expériences numériques .....	96
2.11.6	Discussions .....	99
2.12	Prise en compte du glissement entre la capsule et l'échantillon .....	101
2.13	Conclusion.....	104
	Bibliographie .....	106

## 2.1 INTRODUCTION

La caractérisation des résines thermodurcissables est essentielle à la compréhension des phénomènes ayant lieu durant et/ou après la mise en forme des matériaux composites. De nombreux dispositifs permettent de déterminer les propriétés thermiques, thermo-mécaniques, ainsi que la cinétique de réticulation de ces résines. Les mesures de ces différentes propriétés font appel à plusieurs appareils, ceux-ci n'opérant pas toujours dans les mêmes conditions. De plus, ces conditions ne sont pas toujours représentatives de celles retrouvées pendant la mise en forme de la résine. Il apparaît comme nécessaire de pouvoir caractériser ces différentes propriétés dans les mêmes conditions et en ayant recours à un nombre minimum de dispositifs de mesure.

Afin de répondre en partie à ce besoin, le dispositif de mesure PvT $\alpha$  présente l'intérêt de permettre la caractérisation simultanée de plusieurs propriétés de la résine au cours de et/ou après sa réticulation et ce dans des conditions proches de celles rencontrées dans l'industrie. Cependant, comme annoncé dans le chapitre précédent, les mesures effectuées sur ce dispositif se basent sur plusieurs hypothèses quant au fonctionnement de l'appareil, hypothèses qu'il n'est malheureusement pas possible de vérifier *in situ*.

En plus de ce premier constat, de nombreux modèles ont été développés afin de comprendre les phénomènes ayant lieu durant la réticulation de l'échantillon. Néanmoins, aucun ne prend en compte le comportement thermo-mécanique complet de la capsule. La modélisation complète de l'échantillon et de la capsule le contenant semble donc obligatoire afin de vérifier les hypothèses posées et valider ainsi les différentes mesures réalisées à l'aide de ce dispositif.

Afin de répondre à cette problématique, une modélisation complète de l'échantillon et de la capsule et des interactions entre ces deux constituants est envisagée. Dans un premier temps, le principe du PvT $\alpha$  est rappelé et les méthodes d'utilisation de ce dispositif présentées. La caractérisation des propriétés mécaniques de l'élastomère est ensuite abordée, permettant de définir le modèle mécanique adapté à la capsule. Un modèle multiphysique du comportement de la capsule et de l'échantillon dans la cavité moulante est enfin développé, traitant de la modélisation thermochimique et mécanique de chaque composant ainsi que du contact mécanique entre ces deux derniers. La formulation faible et la discrétisation de ce modèle sont également présentées, en vue de les résoudre à l'aide de la méthode des éléments finis.

La validation de ce modèle est nécessaire afin d'être sûr qu'il soit représentatif du comportement réel du dispositif durant un essai. Les matériaux et méthodes utilisés pour valider le modèle sont présentés puis caractérisés avec le dispositif PvT $\alpha$ . La validation est réalisée en comparant les résultats expérimentaux issus de deux essais aux résultats numériques. Le modèle est, par la suite, exploité afin de vérifier les différentes hypothèses posées. Il est enfin appliqué à la mesure du module de compressibilité de la résine, ce qui permet de déterminer l'erreur faite sur son estimation expérimentale.

Tous ces travaux sont réalisés en considérant un contact parfait entre la capsule et l'échantillon. La dernière partie de ce chapitre propose de prendre en compte le glissement entre les surfaces au niveau de l'interface de contact entre la capsule et l'échantillon.

## 2.2 LE DISPOSITIF PvT $\alpha$

### 2.2.1 DESCRIPTION DU DISPOSITIF

Le PvT $\alpha$  [1–9] est un dispositif de caractérisation des résines thermodurcissables et des composites associés durant et/ou après leur cuisson. Il a commencé à être développé au LTN il y a de cela 15 ans. En un seul essai, il permet de déterminer simultanément différentes grandeurs physiques dans l'échantillon, à savoir la température, les variations de volume ainsi que l'avancement de la réaction et ce, sous une pression donnée. Généralement, l'échantillon consiste en un cylindre de 42mm de diamètre et de quelques millimètres d'épaisseur. L'intérêt d'un tel dispositif est de pouvoir appliquer des conditions proches de celles de la mise en forme classique retrouvées dans l'industrie, c'est à dire de "hautes" pressions (jusque 10MPa) et des températures jusqu'à 200°C. Le moule consiste en un piston d'acier (Figure 2.1) pouvant se déplacer dans une cavité moulante cylindrique en acier elle aussi, dont le diamètre interne est de 50mm.

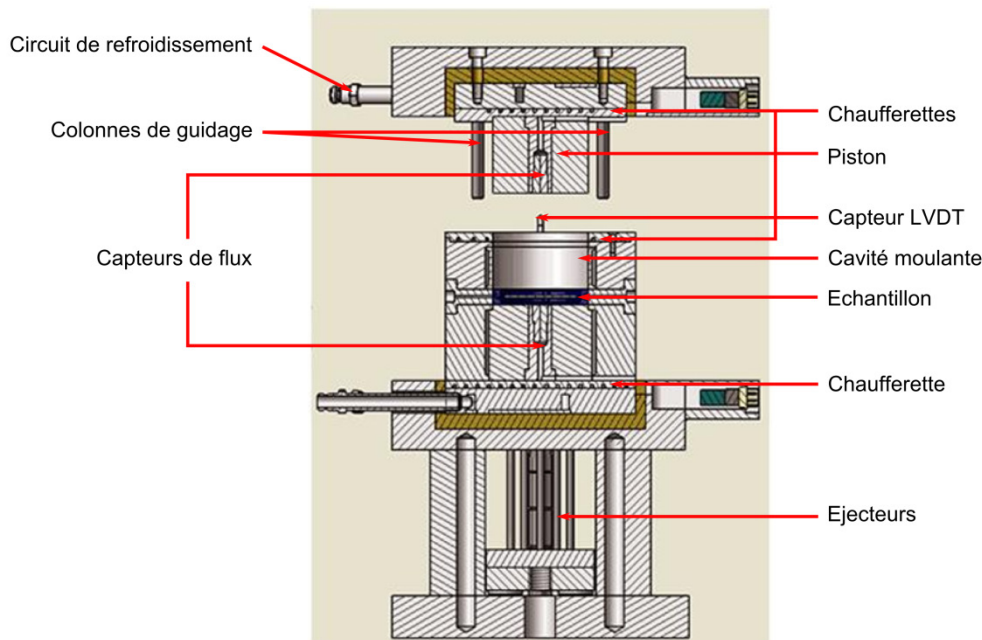


Figure 2.1: Vue en coupe du PvT $\alpha$

Il a été conçu de manière à ce que les transferts thermiques soient 1D dans l'épaisseur de l'échantillon. Le contrôle thermique du moule est réalisé à l'aide de chauffernettes électriques placées dans le haut du piston ainsi que dans le haut et dans le bas de la cavité moulante. Le refroidissement est assuré à l'aide d'une circulation d'air comprimé autour de la cavité moulante et dans le piston. Le dispositif est placé entre les plateaux d'une presse électrique, de façon à ce que la position du piston puisse être contrôlée en temps réel afin d'appliquer la pression désirée. Deux capteurs de flux non intrusifs [10] sont placés de part et d'autre de l'échantillon, l'un dans le piston et l'autre dans le fond de la cavité moulante. Le traitement des informations données par ces capteurs est réalisé à l'aide d'un algorithme séquentiel de Beck [11] et permet d'obtenir la densité de flux échangée entre l'échantillon et le moule ainsi que la température en surface du piston et de la cavité moulante. L'échantillon est placé dans une capsule en élastomère de faible module de cisaillement (Figure 2.2) afin d'éviter les fuites de résine et donc le grippage du moule. L'injection de la résine à l'intérieur de la capsule est réalisée à l'aide de seringues et

d'un tirage au vide afin d'éviter les bulles d'air dans l'échantillon. La capsule est ensuite placée dans la cavité et le moule refermé.

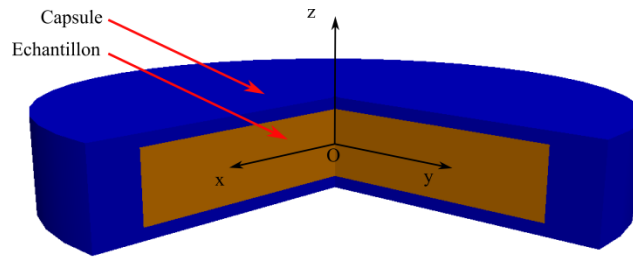


Figure 2.2: Vue en coupe de l'échantillon placé dans la capsule

Durant un essai, un cycle de température est imposé et le piston se déplace en suivant les variations de volume de l'échantillon car il travaille à pression imposée. Les déplacements du piston sont enregistrés à l'aide d'un capteur LVDT, avec une précision de l'ordre de  $1\mu\text{m}$  et sur une amplitude maximale de  $10\text{mm}$ .

### 2.2.2 UTILISATION CONVENTIONNELLE

Le dispositif PvT $\alpha$  est communément utilisé sous pression constante. L'une des hypothèses majeures lors de l'exploitation des mesures est que la capsule contenant l'échantillon est déformable mais quasi-incompressible. La pression autour de l'échantillon est alors considérée comme hydrostatique. Ainsi, elle agit comme un fluide parfait quasi-incompressible. La variation d'épaisseur mesurée par le capteur LVDT comprend alors la variation de volume de l'échantillon et celle de la capsule, ainsi que la dilatation thermique du moule. Afin de soustraire les contributions du moule  $V_{moule}$  et de la capsule  $V_c$  de la mesure totale, une ligne de base est réalisée après l'essai initial sur la même capsule contenant un échantillon d'aluminium dont les propriétés sont connues. On obtient une estimation  $\tilde{V}_e$  du volume réel de l'échantillon  $V_e$  à partir du volume total  $V_t$ , du volume de la ligne de base  $V_{LdB}$  et du volume estimé de l'échantillon d'aluminium  $\tilde{V}_{alu}$ .

$$\begin{aligned} V_t &= V_e + V_c + V_{moule} \\ V_{LdB} &= V_c + V_{alu} + V_{moule} \\ \tilde{V}_e &= V_t - V_{LdB} + \tilde{V}_{alu} \end{aligned}$$

Si l'on considère que le volume d'aluminium estimé est exactement le même que le volume d'aluminium réel, on obtient alors simplement:

$$\tilde{V}_e = V_t - V_c - V_{moule} = V_e$$

Cette évolution de volume permet, en connaissant les variations de température et d'avancement de la réaction, de déterminer les coefficients de dilatation thermique et de retrait chimique de la résine.

### 2.2.3 UTILISATION EN CYCLES DE PRESSION

Dans une étude récente [6], Nawab et al. proposent d'utiliser le PvT $\alpha$  en imposant une condition de pression cyclique sur un échantillon de résine pure afin de déterminer l'évolution du module de compressibilité de celle-ci au cours de la réticulation. En posant l'hypothèse que l'état de contrainte

autour de l'échantillon est hydrostatique, et connaissant les variations de volume de l'échantillon durant un cycle de pression, il est possible d'après eux de déterminer l'évolution de ce module.

Le volume de l'échantillon est encore une fois estimé en soustrayant une ligne de base à la mesure totale. La ligne de base n'est cependant pas réalisée sur un échantillon d'aluminium placé dans la capsule initiale mais sur une capsule pleine de silicone identique à celui dont la capsule initiale est composée et dont le volume à température ambiante est le même que celui de la capsule initiale. On a, ainsi:

$$\begin{aligned}V_t &= V_e + V_c + V_{moule} \\V_{LdB} &= \tilde{V}_c + V_{moule} \\ \tilde{V}_e &= V_t - V_{LdB},\end{aligned}$$

où  $\tilde{V}_c$  est le volume de la capsule pleine utilisée pour la ligne de base.

Cette fois-ci, si le comportement de la capsule pleine d'élastomère utilisée pour la ligne de base est le même que celui de la capsule initiale alors les variations de volume estimées sont les mêmes que celles de l'échantillon.

#### 2.2.4 HYPOTHESES POSEES

Plusieurs hypothèses ont été posées dans ces différentes études afin d'exploiter les mesures et en déduire les coefficients de dilatation thermique, de retrait chimique et le module de compressibilité de la résine durant sa transformation. La capsule a toujours été considérée comme suffisamment déformable pour suivre parfaitement les déformations de l'échantillon. Par conséquent, il a toujours été admis qu'aucun vide ou décollement n'est possible entre la capsule et l'échantillon durant tout le cycle de cuisson (Hypothèse 1). La capsule étant jugée comme quasi-incompressible, la pression autour de l'échantillon est considérée comme hydrostatique (Hypothèse 2). Cela permet de directement identifier le module de compressibilité de la résine en connaissant l'incrément de volume correspondant à un incrément de pression. Enfin, puisqu'on estime le volume de l'échantillon à partir du volume total mesuré et d'une ligne de base, l'hypothèse est faite que les évolutions de volume de l'échantillon estimées et réelles sont les mêmes. Cela revient à considérer que les volumes de la capsule initiale et de la capsule pleine utilisée pour la ligne de base sont les mêmes au cours du cycle thermomécanique (Hypothèse 3). Cette hypothèse était vérifiée lors de l'utilisation conventionnelle du PvT $\alpha$  car la capsule utilisée pour l'essai était réutilisée pour la ligne de base. Ce n'est plus le cas lors de l'utilisation en cycles de pression où les deux capsules ne sont plus du tout identiques.

### 2.3 CARACTERISATION MECANIQUE DE L'ELASTOMERE

Avant d'entreprendre une quelconque modélisation de l'élastomère, il apparaît nécessaire d'identifier son comportement mécanique. Pour cela, deux études sont menées, la première permet d'identifier le module de Young du matériau et la seconde le module de compressibilité.

#### 2.3.1 MODULE DE YOUNG

Afin de caractériser le module de Young de l'élastomère, plusieurs méthodes peuvent être utilisées, dont notamment les essais de traction ou de compression à l'aide d'une machine adaptée. La machine à disposition est une machine d'essais de fatigue électrique Instron ElectroPuls E10000. Sa course étant

de seulement 60mm, elle n'est pas vraiment adaptée aux essais de traction sur élastomère, ceux-ci nécessitant généralement une course supérieure à 75mm [12] afin que les résultats soient exploitables. Elle est en revanche bien adaptée aux essais de compression simple.

Les échantillons réalisés pour ces essais de compression suivent la norme ASTM D575 [13]. Il s'agit de cylindres d'élastomère de 28mm de diamètre pour 13mm d'épaisseur. Les échantillons sont préparés dans les mêmes conditions que la capsule, c'est à dire cuits à 180°C pendant 20 minutes dans un moule en acier puis post-cuits dans une étuve à 200°C pendant 3 heures. Ces échantillons sont ensuite placés entre deux plateaux de compression montés sur la machine de fatigue. Ceux-ci sont lubrifiés à l'aide d'huile silicone afin d'éviter tout cisaillement et de garantir la mesure du module de Young. Chaque échantillon est alors précomprimé et sollicité en déplacement sinusoïdal d'une amplitude de 1mm. Plusieurs fréquences de sollicitations sont appliquées, allant de 0.03 à 10 Hz. Pour chaque fréquence, 20 cycles de chargement sont réalisés afin d'assurer une répétabilité de la réponse des échantillons. Le module d'élasticité dynamique du matériau est alors estimé en analysant la réponse en contrainte du matériau. L'évolution de ce module avec la fréquence de sollicitation est donnée en Figure 2.3.

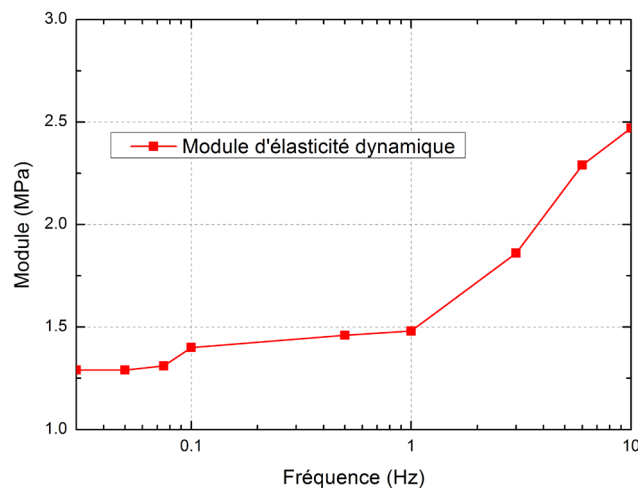


Figure 2.3: Evolution du module dynamique de l'élastomère avec la fréquence de sollicitation

On observe alors que le module augmente avec la fréquence, et que lorsque la fréquence tend vers 0, le module tend vers une valeur de 1.3 MPa. Les essais réalisés sur le PvT $\alpha$  étant effectués sous des chargements quasi-statiques, on considère que le module de Young de l'élastomère est égal au module d'élasticité dynamique lorsque la fréquence tend vers 0. On a donc :

$$E_c = 1.3 \text{ MPa} ,$$

où  $E_c$  est le module de Young de l'élastomère à 25°C.

### 2.3.2 MODULE DE COMPRESSIBILITE

En utilisant les mêmes échantillons que pour l'étude précédente, il est également possible de caractériser le module de compressibilité  $K_c$  de l'élastomère. Les échantillons sont alors placés dans une cavité en acier de même diamètre intérieur que celui des échantillons et comprimés à l'aide d'un piston. Une fine rainure est usinée sur le côté du piston afin que l'air piégé entre celui-ci et l'échantillon puisse s'échapper et n'interfère pas avec la mesure.

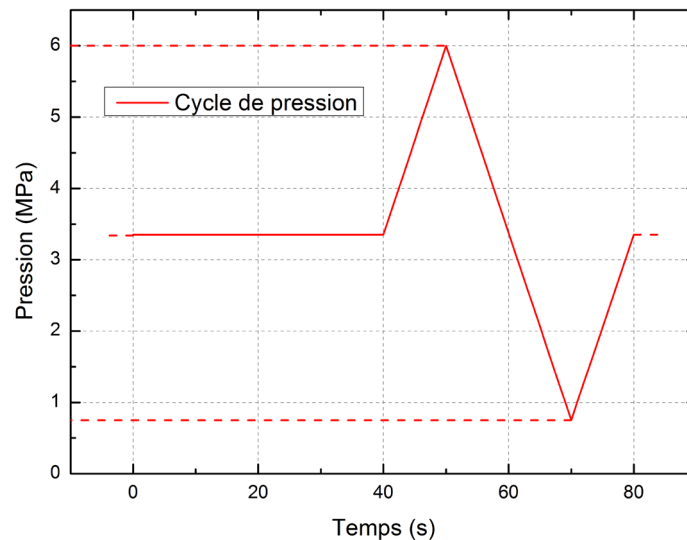
L'échantillon étant confiné dans la cavité, on considère qu'il subit un état de contraintes hydrostatique, les frottements étant négligés. Ses variations de volume  $\Delta V$  sont alors directement reliées aux variations de pression  $\Delta P$  par le biais du module de compressibilité  $K_c$  et on a :

$$K_c = -V_0 \frac{\Delta P}{\Delta V},$$

où  $V_0$  est le volume initial de l'échantillon.

Un effort de compression est progressivement appliqué à l'échantillon et ses variations de volume mesurées. Les essais réalisés sur 5 échantillons différents sur une gamme de pression allant de 0 à 13 MPa permettent alors d'obtenir un module moyen  $K_c$  de  $520 \pm 9$  MPa.

Afin de déterminer l'évolution du module de compressibilité de l'élastomère avec la température, on effectue une seconde caractérisation à l'aide du dispositif PvT $\alpha$ , utilisé en cycle de pression, comme proposé dans [6] mais avec une capsule pleine. Cette fois-ci, les échantillons sont des cylindres de 25mm de rayon et de 8mm d'épaisseur. Ils sont sollicités à l'aide d'un cycle de pression périodique décrit en Figure 2.4 et répété toutes les 80 secondes.



**Figure 2.4: Cycle de pression appliqué afin de caractériser le module de compressibilité de l'élastomère à l'aide du PvT $\alpha$**

Le cycle de température imposé est le suivant:

- Isotherme de 30°C pendant 15 minutes,
- Montée à 180°C à 3K.min<sup>-1</sup>,
- Palier isotherme pendant 20 minutes,
- Refroidissement à la température ambiante à 3K.min<sup>-1</sup>.

En effectuant le même traitement que précédemment à chaque incrément de pression, on obtient l'évolution du module de compressibilité de l'élastomère en fonction de la température (Figure 2.5). On ne se concentre que sur la montée en température de l'élastomère, le comportement de la capsule durant le refroidissement n'étant pas parfaitement identique. En effet, la lubrification de l'échantillon est assurée à l'aide d'huile silicone. Malheureusement, celle-ci diffuse dans l'élastomère et cette diffusion est favorisée par l'élévation de température. La lubrification est assurée durant le chauffage mais probablement pas aussi bien durant le refroidissement, une grande partie de l'huile à l'interface

entre l'échantillon et le moule ayant diffusé dans le matériau. Les conditions de réalisation de l'essai n'étant pas les mêmes, on ne considère pas cette partie du cycle de température.

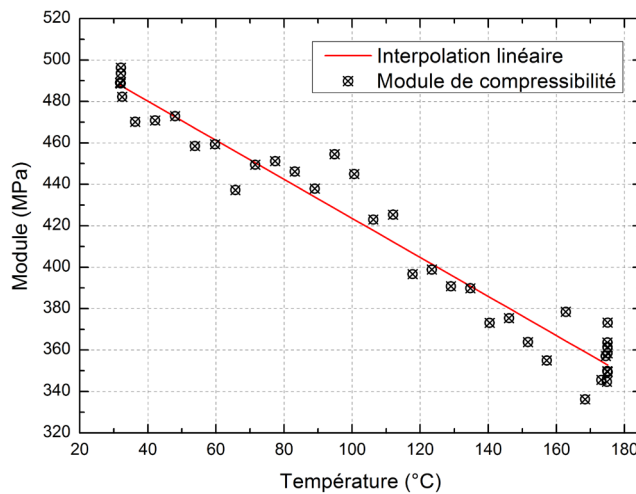


Figure 2.5: Evolution du module de compressibilité de l'élastomère avec la température

Le module de compressibilité de l'élastomère diminue avec la température, comportement que l'on retrouve classiquement pour les élastomères. Il est possible de tracer une évolution moyenne du module de compressibilité de l'élastomère avec la température à l'aide d'une loi linéaire. On obtient:

$$K_c(T) = K_c^0 + K_c^1(T - 273),$$

avec  $K_c^0 = 517$  MPa et  $K_c^1 = -0.94$  MPa.K<sup>-1</sup>. La valeur du module issue de ce modèle à la température de 20°C est de  $498 \pm 14$  MPa. Cette valeur est en accord avec celle déterminée à l'aide de la première méthode, les écarts pouvant être attribués aux difficultés rencontrées pour mesurer précisément le volume initial d'un échantillon d'élastomère.

A partir de l'identification de ces deux modules, on choisit alors de modéliser le comportement mécanique de l'élastomère en ne considérant qu'un comportement purement élastique.

En utilisant les relations issues de l'élasticité linéaire on peut, à partir du module de Young  $E_c$  et du module de compressibilité  $K_c$ , obtenir le module de cisaillement  $\mu_c$  et le coefficient de Poisson  $\nu_c$  du matériau. On obtient ainsi:

$$\mu_c = \frac{3K_c E_c}{9K_c - E_c}$$

$$\nu_c = \frac{3K_c - E_c}{6K_c}$$

A 20°C, on a  $\mu_c = 0.43$  MPa et  $\nu_c = 0.4993$ .

L'influence de la température sur le module de Young n'a malheureusement pas pu être caractérisée. Celui-ci est donc considéré comme constant et la dépendance en température des propriétés mécaniques est donnée par l'évolution du module de compressibilité avec la température.

## 2.4 SIMPLIFICATION GEOMETRIQUE ET INTRODUCTION AU MODELE

Afin de modéliser le dispositif, il est essentiel de capturer les états thermique, chimique et mécanique de l'échantillon, les états thermique et mécanique de la capsule ainsi que les interactions mécaniques entre l'échantillon, la capsule et le moule. Il a déjà été montré auparavant [7] que les gradients de température n'étaient pas négligeables et devaient être considérés lors de l'analyse des mesures, de par la présence de forts et rapides phénomènes exothermiques induits par la réaction chimique de la résine. On considérera alors les volumes de l'échantillon et de la capsule. La géométrie du problème (Figure 2.6a) et les conditions aux limites permettent de simplifier le problème. Celui-ci présente en effet un plan de symétrie ( $xOy$ ) ainsi qu'un axe vertical de symétrie ( $Oz$ ). Le problème se ramène donc à l'étude de la moitié supérieure de la capsule et de l'échantillon en coordonnées cylindriques (Figure 2.6b).

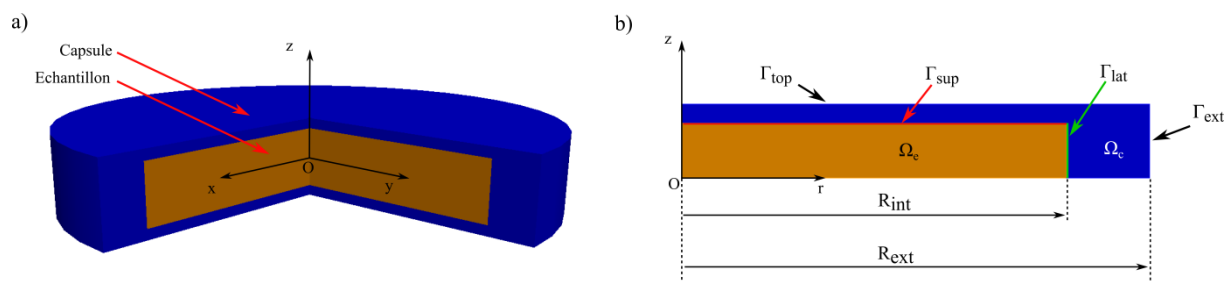


Figure 2.6: a) Géométrie du problème en 3D b) Simplification en 2D axisymétrique

Les déplacements mesurés durant un essai sont relativement faibles, de l'ordre de quelques dizaines de  $\mu\text{m}$ , devant l'épaisseur de l'échantillon, qui fait, quant à elle, quelques millimètres. On pourra se placer dans l'hypothèse des petits déplacements. Les phénomènes de génération de chaleur liés à des dissipations plastiques sont négligeables, tout comme les échauffements liés aux phénomènes de frottement. Ils ne sont pas pris en considération comparés aux autres sources de chaleur, les essais étant réalisés sous des chargements mécaniques quasi-statiques. Par conséquent, les problèmes thermique et mécanique peuvent être découplés.

Le modèle est donc décomposé en deux sous-modèles. Le premier est dédié au couplage thermo-chimique et le second au comportement mécanique. Les deux sous-modèles sont présentés dans les paragraphes à suivre. Dans un premier temps, la modélisation de l'état thermo-chimique de l'échantillon et de la capsule est présentée et permet d'obtenir les champs de température et d'avancement de la réaction. Puis, la modélisation des états mécaniques et de l'interaction entre les différents composants est décrite. Les états de contraintes et de déformations sont calculés en prenant en compte les champs d'avancement et de température précédemment calculés. La résolution des deux problèmes est effectuée à l'aide de la méthode des éléments finis afin de simuler le comportement complet de la capsule et de l'échantillon durant la cuisson. La formulation éléments finis est développée et résolue dans la librairie éléments finis FreeFem++ [14].

## 2.5 MODELISATION THERMO-CHIMIQUE

### 2.5.1 DESCRIPTION DU MODELE

Les transferts thermiques sont modélisés à l'aide de l'équation de transfert de chaleur par conduction en régime transitoire dans la capsule (Eq. (2.1)) et l'échantillon (Eq. (2.2)). Les propriétés de l'échantillon et de la capsule sont dénotés par les indices "e" et "c" respectivement. La cinétique de réaction est quant à elle décrite par l'équation (2.3) et dépend de la température et de l'avancement de la réaction. Un terme source de chaleur, lié à la cinétique de réaction et traduisant l'exothermie de celle-ci, est ajouté à l'équation de transfert de chaleur dans l'échantillon.

Une condition de Fourier est imposée entre le moule et la capsule (2.4), ainsi qu'entre la capsule et l'échantillon (2.5), ce qui permet d'introduire une résistance thermique de contact (RTC). Toutes les propriétés de l'échantillon dépendent de l'avancement de la réaction ainsi que de la température. Les propriétés de la capsule dépendent de la température seulement. Le problème couplé à résoudre est de ce fait non-linéaire.

$$\rho_c Cp_c \frac{\partial T_c}{\partial t} = \nabla \cdot (\lambda_c \nabla T_c) \quad , \text{ dans } \Omega_c \quad (2.1)$$

$$\rho_e Cp_e \frac{\partial T_e}{\partial t} = \nabla \cdot (\lambda_e \nabla T_e) + \rho_e \Delta H_e \frac{\partial x_e}{\partial t} \quad , \text{ dans } \Omega_e \quad (2.2)$$

$$\frac{\partial x_e}{\partial t} = F(T_e, x_e) \quad , \text{ dans } \Omega_e \quad (2.3)$$

Avec les conditions aux limites:

$$-\lambda_c \nabla T_c \cdot \mathbf{n}_c = \frac{T_{ext} - T_c}{\gamma_{sup}} \quad , \text{ sur } \Gamma_{top} \quad , \quad (2.4)$$

$$-\lambda_e \nabla T_e \cdot \mathbf{n}_e = \frac{T_c - T_e}{\gamma_{int}} \quad , \text{ sur } \Gamma_{sup} \cup \Gamma_{lat} \quad , \quad (2.5)$$

et la condition initiale:

$$T_i(r, z, t = 0) = T_{ini} \quad , \text{ avec } i = c \text{ ou } e, \quad (2.6)$$

où  $\rho$  est la masse volumique,  $Cp$  est la chaleur spécifique,  $T$  est la température,  $x$  est le degré d'avancement de la réaction,  $\lambda$  est la conductivité thermique,  $\Delta H_e$  est l'enthalpie de la réaction,  $\mathbf{n}_i$  est la normale sortante à la surface extérieure,  $\gamma_{sup}$  est la RTC entre la capsule et le moule,  $T_{ext}$  est le cycle de température imposé,  $\gamma_{sup}$  est la RTC entre la capsule et l'échantillon et  $T_{ini}$  est la température initiale. Une condition de symétrie est imposée sur les axes (Oz) et (Or), en imposant un flux nul sur ces frontières. Enfin, une condition adiabatique est prise en compte en  $r = R_{ext}$ , en imposant également un flux nul sur cette frontière, les transferts étant considérés comme 1D à travers l'épaisseur de l'échantillon.

## 2.5.2 RESOLUTION DU PROBLEME

### 2.5.2.1 FORMULATION FAIBLE

Pour résoudre ce problème à l'aide de la méthode des éléments finis, il faut exprimer sa formulation faible. Avant cela, une légère modification de la condition (2.5) est proposée afin de la prendre en compte. Pour ce faire, on introduit un champ  $\varphi$  défini sur l'interface entre l'échantillon et la capsule  $\Gamma_{sup} \cup \Gamma_{lat}$ . La condition (2.5) est alors séparée en trois, et on devra vérifier indépendamment chaque condition:

$$-\lambda_c \nabla T_c \cdot \mathbf{n}_c = \varphi, \text{ sur } \Gamma_{int} \quad (2.7)$$

$$-\lambda_e \nabla T_e \cdot \mathbf{n}_e = -\varphi, \text{ sur } \Gamma_{int} \quad (2.8)$$

$$\varphi = \frac{T_c - T_e}{\gamma_{int}}, \text{ sur } \Gamma_{int} \quad (2.9)$$

où  $\Gamma_{int} = \Gamma_{sup} \cup \Gamma_{lat}$ . Le champ  $\varphi$  est équivalent à un champ de multiplicateurs de Lagrange permettant d'assurer la condition (2.5).

On définit alors trois ensembles de fonctions  $W_c$ ,  $W_e$  et  $W_\varphi$ , décrits par

$$W_c = \left\{ w \in H^1(\Omega_c) \right\}, \quad (2.10)$$

$$W_e = \left\{ w \in H^1(\Omega_e) \right\}, \quad (2.11)$$

$$W_\varphi = \left\{ w \in H^1(\Gamma_{int}) \right\}, \quad (2.12)$$

où  $w$  est une fonction quelconque et  $H^1(\Omega)$  est l'espace de Sobolev des fonctions dont les dérivées partielles jusqu'à l'ordre 1 font partie de l'espace  $L^2(\Omega)$  des fonctions de carré intégrable sur  $\Omega$ .  $W_c$ ,  $W_e$  et  $W_\varphi$  représentent les ensembles des fonctions admissibles pour le problème thermique décrit par les équations (2.1) à (2.6).

Pour obtenir les formulations faibles, les équations (2.1), (2.2) et (2.3) sont multipliées chacune par une fonction arbitraire  $T_c^* \in W_c$ ,  $T_e^* \in W_e$  et  $x_e^* \in W_\varphi$ , respectivement, et intégrées sur leur domaine respectif. Ces relations doivent donc être vérifiées quelle que soit la fonction arbitraire, ce qui permet de faire le lien entre formulation forte et faible. On obtient ainsi les équations (2.17), (2.18) et (2.19). Seule l'obtention de l'équation (2.17) est détaillée:

$$\int_{\Omega_c} \rho_c C p_c \frac{\partial T_c}{\partial t} T_c^* dV = \int_{\Omega_c} \nabla \cdot (\lambda_c \nabla T_c) T_c^* dV \quad (2.13)$$

Le terme de droite devient, de par les propriétés de l'opérateur divergent:

$$\int_{\Omega_c} \nabla \cdot (\lambda_c \nabla T_c) T_c^* dV = \int_{\Omega_c} \nabla \cdot (T_c^* \lambda_c \nabla T_c) dV - \int_{\Omega_c} \lambda_c \nabla T_c \nabla T_c^* dV \quad (2.14)$$

d'où, en appliquant le théorème de la divergence de Gauss:

$$\int_{\Omega_c} \nabla \cdot (\lambda_c \nabla T_c) T_c^* dV = \int_{\Gamma_c} T_c^* \lambda_c \nabla T \cdot \mathbf{n} d\Gamma - \int_{\Omega_c} \lambda_c \nabla T_c \nabla T_c^* dV \quad (2.15)$$

En réinjectant cette expression dans (2.13):

$$\int_{\Omega_c} \rho_c C p_c \frac{\partial T_c}{\partial t} T_c^* dV + \int_{\Omega_c} \lambda_c \nabla T_c \nabla T_c^* dV = \int_{\Gamma_c} T_c^* \lambda_c \nabla T \cdot \mathbf{n} d\Gamma \quad (2.16)$$

Le terme de droite permet d'intégrer les conditions (2.4) et (2.7), on obtient la formulation faible de l'équation (2.1):

$$\int_{\Omega_c} \rho_c C p_c \frac{\partial T_c}{\partial t} T_c^* dV + \int_{\Omega_c} \lambda_c \nabla T_c \nabla T_c^* dV + \int_{\Gamma_{top}} \left( \frac{T_c - T_{ext}}{\gamma_{sup}} \right) T_c^* d\Gamma + \int_{\Gamma_{int}} \varphi T_c^* d\Gamma = 0, \forall T_c^* \quad (2.17)$$

De la même façon, on obtient la formulation faible de (2.2) avec la condition (2.8):

$$\int_{\Omega_e} \rho_e C p_e \frac{\partial T_e}{\partial t} T_e^* dV + \int_{\Omega_e} \lambda_e \nabla T_e \nabla T_e^* dV - \int_{\Omega_e} \rho_e \Delta H_e \frac{\partial x_e}{\partial t} T_e^* dV - \int_{\Gamma_{int}} \varphi T_e^* = 0, \forall T_e^* \quad (2.18)$$

Et pour l'équation (2.3):

$$\int_{\Omega_e} \frac{\partial x_e}{\partial t} x_e^* dV - \int_{\Omega_e} F(T_e, x_e) x_e^* dV = 0, \forall x_e^* \quad (2.19)$$

Enfin, on multiplie (2.9) par une fonction arbitraire  $\varphi^* \in W_\varphi$  et on intègre le tout sur  $\Gamma_{int}$ . On obtient ainsi:

$$\int_{\Gamma_{int}} \varphi \varphi^* - \int_{\Gamma_{int}} \frac{T_c - T_e}{\gamma_{int}} \varphi^* = 0, \forall \varphi^* \quad (2.20)$$

### 2.5.2.2 DISCRETISATION

Afin de résoudre le problème précédent à l'aide de la méthode des éléments finis, on doit discrétiser les différents champs introduits. On pose alors:

$$\begin{aligned} T_c &= [N_c] \{T_c\}, \dot{T}_c = [N_c] \{\dot{T}_c\}, T_c^* = [N_c] \{T_c^*\}, \\ T_e &= [N_e] \{T_e\}, \dot{T}_e = [N_e] \{\dot{T}_e\}, T_e^* = [N_e] \{T_e^*\}, \\ x_e &= [N_e] \{x_e\}, \dot{x}_e = [N_e] \{\dot{x}_e\}, x_e^* = [N_e] \{x_e^*\}, \\ \varphi &= [N_\varphi] \{\varphi\}, \varphi^* = [N_\varphi] \{\varphi^*\}, \end{aligned}$$

où les  $\{X_i\}$  sont les vecteurs des valeurs nodales des champs  $X_i$  et les  $[N_i]$  sont les fonctions de forme associées à chaque champs du domaine  $X_i$ . Cette discrétisation est complétée en annexe A afin d'obtenir l'écriture discrétisée des formulations faibles.

### 2.5.2.3 SCHEMA TEMPOREL

Afin de résoudre le problème temporel, on utilise un schéma d'Euler implicite. Bien que plus gourmand en temps de calcul, il bénéficie d'une stabilité inconditionnelle. Cela garantit que l'on reste près de la solution, même si le pas de temps n'est pas très petit. On écrit alors:

$$\dot{T}_i = \frac{T_i(t_{n+1}) - T_i(t_n)}{\Delta t}, \quad \dot{x}_e = \frac{x_e(t_{n+1}) - x_e(t_n)}{\Delta t} \quad (2.21)$$

où  $\Delta t$  représente l'incrément de temps tel que  $t_{n+1} = t_n + \Delta t$  et, à titre d'exemple, la température de la capsule  $T_c$  à l'instant  $t_{n+1}$  sera calculée à partir des équations (2.17) à (2.20) en considérant  $T_c$  à l'instant  $t_{n+1}$  comme inconnue dans les termes diffusifs.

### 2.5.2.4 RESOLUTION

Le problème à résoudre étant non-linéaire, une stratégie spéciale doit être mise en place. On utilise pour cela un algorithme de Newton-Raphson. On cherche à calculer les incréments de la solution afin d'annuler le résidu du problème numérique.

Le résidu général du problème  $\{R\}$  est donné par les formes discrétisées des équations (2.17) à (2.20), données en annexe A. On obtient:

$$\{w^*\}^T \{R\} = \begin{Bmatrix} \{T_c^*\} \\ \{T_e^*\} \\ \{x_e^*\} \\ \{\varphi^*\} \end{Bmatrix}^T \begin{Bmatrix} \{R_T\}_c \\ \{R_T\}_e \\ \{R_x\}_e \\ \{R\}_\varphi \end{Bmatrix} \quad (2.22)$$

On définit également le vecteur général des inconnues du problème  $\{w\}$ :

$$\{w\} = \begin{Bmatrix} \{T_c\} \\ \{T_e\} \\ \{x_e\} \\ \{\varphi\} \end{Bmatrix} \quad (2.23)$$

On cherche l'incrément  $\Delta w$  de manière à annuler le résidu de  $w + \Delta w$ . Celui-ci est donné par:

$$\{\Delta w\} = [\mathbf{K}]^{-1} \{R(w)\} \quad (2.24)$$

et la matrice tangente du problème général  $\mathbf{K}$  est donnée par:

$$[\mathbf{K}] = - \left. \frac{\partial \{R(w)\}}{\partial \{w\}} \right|_w \quad (2.25)$$

La forme complète de la matrice  $\mathbf{K}$  est alors:

$$[\mathbf{K}] = \begin{bmatrix} K_{T_c T_c} & 0 & 0 & K_{T_c \varphi} \\ 0 & K_{T_e T_e} & K_{T_e x_e} & K_{T_e \varphi} \\ 0 & K_{x_e T_e} & K_{x_e x_e} & 0 \\ K_{\varphi T_c} & K_{\varphi T_e} & 0 & K_{\varphi \varphi} \end{bmatrix} \quad (2.26)$$

Le détail du calcul de ces matrices n'est pas présenté ici par souci de clarté, plus de détails pouvant être trouvés en annexe A. La résolution du problème est ensuite réalisée à l'aide d'un algorithme de Newton-Raphson [15].

## 2.6 MODELISATION MECANIQUE

Afin de modéliser le comportement mécanique de la capsule et de l'échantillon, nous nous plaçons dans le cadre des petites déformations. Comme annoncé précédemment, les déplacements du piston sont relativement faibles comparés à l'épaisseur de la capsule. On s'intéresse dans un premier temps au comportement de la capsule, puis à celui de l'échantillon.

### 2.6.1 MODELISATION MECANIQUE DE LA CAPSULE

#### 2.6.1.1 PRESENTATION DU MODELE

Les expériences menées sur l'élastomère et présentées en section 2.3 ont mis en évidence que la capsule n'était pas incompressible. Son module de compressibilité est même plus faible que celui de la résine, dont l'ordre de grandeur est du GPa [6,16,17]. Cependant, son module de cisaillement est faible devant son module de compressibilité. Ainsi, son module de Poisson  $\nu$  tend vers 0.5, rendant son comportement quasi-incompressible. Dans ce genre de situation, la loi de Hooke classiquement utilisée en élasticité dans le cas des petites déformations n'est pas valable, l'une des constantes élastiques tendant vers une valeur infinie. Cela mène alors, lorsque le problème est résolu à l'aide de la méthode des éléments finis, à une matrice de rigidité mal conditionnée pour des valeurs de  $\nu$  s'approchant de 0.5, voire singulière lorsque  $\nu = 0.5$  [18–20].

Afin de prendre en compte la condition de quasi-incompressibilité ou d'incompressibilité, une approche par formulation mixte a été développée [15,18,19,21]. Elle consiste en l'introduction, en plus du champ des déformations  $\mathbf{u}$ , d'un champ de pression  $p$  permettant de vérifier la condition d'incompressibilité.

Les équations constitutives du modèle mécanique de la capsule sont données dans (2.27)-(2.29), en l'absence de forces volumiques.

$$\nabla \cdot \boldsymbol{\sigma}_c = 0, \text{ dans } \Omega_c \quad (2.27)$$

$$\boldsymbol{\sigma}_c = 2\mu_c \boldsymbol{\varepsilon}_c^d - p_c \mathbf{I}, \text{ dans } \Omega_c \quad (2.28)$$

$$\frac{-p_c}{K_c} = \text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}_c) - \text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}_c^{th}), \text{ dans } \Omega_c \quad (2.29)$$

avec

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \frac{1}{2} \left( \nabla \mathbf{u} + \nabla^T \mathbf{u} \right) \quad (2.30)$$

$$\boldsymbol{\varepsilon}^d = \boldsymbol{\varepsilon} - \frac{1}{3} \text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}) \mathbf{I} \quad (2.31)$$

$$\boldsymbol{\varepsilon}^{th} = \alpha \Delta T \mathbf{I} \quad (2.32)$$

Durant un essai sur le PvT $\alpha$ , l'effort du piston est contrôlé afin de suivre le déplacement de la surface supérieure de la capsule. Il est considéré comme un solide rigide, son effet sur la capsule est pris en compte en imposant un déplacement uniforme  $u_{piston}$  suivant la direction verticale sur le dessus de la capsule (Eq (2.33)).

$$\begin{pmatrix} u_{rc} & u_{zc} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & u_{piston} \end{pmatrix} \text{sur } \Gamma_{top} \quad (2.33)$$

Les déplacements suivant l'axe horizontal sont bloqués, ce qui correspond à une hypothèse de contact collant entre le piston et la capsule. Le déplacement du piston  $u_{piston}$  est déterminé de façon à ce que la force équivalente appliquée sur le dessus de la capsule soit égale à la force désirée  $F_{imp}$ , respectant ainsi la condition (2.34).

$$\int_{\Gamma_{top}} (\boldsymbol{\sigma}_c \mathbf{n}_c) \cdot \mathbf{n}_c d\Gamma = F_{imp}(t) \quad (2.34)$$

On considère que la capsule glisse sans frottement le long de la paroi latérale en  $r = R_{ext}$  suivant la direction verticale. De par l'axisymétrie du problème, les déplacements suivant la direction horizontale sont bloqués en  $r = 0$ . De la même façon, les déplacements suivant la direction verticale sont bloqués en  $z = 0$ .

Les conditions à la limite entre la capsule et l'échantillon sont présentées plus loin, dans la section 2.7.

### 2.6.1.2 FORMULATION FAIBLE

On s'attarde désormais à exprimer la formulation faible du problème en vue de le traiter à l'aide de la méthode des éléments finis. Pour cela on définit, comme dans le cas du modèle thermo-chimique, des fonctions arbitraires  $\mathbf{u}_c^*$  et  $p_c^*$ . Celles-ci sont définies sur les ensembles  $W_{uc}$  et  $W_{pc}$ , définis par:

$$W_{uc} = \left\{ \mathbf{u} \in \left( H^1(\Omega_c) \right)^2, \mathbf{u} \cdot \mathbf{u}_r = 0 \text{ sur } \Gamma_{ext} \cup \Gamma_r \cup \Gamma_{top}, \mathbf{u} \cdot \mathbf{u}_z = 0 \text{ sur } \Gamma_z \right\}, \quad (2.35)$$

$$W_{pc} = \left\{ w \in H^1(\Omega_c) \right\}, \quad (2.36)$$

où  $\Gamma_r$  est la frontière en  $r = 0$  et  $\Gamma_z$  est la frontière en  $z = 0$ .

On multiplie l'équation (2.27) par  $\mathbf{u}_c^*$  et on l'intègre sur le domaine  $\Omega_c$ , de même on multiplie l'équation (2.29) par  $p_c^*$  et on l'intègre sur le même domaine. On obtient alors, pour la première équation:

$$\int_{\Omega_c} \boldsymbol{\sigma}_c : \nabla \mathbf{u}_c^* dV - \int_{\Gamma_{int}} \mathbf{t}_{e/c} \cdot \mathbf{u}_c^* dV = 0, \forall \mathbf{u}_c^* \in W_{uc}, \quad (2.37)$$

où  $\mathbf{t}_{e/c}$  représente la condition de contact entre l'échantillon et la capsule. Elle sera décrite en section 2.7.

En introduisant la loi (2.28), le problème devient:

$$\begin{aligned} \int_{\Omega_c} (2\mu_c \boldsymbol{\varepsilon}_c^d - p_c \mathbf{I}) : \nabla \mathbf{u}_c^* dV - \int_{\Gamma_{int}} \mathbf{t}_{e/c} \cdot \mathbf{u}_c^* dV &= 0, \forall \mathbf{u}_c^* \in W_{uc} \\ \int_{\Omega_c} 2\mu_c \boldsymbol{\varepsilon}_c^d : \nabla \mathbf{u}_c^* dV - \int_{\Omega_c} p_c \mathbf{I} : \nabla \mathbf{u}_c^* dV - \int_{\Gamma_{int}} \mathbf{t}_{e/c} \cdot \mathbf{u}_c^* dV &= 0, \forall \mathbf{u}_c^* \in W_{uc} \end{aligned} \quad (2.38)$$

Pour l'équation (2.29), on obtient directement:

$$\int_{\Omega_c} \left( \frac{-p_c}{K_c} - tr(\boldsymbol{\varepsilon}_c) + tr(\boldsymbol{\varepsilon}_c^{th}) \right) p_c^* dV = 0, \forall p_c^* \in W_{pc} \quad (2.39)$$

Afin d'imposer les conditions (2.33) et (2.34), on met en place une nouvelle variable scalaire au problème  $u_p$ , dont la fonction test est  $u_p^*$ . On note que  $u_{piston}$  et  $u_p$  représentent alors la même variable. La première condition est classiquement implantée dans FreeFem++ par pénalisation, c'est à dire qu'on impose:

$$tgv(u_{zc} - u_{piston}) = tgv(u_{zc} - u_p) = 0 \text{ sur } \Gamma_{top}, \quad (2.40)$$

où  $tgv$  est une très grande valeur, généralement prise à  $10^{31}$ . De cette manière, on s'assure que la condition est bien vérifiée, à la précision machine près. La formulation faible de (2.40) est alors donnée par:

$$\int_{\Gamma_{top}} tgv(u_{zc} - u_p) \mathbf{u}_c^* d\Gamma = 0, \forall \mathbf{u}_c^* \in W_{uc} \quad (2.41)$$

La participation de la condition (2.34) au résidu s'exprime simplement en multipliant cette expression par la fonction test  $u_p^* \in \mathbb{R}$ .

$$\left( \int_{\Gamma_{top}} (\boldsymbol{\sigma}_c \cdot \mathbf{n}_c) \cdot \mathbf{n}_c d\Gamma - F_{imp}(t) \right) u_p^* = 0, \forall u_p^* \quad (2.42)$$

### 2.6.1.3 DISCRETISATION ET ECRITURE MATRICIELLE

On discrétise alors les différents champs recherchés et les fonctions test associées à l'aide des relations suivantes:

$$\mathbf{u}_c = [N_c^u] \{U_c\}, u_{zc} = [N_c^{uz}] \{U_c\}, p_c = [N_c^p] \{P_c\}, \mathbf{u}_c^* = [N_c^u] \{U_c^*\}, p_c^* = [N_c^p] \{P_c^*\} \quad (2.43)$$

où on ne choisit pas les mêmes fonctions de forme pour les déplacements et le champ de pression. En effet, lorsque la méthode des éléments finis est appliquée à la résolution d'un problème d'élasticité linéaire incompressible ou quasi-incompressible à l'aide d'une formulation mixte, il est nécessaire de vérifier la condition de Ladyzenskaya-Brezzi-Babuska (ou LBB) afin d'assurer l'unicité de la solution, la convergence et la robustesse de la résolution [22,23]. Cette condition ne peut être remplie que pour des choix particuliers d'interpolations pour le champ de déplacement  $\mathbf{u}$  et de pression  $p$ . La librairie éléments finis FreeFem++ ne propose, en 2D, que des éléments triangulaires. Il faut donc choisir une discrétisation adaptée. La discrétisation proposée par Arnold *et al.* [24] permet d'assurer la condition LBB à l'aide d'un élément triangulaire appelé *MINI élément*. Les champs de déplacement et de pression sont interpolés linéairement sur l'élément, à l'aide d'une interpolation P1, et le champ de déplacement est enrichi d'un nouveau degré de liberté par élément, appelé *degré bulle*. Cette interpolation à l'aide du *MINI élément* est appelée parfois P1+/P1 ou P1bulle/P1. Elle présente l'avantage de conserver une interpolation linéaire des déplacements sur chaque segment de l'élément, ce qui facilite l'implantation de la condition de contact mécanique décrite en section 2.7 et en annexe B.

$u_p$  étant une variable scalaire, on n'a pas besoin de la discrétiser.

La transformation des équations (2.38), (2.39), (2.40) et (2.42) sous forme discrétisée n'est pas présentée ici. Elle est décrite en détails en annexe A.

On définit alors le vecteur généralisé des inconnues du problème mécanique de la capsule par:

$$\{w_c\} = \begin{Bmatrix} \{U_c\} \\ \{p_c\} \\ u_p \end{Bmatrix}, \quad (2.44)$$

avec la fonction test généralisée associée:

$$\{w_c^*\} = \begin{Bmatrix} \{U_c^*\} \\ \{p_c^*\} \\ u_p^* \end{Bmatrix}. \quad (2.45)$$

Le résidu général du problème mécanique de la capsule s'écrit alors sous la forme

$$\{w_c^*\}^T \{R_c\} = \begin{Bmatrix} \{U_c^*\} \\ \{p_c^*\} \\ u_p^* \end{Bmatrix}^T \begin{Bmatrix} \{R_u\}_c \\ \{R_p\}_c \\ R_{u_p} \end{Bmatrix} \quad (2.46)$$

Bien que ce problème soit linéaire, on le traite comme un problème non-linéaire en vue d'intégrer le problème de contact mécanique qui, lui, peut être non-linéaire. On doit donc, à partir de la formulation faible, exprimer la matrice tangente du problème mécanique de la capsule.

$$[\mathbf{K}_{cc}] = \begin{bmatrix} K_{u_c u_c} & K_{u_c p_c} & K_{u_c u_p} \\ K_{p_c u_c} & K_{p_c p_c} & 0 \\ K_{u_p u_c} & K_{u_p p_c} & 0 \end{bmatrix}, \quad (2.47)$$

On remarque que la matrice  $\mathbf{K}_{cc}$  n'est pas symétrique, ce qui peut poser problème lors de la résolution du système d'équations.

## 2.6.2 MODELISATION MECANIQUE DE L'ECHANTILLON

La difficulté lors de l'élaboration du modèle mécanique de la résine est de bien prendre en compte le développement des propriétés mécaniques de celle-ci durant la cuisson. Dans son état initial, l'échantillon se comporte comme un fluide incapable donc de supporter le moindre effort de cisaillement. Pendant la réticulation, son module de cisaillement augmente drastiquement [16,25–27], son module de compressibilité reste dans le même ordre de grandeur [16,17,27] mais augmente également.

Différents modèles phénoménologiques ont été développés afin de prendre en compte le développement des propriétés mécaniques de la résine durant sa cuisson. Adolf et Martin [28] ont modélisé la cuisson de la résine à l'aide d'un modèle continu. Sa résolution se fait de manière incrémentale. Cependant, ils négligent le développement du module de compressibilité de la résine au cours de la réticulation. Plus tard, Adolf et Chambers [29] utilisent le modèle précédent afin de le comparer à des résultats expérimentaux. Ils ne prennent cependant pas en compte les retraits volumiques liés à la réticulation. Kiasat [30] a, dans ses travaux de thèse, à la fois étudié les phénomènes ayant lieu durant la cuisson des résines thermodurcissables et propose un modèle mécanique de ces résines. Son approche est basée sur l'hypothèse que les liaisons entre polymères se forment dans un état libre de contraintes et n'affectent pas l'état de contraintes au moment où elles se forment. Ses travaux ont été étendus par la suite par Van't Hof [31]. Lion et Höfer [32] proposent un modèle en grandes déformations de la réticulation des résines thermodurcissables. Leur modèle possède l'avantage d'être consistant d'un point de vue thermodynamique et prend en compte les contributions thermiques et chimiques dans le calcul des déformations. Un modèle hypoélastique en petites déformations, prenant en compte le développement des propriétés de la résine, des dilatations thermiques et du retrait chimique a été développé par Hossain *et al.* [33] et reformulé plus récemment [34] de manière à être thermodynamiquement consistant. Notre choix étant porté vers les petites déformations, ce modèle semble adapté à notre problème. Il part de la même hypothèse que dans [30] et est rapidement présenté par la suite.

### 2.6.2.1 LE MODELE RETENU

Le modèle développé par Hossain *et al.* [33] propose de décomposer l'expression du tenseur des contraintes en deux parties, une partie volumétrique et une partie déviatoire

$$\boldsymbol{\sigma}_e = \boldsymbol{\sigma}_e^{vol} + \boldsymbol{\sigma}_e^{dev} \quad (2.48)$$

Ces deux parties dépendent du temps, du fait du développement des propriétés mécaniques du matériau, et peuvent être exprimées comme l'intégrale du produit entre les propriétés mécaniques et le taux de déformation associé:

$$\boldsymbol{\sigma}_e^{vol}(t) = \int_0^t K_e(\tau) \text{tr}(\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}_e(\tau)) \mathbf{I} d\tau \quad (2.49)$$

$$\boldsymbol{\sigma}_e^{dev}(t) = 2 \int_0^t \mu_e(\tau) \dot{\boldsymbol{\varepsilon}}_e^d(\tau) d\tau \quad (2.50)$$

où

$$\dot{\boldsymbol{\varepsilon}} = \frac{\partial \boldsymbol{\varepsilon}}{\partial t} \quad (2.51)$$

La partie volumique n'est reliée qu'au module de compressibilité  $K_e$  et à la trace du taux de déformation, tandis que la partie déviatoire dépend du module de cisaillement  $\mu_e$  et de la partie déviatoire du taux de déformation. On observe alors que, si il n'y a pas de modification de l'état de déformation et donc si les taux de déformation sont nuls, l'état de contrainte n'est pas modifié et ce même en cas de développement des propriétés mécaniques.

En dérivant les expressions (2.49) et (2.50) par rapport au temps, on obtient:

$$\dot{\boldsymbol{\sigma}}_e^{vol}(t) = K_e(t) \text{tr}(\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}_e(t)) \mathbf{I} \quad (2.52)$$

$$\dot{\boldsymbol{\sigma}}_e^{dev}(t) = 2\mu_e(t) \dot{\boldsymbol{\varepsilon}}_e^d(t) \quad (2.53)$$

Il est à noter que les propriétés mécaniques dépendent de l'état thermo-chimique de l'échantillon. Un certain couplage entre le modèle thermo-chimique et le modèle mécanique apparaît via ces deux équations. Il sera négligé par la suite et on découplera l'approche thermo-chimique de l'approche mécanique.

Il est alors possible de résoudre ces deux équations à l'aide d'un schéma temporel implicite d'Euler. On obtient alors l'expression des contributions volumique et déviatoire du tenseur des contraintes pour le pas de temps  $t_{n+1}$ :

$$\boldsymbol{\sigma}_e^{vol}(t_{n+1}) = \boldsymbol{\sigma}_e^{vol}(t_n) + K_e(t_{n+1}) [\text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}_e(t_{n+1})) - \text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}_e(t_n))] \mathbf{I} \quad (2.54)$$

$$\boldsymbol{\sigma}_e^{dev}(t_{n+1}) = \boldsymbol{\sigma}_e^{dev}(t_n) + 2\mu_e(t_{n+1}) [\boldsymbol{\varepsilon}_e^d(t_{n+1}) - \boldsymbol{\varepsilon}_e^d(t_n)] \quad (2.55)$$

La contrainte totale à l'instant  $t_{n+1}$  est alors exprimée par la somme des deux précédentes expressions:

$$\boldsymbol{\sigma}_e(t_{n+1}) = \boldsymbol{\sigma}_e(t_n) + 2\mu_e(t_{n+1}) [\boldsymbol{\varepsilon}_e^d(t_{n+1}) - \boldsymbol{\varepsilon}_e^d(t_n)] + K_e(t_{n+1}) [\text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}_e(t_{n+1})) - \text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}_e(t_n))] \mathbf{I} \quad (2.56)$$

### 2.6.2.2 ADAPTATION A LA FORMULATION MIXTE

Avant la réticulation, la résine se comporte comme un fluide, son module de cisaillement étant alors très petit voire nul. Son module de compressibilité est, quant à lui, de l'ordre du GPa. Pour les mêmes raisons que lors de la modélisation du comportement mécanique de l'élastomère, on utilisera une formulation mixte afin de prendre en compte la quasi-incompressibilité de la résine. Il faut alors adapter le modèle décrit précédemment à la formulation mixte.

On introduit un champ  $p_e$  tel que:

$$-p_e = K_e \text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}_e) \quad (2.57)$$

En dérivant cette expression par rapport au temps, on peut réexprimer (2.52):

$$\dot{\boldsymbol{\sigma}}_e^{\text{vol}}(t) = -\dot{p}_e(t) \mathbf{I} \quad (2.58)$$

$$-\dot{p}_e(t) = K_e(t) \text{tr}(\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}_e(t)) \quad (2.59)$$

On peut alors réexprimer la contrainte à l'instant  $t_{n+1}$  en suivant la même démarche que précédemment. On obtient ainsi:

$$\boldsymbol{\sigma}_e(t_{n+1}) = \boldsymbol{\sigma}_e(t_n) + 2\mu_e(t_{n+1})[\boldsymbol{\varepsilon}_e^d(t_{n+1}) - \boldsymbol{\varepsilon}_e^d(t_n)] - [p_e(t_{n+1}) - p_e(t_n)] \mathbf{I} \quad (2.60)$$

$$-p_e(t_{n+1}) = -p_e(t_n) + K_e(t_{n+1})[\text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}_e(t_{n+1})) - \text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}_e(t_n))] \quad (2.61)$$

La prise en compte des contributions thermomécanique et thermochimique est alors triviale et se fait en modifiant l'expression de  $p_e(t_{n+1})$ :

$$\begin{aligned} -p_e(t_{n+1}) = & -p_e(t_n) + K_e(t_{n+1})[\text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}_e(t_{n+1})) - \text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}_e(t_n))] \\ & - K_e(t_{n+1})[\text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}_e^{\text{th}}(t_{n+1})) - \text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}_e^{\text{th}}(t_n))] - K_e(t_{n+1})[\text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}_e^{\text{ch}}(t_{n+1})) - \text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}_e^{\text{ch}}(t_n))] \end{aligned} \quad (2.62)$$

avec

$$\boldsymbol{\varepsilon}^{\text{ch}} = \beta \Delta x_e \mathbf{I}, \quad (2.63)$$

où  $\beta$  est le coefficient de retrait chimique de la résine.

### 2.6.2.3 FORMULATION FAIBLE

La formulation faible du modèle mécanique de l'échantillon, permettant de calculer son état mécanique à  $t = t_{n+1}$ , est obtenue de la même façon que dans le cas de la capsule. On introduit les fonctions test  $\mathbf{u}_e^* \in \mathbf{W}_{\text{ue}}$  et  $p_e^* \in \mathbf{W}_{\text{pe}}$ , telles que:

$$\mathbf{W}_{\text{ue}} = \left\{ \mathbf{u} \in (H^1(\Omega_e))^2, \mathbf{u} \cdot \mathbf{u}_r = 0 \text{ sur } \Gamma_r, \mathbf{u} \cdot \mathbf{u}_z = 0 \text{ sur } \Gamma_z \right\}, \quad (2.64)$$

$$\mathbf{W}_{\text{pe}} = \left\{ w \in H^1(\Omega_e) \right\}, \quad (2.65)$$

Le problème d'équilibre mécanique dans l'échantillon devient alors:

$$\begin{aligned} & \int_{\Omega_e} \boldsymbol{\sigma}_e(t_n) : \nabla \mathbf{u}_e^* dV + 2 \int_{\Omega_e} \mu_e(t_{n+1}) \boldsymbol{\varepsilon}_e^d(t_{n+1}) : \nabla \mathbf{u}_e^* dV - 2 \int_{\Omega_e} \mu_e(t_{n+1}) \boldsymbol{\varepsilon}_e^d(t_n) : \nabla \mathbf{u}_e^* dV \\ & - \int_{\Omega_e} p_e(t_{n+1}) \mathbf{I} : \nabla \mathbf{u}_e^* dV + \int_{\Omega_e} p_e(t_n) \mathbf{I} : \nabla \mathbf{u}_e^* dV - \int_{\Gamma_{\text{int}}} \mathbf{t}_{c/e} \cdot \mathbf{u}_e^* dV = 0, \forall \mathbf{u}_e^* \in \mathbf{W}_{\text{ue}} \end{aligned} \quad (2.66)$$

$$\int_{\Omega_e} (p_e(t_{n+1}) - p_e(t_n) + K_e(t_{n+1}) [tr(\boldsymbol{\epsilon}_e(t_{n+1})) - tr(\boldsymbol{\epsilon}_e(t_n))]) + K_e(t_{n+1}) [tr(\boldsymbol{\epsilon}_e^{th}(t_{n+1})) - tr(\boldsymbol{\epsilon}_e^{th}(t_n))] + K_e(t_{n+1}) [tr(\boldsymbol{\epsilon}_e^{ch}(t_{n+1})) - tr(\boldsymbol{\epsilon}_e^{ch}(t_n))] p_e^* dV = 0, \forall p_e^* \in W_{pc} \quad (2.67)$$

où  $\mathbf{t}_{e/c}$  représente la condition de contact entre la capsule et l'échantillon.

#### 2.6.2.4 DISCRETISATION ET ECRITURE MATRICIELLE

Tout comme pour la capsule, on discrétise les champs recherchés et les fonctions test associées au problème décrit précédemment à l'aide des relations:

$$\mathbf{u}_e = [N_e^u] \{U_e\}, p_e = [N_e^p] \{P_e\}, \mathbf{u}_e^* = [N_e^u] \{U_e^*\}, p_e^* = [N_e^p] \{P_e^*\} \quad (2.68)$$

L'écriture du résidu issu des formulations faibles (2.66) et (2.67) n'est pas décrite ici par soucis de clarté mais est donnée en détails en annexe A.

En définissant le vecteur généralisé des inconnues du problème et la fonction test généralisée

$$\{w_e\} = \left\{ \begin{Bmatrix} U_e \\ P_e \end{Bmatrix} \right\}, \{w_e^*\} = \left\{ \begin{Bmatrix} U_e^* \\ P_e^* \end{Bmatrix} \right\}, \quad (2.69)$$

on peut écrire le vecteur résidu général du problème mécanique de l'échantillon:

$$\{w_e^*\}^T \{R_e\} = \left\{ \begin{Bmatrix} U_e^* \\ P_e^* \end{Bmatrix} \right\}^T \left\{ \begin{Bmatrix} R_u \\ R_p \end{Bmatrix} \right\}_e \quad (2.70)$$

Et la matrice tangente associée est alors, dans le cadre d'une résolution faiblement couplée avec le problème thermo-chimique:

$$[\mathbf{K}_{ee}] = \begin{bmatrix} K_{u_e u_e} & K_{u_e p_e} \\ K_{p_e u_e} & K_{p_e p_e} \end{bmatrix}, \quad (2.71)$$

où les composantes de cette matrice sont décrites en annexe A.

## 2.7 MODELISATION DU CONTACT ENTRE LA CAPSULE ET L'ECHANTILLON

Afin de prendre en compte l'interaction mécanique entre la capsule et l'échantillon, deux approches vont être abordées. Dans la première, on considère un contact parfaitement collant entre la capsule et l'échantillon. De cette façon, aucun décollement n'est possible entre les deux constituants. Dans la seconde approche, on prend en compte la possibilité d'un décollement entre les deux constituants ainsi qu'un glissement parfait entre les surfaces.

### 2.7.1 CONTACT PARFAIT COLLANT ENTRE LES DEUX SOLIDES

La condition imposée afin de vérifier le contact parfait collant entre les deux éléments correspond à imposer une continuité des déplacements à l'interface. On souhaite donc vérifier:

$$\mathbf{u}_e = \mathbf{u}_c \text{ sur } \Gamma_{sup} \cup \Gamma_{lat} \quad (2.72)$$

Afin d'appliquer cette égalité, on introduit un champ de multiplicateurs de Lagrange  $\lambda_{ML}$  assurant la vérification de la condition:

$$\lambda_{ML} \cdot (\mathbf{u}_e - \mathbf{u}_c) = 0 \text{ sur } \Gamma_{sup} \cup \Gamma_{lat} \quad (2.73)$$

Pour que cette condition soit traitée à l'aide de la méthode des éléments finis, on doit donner sa formulation faible. On définit l'ensemble des fonctions  $W_{ML}$  associé aux multiplicateurs de Lagrange  $\lambda_{ML}$ :

$$W_{ML} = \left\{ w \in H^1(\Gamma_{int}) \right\}, \quad (2.74)$$

La formulation faible de (Eq. (2.73)) est alors:

$$\lambda_{ML} \cdot (\mathbf{u}_e^* - \mathbf{u}_c^*) + \lambda_{ML}^* \cdot (\mathbf{u}_e - \mathbf{u}_c), \forall \mathbf{u}_e^*, \mathbf{u}_c^*, \lambda_{ML}^* \quad (2.75)$$

La contribution du contact à la formulation faible s'obtient alors facilement en intégrant ces relations sur la surface de contact:

$$C^C = \int_{\Gamma_c} \lambda_{ML} \cdot (\mathbf{u}_e^* - \mathbf{u}_c^*) + \lambda_{ML}^* \cdot (\mathbf{u}_e - \mathbf{u}_c) d\Gamma, \forall \mathbf{u}_e^*, \mathbf{u}_c^*, \lambda_{ML}^* \quad (2.76)$$

On peut, à partir de cette formulation faible, identifier le résidu correspondant à chaque fonction test:

$$R_e^C = \int_{\Gamma_c} \lambda_{ML} d\Gamma \quad (2.77)$$

$$R_c^C = - \int_{\Gamma_c} \lambda_{ML}^* d\Gamma \quad (2.78)$$

$$R_\lambda^C = \int_{\Gamma_c} (\mathbf{u}_e - \mathbf{u}_c) d\Gamma \quad (2.79)$$

On remarque que les multiplicateurs de Lagrange s'apparentent à une contrainte de contact permettant d'assurer la condition (2.73) entre les deux solides.

Afin de résoudre le problème de façon incrémentale, on linéarise Eq. (2.76):

$$\Delta C^C = \int_{\Gamma_c} \Delta \lambda_{ML} \cdot (\mathbf{u}_e^* - \mathbf{u}_c^*) + \lambda_{ML}^* \cdot (\Delta \mathbf{u}_e - \Delta \mathbf{u}_c) d\Gamma, \forall \mathbf{u}_e^*, \mathbf{u}_c^*, \lambda_{ML}^* \quad (2.80)$$

On obtient de cette façon la forme matricielle du problème à résoudre. En reprenant les résolutions du problème mécanique de l'échantillon et de la capsule, l'expression globale du problème incrémental est donnée par:

$$\begin{bmatrix} \mathbf{K}_{ee} & 0 & \mathbf{K}_{e\lambda} \\ 0 & \mathbf{K}_{cc} & \mathbf{K}_{c\lambda} \\ \mathbf{K}_{\lambda e} & \mathbf{K}_{\lambda c} & 0 \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} \Delta \mathbf{u}_e \\ \Delta \mathbf{u}_c \\ \Delta \lambda \end{Bmatrix} = \begin{Bmatrix} \mathbf{R}_e^C \\ \mathbf{R}_c^C \\ \mathbf{R}_\lambda^C \end{Bmatrix} + \begin{Bmatrix} \mathbf{R}_e \\ \mathbf{R}_c \\ 0 \end{Bmatrix} \quad (2.81)$$

Le problème est alors résolu simplement à l'aide d'un algorithme de Newton-Raphson.

### 2.7.2 TRAITEMENT DU DECOLLEMENT

La condition à vérifier dans le cas d'un traitement du contact où le décollement est possible entre les solides est légèrement différente du cas précédent. Elle est décrite en détails en Annexe B. On définit l'échantillon comme le domaine "esclave" et la capsule comme le "maitre". La condition de contact revient à empêcher les nœuds de l'échantillon de pénétrer dans le domaine de la capsule. Pour cela, on discrétise la surface de contact par la méthode "nœud-à-segment", et l'on résout le problème de contact par pénalisation, en suivant les travaux décrits dans [35]. Cette solution a été choisie pour sa simplicité de mise en place, en effet elle ne nécessite pas l'ajout de nouveaux degrés de liberté, et parce qu'elle est adaptée au traitement du glissement entre deux surfaces.

La contribution du contact à la formulation faible est alors directement exprimée aux nœuds et est donnée par:

$$C^C = \int_{\Gamma_c} \varepsilon_n g_n g_n^* d\Gamma, \quad \forall \mathbf{u}_c^*, \quad \forall \mathbf{u}_e^*, \quad (2.82)$$

où  $\varepsilon_n$  est le coefficient de pénalisation,  $g_n$  l'écart entre le nœud esclave et la surface maitre et  $g_n^*$  la variation virtuelle de l'écart  $g_n$  qui est fonction de  $\mathbf{u}_c$  et  $\mathbf{u}_e$ . Leurs expressions sont décrites plus en détails dans l'annexe B.

En linéarisant l'expression de  $C^C$  afin de résoudre le problème incrémental, on obtient:

$$\Delta C^C = \int_{\Gamma_c} \varepsilon_n \Delta g_n g_n^* + \varepsilon_n g_n \Delta g_n^* d\Gamma, \quad \forall \mathbf{u}_c^*, \quad \forall \mathbf{u}_e^*, \quad (2.83)$$

où l'expression des différents termes  $\Delta g_n$  et  $\Delta g_n^*$  est donnée en Annexe B.

La contribution du contact au résidu et à la matrice tangente du problème mécanique est alors donnée par:

$$\left[ \mathbf{K}_{méca} + \mathbf{K}^C \right] \left\{ \Delta \mathbf{u} \right\} = \left\{ \mathbf{R}_{méca} \right\} + \left\{ \mathbf{R}^C \right\} \quad (2.84)$$

où  $\mathbf{R}^C$  est le résidu lié au contact et  $\mathbf{K}^C$  la matrice tangente, définis en Annexe B, et où  $\Delta \mathbf{u}$ ,  $\mathbf{K}_{méca}$  et  $\mathbf{R}_{méca}$  sont définis par:

$$\left\{ \Delta \mathbf{u} \right\} = \begin{Bmatrix} \Delta \mathbf{u}_e \\ \Delta \mathbf{u}_c \end{Bmatrix}, \quad \left[ \mathbf{K}_{méca} \right] = \begin{bmatrix} \mathbf{K}_{ee} & 0 \\ 0 & \mathbf{K}_{cc} \end{bmatrix}, \quad \left\{ \mathbf{R}_{méca} \right\} = \begin{Bmatrix} \mathbf{R}_e \\ \mathbf{R}_c \end{Bmatrix} \quad (2.85)$$

La résolution du problème mécanique incluant le contact est résumée par l'algorithme présenté en Figure 2.7:

```

Initialisation:  $\mathbf{u}=0, \varepsilon_n=\varepsilon_0$ 
Boucle itérative jusqu'à convergence
| Balayage des noeuds esclaves
|   si  $g_n \leq 0$ , activation du noeud
| Assemblage des contributions du contact
| Calcul de  $[\mathbf{K}^c]$  et  $\{\mathbf{R}^c\}$ 
| Résolution du problème
|   Algorithme de Newton-Raphson
| Vérification de la convergence
|   si convergence, fin
Fin de la boucle

```

Figure 2.7: Structure de l'algorithme de résolution du contact décollant entre la capsule et l'échantillon

## 2.8 SCHEMA DE L'ALGORITHME DE RESOLUTION DU PROBLEME GLOBAL

La résolution du problème global couplé entre les modèles thermo-chimique et mécanique peut désormais être entreprise. La Figure 2.8 donne la structure globale de la résolution de ces problèmes.

```

Initialisation:  $\mathbf{u}_c=0, p_c=0, \mathbf{u}_e=0, p_e=0, x_e=0, T_e=T_c=T_{ini}$ 
Boucle en temps pour  $t=0$  à  $t=t_{final}$ 
| Résolution du problème thermo-chimique
|   Mise à jour de  $T_e(t), x_e(t), T_c(t)$ 
| Mise à jour des propriétés mécaniques
| Résolution du problème mécanique
|   Mise à jour de  $\mathbf{u}_c(t), p_c(t), \mathbf{u}_e(t), p_e(t)$ 
| Mise à jour du maillage du problème thermo-chimique
|   si  $t=t_{final}$ , fin
|   sinon,  $t=t+\Delta t$ 
Fin de la boucle

```

Figure 2.8: Structure globale du modèle couplé

A chaque instant, la résolution du problème thermo-chimique couplé permet de déterminer les champs de température et d'avancement dans la capsule et l'échantillon. Une fois ces champs déterminés, ils sont utilisés pour mettre à jour les propriétés mécaniques des deux corps. Ces différentes propriétés alimentent ensuite la résolution du problème mécanique, incluant également le contact entre la capsule et l'échantillon. Les déformations calculées permettent de mettre à jour le maillage utilisé pour résoudre le problème thermo-chimique. De cette façon, on assure au maximum la conservation de la masse, bien que la méthode des éléments finis ne soit pas adaptée pour vérifier ce principe. Le couplage entre la résolution du problème thermo-chimique et celle du problème mécanique est faible, comme annoncé dans la section 2.4. Le modèle étant entièrement décrit, on peut désormais l'alimenter à l'aide des propriétés des matériaux afin de procéder à sa validation.

## 2.9 MATERIAUX ET METHODE

La capsule est composée entièrement d'un élastomère en silicone produit par Silcomp. Cet élastomère a été en partie caractérisé au chapitre précédent, ce qui a permis d'obtenir ses propriétés mécaniques. Les autres propriétés nécessaires à l'alimentation du modèle sont décrites dans la section suivante. La résine sélectionnée pour les essais de validation est la résine Hexflow RTM6 de Hexcel.

### 2.9.1 L'ELASTOMERE

Les propriétés mécaniques de l'élastomère déterminées au chapitre précédent sont rappelées ici. Son module de Young est  $E_c = 1.3$  MPa et son module de compressibilité, qui dépend de la température  $T_c$ , est donné par l'équation:

$$K_c(T_c) = K_c^0 + K_c^1(T_c - 273), \quad (2.86)$$

avec  $K_c^0 = 517$  MPa et  $K_c^1 = -0.94$  MPa.K<sup>-1</sup>. On en déduit alors son module de cisaillement  $\mu_c$  par:

$$\mu_c(T_c) = \frac{3K_c(T_c)E_c}{9K_c(T_c) - E_c} \quad (2.87)$$

Le coefficient de dilatation thermique de l'élastomère a été caractérisé à l'aide d'un dilatomètre linéaire Linseis L75 Platinum Series sur une plage de 20 à 200°C. Cinq essais ont été réalisés sur des échantillons différents, donnant une valeur de  $\alpha_c = (288 \pm 12) 10^{-6}$  K<sup>-1</sup>. La masse volumique de l'élastomère a été déterminée par pesée à l'aide d'une balance de précision d'un échantillon de  $3.93 \pm 0.05 10^{-5}$  m<sup>3</sup> pour 43.700g ( $\pm 0.1$ mg). On obtient ainsi  $\rho_c = (1.112 \pm 0.014) 10^3$  kg.m<sup>-3</sup> à 25°C. L'utilisation de la méthode de la plaque chaude gardée a permis d'estimer la conductivité thermique de l'élastomère, donnant  $\lambda_c = 0.25 \pm 0.01$  W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup> sur une gamme de 20 à 180°C. Enfin, des essais DSC ont été menés afin de déterminer la chaleur spécifique  $Cp_c$  de la capsule, mais se sont révélés inexploitable, les résultats présentant une dispersion trop importante. Afin d'alimenter le modèle on prendra une valeur moyenne pour un élastomère  $Cp_c = 1.150.10^3$  J.kg<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup>.

### 2.9.2 LA RESINE RTM6

Plusieurs études ont permis de caractériser la résine époxy RTM6 [36–39]. Ses propriétés thermo-chimiques sont d'abord décrites, suivies de ses propriétés thermo-chimio-mécaniques.

#### 2.9.2.1 PROPRIETES THERMOCHIMIQUES

Le modèle cinétique de la résine a été déterminé par Lecointe [36] et Nakouzi [38]. On se base sur le modèle décrit dans [36]. Il est donné dans (2.88).

$$\begin{cases} \frac{dx}{dt} = k(T)g(x) & , \text{dans } \Omega_e \\ k(T) = k_{ref} e^{-A\left(\frac{T_{ref}}{T} - 1\right)} & , \text{dans } \Omega_e \\ g(x) = \sum_{i=0}^6 a_i x^i & , \text{dans } \Omega_e, \end{cases} \quad (2.88)$$

où les différentes grandeurs sont décrites dans le Tableau 2.1.

**Tableau 2.1: Constantes du modèle cinétique de la résine RTM6 [36]**

Propriété	Valeur	Propriété	Valeur
$T_{ref}(K)$	413	$a_2$	-20.712
$k_{ref}(s^{-1})$	$2.569.10^{-4}$	$a_3$	66.2303
$A$	15.325	$a_4$	-116.075
$a_0$	0.02438	$a_5$	98.5327
$a_1$	5.07537	$a_6$	-33.0794

Ces mêmes travaux donnent les propriétés thermiques de la résine. Celles-ci sont regroupées dans le Tableau 2.2.

**Tableau 2.2: Propriétés thermophysiques de la résine RTM6 [36]**

Propriété	Valeur ou expression
$Cp_e (J.kg^{-1}.K^{-1})$	$(1 - x_e).Cp_e^{liq} + x_e.Cp_e^{sol}$
$Cp_e^{liq} (J.kg^{-1}.K^{-1})$	$Cp_e^{liq}(T_e(°C)) = 1208.15 + 15.19T_e - 0.049T_e^2$
$Cp_e^{sol} (J.kg^{-1}.K^{-1})$	$Cp_e^{sol}(T_e(°C)) = 816.29 + 13.35T_e - 0.037T_e^2$
$\lambda_e (W.m^{-1}.K^{-1})$	$(1 - x_e).\lambda_e^{liq} + x_e.\lambda_e^{sol}$
$\lambda_e^{liq} (W.m^{-1}.K^{-1})$	0.10
$\lambda_e^{sol} (W.m^{-1}.K^{-1})$	0.22
$\Delta H_e (J.kg^{-1})$	$410.10^3$

où les exposants "liq" et "sol" indiquent les propriétés à l'état liquide ou à l'état solide, respectivement.

### 2.9.2.2 PROPRIETES THERMO-CHIMIO-MECANIKES

De nombreuses études se sont intéressées à la caractérisation des propriétés mécaniques de la résine et à leur évolution durant la réticulation [16,17,25–27]. Cependant, aucune n'a abordé le cas de la RTM6. Afin d'alimenter le modèle, on prendra des valeurs proches de celles déterminées dans le cas d'une résine époxy. Le module de compressibilité est généralement considéré comme une fonction linéaire de l'avancement de la réaction. On prendra alors une loi des mélanges entre sa valeur à l'état liquide et celle à l'état solide (2.89). Cette évolution est représentée en Figure 2.9.

$$K_e(x_e) = (1 - x_e).K_e^{liq} + x_e.K_e^{sol} \quad (2.89)$$

Le module de cisaillement de la résine se développe d'une manière plus significative à partir du point de gel de la résine et augmente en prenant plusieurs ordres de grandeur [25,26]. On considérera par la suite que la température de l'échantillon est supérieure à la température de transition vitreuse. Avant le point de gel, une valeur minimale du module de cisaillement est nécessaire afin de faciliter la convergence du problème mécanique. Cette valeur minimale n'a aucun effet significatif sur les résultats. L'évolution du module de cisaillement est donnée par l'équation (2.90) et représentée en fonction de l'avancement de la réaction en Figure 2.9.

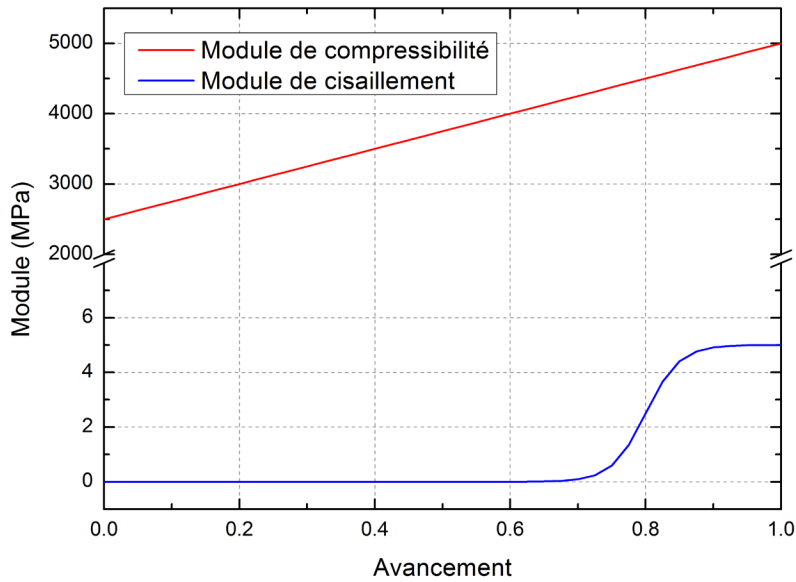
$$\begin{cases} \mu_e(x_e) = \mu_e^{liq} & , \text{quand } x_e < x_e^{gel} \\ \mu_e(x_e) = \mu_e^{liq} + 0.5 \cdot (\mu_e^{sol} - \mu_e^{liq}) \cdot (1 + \tanh(\eta \cdot (x_e - x_e^{tr}))) & , \text{quand } x_e \geq x_e^{gel} \end{cases} \quad (2.90)$$

où  $\eta$  représente la vitesse de développement du module et  $x_e^{tr}$  la valeur d'avancement correspondant au milieu de la transition du développement du module de cisaillement.

Les grandeurs permettant de décrire les modules de compressibilité et de cisaillement de la résine durant sa réticulation sont regroupées dans le Tableau 2.3.

**Tableau 2.3: Propriétés mécaniques de la résine RTM6**

Propriété	Valeur	Propriété	Valeur
$K_e^{liq}$ (GPa)	2.5	$\mu_e^{liq}$ (MPa)	$5.0 \cdot 10^{-6}$
$K_e^{sol}$ (GPa)	5.0	$\mu_e^{sol}$ (MPa)	5.0
$x_e^{gel}$	0.5	$\eta$	20.0
$x_e^{tr}$	0.8		



**Figure 2.9: Evolution du module de compressibilité et du module de cisaillement de la résine avec l'avancement de la réaction**

Les coefficients de dilatation thermique  $\alpha_e$  et de retrait chimique  $\beta_e$  ont été déterminés à l'aide du PvT $\alpha$  dans son fonctionnement usuel à pression constante. Plus de détails sur les conditions de l'essai sont donnés dans la section 2.9.3. Les coefficients de dilatation thermique à l'état cru et à l'état cuit ont pu être directement déterminés à partir de l'évolution du volume de l'échantillon. On considère que l'évolution du coefficient de dilatation thermique suit une loi des mélanges en fonction de l'avancement:

$$\alpha_e(x_e) = (1 - x_e) \alpha_e^{liq} + x_e \alpha_e^{sol} \quad (2.91)$$

Un traitement spécifique des données a été entrepris afin de déterminer le coefficient de retrait chimique en prenant en compte les gradients de température et d'avancement durant la réaction de la résine [7].

Les valeurs des différents coefficients volumiques sont données dans le Tableau 2.4.

**Tableau 2.4: Propriétés thermo-chimio-mécaniques de la résine RTM6**

Propriété	Valeur
$\alpha_e^{liq} (10^{-6} K^{-1})$	190.0
$\alpha_e^{sol} (10^{-6} K^{-1})$	56.7
$\beta (\%)$	8.5

La valeur déterminée à l'état cuit est en accord avec celle fournie par Hexcel, qui est de  $52.7 \cdot 10^{-6} K^{-1}$ .

Enfin, la masse volumique de la résine à l'état cru et à  $25^\circ C$  est donnée par Hexcel,  $\rho_e = 1.140 \text{ kg.m}^{-3}$ .

### 2.9.3 PROTOCOLE

Deux essais permettent de valider le modèle développé et sont présentés dans les paragraphes suivants.

Le premier essai concerne le comportement thermomécanique de l'élastomère. Cet essai a déjà été décrit dans la section 2.3.2 et a servi à déterminer l'évolution du module de compressibilité de l'élastomère avec la température. Il permet de valider les modèles thermique et mécanique utilisés pour décrire le comportement de l'élastomère.

Le second essai correspond à une caractérisation d'un échantillon de résine RTM6 à l'aide du dispositif PvTa. L'échantillon était composé de  $8.718\text{g} (\pm 0.5\text{mg})$  de résine injectée dans une capsule d'élastomère de  $8.570\text{g} (\pm 0.5\text{mg})$ . Cette expérience a été réalisée à une pression constante de  $2.0 \text{ MPa}$  et en appliquant le cycle de température suivant:

- Palier isotherme à  $30^\circ C$  pendant 15 minutes,
- Chauffage à  $180^\circ C$  à  $3\text{K.min}^{-1}$ ,
- Palier isotherme pendant 120 minutes,
- Refroidissement à la température ambiante à  $3\text{K.min}^{-1}$ .

L'analyse des signaux expérimentaux issus des capteurs de flux a permis de déterminer la température à la surface de part et d'autre de la capsule [3,6,7,9]. Ces températures sont ensuite utilisées dans le modèle comme conditions aux limites.

## 2.10 VALIDATION DU MODELE

La convergence en maillage et en temps des discrétisations associées est tout d'abord vérifiée. Les deux essais présentés précédemment permettent ensuite d'obtenir plusieurs points de comparaison entre les résultats numériques et expérimentaux afin de valider les modèles. Dans un premier temps on s'intéresse au comportement global de l'élastomère. Puis, l'essai réalisé sur le RTM6 permettra de valider le modèle global à partir de trois paramètres. Le premier est l'évolution du volume de l'échantillon, le second la densité de flux échangée et le dernier la géométrie finale de l'échantillon.

### 2.10.1 CONVERGENCE EN MAILLAGE ET EN TEMPS

La méthode des éléments finis est choisie afin de résoudre les différents problèmes posés. Les champs recherchés sont donc discrétisés spatialement. Il en est de même pour l'échelle en temps. Avant d'exploiter le modèle global, il est nécessaire de vérifier la convergence de ces deux discrétisations.

Une discrétisation trop grossière mènera à des erreurs dans l'estimation des champs, tandis qu'une discrétisation trop fine augmentera les temps de calculs. Un juste milieu peut être trouvé, permettant des calculs suffisamment précis et rapides.

La convergence en maillage est vérifiée en effectuant des simulations à l'aide de différents maillages, du plus grossier au plus fin. Le nombre de nœuds pour le maillage de l'échantillon et celui de la capsule de ces six différentes discrétisations est donné dans le Tableau 2.5.

Tableau 2.5: Nombre de nœuds par maillage pour les différentes discrétisations

Maillage	Maillage 0	Maillage 1	Maillage 2	Maillage 3	Maillage 4	Maillage 5
Echantillon	81	160	290	1069	1617	2363
Capsule	63	139	210	820	1238	1750

On compare alors la densité de flux sortant de la capsule durant la réaction exothermique (Figure 2.10) et l'évolution du volume de l'échantillon (Figure 2.11) issues des simulations réalisées sur ces différents maillages. Ces simulations sont réalisées avec un pas de temps de 1 seconde.

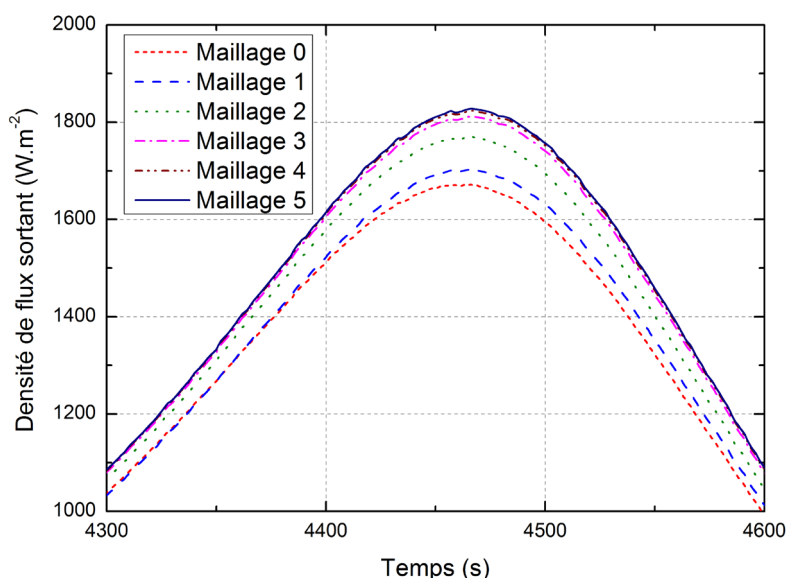


Figure 2.10: Densité de flux échangée durant le pic exothermique pour les différentes discrétisations spatiales

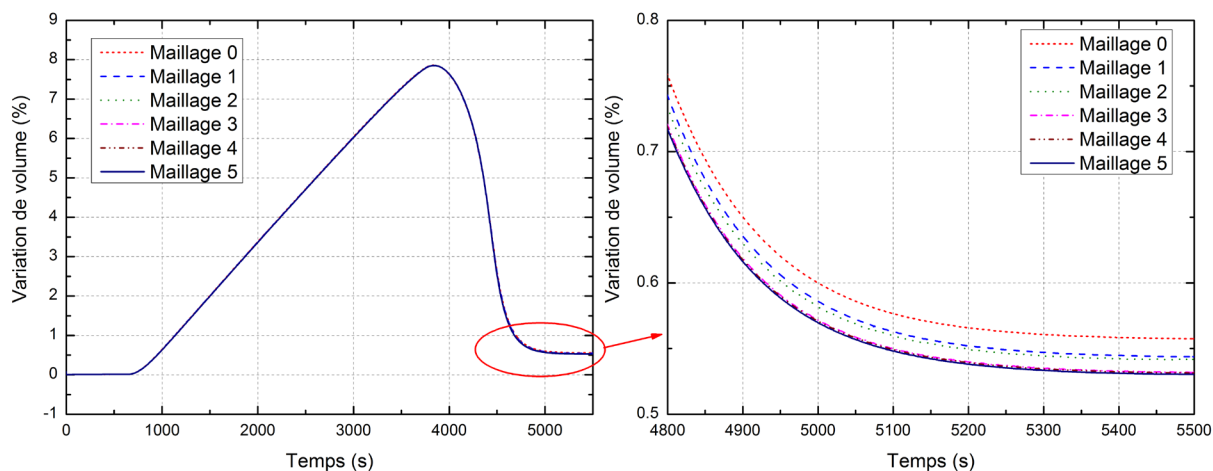


Figure 2.11: Variations de volume de l'échantillon pour les différentes discrétisation spatiales

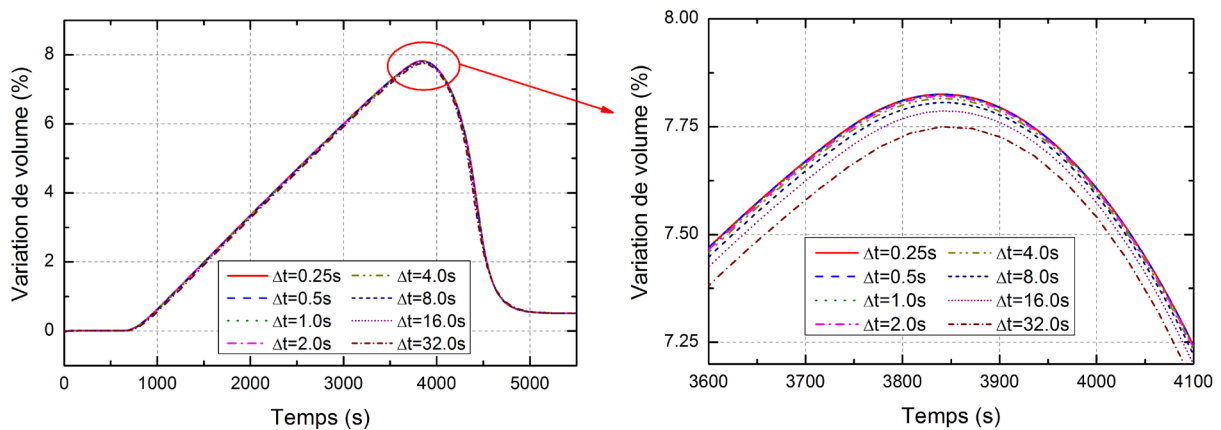
On remarque alors que la discrétisation a une forte influence sur la densité de flux échangée, les écarts entre le maillage le plus grossier et le maillage le plus fin atteignant  $160 \text{ W.m}^{-2}$ , soit 8.9% de la valeur maximale de la densité de flux convergée. La sensibilité des variations de volume de l'échantillon à cette discrétisation est moindre, l'erreur au temps  $t = 5500 \text{ s}$  entre la valeur issue du maillage 0 et celle du maillage 5 étant de seulement 5%. Aux vues de ces résultats on prendra, pour la suite des calculs, la discrétisation du maillage 3. Elle permet d'atteindre une erreur inférieure à 0.3% sur le volume et 0.9% sur la densité de flux, par rapport à la discrétisation du maillage 5, tout en limitant les temps de calculs. Il est à noter que les simulations réalisées sur des maillages plus fins que celui du maillage 5 n'ont pas conduit à une modification significative des résultats présentés.

La convergence en maillage étant vérifiée, il reste à vérifier la convergence en temps du modèle. Pour cela, on effectue plusieurs simulations sur le maillage 3 avec un incrément de temps  $\Delta t$  différent. Les pas de temps utilisés sont donnés dans le Tableau 2.6.

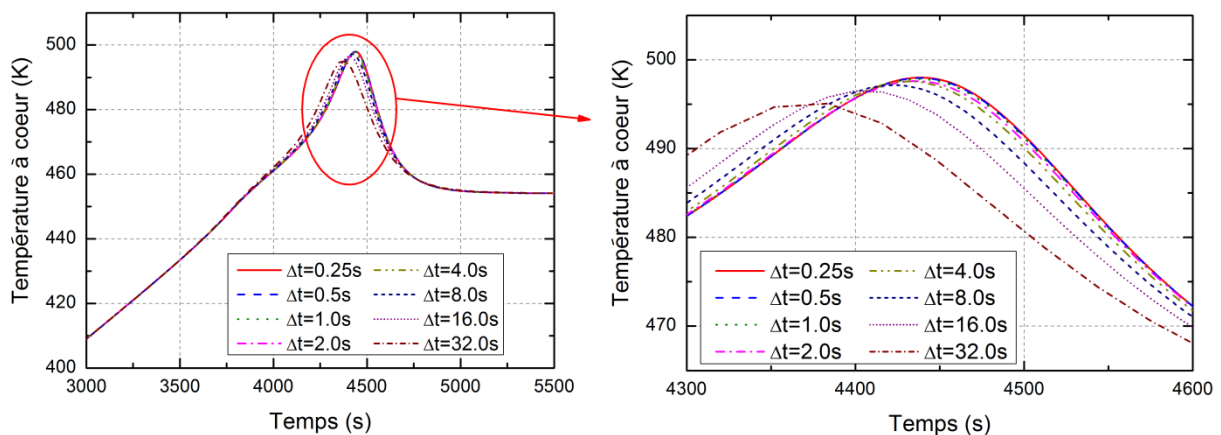
**Tableau 2.6: Incrément de temps pour les différentes simulations de la convergence en temps**

Simulation	1	2	3	4	5	6	7	8
$\Delta t$ (s)	0.25	0.5	1	2	4	8	16	32

Cette fois-ci, on étudie l'influence de l'incrément de temps sur l'évolution du volume de l'échantillon, et sur la température à cœur de l'échantillon. Ces évolutions sont données en Figure 2.12 et Figure 2.13, respectivement.



**Figure 2.12: Influence de la discrétisation temporelle sur les variations de volume de l'échantillon**



**Figure 2.13: Influence de la discrétisation temporelle sur la température à cœur de l'échantillon**

D'après ces résultats, on observe que le pas de temps a une faible influence sur les résultats en dehors de la réaction. Pendant celle-ci, il est nécessaire d'atteindre un pas de temps de 1s afin de limiter l'erreur faite sur l'estimation de la température à cœur et sur le volume total de l'échantillon. En dehors de la réaction, le pas de temps pourra atteindre 32s. Une méthode d'adaptation du pas de temps est implantée dans la résolution du problème général décrit dans le chapitre précédent. Elle permet de faire évoluer le pas de temps entre 32s et 1s en se basant sur les variations de température et d'avancement dans la capsule et l'échantillon.

### 2.10.2 COMPORTEMENT THERMO-MECANIQUE DE L'ELASTOMERE

On s'intéresse à l'essai réalisé sur l'élastomère afin de mesurer l'évolution de son module de compressibilité avec la température. Celui-ci était effectué en imposant un cycle de pression, compris entre 0.75 et 6.0MPa. On propose alors de réaliser deux simulations où la pression imposée sur le dessus de l'élastomère est égale aux valeurs extrêmes du cycle de pression expérimental. Le problème est réduit à l'étude du seul élastomère et la géométrie de celui-ci est représentée en Figure 2.14. Le modèle mécanique et les conditions à la limite autres que la pression sur la surface supérieure sont alors les mêmes que celles données pour la capsule dans la section 2.6.1.

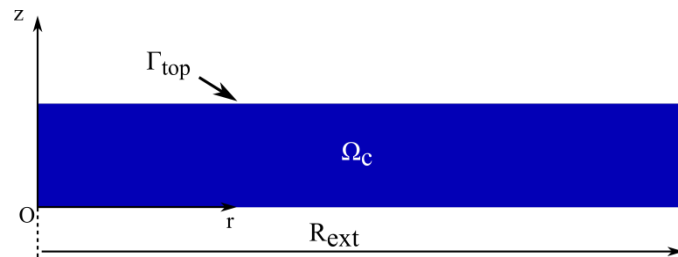


Figure 2.14: Géométrie du problème pour la modélisation du comportement thermomécanique de l'élastomère

Le cycle de température appliqué sur le dessus de l'échantillon est donné par le traitement des signaux expérimentaux des capteurs de flux.

On compare alors les évolutions expérimentale et numérique du volume de l'échantillon au cours du temps (Figure 2.15).

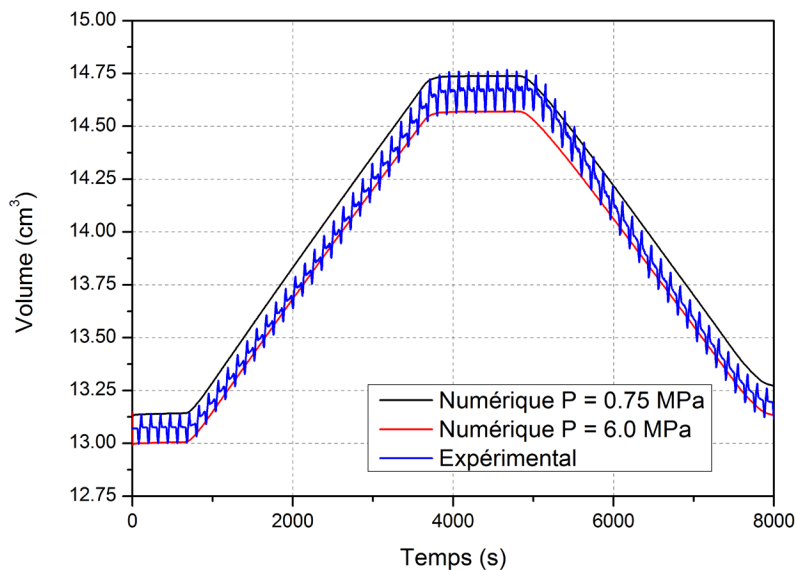


Figure 2.15: Evolution du volume de l'échantillon d'élastomère. Comparaison entre résultats expérimentaux et numériques.

On remarque qu'il y a un bon accord entre les évolutions de volume de l'échantillon et les résultats numériques, permettant un encadrement de l'évolution expérimentale du volume de l'élastomère.

De légères différences apparaissent durant la phase de montée en température. Deux phénomènes peuvent en être la cause. D'une part, le comportement visco-élastique du matériau n'est pas pris en compte. D'autre part, la cavité moulante était lubrifiée durant l'essai à l'aide d'huile silicone afin de limiter les frottements entre l'échantillon et les parois. Cependant, cette huile se diffuse dans l'élastomère ce qui peut assécher les surfaces et induire de légers frottements avec l'échantillon. Il est à noter que ce phénomène s'accélère lorsqu'on augmente la température.

Malgré ces écarts, le modèle permet une très bonne prédiction du comportement thermo-mécanique réel de l'élastomère, validant ainsi sa modélisation.

### 2.10.3 ÉVOLUTION DU VOLUME DE L'ÉCHANTILLON

Ce point de la validation du modèle global consiste à comparer l'évolution de la variation de volume de l'échantillon obtenue expérimentalement à celle issue de la modélisation. Ces deux évolutions sont données en Figure 2.16, avec le degré d'avancement de la réticulation calculé au cœur de l'échantillon et la température imposée numériquement à la surface de la capsule.

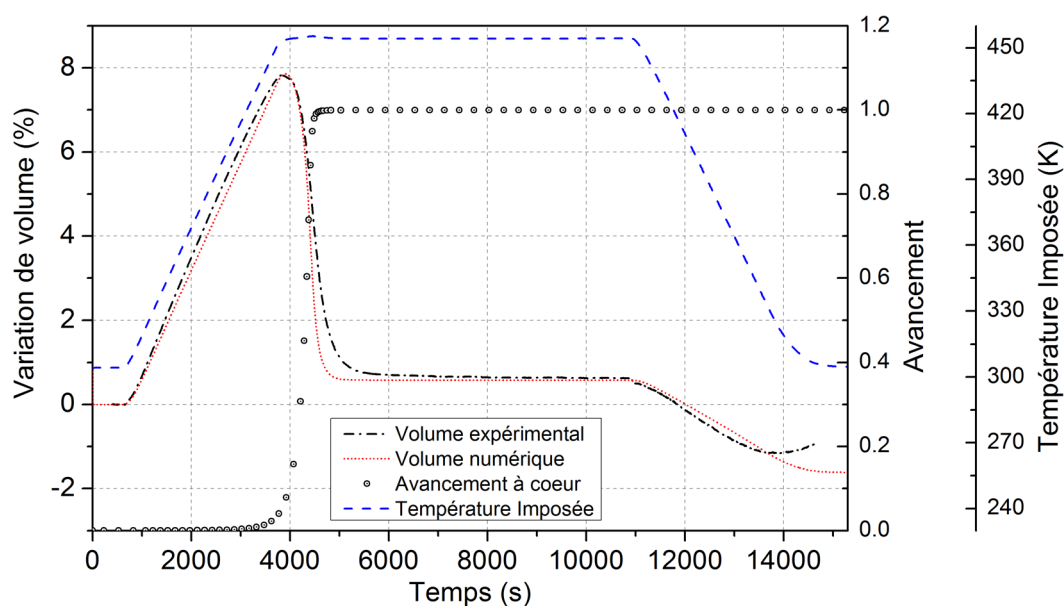


Figure 2.16: Evolution du volume de l'échantillon numérique et expérimental, avancement à cœur et température imposée

Après le palier isotherme à 30°C, le volume augmente linéairement avec la température durant la phase de chauffage. La réticulation commence à la fin de cette étape et induit un retrait chimique de la résine. Ainsi, la totalité de la transformation a lieu durant les 30 premières minutes du palier isotherme à 180°C. On n'observe plus aucune variation de volume une fois l'avancement maximal atteint, jusqu'à la fin du palier. Ensuite, le volume évolue encore une fois linéairement avec la descente en température durant la phase de refroidissement. La variation expérimentale de volume fait l'objet d'un comportement inattendu à la fin du refroidissement. Alors que le volume devrait décroître, celui-ci augmente à partir de  $t = 13700$ s. Ce phénomène est attribué à un artefact de mesure et ne sera pas pris en compte dans la suite de l'étude.

Le retrait chimique modélisé semble se développer légèrement plus rapidement que durant l'expérience, ce qui signifie que la cinétique de réaction décrite par Lecoite [36] surestime la cinétique réelle. Quoiqu'il en soit, le modèle reproduit fidèlement les évolutions de volume réelles de la résine. Cela prouve que les coefficients de dilatation thermique et de retrait chimique déterminés expérimentalement permettent une simulation précise du comportement de l'échantillon.

#### 2.10.4 DENSITES DE FLUX DE CHALEUR PENDANT LA RETICULATION

Une validation complémentaire repose sur les densités de flux de chaleur échangés. La comparaison entre les densités de flux numérique et expérimentale est donnée en Figure 2.17.

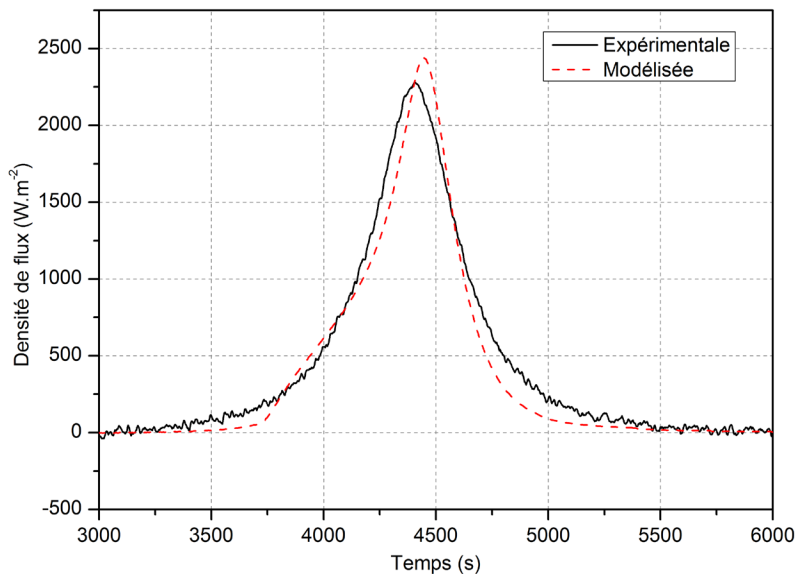


Figure 2.17: Comparaison de la densité de flux échangée expérimentale et numérique

On observe une bonne adéquation entre les résultats numériques et expérimentaux. De légères différences (*i.e.* inférieures à  $250 \text{ W.m}^{-2}$ ) apparaissant durant le pic exothermique. Celles-ci peuvent être attribuées au fait que les transferts thermiques ne se passent pas complètement suivant une direction à travers l'épaisseur de l'échantillon. Une autre explication provient du modèle cinétique employé qui, comme nous l'avons vu précédemment, présente un léger écart vis à vis des résultats expérimentaux.

#### 2.10.5 PROFIL LATÉRAL DE L'ECHANTILLON

Enfin, il est possible de comparer la forme finale de l'échantillon obtenue suite à l'essai à celle calculée numériquement. Pour la première, on utilise un profilomètre sans contact KEYENCE LJ-V7080, plus de détails sur ce capteur peuvent être trouvés dans le chapitre 4. La face latérale de l'échantillon est scannée suivant l'épaisseur de l'échantillon. La comparaison entre la face latérale de l'échantillon obtenue numériquement et celle d'un des profils de l'échantillon est présentée en Figure 2.18.

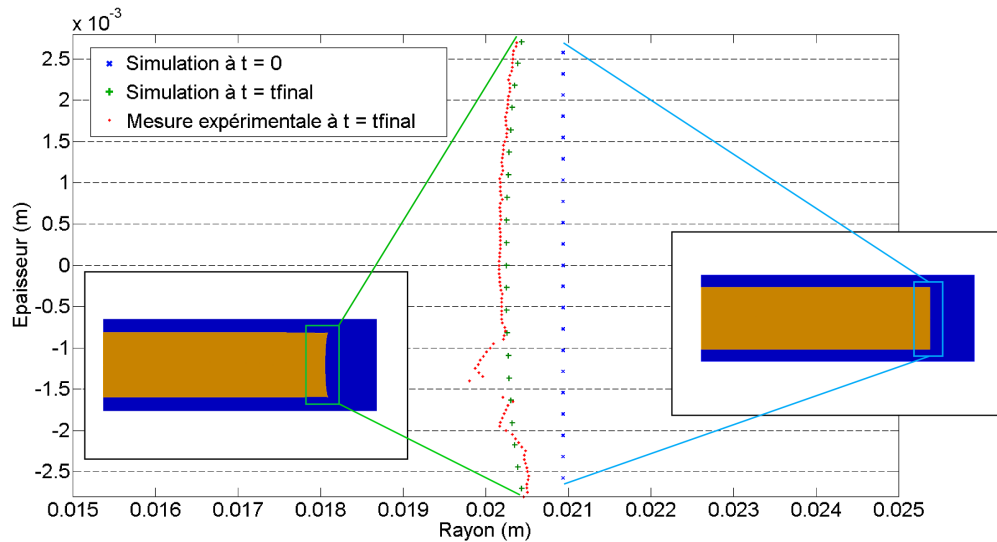


Figure 2.18: Comparaison entre le profil de l'échantillon numérique et de l'échantillon réel à la fin de l'essai

Encore une fois, les résultats numériques permettent d'approcher précisément les résultats expérimentaux. Une légère perturbation est observée sur le profil expérimental et est due à la présence d'une collerette de silicone à l'intérieur de la capsule induisant un creux à la surface de l'échantillon. En dehors de cette zone, l'erreur entre le profil prédit par le modèle et celui obtenu expérimentalement est inférieure à 1%.

Le modèle étant complètement validé dans la configuration classique du  $PvT\alpha$ , on peut l'appliquer à la vérification de la capacité du dispositif à mesurer le module de compressibilité de la résine durant sa réticulation.

## 2.11 APPLICATION A LA MESURE DU MODULE DE COMPRESSIBILITE DE LA RESINE

Pour rappel, trois hypothèses principales ont été posées dans les précédentes études réalisées avec le dispositif  $PvT\alpha$ . La première est de considérer qu'il n'y a pas de décollement entre la capsule et l'échantillon. La seconde est que la pression autour de l'échantillon est hydrostatique, la contrainte normale est la même en chaque point de la surface de l'échantillon. Enfin, la troisième hypothèse consiste en l'égalité entre les variations de volume de la capsule utilisée pour l'essai et celles de la capsule utilisée pour la ligne de base si celles-ci sont différentes.

### 2.11.1 ETAT DE CONTRAINTES AUTOUR DE L'ECHANTILLON

L'analyse de l'état de contraintes autour de l'échantillon est un outil adéquat à la vérification des deux premières hypothèses. Le critère choisi afin de les vérifier est le ratio entre la contrainte normale moyenne sur la surface latérale et la contrainte normale moyenne sur la surface supérieure de l'échantillon:

$$\chi = \frac{\sigma_{lat}}{\sigma_{sup}} \quad (2.92)$$

Quand l'échantillon subit un état de contraintes hydrostatique, les deux contraintes moyennes sont égales et on a  $\chi = 1$ . Si ce ratio tend vers 0, cela signifie que la surface latérale tend à se détacher de la capsule. A l'inverse, si  $\chi$  tend vers l'infini, alors la surface supérieure de l'échantillon tend à se détacher de la capsule. Une valeur négative indique qu'une des surfaces est soumise à de la traction et l'autre à de la compression. La surface sous tension peut alors également se détacher de la capsule. Tout détachement, s'il avait lieu, induirait une erreur dans l'estimation de l'évolution du volume de l'échantillon.

Si  $\chi$  diffère de 1, et donc que l'état de contrainte autour de l'échantillon n'est pas hydrostatique, la variation de volume associée à une variation de pression est liée aux déformations volumiques et déviatoriques. Par conséquent, la variation de volume de l'échantillon est reliée au module de compressibilité  $K_e$  et de cisaillement  $\mu_e$  de la résine. La relation utilisée par Nawab *et al.* [6] afin de déterminer le module de compressibilité à partir de la variation de volume et de la variation de pression ne tient alors plus.

Les différents états de contrainte et le ratio associé ainsi que la conséquence de cet état de contraintes sur la mesure sont donnés dans le Tableau 2.7.

**Tableau 2.7: Signification et influence de la valeur du ratio des contraintes**

Valeur de $\chi$	Signification	Influence
$\chi \in ]-\infty; 0[$	Détachement possible	Erreur dans l'estimation des variations de volume
$\chi = 0$	Détachement possible de la surface latérale	Erreur dans l'estimation des variations de volume
$\chi \in ]0; 1[ \cup ]1; +\infty [$	Etat de contraintes non hydrostatique	Les variations de volume sont liées à $K_e$ et $\mu_e$
$\chi = 1$	Etat de contraintes hydrostatique	Les variations de volume sont liées à $K_e$
$\chi \rightarrow \infty$	Détachement possible de la surface supérieure	Erreur dans l'estimation des variations de volume

### 2.11.2 VERIFICATION DE LA PREMIERE HYPOTHESE

L'évolution du ratio des contraintes  $\chi$  décrit précédemment avec le temps pour la simulation décrite dans la section 2.10.3 est représentée en Figure 2.19, avec l'avancement de la réaction et le module de cisaillement au cœur de l'échantillon.

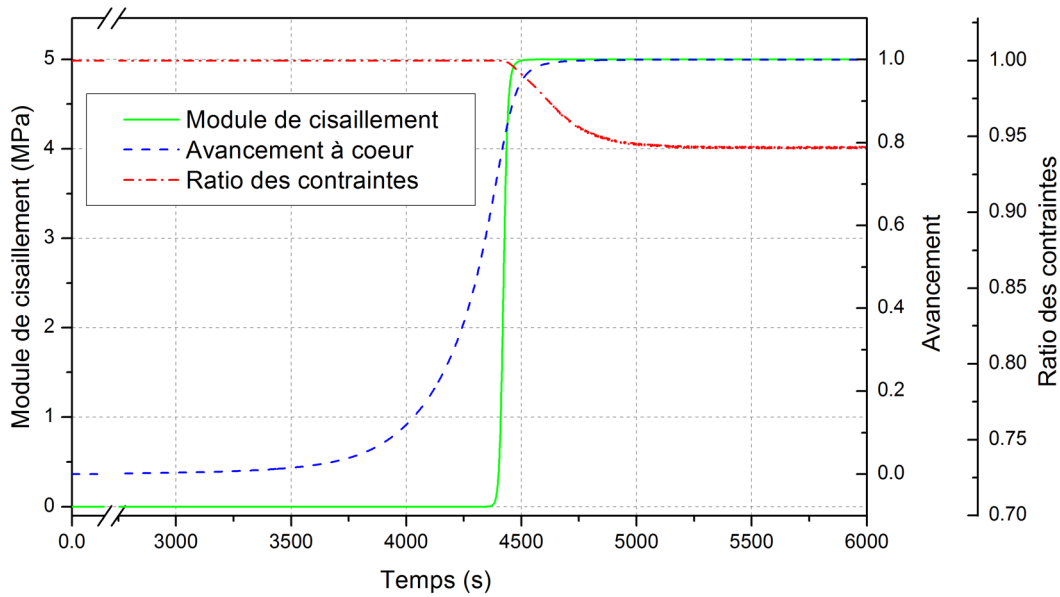


Figure 2.19: Evolution du ratio des contraintes autour de l'échantillon, avec le module de cisaillement et l'avancement à cœur

On observe alors que durant la première partie du cycle de cuisson, quand la résine est toujours à l'état cru et que le module de cisaillement est quasiment nul,  $\chi$  est égal à 1. Dès que les propriétés mécaniques de la résine se développent, le ratio décroît et témoigne d'un état de contraintes non hydrostatique. Deux phénomènes liés à l'évolution du degré d'avancement de la réaction ont lieu en même temps et mènent à cette perte d'hydrostaticité. D'une part, le développement des propriétés de la résine font que l'échantillon est capable de supporter les efforts de cisaillement. Il devient alors plus rigide que la capsule. Cette dernière étant un solide élastique et non un fluide, la contrainte normale appliquée par le piston n'est plus transférée de manière homogène. D'autre part, le retrait chimique de la résine entraîne une diminution du volume de l'échantillon. La partie latérale de l'échantillon se rétractant, elle diminue la compression radiale de la capsule. Même pour une pression de 2.0 MPa, le ratio des contraintes décroît.

Le PvTa est classiquement utilisé sous une pression constante comprise entre 0.1 et 6.0 MPa. Il est alors intéressant de savoir si l'hypothèse 1 est vérifiée sur toute cette gamme. L'évolution de  $\chi$  avec le temps est donnée en Figure 2.20a pour plusieurs niveaux de pression compris entre 0.1 et 6.0 MPa avec le degré d'avancement au cœur de l'échantillon.

Quel que soit le niveau de pression, le ratio initial est égal à un et le reste tant que la résine est à l'état cru. Il décroît ensuite, comme présenté précédemment, dès que le degré d'avancement dépasse le point de gel. Plus la pression est forte et plus le ratio final tend vers 1 (Figure 2.20b). A l'inverse, une pression trop faible entraîne une plus forte chute de  $\chi$  durant la réticulation, voire même à un possible décollement entre la capsule et l'échantillon quand la pression est inférieure à 0.17 MPa. Un décollement peut entraîner une erreur dans l'estimation de l'évolution du volume de l'échantillon et donc sur la détermination des coefficients de dilatation thermique et/ou de retrait chimique de la résine. Ce phénomène a déjà été observé expérimentalement, une trop faible pression appliquée à l'aide du piston étant la source de résultats incohérents vis-à-vis des coefficients déterminés. On en conclut alors qu'une pression minimale est nécessaire afin d'éviter tout décollement entre l'échantillon et la capsule et ainsi vérifier la première hypothèse.

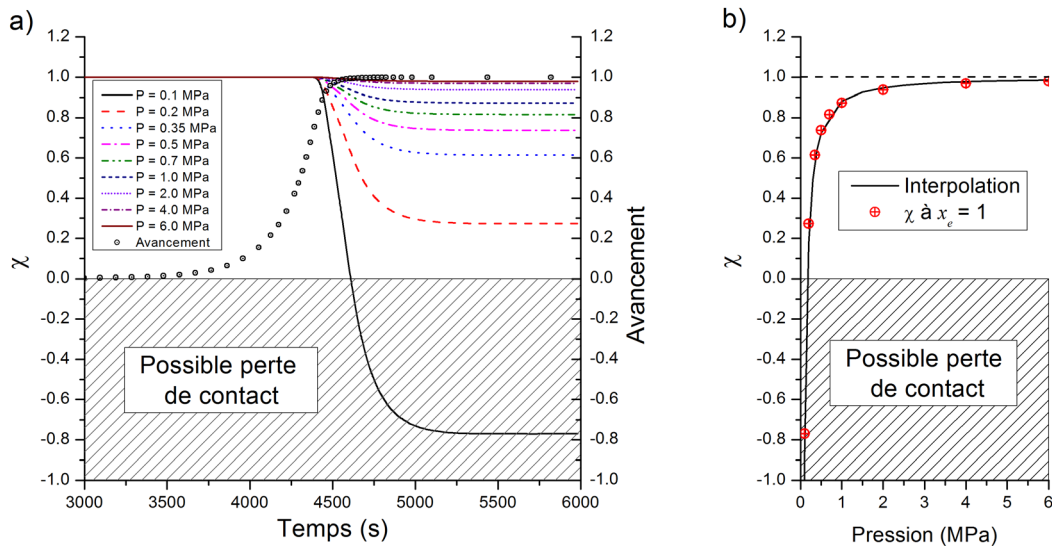


Figure 2.20: a) Influence de la pression sur l'évolution du ratio des contraintes b) Influence de la pression sur la valeur du ratio des contraintes à la fin de la réticulation

On remarque également que l'état de contraintes autour de l'échantillon est très sensible à l'évolution de l'avancement de la réaction à partir du point de gel. Une trop faible pression appliquée fait donc intervenir les effets combinés du module de compressibilité et de cisaillement de la résine, renforçant les effets déviatoires de l'état de contraintes. Dans de telles conditions, l'évolution du volume de l'échantillon n'est pas seulement liée au module de compressibilité de la résine, ce qui rend difficile l'identification de cette propriété à l'aide du  $PvT\alpha$ . La section suivante s'intéresse plus en détails à cette détermination.

### 2.11.3 COMPORTEMENTS EN CYCLE DE PRESSION

On se place désormais dans le cadre de la détermination du module de compressibilité de la résine à l'aide du  $PvT\alpha$ . Le protocole proposé par Nawab *et al.* [6] afin de remplir cet objectif induit d'appliquer un cycle périodique de pression sur la capsule. De cette façon, si l'hypothèse 2 est vérifiée, l'échantillon est soumis à un état de contraintes hydrostatique permettant de directement relier la variation de volume associé à une variation de pression au module de compressibilité de la résine. Le cycle de pression proposé par Nawab *et al.* [6] est décrit en Figure 2.21 et est répété durant tout le cycle de mise en forme, toutes les 80 secondes.

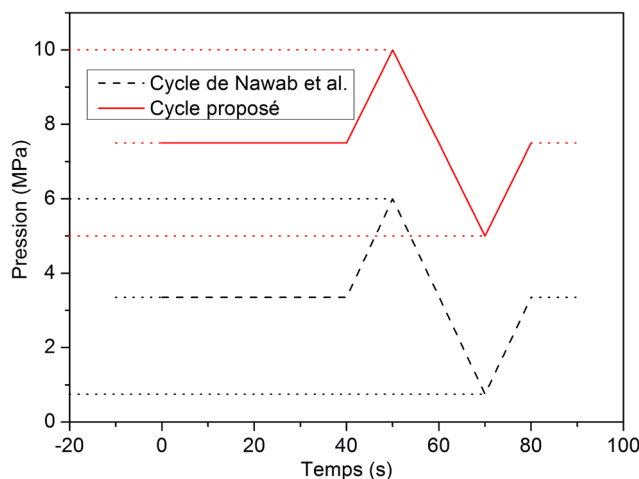


Figure 2.21: Cycle de pression proposé par Nawab *et al.* [6] et nouveau cycle de pression

Ce cycle fait varier la pression dans une gamme comprise entre 0.75 et 6.0 MPa. Si l'on se réfère aux résultats présentés en Figure 2.20, on remarque que ces niveaux de pression ne permettent pas d'avoir un état de contraintes hydrostatique autour de l'échantillon durant tout le cycle de cuisson, le ratio des contraintes pouvant alors chuter à une valeur de 0.82 quand la pression est de 0.75 MPa. Afin de limiter cette décroissance du ratio et maintenir un état hydrostatique de contraintes autour de l'échantillon, un nouveau cycle de pression est proposé pour lequel la pression est comprise entre 5.0 et 10.0 MPa. Il est représenté en Figure 2.21 et, d'après les résultats précédents, le ratio des contraintes ne descendra pas en dessous de 0.98. On peut donc considérer qu'avec ce nouveau cycle de pression, l'hypothèse 2 est vérifiée, alors que le cycle de pression proposé par Nawab *et al.* ne le permettait pas.

Comme rappelé en section 2.2.3, l'échantillon est scellé dans une capsule déformable et il n'est donc pas possible de mesurer directement l'évolution du volume  $V_e$  de l'échantillon. Une ligne de base  $V_{LdB}$  est réalisée afin de soustraire la contribution de la dilatation du moule  $V_{moule}$  et de l'évolution de volume de la capsule  $V_c$  du volume total  $V_t$  mesuré durant l'essai. On n'a accès qu'à une estimation  $\tilde{V}_e$  du volume de l'échantillon donnée par:

$$\begin{aligned} V_t &= V_e + V_c + V_{moule} \\ V_{LdB} &= \tilde{V}_c + V_{moule} \\ \tilde{V}_e &= V_t - V_{LdB} = V_e + V_c - \tilde{V}_c \end{aligned}$$

L'hypothèse 3 considère une égalité entre  $V_c$  et  $\tilde{V}_c$ . Le but des prochains paragraphes est de montrer dans quelle mesure cette égalité est vraie. Pour cela, on réalise numériquement les deux expériences nécessaires à l'application du protocole de Nawab *et al.* [6]. La première est réalisée sur la capsule contenant l'échantillon de résine et soumise au cycle de pression proposé et décrit plus tôt en Figure 2.21 ainsi qu'au cycle de température décrit dans la section 2.9.3. La seconde expérience est réalisée sur un cylindre d'élastomère plein dont le volume initial est le même que celui de la capsule de la première expérience. Il est alors soumis au même cycle de pression et de température que pour la première expérience. L'évolution du volume de cet échantillon est alors prise comme ligne de base. Les résultats issus de ces deux expériences numériques servent de données d'entrée pour appliquer le protocole de Nawab *et al.*.

Les variations numériques réelles et estimées du volume de l'échantillon au cours du temps sont représentées en Figure 2.22, avec le cycle de température imposé, les degrés d'avancement à cœur et en surface de l'échantillon et le ratio des contraintes. On se limite aux 7000 premières secondes des simulations, la totalité de la réticulation ayant lieu durant cette période.

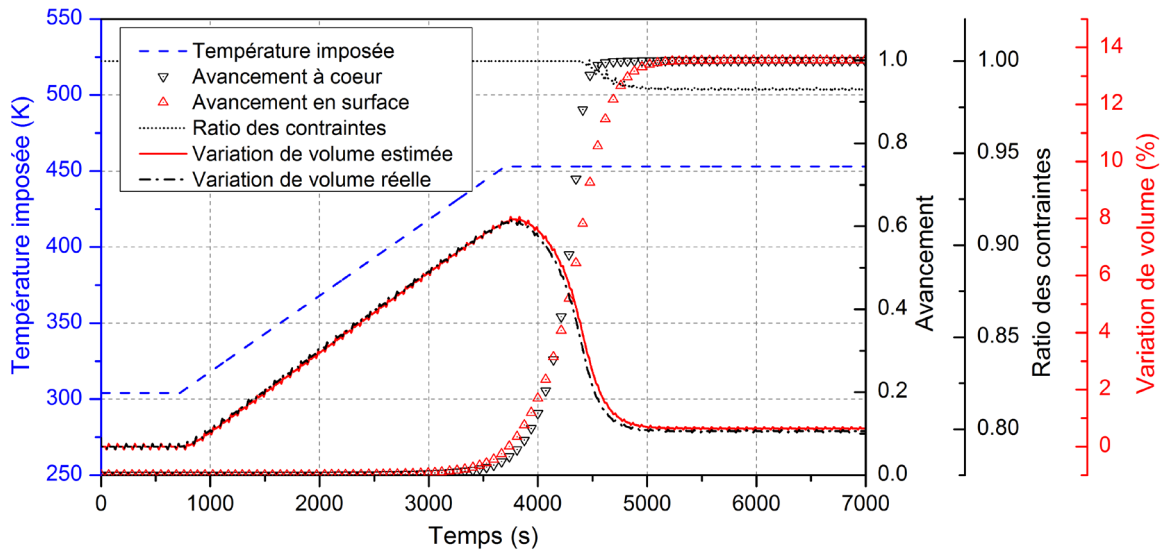


Figure 2.22: Comparaison entre les variations de volume réel et estimé de l'échantillon issues des expériences numériques, avec la température imposée, l'avancement à cœur et en surface de l'échantillon ainsi que le ratio des contraintes autour de l'échantillon

Les évolutions globales du volume de l'échantillon, réelle et estimée, sont qualitativement les mêmes que celles décrites dans la section 2.10.3, la différence notable venant des variations périodiques de volume liées au cycle de pression appliqué. Comme prévu, le ratio des contraintes chute de 1 à une valeur de 0.98 ce qui reste satisfaisant afin de vérifier la deuxième hypothèse. On remarque également que les évolutions globales du volume réel de l'échantillon et du volume estimé sont sensiblement identiques durant la phase de chauffe et qu'un décalage apparaît durant la réticulation. Cette différence induit une erreur inférieure à 2% dans l'estimation du retrait chimique et est due à la différence de comportement entre la capsule réelle et celle de la ligne de base. Il semble donc que, bien que l'hypothèse 3 ne soit pas parfaitement vérifiée, elle n'influence pas de façon significative la détermination des coefficients de dilatation thermique et de retrait chimique de la résine.

Le but de cette étude étant la caractérisation du module de compressibilité de la résine, on va se focaliser maintenant sur les variations de volume de la capsule liées aux variations de pression appliquées à l'aide du piston.

#### 2.11.4 METHODE DE DETERMINATION DU MODULE DE COMPRESSIBILITE

Pour rappel, le protocole décrit par Nawab *et al.* [6] se base sur les variations de volume de l'échantillon dues à la variation de la pression du piston pour calculer le module de compressibilité de la résine. Une variation typique de volume durant un cycle de pression est donnée en Figure 2.23.

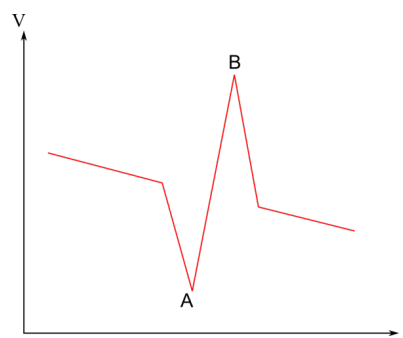


Figure 2.23: Variation de volume de l'échantillon au cours d'un cycle de pression

Cette variation est à la fois due à la compression de la résine mais aussi aux contributions de la dilatation thermique et du retrait chimique de la résine. Il faut donc soustraire ces deux contributions avant de procéder à l'estimation du module de compressibilité.

On considère  $A(t_1, T_1, V_1, x_1, P_1)$  et  $B(t_2, T_2, V_2, x_2, P_2)$ , les pics de volume durant un cycle de pression.  $t$  représente le temps,  $T$  la température,  $V$  le volume,  $x$  l'avancement de la réaction et  $P$  la pression. La variation totale de volume  $AB$  est égale à  $\Delta V_e = V_2 - V_1$ .

De par la définition du cycle de pression, 20 secondes s'écoulent entre  $t_1$  et  $t_2$ . Durant cette période, le matériau subit une variation de température  $\Delta T = T_2 - T_1$  et une variation d'avancement  $\Delta x = x_2 - x_1$ . La température utilisée dans la méthode proposée par Nawab *et al.* est celle issue de l'analyse des données des capteurs de flux, donnant la température en surface de la capsule. L'avancement de la réaction est, quant à lui, celui issu du traitement de la densité de flux de chaleur dégagée. La méthode ne considère donc pas la présence de gradients de température ou d'avancement au sein de l'échantillon.

Le coefficient de dilatation thermique de la résine étant dépendant de l'avancement, il est amené à varier entre les points A et B si ceux-ci se trouvent pendant la réticulation. Le traitement des données se fait en considérant que le coefficient de dilatation thermique est constant entre les points A et B et est égal à la moyenne des coefficients aux points A et B. De la même façon, une valeur moyenne de retrait chimique est prise en compte sur le segment AB. On a alors  $\alpha_{AB} = (\alpha_1 + \alpha_2)/2$ , et  $\beta_{AB} = (\beta_1 + \beta_2)/2$ , où  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$  sont les coefficients de dilatation thermique et  $\beta_1$  et  $\beta_2$  les coefficients de retrait chimique aux points A et B, respectivement. On considère bien souvent que le coefficient de retrait chimique est constant. Dans ce cas,  $\beta_1$  et  $\beta_2$  sont identiques.

La variation de volume due à la compression de l'échantillon  $\Delta V_{comp}$  entre les points A et B est alors déterminée en soustrayant les contributions thermique  $\Delta V_{th}$ , due à la variation de température  $\Delta T$ , et chimique  $\Delta V_{ch}$ , due à la variation d'avancement  $\Delta x$ , de la variation totale  $\Delta V_e$ .

$$\Delta V_{comp} = \Delta V_e - \Delta V_{th}(\Delta T) - \Delta V_{ch}(\Delta x), \quad (2.93)$$

avec

$$\Delta V_{th}(\Delta T) = V_1 \Delta T \alpha_{AB} \quad (2.94)$$

$$\Delta V_{ch}(\Delta T) = V_1 \Delta x \beta_{AB} \quad (2.95)$$

Le module de compressibilité  $K_{AB}$  est alors déterminé, pour ce segment AB, en appliquant la formule:

$$K_{AB} = V_1 \frac{P_2 - P_1}{\Delta V_{comp}} \quad (2.96)$$

## 2.11.5 APPLICATION AUX RESULTATS DES EXPERIENCES NUMERIQUES

En appliquant le protocole décrit précédemment aux résultats issus des simulations, on obtient une estimation du module de compressibilité de la résine au cours de sa cuisson. Les évolutions du module estimé et du module réel, donné par l'équation (2.89), sont comparées en Figure 2.24. L'avancement de la réaction estimé à partir de la densité de flux de chaleur  $y$  est également représenté.

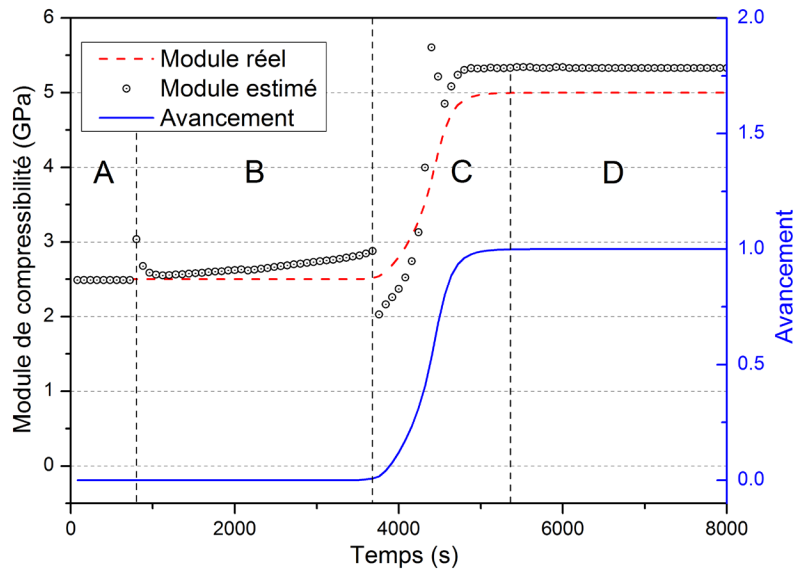


Figure 2.24: Evolution du module de compressibilité réel et estimé, avec l'avancement de la réaction

Les ordres de grandeur des deux modules sont les mêmes, ce qui se veut rassurant. Cependant, quelques différences apparaissent entre le module réel et le module estimé. Lorsque l'échantillon est non réticulé et durant la phase isotherme (zone A), les valeurs réelle et estimée du module coïncident, l'erreur faite sur le module étant inférieure à 0.7%. Durant le chauffage (zone B), cette erreur augmente et atteint une valeur maximum de 19% à la fin du chauffage. L'erreur atteint un maximum de 43% durant la réticulation de la résine (zone C). Après la transformation de la résine et durant le palier isotherme à 180°C (zone D), le module estimé est supérieur au module réel, avec une erreur constante de 8%. Ainsi, bien que l'échantillon soit soumis à un état de contraintes hydrostatique, une importante erreur est faite sur l'estimation du module de compressibilité de la résine.

Il existe deux sources principales expliquant ces écarts entre module estimé et module réel. La première est liée au comportement mécanique différent entre la capsule utilisée durant un essai et celle utilisée pour la ligne de base et la seconde aux gradients de température et d'avancement durant la réticulation de la résine.

Afin de déterminer le module de compressibilité, on utilise la variation de volume due à la compression de l'échantillon  $\Delta V_{comp}$  (2.96). Celle-ci est estimée à partir de la variation de volume de l'échantillon  $\Delta V_e$  (2.93). Or, on n'a pas directement accès à cette grandeur, seulement à l'estimation de la variation de volume de l'échantillon  $\Delta \tilde{V}_e$ . Il y a égalité entre les deux variations de volume si la variation de volume de la capsule réelle  $\Delta V_c$  est égale à celle de la ligne de base  $\Delta V_{LDB}$ . Les deux expériences numériques réalisées permettent d'avoir accès à ces différentes variations. Leur évolution au cours du temps est représentée dans la Figure 2.25.

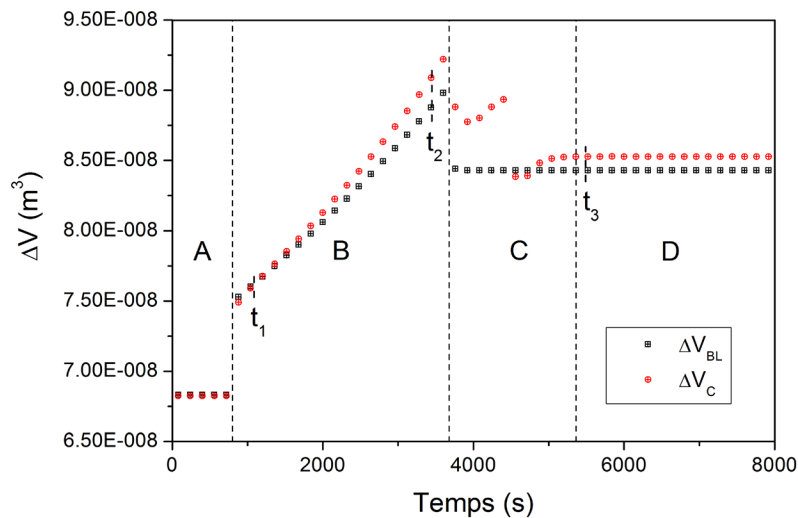


Figure 2.25: Comparaison entre les variations de volume de la capsule et de la ligne de base à chaque incrément de pression

On remarque qu'il n'y a pas de différence entre la capsule réelle et celle issue de la ligne de base durant la phase isotherme (zone A), ainsi qu'au début de la montée en température (zone B). Les évolutions divergent ensuite pendant la phase de chauffage, les variations de volume de la capsule réelle étant plus importantes que celles de la ligne de base. Pendant la transformation (zone C), de grandes variations du comportement de la capsule réelle sont principalement dues à la combinaison de l'exothermie de la réaction et du retrait chimique. Finalement, après la réaction et durant le palier isotherme à 180°C (zone D), une différence constante existe entre les deux variations de volume.

Ces écarts sont liés à des différences de comportement mécanique entre la capsule réelle et celle issue de la ligne de base, et notamment de leur état de contraintes. Pour les trois temps  $t_1$ ,  $t_2$  et  $t_3$  représentés en Figure 2.25 et correspondant à une pression appliquée de 7.5 MPa, qui est la pression moyenne du cycle proposé, la distribution de pression à l'intérieur de la capsule contenant la résine est donnée en Figure 2.26.

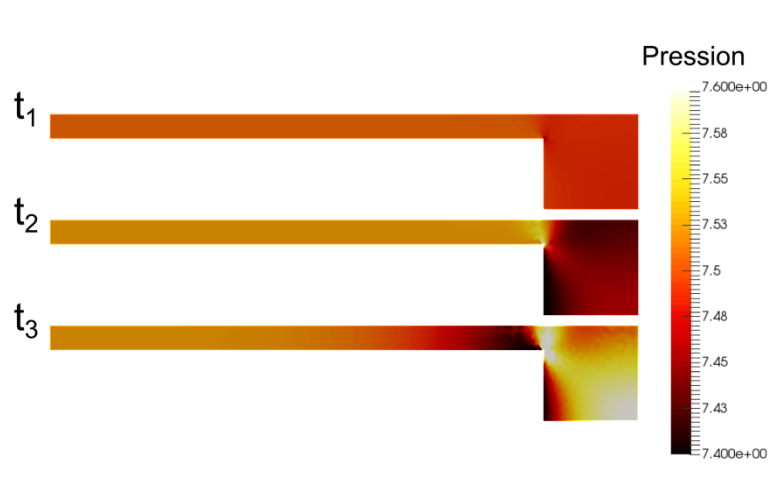


Figure 2.26: Distribution de la pression dans la capsule aux temps  $t_1$ ,  $t_2$  et  $t_3$

A l'instant  $t_1$ , la distribution de pression est uniforme. Le comportement de la capsule réelle et celle de la ligne de base sont les mêmes. Durant la montée en température, la partie déviatoire de l'état de contrainte se développe, menant à une hétérogénéité de la distribution de pression dans la capsule (à

l'instant  $t_2$ ). Elle est alors considérablement modifiée après la réticulation (à l'instant  $t_3$ ), menant à une distribution complètement non uniforme de la pression avec d'importantes variations de pression.

Le développement de ces hétérogénéités est piloté par la cinématique entre la capsule et l'échantillon de résine. Plusieurs simulations ont été réalisées, mais ne seront pas présentées ici pour ne pas alourdir la présente étude, et ont permis ces quelques observations. Durant la montée en température, la capsule pilote les déformations dans la cavité moulante, son module de cisaillement étant le plus important. L'augmentation de température, la géométrie de la capsule et la différence de coefficients de dilatation thermique entre la capsule et la résine mènent à la distribution non uniforme de pression à l'instant  $t_2$ . Durant la réaction de réticulation, le module de cisaillement de la résine se développe et devient supérieur à celui de l'élastomère. L'échantillon est le pilote de la cinématique et, alors que le retrait chimique continue, il impose ses déformations à la capsule, menant à l'état hétérogène de pression à l'instant  $t_3$ . L'estimation du module de compressibilité en dehors de la transformation est tout de même en accord avec le module réel, l'erreur faite sur l'estimation du module étant inférieure à 10%. Ainsi, l'hypothèse 3 n'est pas vérifiée, les variations de volume de la capsule réelle et de celles issues de la ligne de base n'étant pas parfaitement égales. Il ne s'agit cependant pas de la source principale d'erreur. Celle-ci est discutée dans les paragraphes suivants.

Durant la réticulation (zone C), zone d'intérêt majeur dans l'étude de l'évolution du module de compressibilité de la résine au cours de sa réaction, les gradients de température et d'avancement peuvent induire une erreur dans l'estimation de ce module. La température utilisée afin de traiter les données expérimentales dans le protocole de Nawab *et al.* étant celle de la surface de la capsule, et l'avancement de la réaction étant estimé à partir de la densité de flux mesurée, aucun traitement spécifique n'est réalisé quand de forts gradients d'avancement ou de température existent. Dans le cas de la résine RTM6, le cycle de cuisson étant une rampe de température jusqu'à 180°C à 3°C.min<sup>-1</sup>, la réaction début vers 140°C et a majoritairement lieu à la fin de la montée en température. Une grande partie de l'enthalpie de réaction est alors libérée en un temps "court" (< 1500s), du fait de la vitesse de la réaction. Par conséquent, de forts écarts de température et d'avancement, atteignant 40°C et 0.27 respectivement, ont lieu, entre le cœur et la surface de l'échantillon. Afin de limiter ce phénomène, il est possible de réduire la vitesse de montée en température, ce qui ralentira la réaction. L'enthalpie de réaction étant constante, si la vitesse de réaction est diminuée, les gradients de température et d'avancement seront limités. Les évolutions du module de compressibilité estimé en fonction de l'avancement de la réaction sont données en Figure 2.27 pour quatre différentes vitesses de chauffage, égales à 3, 2, 1 et 0.5 °C.min<sup>-1</sup>. L'estimation de ce module est toujours réalisée à l'aide du protocole de Nawab *et al.*.

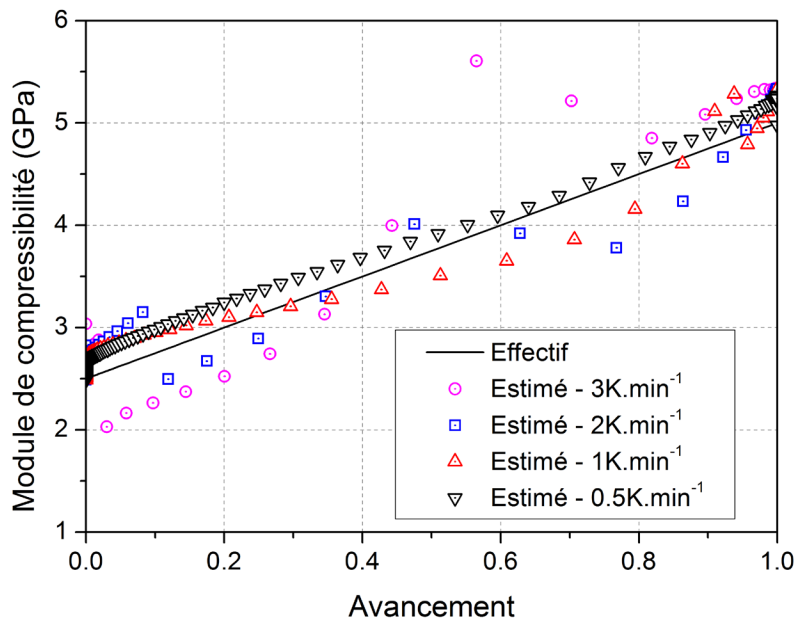


Figure 2.27: Evolution du module de compressibilité estimé avec l'avancement de la réaction pour différents cycles thermiques

Les résultats semblent confirmer le fait que le protocole décrit par Nawab *et al.* donne de bonnes estimations du module de compressibilité de la résine à condition qu'il n'y ait pas de gradients de température et d'avancement trop importants au sein de l'échantillon. Lorsque la vitesse de chauffe est de  $0.5\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ , les différences de température et d'avancement de la réaction entre le cœur et la surface de l'échantillon sont limitées à  $10^\circ\text{C}$  et  $0.09$ , respectivement. L'erreur dans l'estimation du module de compressibilité est alors plus faible, atteignant une valeur maximale de  $8.2\%$ , contre  $43\%$  dans le cas où l'on chauffe à  $3^\circ\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ . L'évolution du module de compressibilité suit une loi linéaire, avec un écart quasiment constant de  $0.25\text{ GPa}$  entre le module estimé et le module réel. Cet écart est associé à la différence de comportement mécanique entre la capsule réelle et l'élastomère utilisé pour la ligne de base.

## 2.11.6 DISCUSSIONS

Les précédents résultats ont permis de vérifier si les hypothèses émises pour estimer l'évolution du module de compressibilité de la résine au cours de sa transformation étaient valables ou non. Ainsi, les deux premières hypothèses le sont, à condition d'imposer une pression suffisante sur l'échantillon. La troisième hypothèse n'est pas tout à fait vérifiée, mais elle n'induit qu'une erreur négligeable dans l'identification, à l'aide du  $PvT\alpha$ , des coefficients de dilatation thermique et de retrait chimique de la résine. Son influence sur la mesure du module de compressibilité de la résine au cours de la réticulation est plus importante et mène à une erreur pouvant aller jusqu'à  $8\%$  sur la valeur de ce module.

Le facteur le plus influent dans l'erreur faite sur l'estimation du volume semble être la présence de gradients de température et d'avancement. Afin de réduire leur intensité, il est possible de modifier le cycle thermique en vue de diminuer la vitesse de réaction. Bien que cette solution permette théoriquement d'améliorer l'analyse des résultats et donc la mesure du module de compressibilité de la résine au cours de sa transformation, elle n'est probablement pas idéale. En effet, cela induirait une diminution de la densité de flux instantanée échangée. Cette densité de flux, si elle n'est pas suffisamment élevée, peut ne pas être perçue par les capteurs de flux en raison de leur niveau de

sensibilité (qui est d'environ 100 à 150 W.m<sup>-2</sup>), ce qui induirait une mauvaise estimation de l'avancement de la réaction.

On peut donc légitimement se demander si une mesure directe et précise du module de compressibilité de la résine au cours de sa transformation est possible. La réponse n'est, *a priori*, pas positive notamment en présence de forts gradients de température et d'avancement dans l'échantillon. Une nouvelle méthode d'analyse des résultats, prenant en compte ces gradients ainsi que le comportement mécanique de la capsule permettrait d'améliorer la précision de la mesure. Elle pourra être basée sur le modèle développé dans le chapitre précédent et validé dans ce chapitre, ainsi que sur la méthode qui a déjà été entreprise au laboratoire afin de prendre en compte les gradients lors de l'analyse des résultats issus d'essais classiques sur le PvTα [7].

Une autre question à laquelle on peut également répondre concerne la faisabilité de l'estimation du module de cisaillement de la résine au cours de la réticulation. Comme expliqué plus tôt, le développement de ce module influence en partie l'état de contraintes autour de l'échantillon et le comportement de la capsule. Cependant, il n'est pas possible d'avoir accès à l'échantillon durant un essai. On pourrait néanmoins mesurer la pression latérale exercée par la capsule sur la cavité moulante à l'aide d'un capteur de pression (Figure 2.28).

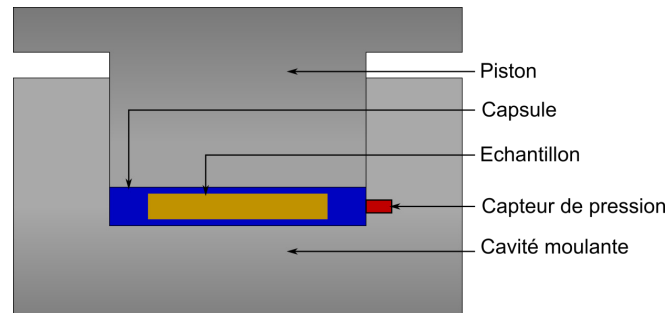


Figure 2.28: Position du capteur de pression pour l'estimation du module de cisaillement de la résine

Reste à voir l'influence du module de cisaillement de la résine sur cette pression. En utilisant le modèle précédent, trois simulations ont été réalisées sous une pression constante de 2.0 MPa avec une valeur finale du module de cisaillement donnée dans l'équation (2.90) prise à 5 Pa, 5 MPa et 10 MPa, respectivement. L'évolution de la contrainte latérale moyenne à l'extérieur de la capsule est donnée en Figure 2.29 pour ces trois expériences.

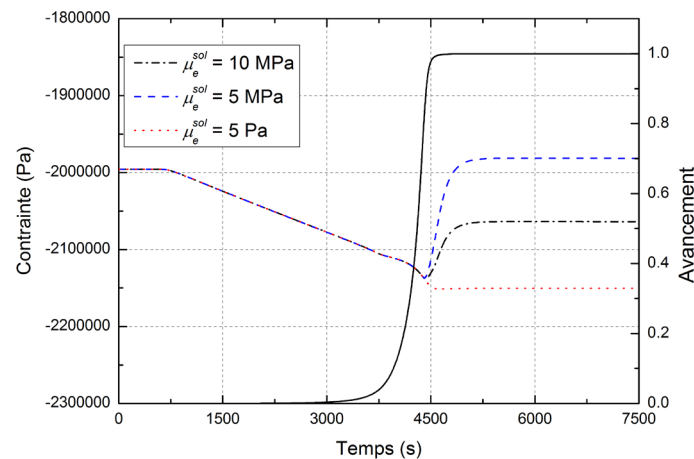


Figure 2.29: Influence de la valeur finale du module de cisaillement de la résine sur la pression latérale à l'extérieur de la capsule

On remarque que la montée en température induit une augmentation de la compression latérale de la capsule, les dilatations thermiques étant bloquées par le moule dans cette direction. Puis, quand la réaction induit un retrait chimique et une modification du module de cisaillement, cette pression diminue. La diminution de pression est d'autant plus importante que le module de cisaillement final est élevé. Il semble que le module de cisaillement a un impact non négligeable sur la contrainte normale latérale de la capsule. Une étude plus approfondie de la faisabilité de cette mesure reste à faire. Si elle s'avérait possible on pourrait alors, en un seul essai, caractériser de manière encore plus complète la résine et ce au cours de la totalité de la transformation.

Enfin, au vu des différents résultats présentés, on peut également se demander si la modélisation des interactions entre la capsule et l'échantillon est représentative de ce qu'il se passe expérimentalement ou non. Les efforts tangentiels au niveau de l'interface de contact entre les deux corps peuvent atteindre 0.1MPa dans la simulation réalisée dans la section 2.11.5. Bien que le coefficient de friction entre la résine et l'élastomère ne soit pas connu, l'existence d'un glissement entre les deux surfaces n'est pas impossible. Ce glissement, s'il était pris en compte, induirait probablement une réduction des contraintes et donc une modification du ratio des contraintes autour de l'échantillon. Une première étape de la prise en compte de cette nouvelle cinématique à l'interface entre l'échantillon et la capsule est proposée dans la section suivante.

## 2.12 PRISE EN COMPTE DU GLISSEMENT ENTRE LA CAPSULE ET L'ECHANTILLON

Le glissement possible entre la capsule et l'échantillon est géré à l'aide de l'algorithme de contact détaillé dans la section 2.7.2 et l'annexe B. Celui-ci se base sur une approche de nœud-à-segment afin de discrétiser l'interface de contact entre les deux constituants, et sur une méthode de pénalisation pour le résoudre [35]. On considère l'échantillon comme le domaine "esclave".

La géométrie de l'échantillon utilisée dans la première partie de cette étude présente un angle droit entre la surface supérieure et la surface latérale de l'échantillon. Cet angle droit induit une discontinuité de la normale à la surface, rendant le traitement du contact difficile lorsque le glissement entre les surfaces est autorisé. Bien que des stratégies permettent de prendre en compte ce type de géométrie [40], leur implantation est souvent lourde. Une modification de la géométrie locale, en remplaçant l'angle droit par un quart de cercle, permet de contourner ce problème sans être trop irréaliste. Cette modification est représentée en Figure 2.30.

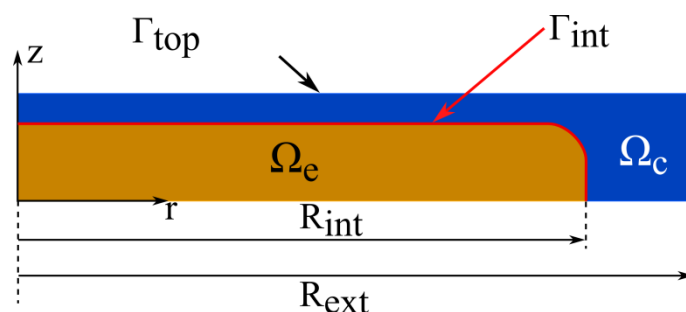
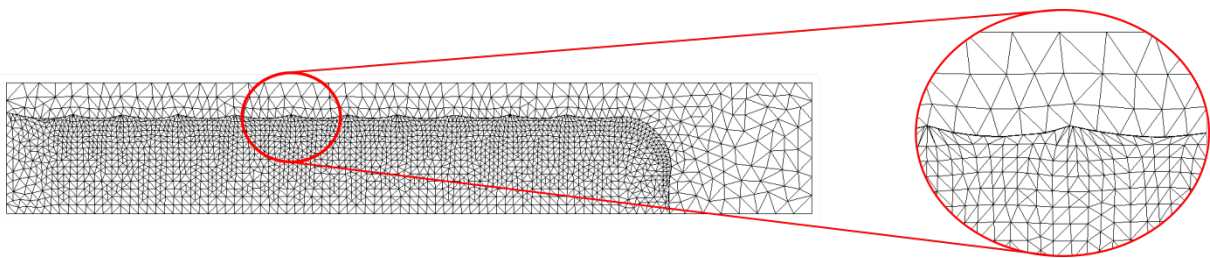


Figure 2.30: Modification de la géométrie de l'échantillon et de la capsule pour mettre en place le contact glissant

Il est alors possible de reproduire les simulations précédentes en prenant en compte le glissement et le décollement entre la surface de l'échantillon et celle de la capsule. Dans un premier temps, la

validation présentée en section 2.10 est simulée de nouveau. La seule modification pour ces premiers résultats concerne le module de cisaillement de l'échantillon, que l'on prendra constant et d'une valeur de 5 MPa. Les mêmes validations que pour la section 2.10 peuvent être envisagées. Les variations de volume et la densité de flux de chaleur étant identiques à celles obtenues auparavant, elles ne seront pas présentées ici. On considère que l'algorithme fonctionne donc très bien dès lors que les deux corps sont capables de supporter un effort de cisaillement.

La forme finale de l'échantillon ne peut être comparée à la forme expérimentale que si l'on prend en compte le développement des propriétés mécaniques de la résine, passant de l'état cru à l'état cuit. Il en est de même pour l'étude du ratio des contraintes qui n'aurait pas de sens si l'on partait d'un échantillon déjà solide. Une instabilité numérique apparaît malheureusement lorsque le module de cisaillement initial de l'échantillon est trop faible. Cette instabilité se traduit par l'apparition de vaguelettes espacées périodiquement le long de l'interface de contact (Figure 2.31).



**Figure 2.31: Instabilités numériques apparaissant à l'interface de contact lorsque le module de cisaillement de la résine est faible**

Au bout d'un certain nombre de pas de temps, ces vaguelettes rendent la résolution du problème mécanique impossible, faisant s'arrêter l'algorithme de résolution. Plusieurs solutions ont été envisagées afin de comprendre leur origine. En faisant varier la taille des mailles du maillage esclave, l'instabilité apparaît toujours mais la période des vaguelettes est modifiée.

L'inversion des rôles entre le domaine maître et le domaine esclave, faisant de la capsule l'esclave et de l'échantillon le maître, n'améliore pas non plus la situation, les vaguelettes étant orientées dans le sens opposé. La mise en place de friction à l'aide d'une pénalisation du glissement tangentiel ne fait que retarder l'apparition du phénomène.

La seule explication possible vient de l'utilisation de la discrétisation de nœud-à-surface de l'interface de contact. Cette solution est basée sur une stratégie locale de vérification de la condition de contact. Chaque nœud "esclave" est associé à deux nœuds "maître" et la contribution du contact ne prend en compte que ces trois nœuds sans se soucier des éléments de contact voisins. Elle n'est donc pas apte à passer le "patch-test" [41,42], c'est à dire qu'elle ne transmet pas de manière suffisamment précise les contraintes, de légers déséquilibres apparaissant localement.

L'apparition de cette instabilité a déjà été rapportée par Hild [43] dans le traitement du contact entre deux solides élastiques. Dans son étude, il compare une méthode de type nœud-à-surface à une méthode "globale" de traitement du contact, se rapprochant d'une méthode de type "mortar". L'utilisation de la discrétisation locale de la condition de contact mène à l'apparition d'une distribution périodique de la contrainte de contact, alors que la forme globale permet une transmission équilibrée des contraintes (Figure 2.32).

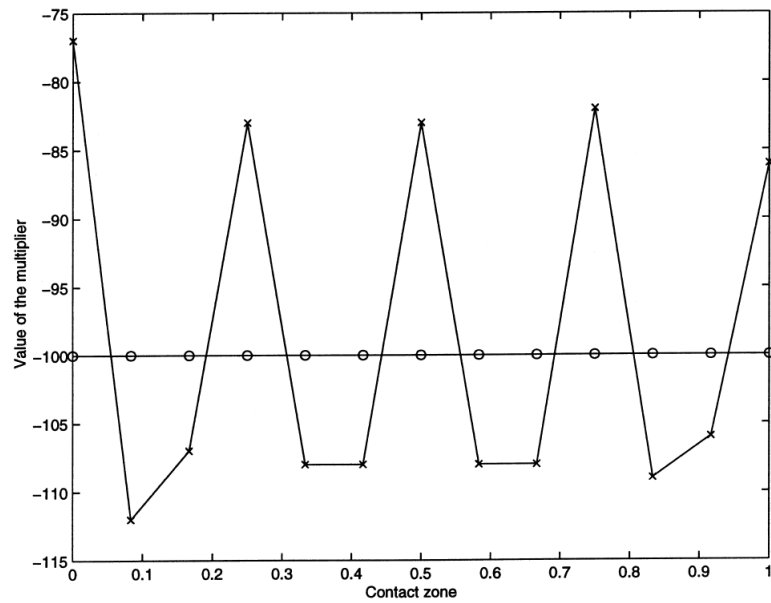


Figure 2.32: Contraintes de contact le long de la surface pour les traitements local (x) et global (o) du contact [43]

Afin d'améliorer la transmission des contraintes et éviter l'apparition de cette instabilité dans le traitement de notre problème, il faut alors soit modifier l'approche actuelle afin qu'elle passe le patch-test [44], soit utiliser une autre approche, comme celle proposée par Hild [43]. Ces méthodes sont cependant lourdes à mettre en place. La modification de l'approche nœud-à-surface permettant de passer le patch-test implique une augmentation des points d'intégration de la condition de contact sur chaque segment, la linéarisation du problème devenant alors conséquente. Les approches de type "mortar" ou utilisant une surface de contact intermédiaire imposent quant à elles l'intégration de degrés de liberté supplémentaires.

A ce jour, il n'a pas été possible d'aller plus loin dans l'intégration du glissement entre la capsule et l'échantillon. Des développements plus poussés seraient alors à réaliser afin de prendre en compte le contact décollant possible entre la capsule et l'échantillon tout en évitant l'apparition de ces instabilités.

## 2.13 CONCLUSION

Afin de vérifier les hypothèses posées dans l'analyse des résultats issus du PvTa, une modélisation complète de l'échantillon et de la capsule dans la cavité moulante du dispositif est proposée. Cette modélisation est composée de deux sous-modèles, le premier traitant les états thermiques de la capsule et de l'échantillon, en plus de l'état chimique de ce dernier, et le second les états mécaniques de la capsule et de l'échantillon ainsi que le contact mécanique entre ces deux éléments.

Le modèle thermo-chimique prend en compte la réticulation de la résine, la variation des propriétés de celle-ci avec la température et l'avancement, ainsi que la possible dépendance des propriétés de l'élastomère à la température. Le problème associé est donc non-linéaire et une stratégie de résolution adaptée permet de le résoudre. Il assure le calcul des champs de température dans la capsule et l'échantillon, ainsi que de l'avancement de la réaction dans ce dernier. Ces champs permettent d'alimenter le problème mécanique afin de déterminer les dilatations thermiques et retrait chimique et de mettre à jour les propriétés mécaniques des deux constituants.

L'hypothèse des petits déplacements est faite, les déformations ayant lieu durant une expérience sur le PvTa étant suffisamment faibles. A partir de ce constat, les propriétés mécaniques de l'élastomère ont été déterminées, la thermo-dépendance du module de compressibilité a pu être caractérisée à l'aide du PvTa. Les résultats sont en accord avec les mesures réalisées par essai de compression multiaxiale à 20°C, donnant un module de compressibilité de 520 MPa. La capsule, souvent considérée comme incompressible, est en réalité plus compressible que la résine. Son module de cisaillement est cependant faible (0.43 MPa à 20°C), son module de Poisson tendant alors vers 0.5.

De par les propriétés de la capsule, une approche adaptée est nécessaire afin de prendre en compte la quasi-incompressibilité dans la modélisation de son comportement mécanique. Le modèle se base alors sur une formulation mixte en élasticité linéaire, permettant d'éviter un mauvais conditionnement du problème. L'échantillon de résine requiert, lui aussi, un traitement spécifique afin d'être modélisé. Ses propriétés mécaniques se développant durant la réticulation, passant d'un fluide quasi-incompressible à un solide capable de transmettre des efforts de cisaillement, un modèle prenant en compte ces phénomènes est adopté. Il est adapté à la formulation mixte pour prendre en compte le caractère quasi-incompressible de la résine avant la réticulation.

Le modèle mécanique global permet de déterminer les états de contrainte et de déformation des deux constituants, en prenant en compte les champs de température et d'avancement. Il permet d'intégrer les contributions des dilatations thermiques et du retrait chimique de l'échantillon, et de la dilatation thermique de la capsule. Le contact mécanique entre les deux éléments est également considéré et peut être traité de deux façons, soit à l'aide d'un contact parfait collant, soit par le biais d'un algorithme de contact permettant le décollement entre l'échantillon et la capsule.

Les différents problèmes traités pouvant être non-linéaires, ils sont résolus de façon incrémentale à l'aide d'une méthode de Newton-Raphson.

Le modèle multiphysique du PvTa a été alimenté à l'aide des propriétés physiques de la capsule et de l'échantillon. Il a ainsi pu être validé en comparant les résultats issus de l'exploitation de ce modèle à des résultats expérimentaux. La comparaison mène à un excellent accord entre résultats numériques et expérimentaux. Le modèle validé, il a pu être exploité afin de mieux comprendre le comportement de la capsule durant un essai et vérifier les différentes hypothèses. Aux vues des résultats, il est nécessaire d'appliquer une pression minimum supérieure à 0.1 MPa afin d'éviter tout décollement entre

l'échantillon et la capsule. Si un tel décollement avait lieu, il induirait une erreur dans l'estimation des propriétés thermo-mécaniques et chimio-mécaniques de la résine. De la même façon, un niveau minimum de pression doit être atteint si l'on souhaite maintenir une pression hydrostatique autour de l'échantillon durant tout le cycle de cuisson. Les deux premières hypothèses sont ainsi vérifiées. La troisième hypothèse concernant le comportement volumique de la capsule réelle et de celle de la ligne de base a également été étudiée. Les évolutions globales du volume de ces deux capsules d'élastomère sont relativement les mêmes et n'affectent que très peu l'estimation des coefficients de dilatation thermique et de retrait chimique de la résine. L'erreur faite sur ce dernier coefficient dans le cas de la RTM6 est d'ailleurs inférieure à 2%. Leurs comportements lorsqu'elles sont soumises à un incrément de pression n'est cependant pas tout à fait le même. Cette différence entraîne une erreur dans l'estimation du module de compressibilité, mais celle-ci reste cependant inférieure à 10%.

Le facteur le plus important dans l'estimation du module de compressibilité repose sur l'existence de gradients de température et d'avancement dans l'échantillon. En présence de forts gradients, l'erreur dans l'estimation du module peut atteindre 40%. En modifiant le cycle de cuisson, il est possible de limiter l'effet de ces gradients, en n'induisant plus que des erreurs liées au comportement de la capsule. Cependant, réduire la vitesse de montée en température et donc la vitesse de réaction n'est pas idéal, les densités de flux de chaleur mesurées risqueraient de ne plus être suffisamment importantes comparées à la sensibilité des capteurs de flux. Une nouvelle méthode d'analyse, prenant en compte les gradients de température et d'avancement est donc nécessaire.

Il semblerait que la contrainte latérale à l'extérieur de la capsule soit influencée par le développement du module de cisaillement de la résine. Bien que l'idée ait été rapidement abordée dans ce chapitre, il pourrait être intéressant d'aller plus loin dans cette direction afin de vérifier la sensibilité de ce phénomène au développement des propriétés de la résine. On pourrait ainsi étudier la faisabilité d'une estimation du module de cisaillement de la résine en cours de transformation. Le dispositif PvT $\alpha$  permettrait, en un seul essai, de déterminer un grand nombre de propriétés de la résine au cours de sa réticulation, propriétés nécessaires à l'estimation du comportement des matériaux composites durant leur mise en forme.

Enfin, la prise en compte du glissement à l'interface entre la capsule et l'échantillon a été envisagée à l'aide d'un algorithme de contact basé sur une approche nœud-à-surface résolue par pénalisation. Cette approche donne de bons résultats tant que les corps en contact possèdent les mêmes propriétés mécaniques, et tant que ces propriétés permettent aux corps de supporter des efforts de cisaillement. Dès lors que l'échantillon est trop mou, une instabilité numérique apparaît, traduisant l'incapacité de l'approche à transmettre correctement les contraintes. Le recours à une méthode de traitement du contact plus précise permettrait de simuler la totalité du cycle de cuisson en considérant le glissement ainsi qu'un possible décollement entre les surfaces en contact. Il reste donc à mettre en place une telle méthode.

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] X.-A. Aduriz, Suivi in-situ de la mise en forme de pièces composites par capteurs à fibres optiques, Thèse de doctorat, Université de Nantes, 2007.
- [2] A. Agazzi, Contribution à l'optimisation de la thermique des outillages dans le procédé d'injection des polymères thermoplastiques, Thèse de doctorat, Université de Nantes, 2011.
- [3] N. Boyard, M. Vayer, C. Sinturel, R. Erre, D. Delaunay, Analysis and modeling of PVTX diagram of an unsaturated polyester resin, thermoplastic additive, and mineral fillers blend, *J. Appl. Polym. Sci.* 88 (2003) 1258–1267.
- [4] A. Millischer, Transferts thermiques dans le procédé d'injection BMC (Bulk Molding Compound), Thèse de doctorat, Université de Nantes, 2000.
- [5] Y. Nawab, Characterization and modelling of cure dependent properties of thermoset composites - application to the simulation of residual stresses, Thèse de doctorat, Université de Nantes, 2012.
- [6] Y. Nawab, P. Casari, N. Boyard, F. Jacquemin, Characterization of the cure shrinkage, reaction kinetics, bulk modulus and thermal conductivity of thermoset resin from a single experiment, *J. Mater. Sci.* 48 (2013) 2394–2403.
- [7] Y. Nawab, X. Tardif, N. Boyard, V. Sobotka, P. Casari, F. Jacquemin, Determination and modelling of the cure shrinkage of epoxy vinylester resin and associated composites by considering thermal gradients, *Compos. Sci. Technol.* 73 (2012) 81–87.
- [8] X. Tardif, Cristallisation et transferts thermiques dans un polymère thermoplastique semi-cristallin en refroidissement rapide sous pression, Thèse de doctorat, Université de Nantes, 2012.
- [9] X. Tardif, A. Agazzi, V. Sobotka, N. Boyard, Y. Jarny, D. Delaunay, A multifunctional device to determine specific volume, thermal conductivity and crystallization kinetics of semi-crystalline polymers, *Polym. Test.* 31 (2012) 819–827.
- [10] H. Massé, E. Arquis, D. Delaunay, S. Quilliet, P. Le Bot, Heat transfer with mechanically driven thermal contact resistance at the polymer – mold interface in injection molding of polymers, *Int. J. Heat Mass Transf.* 47 (2004) 2015–2027.
- [11] J. Beck, B. Blackwell, C. Clair, *Inverse heat conduction*, Wiley, New York, 1985.
- [12] Standard test methods for vulcanized rubber and thermoplastic elastomers - Tension, ASTM D412-06. (2006).

- 
- [13] Standard test methods for rubber properties in compression, ASTM D575-91. (2001).
- [14] F. Hecht, New development in FreeFem++, *J. Numer. Math.* 20 (2012) 251–265.
- [15] O.C. Zienkiewicz, R.L. Taylor, J.Z. Zhu, *The Finite Element Method: its Basis and Fundamentals*, Sixth Edit, Butterworth-Heinemann, Oxford, 2005.
- [16] A.M. Lindrose, Ultrasonic wave and moduli changes in a curing epoxy resin, *Exp. Mech.* 18 (1978) 227–232.
- [17] R.J. Freemantle, R.E. Challis, Combined compression and shear wave ultrasonic measurements on curing adhesive, *Meas. Sci. Technol.* 9 (1999) 1291–1302.
- [18] L.R. Herrmann, R.M. Toms, A reformulation of the elastic field equation, in terms of displacements, valid for all admissible values of Poisson's ratio, *J. Appl. Mech.* 31 (1964) 140–141.
- [19] L.R. Herrmann, Elasticity equations for incompressible and nearly incompressible materials by a variational theorem., *AIAA J.* 3 (1965) 1896–1900.
- [20] I. Friedt, Influence of Poisson's ratio on the condition of the finite element stiffness matrix, 9 (1973) 323–329.
- [21] R.L. Taylor, K.S. Pister, L.R. Herrmann, On a variational theorem for incompressible and nearly-incompressible orthotropic elasticity, *Int. J. Solids Struct.* 4 (1968) 875–883.
- [22] I. Babuska, The Finite Element Method with Penalty, *Math. Comput.* 27 (1973) 221–228.
- [23] F. Brezzi, On the existence, uniqueness and approximation of saddle-point problems arising from Lagrangian multipliers, *Rev. Française D'automatique, Informatique, Rech. Opérationnelle. Anal. Numérique.* (1974) 129–151.
- [24] D.N. Arnold, F. Brezzi, M. Fortin, A stable finite element for the stokes equations, *Calcolo.* 21 (1984) 337–344.
- [25] T.A. Bogetti, J.W.J. Gillespie, Process-induced stress and deformation in thick-section thermoset composite laminates, *J. Compos. Mater.* 26 (1992) 626–660.
- [26] D.J. O'Brien, P.T. Mather, S.R. White, Viscoelastic Properties of an Epoxy Resin during Cure, *J. Compos. Mater.* 35 (2001) 883–904.
- [27] S. Dixon, D. Jaques, C. Edwards, S.B. Palmer, The Development of Shear and Compression Elastic Moduli in Curing Epoxy Adhesives Measured Using Non-Contact Ultrasonic Transducers, *Rev. Quant. Nondestruct. Eval.* 22 (2003) 1049–1055.

- [28] D. Adolf, J.E. Martin, Calculation of stresses in crosslinking polymers, *J. Compos. Mater.* 30 (1996) 13–34.
- [29] D. Adolf, R. Chambers, Verification of the capability for quantitative stress prediction during epoxy cure, *Polymer (Guildf)*. 38 (1997) 5481–5490.
- [30] M.S. Kiasat, Curing shrinkage and residual stresses in viscoelastic thermosetting resins and composites, Thèse de doctorat, Delft University of Technology, 2000.
- [31] C. van't Hof, Mechanical Characterization and Modeling of Curing Thermosets, Thèse de doctorat, Delft University of Technology, 2006.
- [32] A. Lion, P. Höfer, On the phenomenological representation of curing phenomena in continuum mechanics, *Arch. Mech.* 59 (2007) 59–89.
- [33] M. Hossain, G. Possart, P. Steinmann, A small-strain model to simulate the curing of thermosets, *Comput. Mech.* 43 (2009) 769–779.
- [34] M. Hossain, P. Steinmann, Degree of cure-dependent modelling for polymer curing processes at small-strain. Part I: consistent reformulation, *Comput. Mech.* 53 (2013) 777–787.
- [35] G. Zavarise, L. De Lorenzis, The node-to-segment algorithm for 2D frictionless contact: Classical formulation and special cases, *Comput. Methods Appl. Mech. Eng.* 198 (2009) 3428–3451.
- [36] D. Lecointe, Caractérisation et simulation des processus de transferts lors d'injection de résine pour le procédé RTM, Thèse de doctorat, Université de Nantes, 1999.
- [37] X.-A. Aduriz, C. Lupi, N. Boyard, J.L. Bailleul, D. Leduc, V. Sobotka, et al., Quantitative control of RTM6 epoxy resin polymerisation by optical index determination, *Compos. Sci. Technol.* 67 (2007) 3196–3201.
- [38] S. Nakouzi, Modélisation du procédé de cuisson de composites infusés par chauffage infra rouge, Thèse de doctorat, Université de Toulouse, 2012.
- [39] J. Moosburger-Will, M. Greisel, M.G.R. Sause, R. Horny, S. Horn, Influence of partial cross-linking degree on basic physical properties of RTM6 epoxy resin, *J. Appl. Polym. Sci.* 130 (2013) 4338–4346.
- [40] J. Heegaard, A. Curnier, An augmented Lagrangian method for discrete large slip contact problems, *Int. J. Numer. Methods Eng.* 36 (1993) 569–593.
- [41] R.L. Taylor, P. Papadopoulos, On a patch test for contact problems in two dimensions,

- Nonlinear Comput. Mechanics. (1991) 690–702.
- [42] N. El-Abbasi, K.J. Bathe, Stability and patch test performance of contact discretizations and a new solution algorithm, *Comput. Struct.* 79 (2001) 1473–1486.
- [43] P. Hild, Numerical implementation of two nonconforming finite element methods for unilateral contact, *Comput. Methods Appl. Mech. Eng.* 184 (2000) 99–123.
- [44] G. Zavarise, L. De Lorenzis, A modified node-to-segment algorithm passing the contact patch test, *Int. J. Numer. Methods Eng.* 79 (2009) 379–416.



# CHAPITRE 3

## HOMOGENEISATION DU PROBLEME THERMO-CHIMIQUE DURANT LA MISE EN FORME D'UN MATERIAU COMPOSITE

Alors que le chapitre précédent s'intéressait à l'étude de matériaux isotropes et homogènes, les matériaux composites présentent communément une structure anisotrope et hétérogène qu'il faut considérer. Bien souvent, la caractérisation complète des propriétés de ces matériaux est complexe, fastidieuse et demande l'utilisation de plusieurs appareils de caractérisation. Il est cependant possible, en connaissant les propriétés des différents constituants homogènes et isotropes ainsi que la structure du matériau, d'estimer les propriétés équivalentes du matériau composite homogène équivalent. Ces méthodes dites d'homogénéisation sont rapidement présentées dans ce chapitre. Une attention particulière est portée à la méthode des développements asymptotiques qui sera employée afin d'estimer les propriétés thermiques d'un matériau composite. Ces méthodes seront ensuite appliquées à l'étude du problème thermo-chimique durant la mise en forme de ces matériaux composites.

### Table des matières

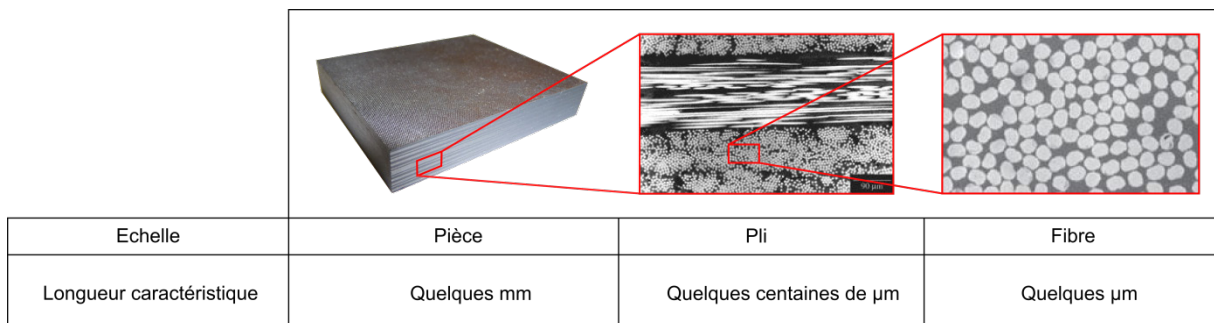
3.1	Introduction aux méthodes d'homogénéisation et aux développements asymptotiques.....	113
3.2	Un exemple simple - Transferts de chaleur par conduction .....	116
3.2.1	Description du problème. ....	116
3.2.2	Adimensionnement.....	117
3.2.3	Développements asymptotiques .....	118
3.2.4	Homogénéisabilité.....	121
3.3	Prise en compte de propriétés thermo-dépendantes .....	122
3.3.1	Description du problème traité .....	122
3.3.2	Mise en œuvre. ....	123
3.3.3	Application .....	125
3.3.3.1	Calcul des propriétés équivalentes .....	126
3.3.3.2	Influence du maillage .....	126
3.3.3.3	Influence du taux de fibre.....	128
3.3.3.4	Résolution du problème pour 60% de fibres en volume .....	130

3.3.3.5	Comparaison au cas à propriétés constantes.....	131
3.3.4	Discussion .....	133
3.4	Homogénéisation du problème thermo-chimique couplé.....	133
3.4.1	Description du problème traité .....	134
3.4.2	Adimensionnement.....	135
3.4.3	Développements asymptotiques .....	136
3.4.4	Adimensionnement de la température .....	139
3.4.5	Les modèles cinétiques et le temps caractéristique de la réaction chimique.....	139
3.4.5.1	Modèle d'ordre n.....	139
3.4.5.2	Modèle auto-catalytique .....	140
3.4.5.3	Le modèle de Kamal et Sourour .....	140
3.4.5.4	Le modèle de Bailleul.....	140
3.4.5.5	Cas généraux .....	141
3.4.6	Ordres de grandeur des nombres adimensionnels .....	143
3.4.7	Application à des cas concrets.....	144
3.4.7.1	Premier cas: Composite carbone/époxy M21 .....	145
3.4.7.2	Second cas: Composite verre/polyester.....	146
3.4.7.3	Troisième cas: Composite verre/vinylester .....	147
3.5	Conclusions et perspectives.....	150
	Bibliographie.....	152

---

### 3.1 Introduction aux méthodes d'homogénéisation et aux développements asymptotiques

Les matériaux composites sont généralement constitués d'une matrice et de fibres. Les fibres peuvent être ou non regroupées en torons, lesquels sont organisés afin d'obtenir des plis. Ces plis sont ensuite empilés pour obtenir la pièce finale (Figure 3.1). On peut alors voir les fibres comme des hétérogénéités dans le milieu continu qu'est la matrice. Prendre en compte toutes les hétérogénéités dans l'étude du comportement d'un matériau à l'échelle "macroscopique" d'une pièce peut devenir très lourd, surtout si ces hétérogénéités sont petites devant la dimension considérée. Par exemple, dans le cas d'une étude par éléments finis, il serait nécessaire de générer un maillage fin prenant en compte chaque hétérogénéité, ce qui nécessiterait un temps de calcul conséquent.



**Figure 3.1: Différentes échelles dans un matériau composite et longueurs caractéristiques**

Il est de ce fait intéressant d'obtenir une description du milieu hétérogène à l'aide d'un modèle homogène équivalent. Ce dernier est alors plus simple à traiter et valable à une échelle grande devant celle des hétérogénéités. C'est là le but des méthodes dites d'homogénéisation. Afin que ces méthodes soient valables, il est nécessaire de considérer des domaines contenant un grand nombre d'hétérogénéités. Cela implique alors une certaine séparation des échelles entre celle microscopique des hétérogénéités, de taille  $l$  et celle macroscopique de l'étude (*e.g.* de la pièce), de taille  $L$ . On a ainsi:

$$\frac{l}{L} = \varepsilon \ll 1 \quad (3.1)$$

Comme annoncé dans le premier chapitre, en section 1.2.3, diverses approches existent afin de déterminer les propriétés homogènes équivalentes d'un matériau hétérogène. Ces méthodes diffèrent selon que le matériau présente une structure aléatoire ou périodique. Nous nous intéressons par la suite aux développements asymptotiques, également appelés développements à échelles multiples. Ces méthodes se basent sur une hypothèse fondamentale de périodicité de la structure du milieu, ce qui est parfois le cas dans les matériaux composites ou, en tout cas, dans les structures composites idéalisées. On considère alors un matériau hétérogène dont les propriétés sont continues par morceau, alternant entre celles des différents constituants. Par conséquent, les propriétés se reproduisent par translation périodique à l'échelle microscopique. Il existe alors un volume élémentaire représentatif (VER) des propriétés du milieu hétérogène. Celui-ci doit de manière générale contenir un nombre suffisant d'hétérogénéités tout en ayant une dimension petite devant la dimension macroscopique étudiée. Dans le cas d'un milieu périodique, le VER se réduit à la cellule périodique (Figure 3.2). La taille des hétérogénéités est alors la même que la taille du VER.

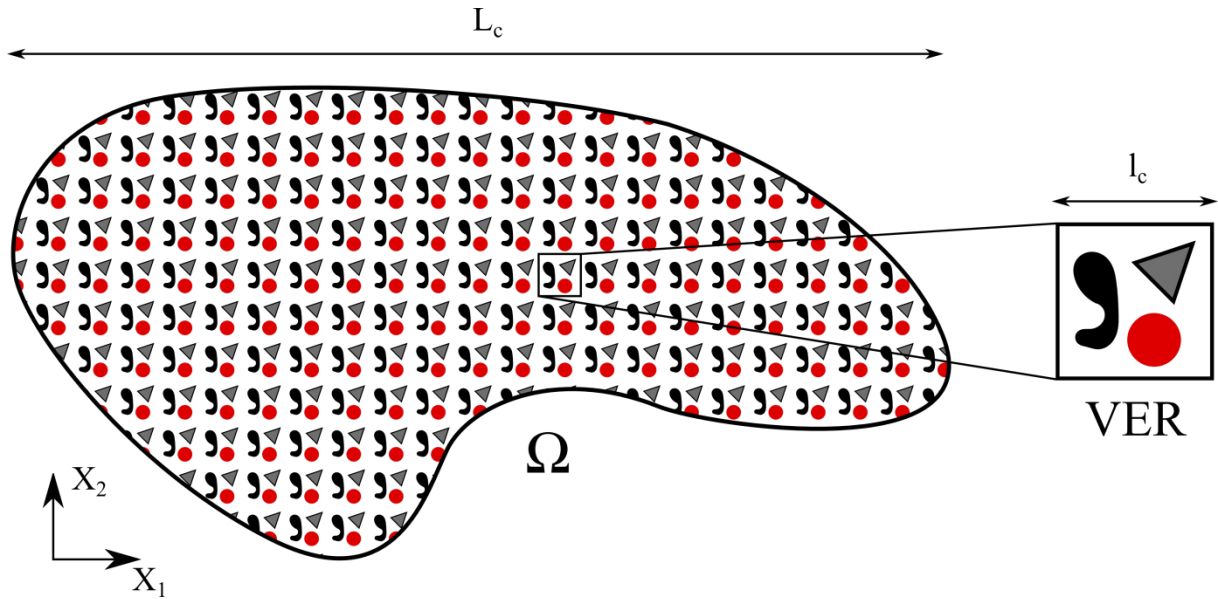


Figure 3.2: Milieu hétérogène et volume élémentaire représentatif (VER)

La séparation des échelles concerne à la fois la géométrie et les sollicitations étudiées. On définit ainsi une longueur caractéristique de la cellule périodique  $l_c$  et une longueur caractéristique de l'échelle macroscopique  $L_c$ . Celles-ci peuvent représenter soit une dimension géométrique, soit une longueur caractéristique d'une sollicitation (e.g. la longueur sur laquelle s'étend un gradient de température à l'échelle macroscopique). On a, afin de vérifier la séparation des échelles:

$$\frac{l_c}{L_c} = \varepsilon \ll 1 \quad (3.2)$$

$\varepsilon$  est le paramètre représentant la séparation des échelles. Plus il est petit et plus les échelles sont bien séparées. Les deux longueurs caractéristiques font apparaître deux variables d'espace adimensionnelles  $\mathbf{y}^* = \mathbf{X}/l_c$  et  $\mathbf{x}^* = \mathbf{X}/L_c$ , où  $\mathbf{X}$  représente la variable géométrique de l'espace considéré. Une autre description est donnée dans [1] où les variables d'espaces ne sont pas adimensionnées et où on retrouve l'emploi de  $\mathbf{X}$  et de la variable d'espace  $\mathbf{Y} = \mathbf{X}/\varepsilon$ . Toute grandeur physique  $u$  dépendra alors des deux variables d'espace adimensionnelles:

$$u = u(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*) \quad (3.3)$$

$\mathbf{x}^*$  est alors considérée comme la variable macroscopique (ou lente) et elle décrit les interactions à une distance du même ordre que la distance macroscopique  $L_c$  ( $O(L_c)$ ). A l'opposé,  $\mathbf{y}^*$  est la variable microscopique (ou rapide) et décrit les interactions à faible distance ( $O(l_c)$ ). Afin de décrire un phénomène physique, il est alors possible d'adopter deux points de vue soit le point de vue macroscopique, soit le microscopique. Ces deux points de vue amènent à la même description homogénéisée et on adopte soit l'un soit l'autre en fonction du problème étudié.

Pour rappel, une grandeur  $A$  est dite en  $O(B)$  si:

$$\varepsilon^1 \leq |A/B| \leq \varepsilon^{-1}$$

Elles ont alors le même ordre de grandeur.

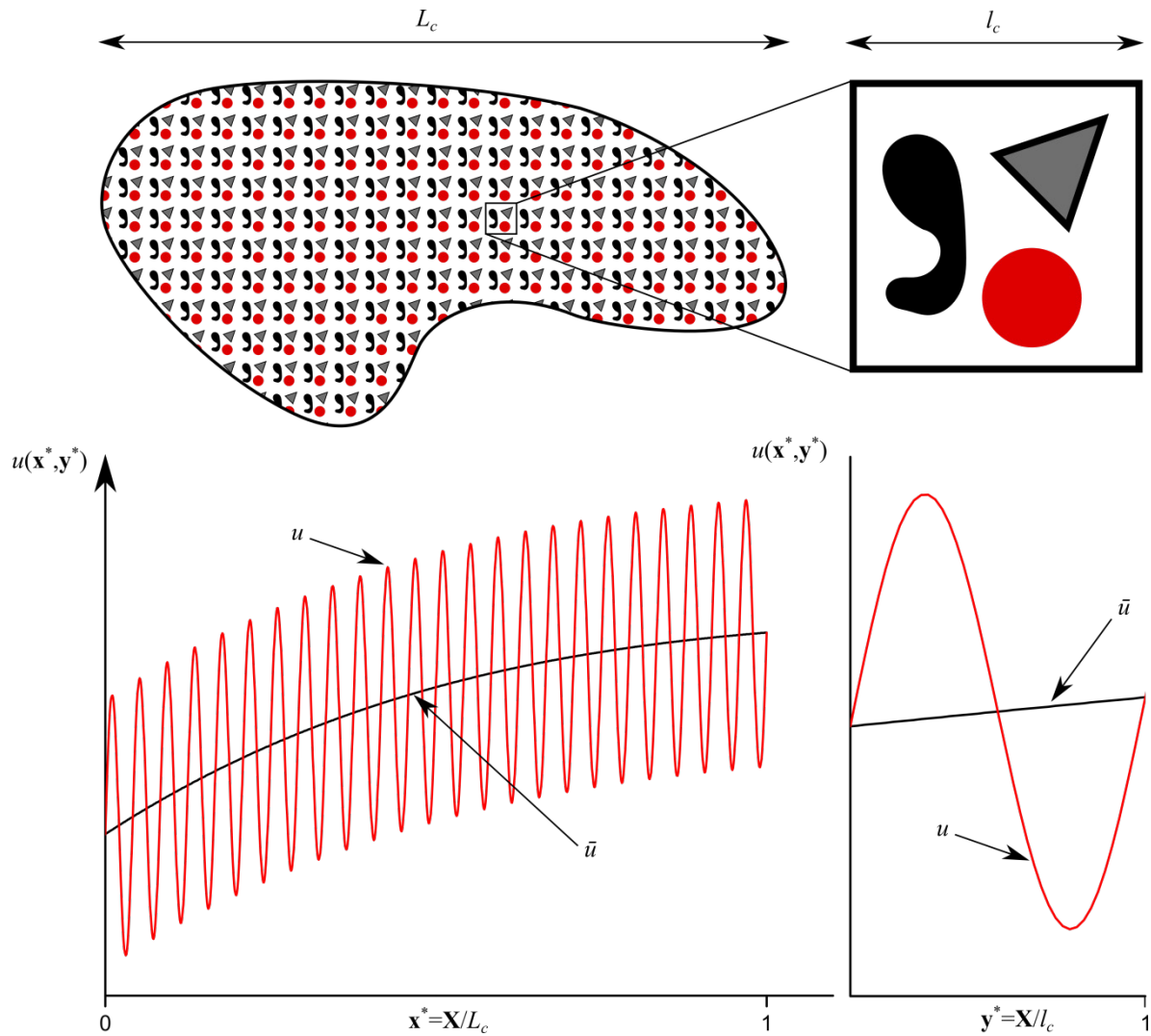


Figure 3.3: Séparation des échelles et variations de la grandeur  $u$

Considérons toujours une grandeur  $u(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*)$ . Ses variations dans le matériau sont représentées dans la Figure 3.3, ainsi que sa valeur moyenne  $\bar{u}$ . Sur une petite distance  $O(l_c)$ , les variations de  $u$  sont importantes alors que celles de sa valeur moyenne  $\bar{u}$  sont très petites voire nulles si  $\varepsilon$  tend vers 0. On dit alors que la variable  $u$  est  $\mathbf{y}^*$ -périodique. Cette propriété aura une importance notable dans les développements à suivre, notamment concernant la bonne séparation des échelles et l'homogénéisabilité d'un problème.

La pierre angulaire de cette méthode est alors d'exprimer toute grandeur  $u(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*)$  sous la forme d'un développement asymptotique en puissances entières de  $\varepsilon$  [1–3]:

$$u(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*) = \varepsilon^0 u^{(0)}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*) + \varepsilon^1 u^{(1)}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*) + \varepsilon^2 u^{(2)}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*) + \dots \quad (3.4)$$

Le terme d'ordre 0 représente alors la variation macroscopique de  $u$ . Les termes qui suivent étant pondérés par des puissances non nulles de  $\varepsilon$ , ils traduisent les variations microscopiques de  $u$  à l'échelle de la microstructure. La périodicité de la variable  $u$  implique alors que tous les termes  $u^{(i)}$  sont  $\mathbf{y}^*$ -périodiques. L'écriture de  $u$  sous la forme d'un développement asymptotique assure que les échelles sont bien séparées. En revanche, si lors de l'étude d'un problème les variables ne peuvent s'écrire sous cette forme, cela implique que le problème n'est pas homogénéisable. On considère que la méthode est auto-consistante.

Les bases de l'homogénéisation par développements asymptotiques étant posées, il est maintenant possible de résoudre les problèmes associés à la modélisation des retraits dans les matériaux composites à l'aide de cette méthode.

## 3.2 Un exemple simple - Transferts de chaleur par conduction

Afin d'illustrer ce qui a été présenté précédemment et de définir les différentes étapes du processus d'homogénéisation, nous allons étudier l'équation de la chaleur en régime transitoire. La méthode décrite par Auriault [4] est adoptée afin de résoudre le problème et discuter de son homogénéisabilité. Après une présentation du problème à résoudre, son adimensionnement est réalisé. Le développement asymptotique du champ recherché est posé et réinjecté dans le problème adimensionné. Le problème homogénéisé équivalent est alors amené, faisant apparaître l'estimation des propriétés équivalentes. Enfin, une rapide discussion sur l'homogénéisabilité du problème est faite.

### 3.2.1 Description du problème.

On s'intéresse aux transferts de chaleur par conduction dans un domaine  $\Omega$  (Figure 3.4a) composé de deux phases,  $\Omega_f$  et  $\Omega_m$ , chacune considérée comme homogène et isotrope. La microstructure du domaine  $\Omega$  est périodique et la cellule périodique  $P$  est décrite dans la Figure 3.4.b.

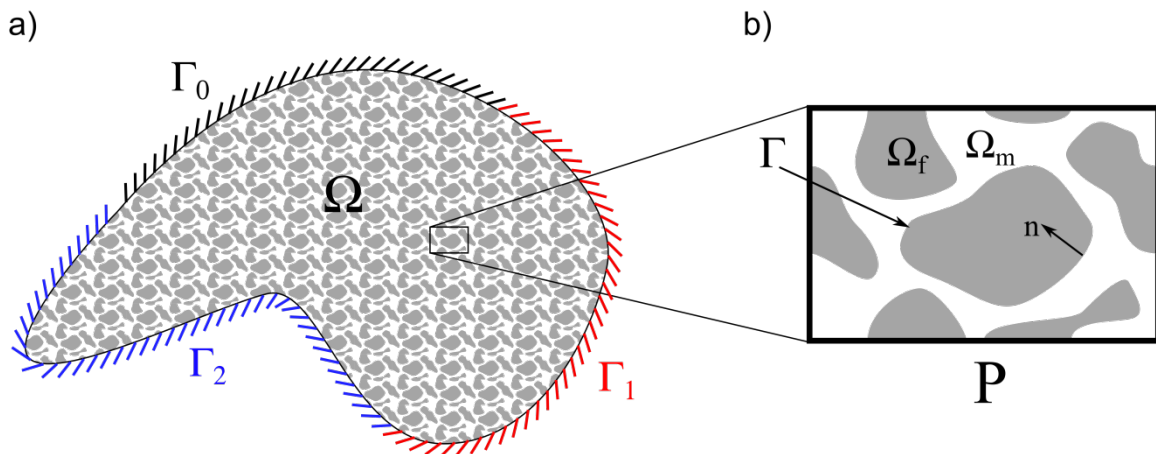


Figure 3.4: a) Description du problème macroscopique b) Description du problème microscopique

Dans chaque phase, le problème à résoudre est donné par les équations:

$$\begin{cases} \rho_i C p_i \frac{\partial T_i}{\partial t} = -\nabla \cdot \boldsymbol{\varphi}_i & , \text{dans } \Omega_i \\ \boldsymbol{\varphi}_i = -K_i \nabla T_i & , \text{dans } \Omega_i \end{cases} \quad (3.5)$$

avec, sur la surface  $\Gamma$  délimitant les deux composants une condition de continuité en température et en flux:

$$\begin{cases} T_m - T_f = 0 & , \text{sur } \Gamma \\ \left( K_m \nabla T_m - K_f \nabla T_f \right) \cdot \mathbf{n} = 0 & , \text{sur } \Gamma \end{cases} \quad (3.6)$$

On ne considère donc pas de résistance thermique de contact entre les deux constituants. Enfin, les conditions aux limites à l'échelle macroscopique sont:

$$\begin{cases} T_i = T_0 & , sur \Gamma_0 \\ \boldsymbol{\varphi}_i \cdot \mathbf{n}_i = \varphi_1 & , sur \Gamma_1 \\ \boldsymbol{\varphi}_i \cdot \mathbf{n}_i = h(T_i - T_2) & , sur \Gamma_2 \end{cases} \quad (3.7)$$

Dans ces équations,  $\rho$  représente la masse volumique,  $Cp$  la capacité thermique massique,  $T(\mathbf{X}, t)$  la température en un point  $\mathbf{X}$ ,  $t$  le temps,  $\nabla$  l'opérateur différentiel par rapport à la variable d'espace  $\mathbf{X}$ ,  $\boldsymbol{\varphi}$  le flux,  $K$  la conductivité thermique,  $T_0$  est la température imposée sur la frontière  $\Gamma_0$ ,  $\varphi_1$  le flux imposé sur  $\Gamma_1$ ,  $h$  est le coefficient de convection et  $T_2$  la température extérieure à la frontière  $\Gamma_2$ . L'indice "i" représente "m" ou "f".

Il est important de noter que les conditions aux limites du problème à l'échelle macroscopique n'interviennent pas dans le problème à l'échelle microscopique et ne sont donc pas prises en compte lors de l'adimensionnement des équations.

Dans la suite, nous considérons les propriétés des matériaux comme constantes. Les produits  $\rho Cp$ , appelés capacités thermiques volumiques et notés  $C$  par la suite, ainsi que les conductivités des différents matériaux sont considérés comme étant du même ordre de grandeur et isotropes. Une discussion sur l'homogénéisation de l'équation de conduction en présence de RTC ou de matériaux de conductivités très différentes peut être trouvée dans [5] et [6]. On se ramène alors à un seul système d'équations à résoudre dans le milieu hétérogène, mais avec des propriétés continues par morceaux.

### 3.2.2 Adimensionnement

En suivant la méthode décrite dans [4] et en adoptant le point de vue macroscopique, on définit les différentes grandeurs du problème à l'aide de grandeurs caractéristiques:

$$\begin{aligned} \mathbf{X}^* &= \mathbf{X} / L_c, \nabla^* \bullet = L_c \nabla \bullet, t^* = t / t_c, C^* = \rho Cp / C_c, \\ T^* &= T / \Delta T_c, K^* = K / K_c, \end{aligned} \quad (3.8)$$

où les grandeurs suivies d'un astérisque sont les grandeurs adimensionnelles et celles dénotées par l'indice "c" sont les grandeurs caractéristiques.

Le problème devient alors:

$$\begin{cases} C_c C^* \frac{\Delta T_c}{t_c} \dot{T}^* + \frac{K_c \Delta T_c}{L_c^2} \nabla^* \boldsymbol{\varphi}^* = 0 \\ \boldsymbol{\varphi}^* = -K^* \nabla^* T^* \end{cases} \quad (3.9)$$

où  $\dot{T}^* = \partial T^* / \partial t^*$ . En le réarrangeant, le système précédent devient:

$$\begin{cases} C^* \dot{T}^* + F_c \nabla^* \boldsymbol{\varphi}^* = 0 \\ \boldsymbol{\varphi}^* = -K^* \nabla^* T^* \end{cases} \quad (3.10)$$

Ce système d'équations fait apparaître un nombre adimensionnel appelé nombre de Fourier  $F_c$ :

$$F_c = \frac{K_c}{C_c L_c^2} t_c \quad (3.11)$$

Il est le rapport entre le temps caractéristique du problème  $t_c$  et le temps caractéristique de diffusion  $t_d$ , avec:

$$t_d = \frac{C_c L_c^2}{K_c} \quad (3.12)$$

L'ordre de grandeur de  $F_c$  dépend des propriétés des matériaux considérés ainsi que de sa géométrie. Il n'est pour le moment pas connu et sera discuté plus tard.

### 3.2.3 Développements asymptotiques

Du fait de la séparation des échelles, on met en place deux variables d'espace adimensionnelles. L'une macroscopique  $\mathbf{x}^* = \mathbf{X}/L_c$ , l'autre microscopique  $\mathbf{y}^* = \mathbf{x}^*/\varepsilon = \mathbf{X}/l_c$ . Si la séparation des échelles est bien vérifiée,  $\mathbf{x}^*$  et  $\mathbf{y}^*$  apparaissent comme deux variables d'espace indépendantes et toute variable physique du problème, comme la température dans notre cas, est fonction de celles-ci. On a ainsi  $T^*(\mathbf{X}^*, t^*) = T^*(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*, t^*)$ . De fait, l'opérateur différentiel  $\nabla^*$  peut s'écrire sous la forme:

$$\nabla^* = \nabla_{\mathbf{x}^*} + \frac{\partial \mathbf{y}^*}{\partial \mathbf{x}^*} \nabla_{\mathbf{y}^*} = \nabla_{\mathbf{x}^*} + \frac{1}{\varepsilon} \nabla_{\mathbf{y}^*}, \quad (3.13)$$

où  $\nabla_{\mathbf{x}^*}$  et  $\nabla_{\mathbf{y}^*}$  sont les opérateurs différentiels calculés par rapport à  $\mathbf{x}^*$  et  $\mathbf{y}^*$ , respectivement. On recherche alors le champ de température sous la forme d'un développement asymptotique en puissances de  $\varepsilon$ :

$$T^*(\mathbf{X}^*, t^*) = \varepsilon^0 T^{(0)*}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*, t^*) + \varepsilon^1 T^{(1)*}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*, t^*) + \varepsilon^2 T^{(2)*}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*, t^*) + \dots, \quad (3.14)$$

où chaque terme  $T^{(j)*}$  est  $\mathbf{y}^*$ -périodique. En utilisant ces expressions de  $\nabla^*$  et de  $T^*$ , on obtient:

$$\begin{aligned} \nabla^* T^* &= \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} + \varepsilon^{-1} \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(0)*} + \varepsilon \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(1)*} \\ &+ \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(1)*} + \varepsilon^2 \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(2)*} + \varepsilon \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(2)*} + \dots \end{aligned} \quad (3.15)$$

d'où:

$$\begin{aligned} -\nabla^* \phi^* &= \varepsilon^{-2} \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(0)*} \\ &+ \varepsilon^{-1} \left( \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} + \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(0)*} + \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(1)*} \right) \\ &+ \varepsilon^0 \left( \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} + \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(1)*} + \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(1)*} + \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(2)*} \right) \\ &+ \varepsilon \left( \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(1)*} + \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(2)*} + \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(2)*} \right) \\ &+ \varepsilon^2 \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(2)*} \\ &+ \dots \end{aligned} \quad (3.16)$$

Dans un premier temps, nous considérons que le nombre de Fourier  $F_c$  a un ordre de grandeur proche de l'unité,  $F_c = O(\varepsilon^0) = O(1)$ . On rappelle alors qu'une grandeur  $u$  est en  $O(\varepsilon^k)$  si:  $\varepsilon^{k+1} < u < \varepsilon^{k-1}$ .

En réinjectant Eq. (3.16) dans le problème adimensionné (3.10), on obtient:

$$\begin{aligned}
& \varepsilon^{-2} \left( F_c \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(0)*} \right) \\
& + \varepsilon^{-1} \left( F_c \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} + \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(0)*} + \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(1)*} \right) \\
& + \varepsilon^0 \left( -C^* \dot{T}^{(0)*} + F_c \left( \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} + \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(1)*} + \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(1)*} + \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(2)*} \right) \right) \\
& + \varepsilon^1 \left( -C^* \dot{T}^{(1)*} + F_c \left( \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(1)*} + \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(2)*} + \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(2)*} \right) \right) \\
& + \varepsilon^2 \left( -C^* \dot{T}^{(2)*} + F_c \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(2)*} \right) \\
& + \dots \\
& = 0
\end{aligned} \tag{3.17}$$

Cette égalité est une suite en puissance de  $\varepsilon$  qui, pour être vérifiée, doit être vraie quelle que soit la séparation des échelles  $\varepsilon$ , ce qui permet d'identifier les relations aux différents ordres de  $\varepsilon$ :

En  $\varepsilon^{-2}$ :

$$\nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(0)*} = 0 \tag{3.18}$$

$K^*$  étant défini positif, cette égalité ne peut être vérifiée que si  $T^{(0)*}$  est constante sur la cellule périodique. Ceci implique donc que  $T^{(0)*}$  ne dépend pas de la variable rapide  $\mathbf{y}^*$ . On a alors:

$$T^{(0)*}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*, t^*) = T^{(0)*}(\mathbf{x}^*, t^*) \tag{3.19}$$

En  $\varepsilon^{-1}$ :

$$\nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} + \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(0)*} + \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(1)*} = 0 \tag{3.20}$$

D'où, en considérant  $T^{(0)*}$  comme indépendant de  $\mathbf{y}^*$ :

$$\begin{aligned}
& \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} + \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(1)*} = 0, \\
& \text{d'où, } \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(1)*} = -\nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*}
\end{aligned} \tag{3.21}$$

Il s'agit d'un problème d'équilibre sur la cellule périodique  $P$ , où le terme de droite en  $T^{(0)*}$  apparaît comme un terme source. L'existence et l'unicité de  $T^{(1)*}$  est assurée par une condition dite condition de compatibilité, aussi appelée alternative de Fredholm. Celle-ci implique que la moyenne du terme source sur la cellule périodique soit nulle. En moyennant le terme de droite, on obtient, après application du théorème de Green-Ostrogradski:

$$\frac{1}{|P|} \int_P \left( \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} \right) dP = \frac{1}{|P|} \int_{\partial P} \left( K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} \cdot \mathbf{n} \right) d\partial P = 0, \tag{3.22}$$

où  $\mathbf{n}$  est la normale sortante à la surface  $\partial P$  extérieure de la cellule périodique.  $K^*$  étant périodique et  $T^{(0)*}$  constant à l'échelle de la cellule périodique, le terme dans l'intégrale prend des valeurs égales sur les faces opposées de  $\partial P$  alors que la normale  $\mathbf{n}$  change de signe. La condition de compatibilité est donc bien vérifiée dans ce cas. En connaissant  $\nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*}$  il est alors possible de déterminer  $T^{(1)*}$  par résolution du problème (3.21)<sub>2</sub>, dont on peut remarquer qu'il est linéaire. On peut donc écrire:

$$T^{(1)*}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*, t^*) = \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*}(\mathbf{x}^*, t^*) \cdot \mathbf{w}(\mathbf{y}^*), \tag{3.23}$$

où les composantes  $w_i(\mathbf{y}^*)$  du vecteur  $\mathbf{w}(\mathbf{y}^*)$  sont  $\mathbf{y}^*$ -périodiques et solutions à une constante additive près du problème de cellule pour chaque vecteur unitaire  $e_i$ :

$$-\nabla_{\mathbf{y}^*} \left( K^* \left( e_i + \nabla_{\mathbf{y}^*} w_i(\mathbf{y}^*) \right) \right) = 0 \quad (3.24)$$

En  $\varepsilon^0$ :

$$\begin{aligned} C^* \dot{T}^{(0)*} = F_c \left( \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} + \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(1)*} \right. \\ \left. + \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(1)*} + \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(2)*} \right) \end{aligned} \quad (3.25)$$

En la réarrangeant, on retrouve une équation similaire à Eq. (3.21):

$$\begin{aligned} F_c \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(2)*} = C^* \dot{T}^{(0)*} \\ - F_c \left( \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} + \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(1)*} + \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(1)*} \right) \end{aligned} \quad (3.26)$$

L'existence et l'unicité du terme  $T^{(2)*}$  est cautionnée par la condition de compatibilité sur le membre de droite. On doit donc vérifier que, comme pour l'équation (3.21), l'intégrale du terme de droite sur la cellule périodique est de moyenne nulle soit, après réorganisation:

$$\begin{aligned} \frac{1}{|P|} \int_P \left[ C^* \dot{T}^{(0)*} - F_c \left( \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(1)*} \right) \right. \\ \left. - F_c \left( \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} + \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(1)*} \right) \right] dP = 0 \end{aligned} \quad (3.27)$$

En intégrant, et par périodicité, le second terme dans l'intégrale précédente s'annule. Par conséquent, celle-ci s'annule si:

$$\frac{1}{|P|} \left[ \int_P (C^*) dP \right] \dot{T}^{(0)*} - F_c \frac{1}{|P|} \nabla_{\mathbf{x}^*} \left( \int_P K^* \left( \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} + \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(1)*} \right) dP \right) = 0 \quad (3.28)$$

En utilisant la relation (3.23), on obtient le problème homogénéisé équivalent:

$$C_h^* \dot{T}^{(0)*} - F_c \nabla_{\mathbf{x}^*} \left( \underline{\underline{K}}_h^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} \right) = 0, \quad (3.29)$$

avec

$$C_h^* = \frac{1}{|P|} \int_P (C^*) dP \quad (3.30)$$

et

$$\underline{\underline{K}}_h^* = \left( K_h^* \right)_{ij} = \frac{1}{|P|} \int_P K^* \left( e_j + \nabla_{\mathbf{y}^*} w_j \right) \cdot e_i dP \quad (3.31)$$

les propriétés homogènes équivalentes. On remarque que ces dernières dépendent des propriétés des différents constituants et de la géométrie de la structure périodique. En aucun cas ils ne dépendent des conditions aux limites ou des dimensions du problème à l'échelle macroscopique.

Ces conditions aux limites deviennent d'ailleurs [7]:

$$\begin{cases} T^{(0)*} = T_0 & , sur \Gamma_0 \\ -\underline{\underline{K}}_h^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} \cdot \mathbf{n}_i = \varphi_1 & , sur \Gamma_1 \\ -\underline{\underline{K}}_h^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} \cdot \mathbf{n}_i = h(T^{(0)*} - T_2) & , sur \Gamma_2 \end{cases} \quad (3.32)$$

### 3.2.4 Homogénéisabilité

Tous ces développements ont été faits en considérant que le nombre de Fourier est d'un ordre de grandeur comparable à celui de  $\varepsilon^0$ . Selon le problème étudié, ce nombre adimensionnel peut prendre toutes sortes de valeurs, qui auront un impact sur les précédents résultats.

**Dans le cas où  $F_c = O(\varepsilon^l)$** , une équation à l'ordre  $\varepsilon^{-3}$ , identique à l'Eq. (3.18), aurait été obtenue. De la même manière, cela aurait conduit à une équation à l'ordre  $\varepsilon^{-2}$  identique à (3.20). A l'ordre  $\varepsilon^{-1}$  cependant, l'équation obtenue différerait de (3.25), faisant disparaître le terme capacitif:

$$F_c \left( \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} + \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(1)*} + \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(1)*} + \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(2)*} \right) = 0 \quad (3.33)$$

En suivant la même démarche que précédemment, le problème homogène équivalent serait alors de la forme:

$$F_c \nabla_{\mathbf{x}^*} \left( \underline{\underline{K}}_h^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} \right) = 0, \quad (3.34)$$

c'est à dire un problème de conduction en régime permanent, avec le tenseur des conductivités décrit par l'équation (3.31).

**Dans le cas où  $F_c = O(\varepsilon^l)$** , on identifierait une équation à l'ordre  $\varepsilon^{-1}$  identique à (3.18), puis une équation à l'ordre  $\varepsilon^0$  de la forme:

$$\begin{aligned} \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} + \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(1)*} &= C^* \dot{T}^{(0)*}, \\ \text{d'où, } \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(1)*} &= -\nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} + C^* \dot{T}^{(0)*} \end{aligned} \quad (3.35)$$

Afin d'assurer l'existence et l'unicité de  $T^{(l)*}$ , le terme source doit être encore une fois de moyenne nulle sur la cellule périodique, ce qui, en suivant la même démarche que pour arriver à (3.23), nous amène à:

$$\int_P (C^* \dot{T}^{(0)*}) dP = 0 \quad (3.36)$$

Par positivité de  $C^*$  et par indépendance de  $T^{(0)*}$  en  $\mathbf{y}^*$ , cette égalité ne peut être assurée que si  $T^{(0)*}$  est nulle ce qui n'est pas possible par définition. Le problème n'est donc dans ce cas pas homogénéisable puisque le champ de température ne peut s'écrire sous la forme d'un développement asymptotique, son terme à l'ordre 0 étant nul.

On peut donc, à partir de ces éléments, conclure sur l'homogénéisabilité du problème de transferts de chaleur par conduction en fonction de la séparation des échelles et du nombre de Fourier  $F_c$ . Si  $F_c = O(\varepsilon^k)$ , avec  $k < 0$ , le problème est homogénéisable et le terme capacitif est négligeable à l'ordre 0. Si  $F_c = O(\varepsilon^0)$ , le problème est homogénéisable et le terme capacitif est pris en compte dans le problème homogénéisé. Enfin, si  $F_c = O(\varepsilon^k)$ , avec  $k > 0$ , le problème n'est pas homogénéisable, le temps de caractéristique du problème est alors trop faible devant celui de diffusion.

On voit alors tout l'intérêt de la méthode des développements asymptotiques. A partir d'une description locale du problème à l'échelle des constituants microscopiques, il est possible de déterminer si un comportement homogène équivalent à l'échelle macroscopique est possible (on dit de la méthode qu'elle est auto-consistante). Dans ce cas, les propriétés équivalentes sont déterminées, et des correcteurs (Eq (3.23)) permettent d'approximer de façon assez précise le champ hétérogène à partir du champ homogène à l'ordre 0, pour le cas où l'on chercherait à résoudre un problème de structure avec un facteur de séparation des échelles  $\varepsilon$  fini.

### 3.3 Prise en compte de propriétés thermo-dépendantes

La mise en forme des matériaux composites ne se fait généralement pas sans modification de la température de la pièce, que ce soit afin d'amorcer la réticulation de la résine thermodurcissable ou de procéder à la cristallisation dans le cas de matériaux composites à matrice thermoplastique. Les propriétés thermiques des composants entrant en jeu, notamment celles de la matrice, sont bien souvent dépendantes de la température. A titre d'exemple, lorsque la température est inférieure à la température de transition vitreuse  $T_g$ , la conductivité thermique augmente avec la température, alors que la masse volumique diminue du fait de la dilatation thermique. Le problème de transfert thermique précédemment décrit devient alors non linéaire. Ne pas prendre en compte cette thermo-dépendance des propriétés peut mener à des écarts dans la prédiction du comportement du matériau. Après la description du problème à résoudre à l'échelle micro, la mise en œuvre de la prise en compte de ces non-linéarités est présentée, ce qui amène à l'expression des propriétés équivalentes thermo-dépendantes. Une méthode de résolution par éléments finis est rapidement décrite ainsi que l'étude d'un cas concret et ses principaux résultats.

#### 3.3.1 Description du problème traité

Le problème de transferts de chaleur par conduction en régime permanent et à propriétés thermo-dépendantes est décrit, dans chaque constituant, par:

$$\begin{cases} \rho_i(T_i)Cp_i(T_i)\frac{\partial T_i}{\partial t} = -\nabla \cdot \boldsymbol{\Phi}_i \\ \boldsymbol{\Phi}_i = -K_i(T_i)\nabla T_i \end{cases} \quad (3.37)$$

Encore une fois, nous ferons l'hypothèse que les conductivités, masses volumiques et capacités thermiques massiques des différents constituants sont du même ordre de grandeur. La température et le flux étant continus à l'interface entre les constituants, le problème précédent se ramène à un seul ensemble d'équations dans le domaine  $\Omega$ . Les conditions aux limites sont définies par (3.7).

Plusieurs auteurs se sont intéressés à l'homogénéisation de ce problème à l'aide de développements asymptotiques. Ainsi, différentes études [8,9] ont prouvé, dans le cadre de l'étude de transferts de chaleur par conduction en régime permanent, la convergence du problème homogénéisé équivalent vers le problème hétérogène quand  $\varepsilon$  tend vers 0. Par la suite, la mise en place du calcul des propriétés effectives en fonction de la température a été proposée dans [10–13]. Ainsi, Auriault et Lewandowska [10] donnent la procédure à suivre et l'écriture sous forme d'un développement asymptotique du coefficient diffusif dans le cas de l'étude d'un problème de diffusion en milieu poreux. Trois études d'une même équipe de recherche [11–13] proposent le détail du calcul de la conductivité équivalente thermo-dépendante et la résolution du problème macroscopique non linéaire. Leur but est de prouver que les bornes d'encadrement des propriétés équivalentes, notamment celles de Hashin et Shtrikman [14], peuvent également s'appliquer dans le cas de propriétés non-linéaires. Ces précédentes études se

limitent cependant aux problèmes en régime permanent. Dans [15], l'homogénéisation d'une équation parabolique non linéaire est proposée et appliquée au transport en milieu poreux. La convergence de la solution homogénéisée vers la solution hétérogène quand  $\varepsilon$  tend vers 0 est également prouvée, sous condition de périodicité des propriétés. Le parallèle avec les transferts de chaleur par conduction en régime transitoire est clair, il est donc possible de se baser sur leur démarche pour appliquer la méthode à notre cas. Ainsi, les bases mathématiques permettant d'appliquer l'homogénéisation par développements asymptotiques aux problèmes non linéaires transitoires sont posées. Les outils permettant d'estimer les propriétés effectives non linéaires ont été développés. On ne retrouve néanmoins que peu d'applications à des cas concrets. Dans leur étude [16] Chung et al. appliquent la méthode des développements asymptotiques afin d'estimer la conductivité d'un matériau composite dont les constituants ont une conductivité thermique thermo-dépendante. Leurs résultats sont comparés à des résultats expérimentaux, permettant de valider la méthode. On peut trouver d'autres applications dans des domaines tels que la prédiction de conductivité de plaques de refroidissement de turbine [17], dans des applications cryogéniques pour le Large Hadron Collider (LHC) [18] ou encore pour la production d'énergie et la sûreté nucléaire [19].

### 3.3.2 Mise en œuvre.

Le principal procédé à mettre en place est d'écrire les propriétés thermo-dépendantes sous la forme d'un développement de Taylor [10–13,16] autour du champ de température macroscopique  $T^{(0)*}$ , en considérant que les variations des propriétés sont négligeables aux ordres supérieurs de  $T$  face à celles à l'ordre  $T^{(0)*}$ . En reprenant ce qui a déjà été abordé dans la section précédente, on a :

$$T^*(\mathbf{X}^*, t^*) = \varepsilon^0 T^{(0)*}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*, t^*) + \varepsilon^1 T^{(1)*}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*, t^*) + \varepsilon^2 T^{(2)*}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*, t^*) + \dots \quad (3.38)$$

On écrit alors les propriétés thermodynamiques sous la forme de développements de Taylor autour de  $T^{(0)*}$ . On obtient, pour la conductivité thermique :

$$\begin{aligned} K^*(\mathbf{y}^*, T^\varepsilon) &= K^*(\mathbf{y}^*, T^{(0)*} + \varepsilon^1 T^{(1)*} + \varepsilon^2 T^{(2)*} + \dots) \\ &= K^*(\mathbf{y}^*, T^{(0)*}) + \varepsilon T^{(1)*} \frac{\partial K^*(\mathbf{y}^*, T^{(0)*})}{\partial T^{(0)*}} \\ &\quad + \varepsilon^2 \left( T^{(2)*} \frac{\partial K^*(\mathbf{y}^*, T^{(0)*})}{\partial T^{(0)*}} + \frac{1}{2} (T^{(1)*})^2 \frac{\partial^2 K^*(\mathbf{y}^*, T^{(0)*})}{\partial^2 T^{(0)*}} \right) + \dots \\ &= K^{(0)*} + \varepsilon^1 K^{(1)*} + \varepsilon^2 K^{(2)*} + \dots \end{aligned} \quad (3.39)$$

On remarque que le développement de Taylor fait apparaître un développement asymptotique de la conductivité. En appliquant le même principe pour la capacité thermique on obtient :

$$\begin{aligned} C^*(\mathbf{y}^*, T^\varepsilon) &= C^*(\mathbf{y}^*, T^{(0)*} + \varepsilon^1 T^{(1)*} + \varepsilon^2 T^{(2)*} + \dots) \\ &= C^*(\mathbf{y}^*, T^{(0)*}) + \varepsilon T^{(1)*} \frac{\partial C^*(\mathbf{y}^*, T^{(0)*})}{\partial T^{(0)*}} \\ &\quad + \varepsilon^2 \left( T^{(2)*} \frac{\partial C^*(\mathbf{y}^*, T^{(0)*})}{\partial T^{(0)*}} + \frac{1}{2} (T^{(1)*})^2 \frac{\partial^2 C^*(\mathbf{y}^*, T^{(0)*})}{\partial^2 T^{(0)*}} \right) + \dots \\ &= C^{(0)*} + \varepsilon^1 C^{(1)*} + \varepsilon^2 C^{(2)*} + \dots \end{aligned} \quad (3.40)$$

En réinjectant ces développements dans le problème adimensionné Eq.(3.10) et en analysant les termes aux différents ordres, on remarque que seuls les termes à l'ordre 0 des propriétés thermo-dépendantes apparaissent aux premiers ordres de  $\varepsilon$  :

En  $\varepsilon^{-2}$ :

$$\nabla_{\mathbf{y}^*} K^{(0)*} \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(0)*} = 0 \quad (3.41)$$

En  $\varepsilon^{-1}$ :

$$\nabla_{\mathbf{y}^*} K^{(0)*} \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(1)*} = -\nabla_{\mathbf{y}^*} K^{(0)*} \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} \quad (3.42)$$

$$T^{(1)*}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*, t^*) = \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*}(\mathbf{x}^*, t^*) \cdot \mathbf{w}(T^{(0)*}, \mathbf{y}^*), \quad (3.43)$$

où les composantes  $w_i(T^{(0)*}, \mathbf{y}^*)$  du vecteur  $\mathbf{w}(T^{(0)*}, \mathbf{y}^*)$  sont  $\mathbf{y}^*$ -périodiques et solutions à une constante additive près du problème de cellule pour chaque vecteur unitaire  $e_i$ :

$$-\nabla_{\mathbf{y}^*} \left[ K^{(0)*}(T^{(0)*}) \left( e_i + \nabla_{\mathbf{y}^*} w_i(T^{(0)*}, \mathbf{y}^*) \right) \right] = 0 \quad (3.44)$$

En  $\varepsilon^0$ :

$$\begin{aligned} C^{(0)*}(T^{(0)*}) \dot{T}^{(0)*} = F_c \left( \nabla_{\mathbf{x}^*} K^{(0)*}(T^{(0)*}) \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} + \nabla_{\mathbf{y}^*} K^{(0)*}(T^{(0)*}) \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(1)*} \right. \\ \left. + \nabla_{\mathbf{x}^*} K^{(0)*}(T^{(0)*}) \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(1)*} + \nabla_{\mathbf{y}^*} K^{(0)*}(T^{(0)*}) \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(2)*} \right) \end{aligned} \quad (3.45)$$

On obtient le problème homogénéisé équivalent:

$$C_h^*(T^{(0)*}) \dot{T}^{(0)*} - F_c \nabla_{\mathbf{x}^*} \left( K_h^*(T^{(0)*}) \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} \right) = 0, \quad (3.46)$$

avec

$$C_h^*(T^{(0)*}) = \frac{1}{|P|} \int_P \left( C^{(0)*}(T^{(0)*}) \right) dP \quad (3.47)$$

et

$$K_h^*(T^{(0)*}) = \left( K_h^* \right)_{ij}(T^{(0)*}) = \frac{1}{|P|} \int_P K^{(0)*}(T^{(0)*}) \left( e_j + \nabla_{\mathbf{y}^*} w_j(T^{(0)*}, \mathbf{y}^*) \right) \cdot e_i dP \quad (3.48)$$

Afin d'obtenir l'évolution de la capacité thermique avec la température, on utilise directement la relation (3.47). Pour la conductivité thermique, il suffit d'effectuer un calcul de conductivité effective à la température voulue, selon la procédure déjà décrite avec les équations (3.44) et (3.48). Il est alors nécessaire de connaître la gamme de température que le domaine est susceptible d'atteindre, afin d'estimer les propriétés thermiques sur cette gamme là avant de résoudre le problème thermique. La procédure à suivre afin de résoudre le problème est résumée dans le Tableau 3.1.

**Tableau 3.1: Procédure de résolution du problème de conduction homogénéisé**

Pour chaque température  $T_k$  de la gamme envisagée:

1. Calculer la capacité thermique équivalente  $C_h^*(T_k)$  à l'aide de (3.47)
2. Résoudre le problème de cellule (3.44) pour obtenir les champs  $w_i(T_k, \mathbf{y}^*)$
3. Calculer le tenseur de conductivité équivalent  $\underline{K}_h^*(T_k)$  à l'aide de (3.48)

Ensuite, pour chaque étape en temps:

4. Résoudre le problème (3.46) avec les conditions aux limites (3.32) pour avoir  $T^{(0)*}(\mathbf{x}^*)$
5. Relocaliser les champs  $w_i(T^{(0)*}(\mathbf{x}^*), \mathbf{y}^*)$  et calculer le correcteur  $T^{(1)*}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*)$  (3.43)

Les étapes 1 à 3 sont réalisées sur la cellule périodique  $P$ , les 4 et 5 sur le domaine homogène équivalent  $\Omega_h$ . Lors de l'étape 5, on veut déterminer le correcteur  $T^{(1)*}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*)$  sur le domaine  $\Omega_h$ . Celui-ci se calcule à partir de  $T^{(0)*}(\mathbf{x}^*)$ , qui est bien déterminée sur  $\Omega_h$ , et des champs  $w_i(T^{(0)*}(\mathbf{x}^*), \mathbf{y}^*)$  qui eux sont définis sur la cellule périodique  $P$ . Il faut donc en chaque point du domaine  $\Omega_h$  de coordonnées  $\mathbf{x}^*$ , trouver la coordonnée  $\mathbf{y}^*$  correspondante dans la cellule périodique (Figure 3.5a). Les valeurs des champs  $w_i(T^{(0)*}(\mathbf{x}^*), \mathbf{y}^*)$  au point  $\mathbf{x}^*$  sont alors égales à celles au point  $\mathbf{y}^*$  (Figure 3.5b). C'est ce qu'on appelle la relocalisation.

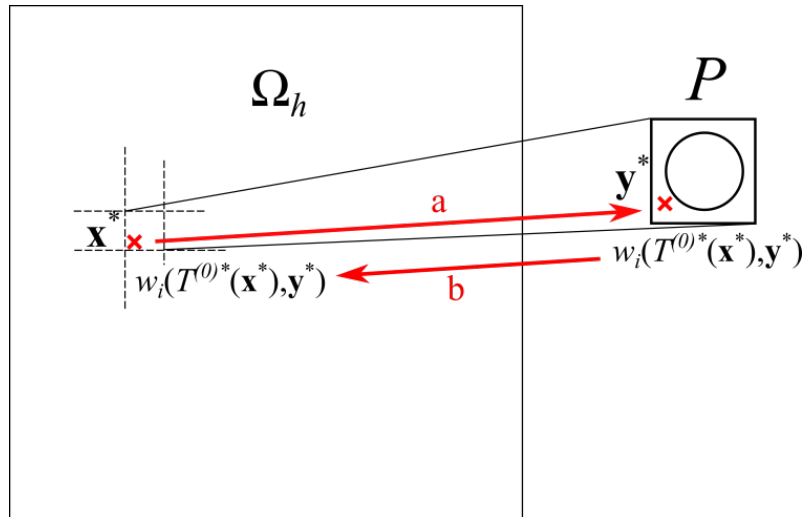


Figure 3.5: Schéma de principe de la relocalisation

### 3.3.3 Application

On se propose d'étudier le problème à l'échelle macroscopique de transferts de chaleur par conduction en régime transitoire dans un domaine  $\Omega$ , composé d'une matrice  $\Omega_m$  et d'une répétition périodique de fibres  $\Omega_f$ , dont les dimensions sont précisées en Figure 3.6.a.

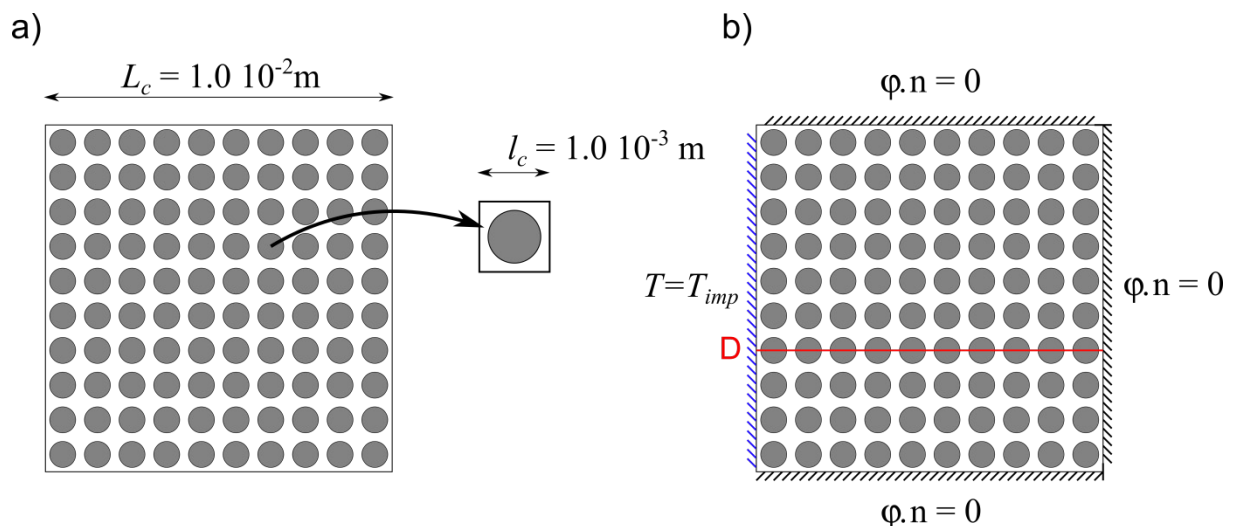


Figure 3.6: Géométrie et conditions aux limites du problème

Le problème à résoudre à l'échelle microscopique est donné par le système d'équations (3.37). Les conditions limites à l'échelle macroscopique sont précisées dans la Figure 3.6.b.

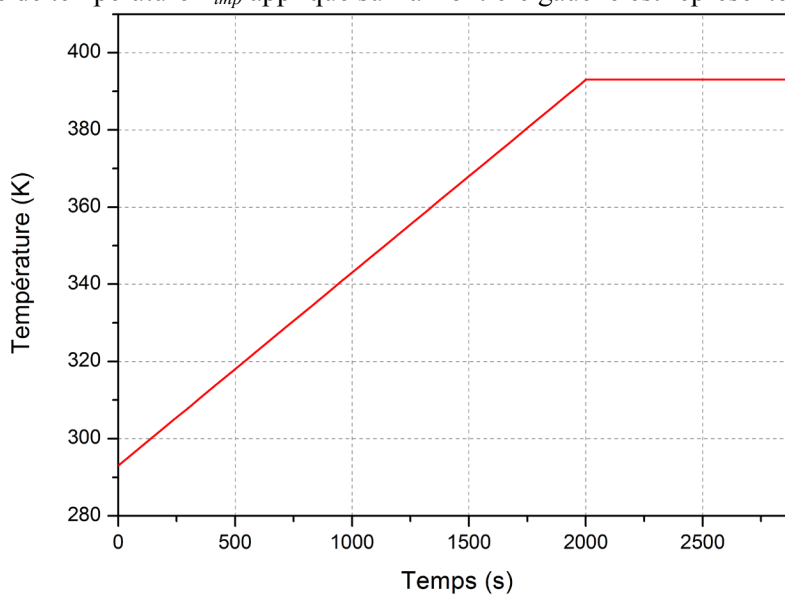
Les propriétés des constituants sont résumées dans le Tableau 3.2.

**Tableau 3.2: Propriétés des constituants dans le problème à propriétés thermodépendantes**

Propriété	Unité	Valeur
$K_f$	$\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$	5.0
$K_m$	$\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$	$0.2+0.01(T-T_{ref})$
$T_{ref}$	K	293
$\rho C p_f$	$\text{J.K}^{-1}.\text{m}^{-3}$	$1.87 \cdot 10^6$
$\rho_m$	$\text{kg.m}^{-3}$	$\rho_{m0}/(1+3.CTE_m(T-T_{ref}))$
$\rho_{m0}$	$\text{kg.m}^{-3}$	$1.100 \cdot 10^3$
$CTE_m$	$\text{K}^{-1}$	$200.0 \cdot 10^{-6}$
$C p_m$	$\text{J.K}^{-1}.\text{kg}^{-1}$	$1180.5+0.0049(T-T_{ref})$

Ces propriétés sont prises de façon arbitraire. Les propriétés des fibres sont volontairement considérées constantes.

Enfin, le cycle de température  $T_{imp}$  appliqué sur la frontière gauche est représenté en Figure 3.7:



**Figure 3.7: Cycle de température imposé**

### 3.3.3.1 Calcul des propriétés équivalentes

La plage de température sur laquelle les propriétés sont calculées dépend du problème traité. Dans le cas décrit précédemment, on se limitera à une plage comprise entre 293 et 393K.

### 3.3.3.2 Influence du maillage

Le calcul des propriétés équivalentes se fait à l'échelle de la cellule périodique. Celle-ci est discrétisée spatialement afin que le problème de cellule soit traité à l'aide de la méthode des éléments finis. Il est important de vérifier la convergence de la discrétisation spatiale afin de s'assurer de la précision des résultats fournis. Pour cela, 7 maillages différents sont testés, avec des discrétisations de plus en plus fines. Elles sont données dans le Tableau 3.3 et les maillages des discrétisations 2, 4 et 6 sont présentées en Figure 3.8.

**Tableau 3.3: Discrétisations spatiales et degrés de liberté associés**

Discrétisation	1	2	3	4	5	6	7
Nombre de degrés de liberté (DDL)	154	334	891	3465	7657	13647	30331

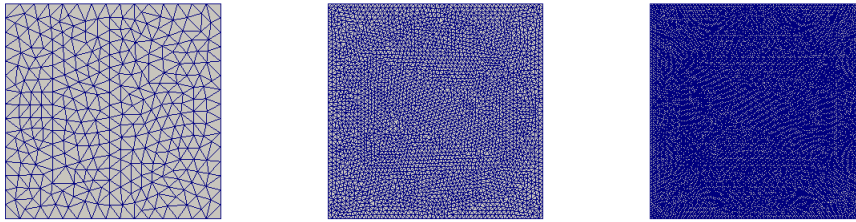


Figure 3.8: Discrétisations 2, 4 et 6 de la cellule périodique

L'influence de la discrétisation sur les propriétés équivalentes estimées est donnée en Figure 3.9, Figure 3.10 et Figure 3.11 pour les termes diagonaux et extradiagonaux du tenseur de conductivité et pour la capacité thermique respectivement, à une température fixe de 293K:

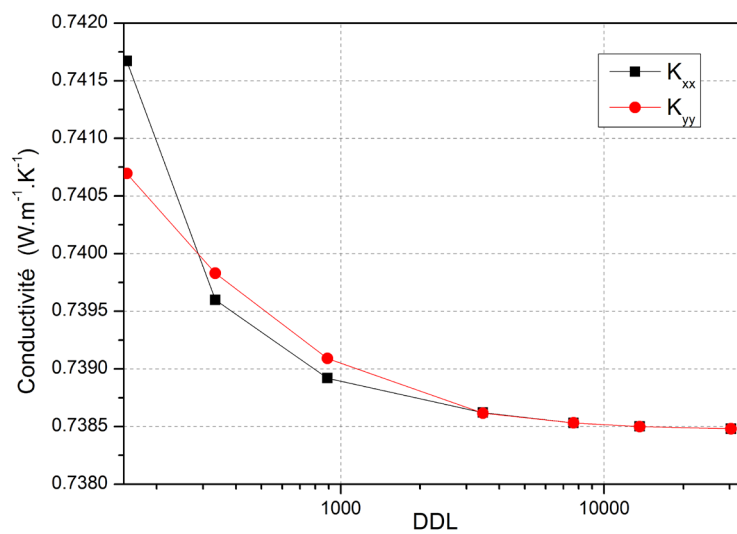


Figure 3.9: Influence de la discrétisation de la cellule périodique sur les termes diagonaux du tenseur de conductivité

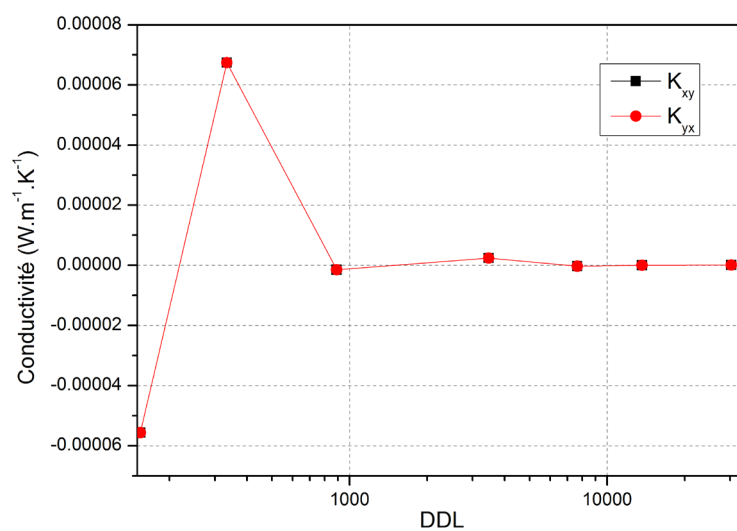


Figure 3.10: Influence de la discrétisation de la cellule périodique sur les termes extradiagonaux du tenseur de conductivité

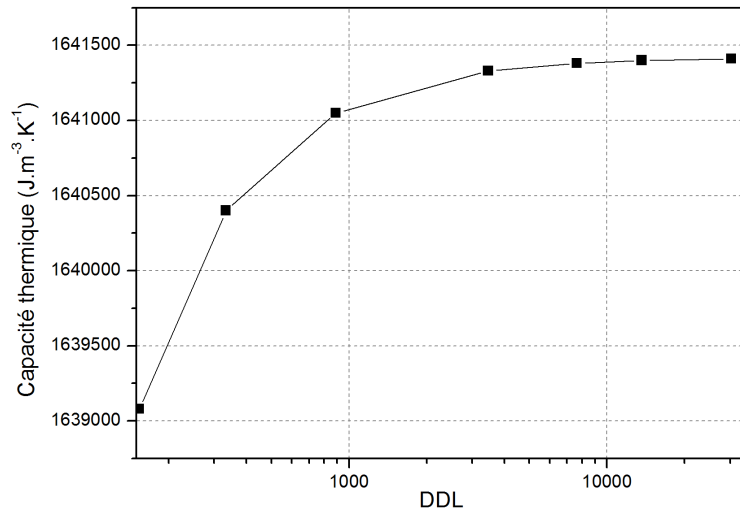


Figure 3.11: Influence de la discrétisation de la cellule périodique sur la capacité thermique

On voit naturellement que pour ce matériau on retrouve une conductivité macroscopique isotrope. Plus la discrétisation est fine et plus les résultats tendent vers une valeur précise. Par la suite, et afin d'assurer la convergence en maillage de ces calculs tout en minimisant les temps de calculs, on choisira la discrétisation 5.

### 3.3.3.3 Influence du taux de fibre

Le taux de fibres  $v_f$  représente le ratio entre le volume (ou la surface) des fibres et le volume (ou la surface) total(e) de la cellule périodique. Son influence sur les propriétés équivalentes estimées est décrite dans les Figure 3.12 et Figure 3.14:

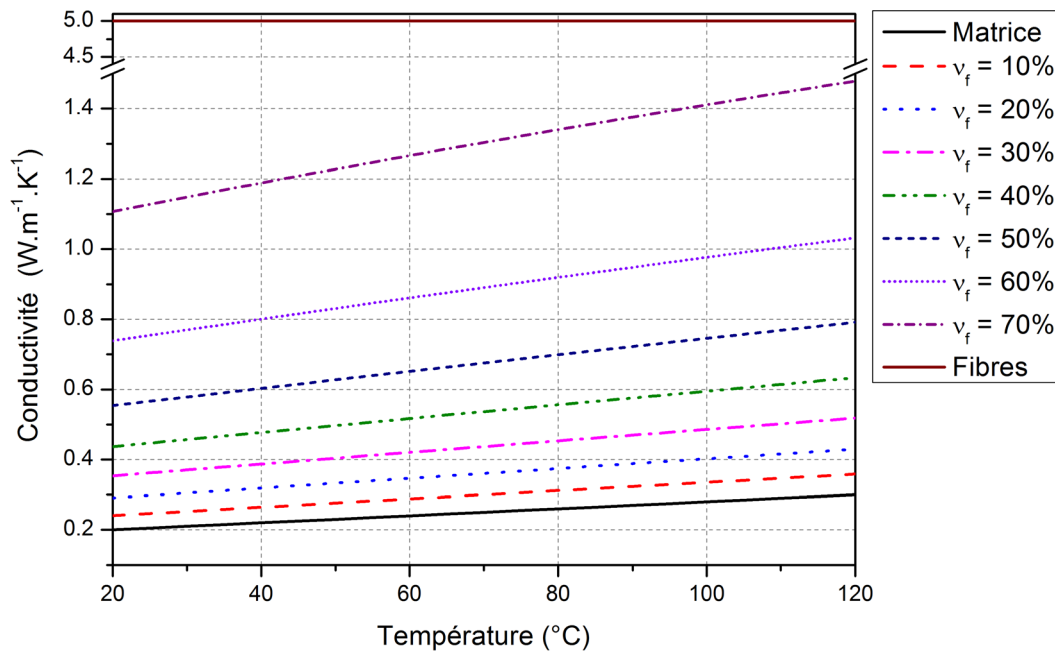


Figure 3.12: Influence du taux de fibres sur la conductivité équivalente

La conductivité ne suit pas une loi des mélanges, plus le taux de fibres est élevé et plus l'influence de la non-linéarité de la conductivité de la matrice se fait sentir sur la gamme étudiée. L'évolution de la conductivité en fonction du taux de fibre et pour différentes températures est donnée en Figure 3.13.

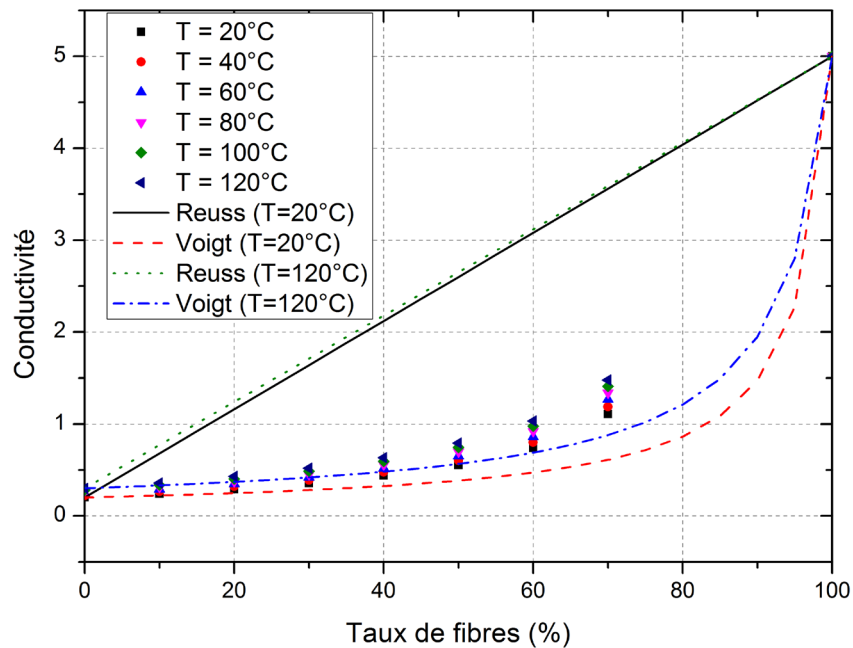


Figure 3.13: Evolution de la conductivité équivalente avec le taux de fibres et bornes de Voigt et de Reuss

Le phénomène précédent est plus nettement visible alors, la plage de variation de la conductivité équivalente avec la température augmentant sensiblement avec le taux de fibres. Les bornes de Voigt et Reuss sont également représentées pour les deux extrema de la plage de température. Les valeurs de conductivité équivalente se trouvent bien à l'intérieur des bornes et se rapprochent plus des bornes de Voigt.

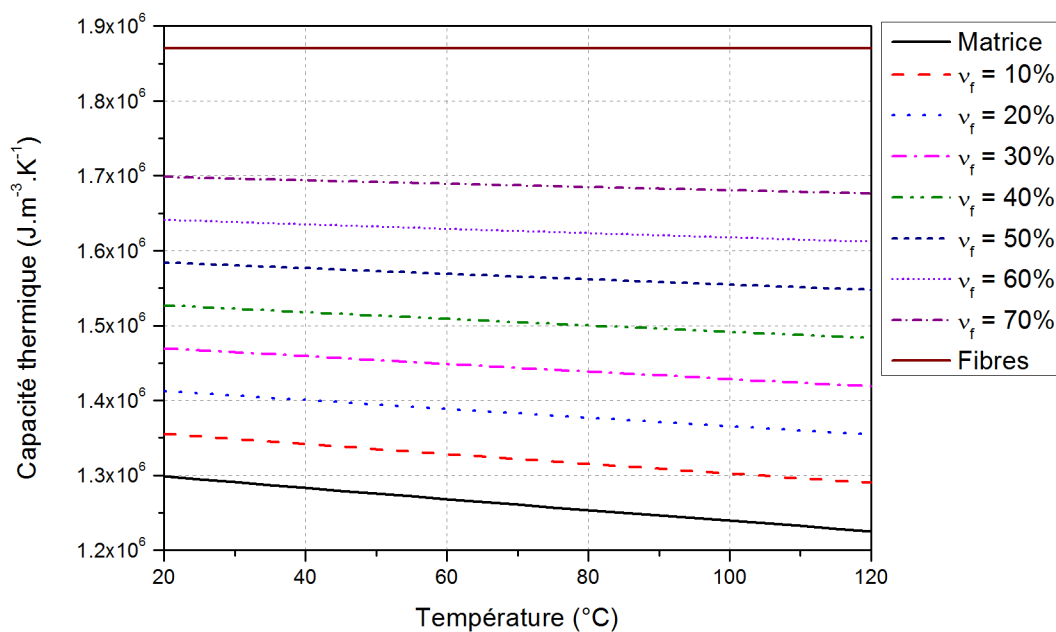


Figure 3.14: Influence du taux de fibres sur la capacité thermique équivalente

A contrario, la capacité thermique suit bien une loi des mélanges . L'évolution de la capacité thermique avec le taux de fibre se fait linéairement entre la valeur de la matrice et celle des fibres.

### 3.3.3.4 Résolution du problème pour 60% de fibres en volume

On résout désormais le problème présenté au début de cette section, en Figure 3.6, pour une valeur de taux de fibres de 60% en volume. Pour  $t = 40s$ , on compare la solution hétérogène  $T^{\varepsilon}$  à la solution du problème hétérogène  $T^0$  ainsi qu'à la solution à l'ordre 1  $T^{0+\varepsilon}T^1$ . Ces résultats sont résumés dans la Figure 3.15.

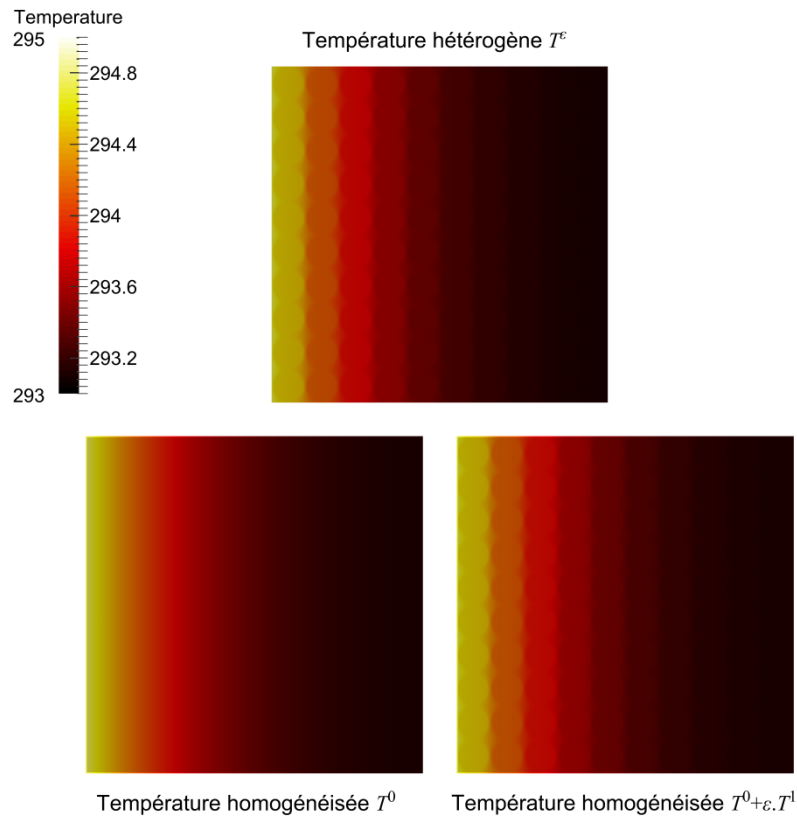


Figure 3.15: Comparaison de la solution du problème hétérogène  $T^{\varepsilon}$  à la solution homogénéisée  $T^0$  et à  $T^{0+\varepsilon}T^1$

On remarque que le champ  $T^0$  donne bien une valeur moyenne de  $T^{\varepsilon}$  dans le domaine macroscopique. Une fois  $T^0$  enrichie par le champ à l'ordre 1, on obtient la température homogénéisée  $T^{0+\varepsilon}T^1$  dont les variations sont très proches de celles de  $T^{\varepsilon}$  .

Les solutions homogénéisées sont comparées à la solution hétérogène pour deux temps, à  $t = 60s$  (Figure 3.16), puis à  $t = 2000s$  (Figure 3.17), qui correspondent au début et à la fin de la montée en température, respectivement. On étudie alors le profil de température le long de la coupe D, représentée en Figure 3.6.

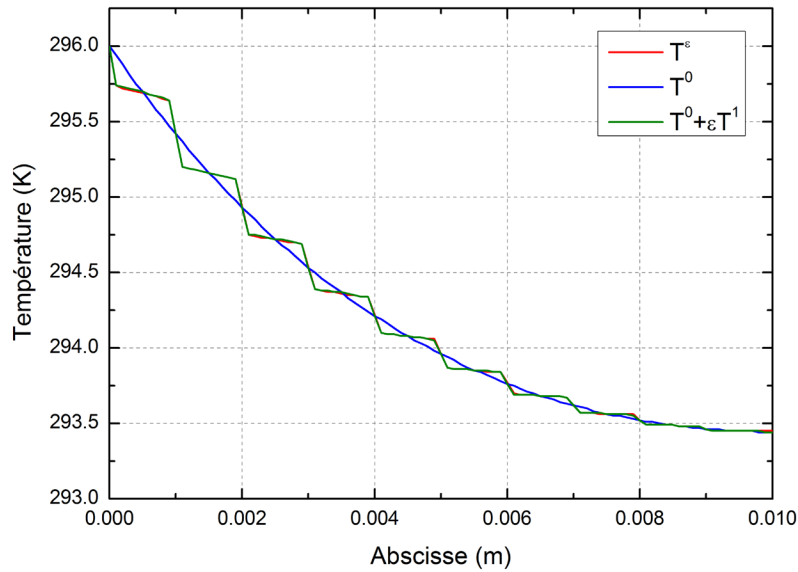


Figure 3.16: Comparaison entre  $T^e$ ,  $T^0$  et  $T^0 + \epsilon T^1$  le long de la section D pour  $t = 60s$

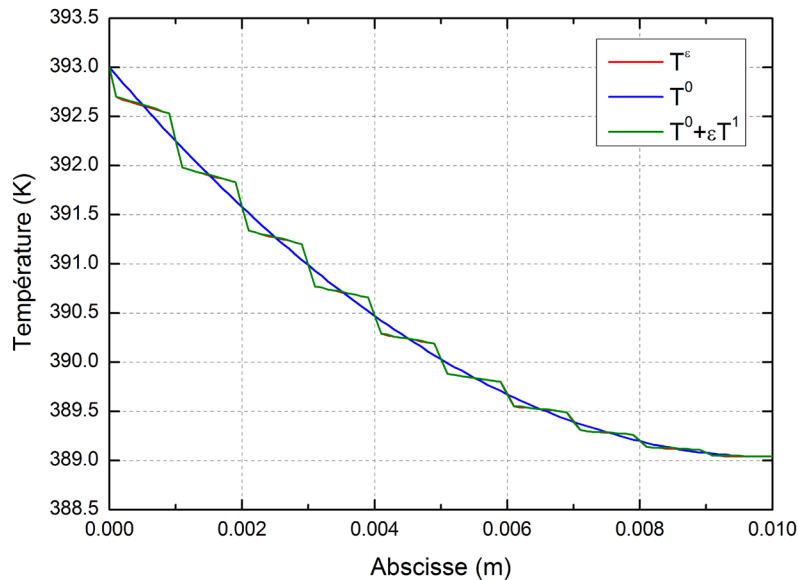


Figure 3.17: Comparaison entre  $T^e$ ,  $T^0$  et  $T^0 + \epsilon T^1$  le long de la section D pour  $t = 2000s$

La solution homogénéisée permet d'obtenir une estimation précise du champ hétérogène. Quelques écarts apparaissent à l'approche des frontières. Ceux-ci sont dus à la perte de périodicité du milieu hétérogène. Afin d'améliorer la description locale, plusieurs solutions existent et ont été l'objet de travaux, notamment par Matine [7]. Ils ne seront pas abordés ici.

### 3.3.3.5 Comparaison au cas à propriétés constantes

Le même problème est résolu en considérant les propriétés de la résine comme constantes. Les différentes propriétés sont rassemblées dans le Tableau 3.4:

Tableau 3.4: Propriétés des constituants dans le cas à propriétés constantes

Propriété	$K_f$	$K_m$	$T_{ref}$	$\rho C p_f$	$\rho C p_m$
Unité	$W.m^{-1}.K^{-1}$	$W.m^{-1}.K^{-1}$	K	$J.K^{-1}.m^{-3}$	$J.K^{-1}.m^{-3}$
Valeur	5.0	0.2	293	$1.87 \cdot 10^6$	$1.29 \cdot 10^6$

On compare alors les températures homogénéisées  $T^0 + \varepsilon T^1$  le long de la section D pour les deux temps:  $t = 60s$  et  $t = 2000s$ . Ces résultats sont donnés en Figure 3.18 et Figure 3.19 respectivement.

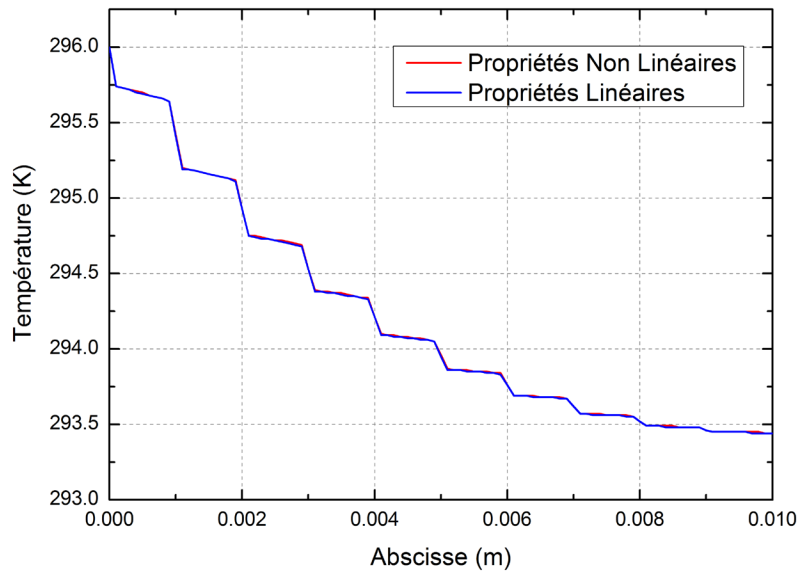


Figure 3.18: Comparaison des température homogénéisées à  $t = 60s$

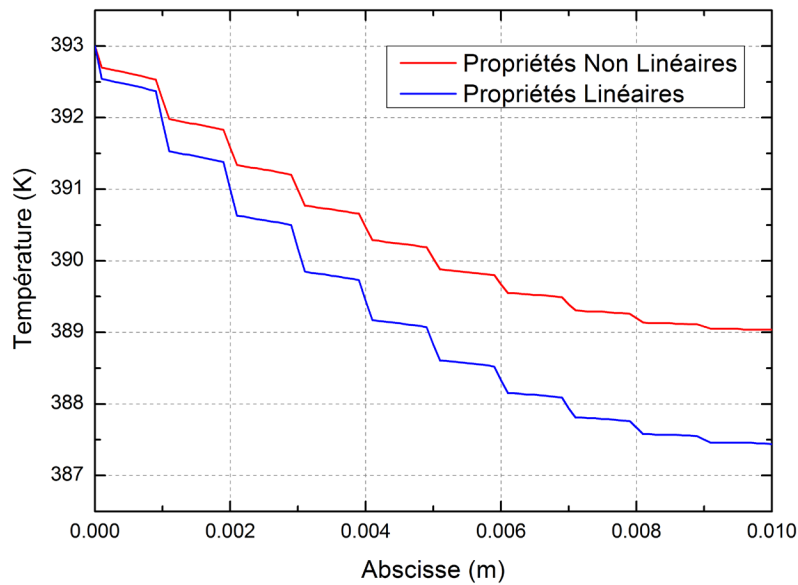


Figure 3.19: Comparaison des températures homogénéisées à  $t = 2000s$

Tant que la température est proche de la température de référence des propriétés, les deux cas sont identiques car les propriétés sont égales. Un décalage se crée petit à petit au cours de la montée en température, l'écart maximal se faisant à l'abscisse 0.01 m. L'évolution de la température en ce point est tracée dans la Figure 3.20 pour les deux cas, en plus du cycle de température imposée  $T_{imp}$ .

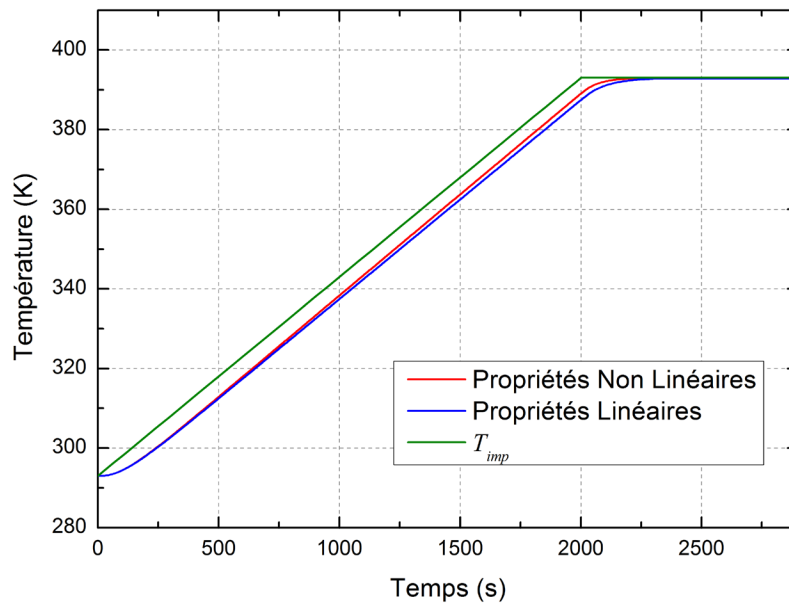


Figure 3.20: Température imposée et évolution de la température au point d'abscisse 0.01m dans les cas linéaire et non linéaire

Au maximum, l'écart de température entre les deux situations est de 1.6K pour un temps donné. Pour une température fixe, le retard entre la réponse du matériau à propriétés constantes et celui à propriétés thermodépendantes est de 40 secondes. Ces écarts sont relativement faibles.

### 3.3.4 Discussion

L'effet de la thermo-dépendance des propriétés sur le comportement thermique d'un matériau a été étudié et comparé à son comportement si les propriétés sont considérées constantes. Des écarts apparaissent entre les deux comportements mais ils restent faibles. Les non-linéarités étudiées sont cependant elles aussi faibles. Dans les matériaux composites à matrice thermodurcissable, les propriétés sont thermo-dépendantes mais possèdent également une forte dépendance à l'état dans lequel se trouve la matrice. Les variations des propriétés avec ce changement d'état sont souvent beaucoup plus importantes. Leur influence serait donc théoriquement plus grande. Afin de les prendre en compte, il est nécessaire de connaître l'avancement de la réaction dans la résine. Cela passe alors par la résolution du problème thermo-chimique couplé, ce qui fait l'objet de la partie suivante.

## 3.4 Homogénéisation du problème thermo-chimique couplé.

On s'intéresse désormais à la transformation des matériaux composites à matrice thermodurcissable durant leur mise en forme. Au cours de cette étape, le matériau est généralement chauffé afin d'amorcer la réaction de réticulation. Cette réaction, traduisant la formation du réseau de chaînes de polymère à partir des espèces chimiques présentes, est accompagnée d'une libération de chaleur appelée enthalpie de réaction. Un couplage fort peut alors exister entre la température et l'avancement de la réaction, celle-ci pouvant s'auto-entretenir, voire s'accélérer du fait de cet apport d'énergie. La valeur de l'enthalpie de réaction ainsi que la vitesse de réticulation dépendent fortement de la résine étudiée. Bien que les fibres, surtout de carbone, permettent de dissiper cette énergie, de forts gradients de température liés à de grandes élévations de température peuvent apparaître durant la transformation de pièces épaisses. Ces phénomènes peuvent mener à des dégradations locales de la matrice ou, dans une moindre mesure, à une hétérogénéité de la transformation de la pièce. Il apparaît donc crucial de

prendre en compte tous ces phénomènes lors de la conception d'une pièce, afin d'éviter d'avoir recours au lourd et coûteux principe d'essai-erreur. Ainsi, une modélisation des transferts thermiques durant la réticulation de la résine dans un matériau composite permettra de prédire les distributions de température et d'avancement de la réaction dans toute la pièce et ce pendant tout le cycle de mise en forme de la pièce. On traite ainsi de la totalité de l'histoire thermo-chimique du matériau composite.

A ce titre, l'homogénéisation par développements asymptotiques de ce problème n'a que très rarement été abordé. Les travaux d'Abdessamad et Meliani [20–23] ont permis de montrer la convergence de la solution homogénéisée vers la solution hétérogène quand  $\varepsilon$  tend vers 0. Une application à la mise en forme d'un composite à fibres de verre et matrice polyester est réalisée et les résultats sont comparés à des résultats expérimentaux. Dans ces différentes études, il est supposé que les champs de température et d'avancement peuvent s'écrire sous la forme d'une développement asymptotique. Le problème de départ est donc considéré comme homogénéisable. Cette dernière condition n'a jamais été vérifiée et sera l'objet de cette section.

Sans avoir recours à une méthode d'homogénéisation par développements asymptotiques, plusieurs auteurs se sont intéressés à l'adimensionnement du problème thermo-chimique couplé pour l'étude de la transformation de polymères et des matériaux composites associés. Ainsi, Broyer et Macosko [24] ont étudié la cristallisation de polymères thermoplastiques et ont adimensionné les équations régissant le couplage thermo-chimique en vue d'améliorer les procédés de mise en forme. Dans leur étude [25], Pitchumani et Yao modélisent la transformation de matériaux composites à matrice thermodurcissable à l'aide d'équations adimensionnées dans le but de trouver le cycle de température optimal afin d'obtenir des préimprégnés partiellement cuits homogènes. Enfin, Benard et Advani [26] se sont intéressés au couplage entre thermique et chimie pendant la cristallisation de polymères semi-cristallins. Différents modèles sont décrits et leur précision discutée en fonction de l'intensité du couplage entre thermique et chimie. Dans les travaux cités précédemment, des nombres adimensionnels apparaissent et permettent de juger de l'intensité de ce couplage. En se basant sur les mêmes développements, il est possible d'adimensionner le problème thermo-chimique couplé en vue de prouver son homogénéisabilité.

### 3.4.1 Description du problème traité

Le problème à l'échelle microscopique est décrit par les équations :

$$\left\{ \begin{array}{l} \rho_i C p_i \frac{\partial T_i}{\partial t} = -\nabla \cdot \mathbf{\Phi}_i + \rho_i \Delta H_i \frac{\partial x_i}{\partial t} \\ \mathbf{\Phi}_i = -K_i \nabla T_i \\ \frac{\partial x_i}{\partial t} = f(x_i, T_i), \end{array} \right. \quad (3.49)$$

où  $x$  est l'avancement de la réaction,  $\Delta H$  l'enthalpie de la réaction, et  $f(x, T)$  la loi régissant la cinétique de réaction. On considère ici que les propriétés thermo-physiques des constituants sont constantes. Différents modèles existent pour décrire la cinétique de réticulation des matrices thermodurcissables. Leur emploi dépend de la résine étudiée. Cette fonction cinétique sera décrite en détails plus tard. Il est évident qu'il n'y a pas de réaction chimique dans les fibres. Par conséquent, on aura  $\Delta H_f = 0$ .

On se placera dans le cas où le nombre de Fourier  $F_c$  est en  $O(1)$ , ce qui est le cas le plus riche étudié précédemment. Le problème de conduction en régime transitoire est donc homogénéisable dès le départ, on ne s'intéresse qu'à l'intégration du terme source dépendant de la cinétique.

### 3.4.2 Adimensionnement

En plus des grandeurs adimensionnées présentées précédemment, on pose:

$$H^* = \rho \Delta H / H_c, \dot{x}^* = t_c \frac{\partial x}{\partial t}, f^*(x^*, T^*) = t_r f(x, T) \quad (3.50)$$

où  $t_r$  est le temps caractéristique de la cinétique de réaction sur lequel nous reviendrons en section 3.4.5.

Le problème devient alors:

$$\left\{ \begin{array}{l} C_c C^* \frac{\Delta T_c}{t_c} \dot{T}^* + \frac{K_c \Delta T_c}{L_c^2} \nabla^* \cdot \boldsymbol{\varphi}^* = H_c \frac{1}{t_c} H^* \dot{x}^* \\ \boldsymbol{\varphi}^* = -K^* \nabla^* T^* \\ \frac{1}{t_c} \dot{x}^* = \frac{1}{t_r} f^*(x^*, T^*) \end{array} \right. \quad (3.51)$$

d'où, en réarrangeant les grandeurs caractéristiques:

$$\left\{ \begin{array}{l} C^* \dot{T}^* + F_c \nabla^* \cdot \boldsymbol{\varphi}^* = S_t H^* \dot{x}^* \\ \boldsymbol{\varphi}^* = -K^* \nabla^* T^* \\ \dot{x}^* = R_t f^*(x^*, T^*) \end{array} \right. \quad (3.52)$$

On fait apparaître, en plus du nombre de Fourier  $F_c$ , deux nouveaux nombres adimensionnels.  $S_t$  est l'inverse du nombre de Stefan  $Ste$ , définit par:

$$S_t = \frac{H_c}{C_c \Delta T_c} = \frac{1}{Ste} \quad (3.53)$$

Il représente le ratio entre l'énergie libérée pendant la réaction et celle nécessaire à élever le système de l'incrément de température  $\Delta T_c$ . On le retrouve dans la littérature [24–26] sous le nom de température adiabatique de réaction ou élévation de température adiabatique de réaction.

$R_t$  est, quant à lui, le ratio du temps caractéristique  $t_c$  sur le temps caractéristique de la réaction  $t_r$ :

$$R_t = \frac{t_c}{t_r} \quad (3.54)$$

Puisqu'on a considéré que  $F_c = O(1)$ , on peut écrire:

$$t_c = O\left(\frac{C_c L_c^2}{K_c}\right), \quad (3.55)$$

permettant d'exprimer  $R_t$  en fonction des propriétés thermiques des matériaux. On retrouve cette définition dans la littérature, où ce rapport est appelé nombre de Damköhler [25] ou nombre de Deborah [26]. Il représente alors le ratio entre le temps caractéristique de diffusion et le temps caractéristique de la réaction de réticulation. Le problème étant adimensionné, il est désormais possible de mettre en place les développements asymptotiques afin de vérifier son homogénéisabilité.

### 3.4.3 Développements asymptotiques

Comme précédemment, on écrit le champ de température adimensionné sous la forme d'un développement asymptotique:

$$T^*(\mathbf{X}^*, t^*) = \varepsilon^0 T^{(0)*}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*, t^*) + \varepsilon^1 T^{(1)*}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*, t^*) + \varepsilon^2 T^{(2)*}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*, t^*) + \dots \quad (3.56)$$

Et on applique la même méthode pour le champ d'avancement:

$$x^*(\mathbf{X}^*, t^*) = \varepsilon^0 x^{(0)*}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*, t^*) + \varepsilon^1 x^{(1)*}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*, t^*) + \varepsilon^2 x^{(2)*}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*, t^*) + \dots \quad (3.57)$$

d'où

$$\dot{x}^*(\mathbf{X}^*, t^*) = \varepsilon^0 \dot{x}^{(0)*}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*, t^*) + \varepsilon^1 \dot{x}^{(1)*}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*, t^*) + \varepsilon^2 \dot{x}^{(2)*}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*, t^*) + \dots \quad (3.58)$$

Il est alors possible, à partir de ces développements asymptotiques et moyennant un développement de Taylor à proximité de  $(x^{(0)*}, T^{(0)*})$ , d'obtenir le développement asymptotique de  $f^*(x^*, T^*)$ :

$$\begin{aligned} f^*(x^*, T^*) &= f^*(x^{(0)*}, T^{(0)*}) + \varepsilon^1 x^{(1)*} \frac{\partial f^*}{\partial x^*}(x^{(0)*}, T^{(0)*}) + \varepsilon^1 T^{(1)*} \frac{\partial f^*}{\partial T^*}(x^{(0)*}, T^{(0)*}) + \dots \\ &= \varepsilon^0 f^{(0)*}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*, t^*) + \varepsilon^1 f^{(1)*}(\mathbf{x}^*, \mathbf{y}^*, t^*) + \dots \end{aligned} \quad (3.59)$$

Idéalement, on devrait discuter à la fois l'homogénéisabilité des équations (3.52)<sub>1</sub> et (3.52)<sub>2</sub>. Ce problème est, dans cette présente étude, simplifié en réinjectant (3.52)<sub>2</sub> dans (3.52)<sub>1</sub>. On obtient alors:

$$\begin{cases} C^* \dot{T}^* + F_c \nabla^* \boldsymbol{\varphi}^* = S_t R_t H^* f^*(x^*, T^*) \\ \boldsymbol{\varphi}^* = -K^* \nabla^* T^* \\ \dot{x}^* = R_t f^*(x^*, T^*) \end{cases} \quad (3.60)$$

Seule l'équation (3.60)<sub>1</sub> et son homogénéisabilité sont discutées par la suite. Il est vrai que l'on découple ainsi le problème et que la discussion ne se fait que sur le produit  $S_t R_t$ . La discussion du problème couplé se ferait, quant à elle, indépendamment sur les valeurs des nombres  $S_t$  et  $R_t$ . En réinjectant les développements asymptotiques dans l'équation (3.60)<sub>1</sub>, on obtient:

$$\begin{aligned} &\varepsilon^{-2} \left( \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(0)*} \right) \\ &+ \varepsilon^{-1} \left( \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} + \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(0)*} + \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(1)*} \right) \\ &+ \varepsilon^0 \left( -C^* \dot{T}^{(0)*} + \left( \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(0)*} + \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(1)*} + \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(1)*} \right. \right. \\ &\quad \left. \left. + \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(2)*} \right) + S_t R_t H^* f^{(0)*} \right) \\ &+ \varepsilon^1 \left( -C^* \dot{T}^{(1)*} + \left( \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(1)*} + \nabla_{\mathbf{y}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(2)*} \right. \right. \\ &\quad \left. \left. + \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{y}^*} T^{(2)*} \right) + S_t R_t H^* f^{(1)*} \right) \\ &+ \varepsilon^2 \left( -C^* \dot{T}^{(2)*} + \nabla_{\mathbf{x}^*} K^* \nabla_{\mathbf{x}^*} T^{(2)*} + S_t R_t H^* f^{(2)*} \right) \\ &+ \dots \\ &= 0 \end{aligned} \quad (3.61)$$

**Dans le cas où le produit  $S_t R_t = O(1)$** , l'analyse des termes à chaque ordre de  $\varepsilon$  donne les mêmes relations que dans la première partie aux ordres  $\varepsilon^{-2}$  (3.18) et  $\varepsilon^{-1}$  (3.20). A l'ordre  $\varepsilon^0$ , on retrouve:

$$C^* \dot{T}^{(0)*} = \nabla_{x^*} K^* \nabla_{x^*} T^{(0)*} + \nabla_{y^*} K^* \nabla_{x^*} T^{(1)*} + \nabla_{x^*} K^* \nabla_{y^*} T^{(1)*} + \nabla_{y^*} K^* \nabla_{y^*} T^{(2)*} + S_t R_t H^* f^{(0)*} \quad (3.62)$$

La condition de compatibilité (voir section 3.2.3) nous amène au problème homogénéisé tel qu'il est présenté dans [20,21,23]:

$$C_h^* \dot{T}^{(0)*} - \nabla_{x^*} \left( \underline{K}_h^* \nabla_{x^*} T^{(0)*} \right) = S_t R_t H_h^* f^{(0)*}, \quad (3.63)$$

où la capacité thermique et le tenseur de conductivité équivalents sont données par Eq (3.30) et (3.31), et où l'enthalpie de réaction équivalente est donnée par:

$$H_h^* = \frac{1}{|P|} \int_P (H^*) dP \quad (3.64)$$

**Dans le cas où le produit  $S_t R_t = O(\varepsilon^1)$** , les équations aux ordres  $\varepsilon^{-2}$  et  $\varepsilon^{-1}$  restent inchangées. L'équation à l'ordre  $\varepsilon^0$  est la même que Eq. (3.25). Le terme source de chaleur n'apparaît donc qu'à l'équation d'ordre  $\varepsilon^1$ . Le problème se ramène au cas de la conduction en régime transitoire, le terme source étant négligeable à l'ordre  $\varepsilon^0$ .

**Dans le cas où  $S_t R_t = O(\varepsilon^{-1})$** , l'équation à l'ordre  $\varepsilon^{-2}$  n'est pas modifiée. A l'ordre  $\varepsilon^{-1}$ , on a:

$$\nabla_{y^*} K^* \nabla_{x^*} T^{(0)*} + \nabla_{y^*} K^* \nabla_{y^*} T^{(1)*} = H^* f^{(0)*}, \quad (3.65)$$

d'où,  $\nabla_{y^*} K^* \nabla_{y^*} T^{(1)*} = -\nabla_{y^*} K^* \nabla_{x^*} T^{(0)*} + H^* f^{(0)*}$

La condition de compatibilité nous amène à:

$$\int_P (H^* \dot{x}^{(0)*}) dP = 0 \quad (3.66)$$

Par positivité de  $H^*$  et par indépendance de  $f^{(0)*}$  en  $y^*$  [21], cette égalité ne peut être assurée que si  $f^{(0)*}$  est nulle ce qui n'est pas possible par définition. Cela nous amène à une situation non homogénéisable.

Ainsi, trois cas de figure peuvent apparaître en fonction de la valeur du produit  $S_t R_t$ . Ces trois cas sont résumés dans le Tableau 3.5:

**Tableau 3.5: Cas d'homogénéisabilité en fonction des nombres adimensionnels et de la séparation des échelles**

Cas	Situation rencontrée
$S_t R_t = O(\varepsilon^k), k < 0$	Problème Non Homogénéisable
$S_t R_t = O(\varepsilon^k), k = 0$	Problème Homogénéisable, terme source à l'ordre $\varepsilon^0$
$S_t R_t = O(\varepsilon^k), k > 0$	Problème Homogénéisable, terme source aux ordres supérieurs à $\varepsilon^0$

On peut alors, pour une valeur donnée de  $\varepsilon$ , représenter ces cas dans l'espace des valeurs des deux nombres adimensionnés  $S_t$  et  $R_t$  (Figure 3.21). Pour rappel,  $S_t R_t = O(\varepsilon^0)$  signifie que  $\varepsilon^1 < S_t R_t < \varepsilon^{-1}$ . Deux courbes permettent alors de séparer les différents cas précédents. L'une ayant pour équation  $R_t = \varepsilon^1/S_t$  permet de délimiter le cas homogénéisable sans prise en compte du terme source à l'ordre 0 du cas homogénéisable avec prise en compte du terme source. L'autre ayant pour équation  $R_t = \varepsilon^{-1}/S_t$  permet de délimiter le cas non homogénéisable du cas homogénéisable avec prise en compte du terme source.

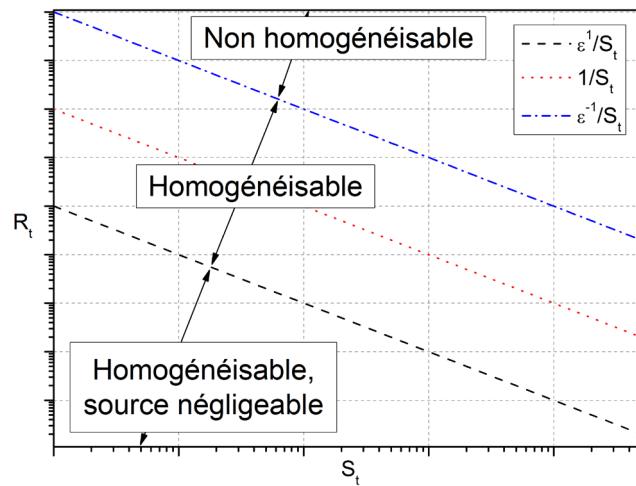


Figure 3.21: Cas d'homogénéisabilité du problème thermo-chimique en fonction des valeurs des nombres adimensionnels

Il est alors aisé de déterminer dans quel cas se trouve un problème donné, pour une valeur fixe de  $\varepsilon$ . Plus  $S_t$  est élevé et plus la quantité de chaleur dégagée pendant la réaction est grande devant la chaleur sensible du matériau. Un problème présentant un fort  $S_t$  sera donc susceptible d'être accompagné de fortes élévations de température au cœur du matériau. Si ces élévations sont trop importantes, les gradients thermiques induit par la réaction peuvent devenir très importants devant la taille des hétérogénéités et on retrouve un cas non homogénéisable. *A contrario*, un faible  $S_t$  indique que la chaleur latente de la réaction est faible, et donc que le terme source est faible, voire négligeable. En parallèle,  $R_t$  donne une idée de la vitesse de la réaction face au temps de diffusion dans le milieu: plus il est grand et plus la réaction est rapide. Pour une même chaleur latente, un temps de réaction court devant le temps de diffusion peut entraîner de forts gradients locaux de température et d'avancement, menant encore une fois à un problème non homogénéisable. A l'opposé, un faible  $R_t$  indique que la réaction est lente devant le temps de diffusion, donnant encore une fois un terme source négligeable. En plus des deux paramètres  $S_t$  et  $R_t$ , la séparation des échelles joue également un rôle important dans l'homogénéisabilité du problème. Son influence sur ces bornes est illustrée en Figure 3.22:

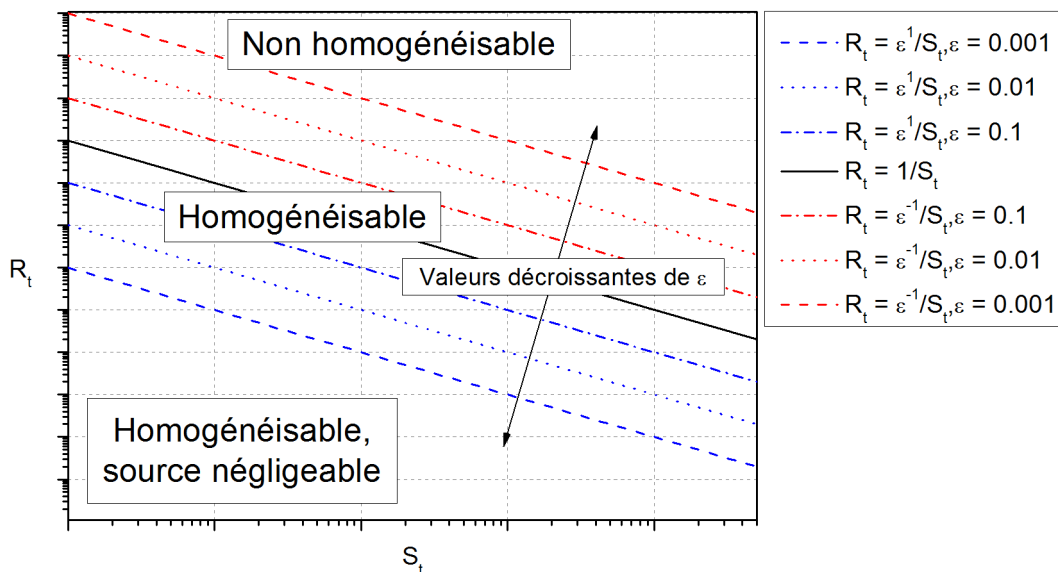


Figure 3.22: Influence de la séparation des échelles sur l'homogénéisabilité du problème thermo-chimique

On remarque, d'après la Figure 3.22, que plus la séparation d'échelle est bonne et donc plus  $\varepsilon$  est petit, plus les bornes limitant les trois cas décrits au dessus s'éloignent. Ainsi, plus la séparation des échelles sera bonne et plus il sera possible de prendre en compte une réaction rapide ou intense.

Le cadre de l'homogénéisation du problème thermo-chimique étant donné, il est maintenant possible d'analyser des situations précises sur des matériaux connus, de donner un encadrement des nombres adimensionnels et d'en déduire si le problème est homogénéisable ou non.

### 3.4.4 Adimensionnement de la température

L'adimensionnement de la température ne fait pas l'objet d'un consensus et n'est pas réalisé de la même manière suivant les travaux rencontrés dans la littérature. On retrouve deux manières d'adimensionner la température. La première se base sur la température initiale  $T_0$ . On a ainsi  $T^*=T/T_0$ , et on retrouve cette expression dans [24,25]. La seconde se base sur une variation de la température depuis la température initiale. On retrouve ainsi  $T^*=T/(T_e-T_0)$  ou  $T^*=(T-T_0)/(T_e-T_0)$ , où  $T_e$  est une température de référence [24,26,27]. Cette température de référence peut être la température du cycle imposé [27], la température adiabatique de réaction [24], ou une température de référence de la réaction [26].

De toute évidence, ce choix n'est pas toujours sans conséquence sur l'ordre de grandeur du nombre  $S_r$  (3.53), particulièrement. Une source de chaleur réactionnelle pourra être considérée comme négligeable dans un processus où la matière subit une forte élévation de température. Mais si, pour un même processus, on s'intéresse particulièrement à la phase où la matière se transforme, il sera dommageable de négliger le terme source dans l'équation de la chaleur. Dans ce cas, un autre choix des températures de références permet de pallier les manques d'un adimensionnement trop grossier, pour une même physique.

On choisira par la suite d'adimensionner la température par rapport à une variation de température depuis la température initiale, où la température de référence correspond à la température moyenne de début de réaction. On a alors une température adimensionnée de la forme  $T^*=(T-T_0)/(T_e-T_0)$ . Elle vaudra 0 lorsque la température est égale à la température initiale  $T_0$  et 1 lorsque celle-ci sera égale à la température moyenne de début de réaction  $T_e$ .

### 3.4.5 Les modèles cinétiques et le temps caractéristique de la réaction chimique

Il existe de nombreux modèles permettant la description de la cinétique de réaction. On peut les classer en deux grandes familles: les modèles phénoménologiques et les modèles mécanistiques. Les modèles phénoménologiques permettent de décrire la cinétique de réticulation sans considérer les réactions chimiques élémentaires. A l'inverse, les modèles mécanistiques se basent sur la description des différentes réactions chimiques ayant lieu entre la résine, le système catalytique et les intermédiaires réactionnels. Ils sont généralement plus complexes à mettre en place puisqu'ils demandent l'identification de nombreux paramètres, la réticulation faisant intervenir de nombreuses réactions élémentaires. Pour cette raison, les modèles phénoménologiques sont plus souvent utilisés pour les résines thermodurcissables. Plusieurs modèles classiques sont décrits dans les paragraphes suivants.

#### 3.4.5.1 Modèle d'ordre $n$

Les modèles d'ordre  $n$  permettent de relier la vitesse de réaction à l'avancement  $x$  et à la température  $T$  à l'aide d'une loi d'Arrhénius en  $T$  et d'un polynôme d'ordre  $n$  en  $x$  [28]:

$$f(x, T) = k(T)(1-x)^n, \quad (3.67)$$

avec

$$k(T) = K e^{-\left(\frac{E_0}{RT}\right)}, \quad (3.68)$$

où  $n$  représente l'ordre de la réaction,  $K$  est le facteur pré-exponentiel ( $s^{-1}$ ),  $E_0$  l'énergie d'activation ( $J.mol^{-1}$ ) et  $R$  est la constante des gaz parfaits ( $8.314 J.K^{-1}.mol^{-1}$ ).

Ces modèles sont adaptés si l'on considère que la vitesse de réaction n'est pas influencée par les produits intermédiaires de réaction. Ainsi, la vitesse de réaction est maximale à  $t = 0$  dans le cas d'un cycle isotherme.

### 3.4.5.2 Modèle auto-catalytique

Lorsqu'au moins un produit intermédiaire de la réaction participe à la réticulation, le modèle précédent n'est plus adapté. On peut alors avoir recours à un modèle auto-catalytique, décrit par:

$$f(x, T) = k(T) x^m (1-x)^n, \quad (3.69)$$

où  $m$  et  $n$  sont les ordres de la réaction.

La vitesse de réaction issue de ce modèle est nulle en  $t = 0$  et sa valeur maximale est généralement atteinte pour un degré de conversion compris entre 20 et 40%.

### 3.4.5.3 Le modèle de Kamal et Sourour

Kamal et Sourour [29] ont développé un modèle plus étendu afin de décrire la cinétique de réaction. Il s'avère plus flexible que le modèle d'ordre  $n$ , en intégrant deux fonctions de type Arrhenius:

$$f(x, T) = (1-x)^n \left( k_1 e^{-\left(\frac{E_{01}}{RT_1}\right)} + k_2 e^{-\left(\frac{E_{02}}{RT_2}\right)} x^m \right), \quad (3.70)$$

où  $k_1$  et  $k_2$  sont les facteurs pré-exponentiels,  $E_{01}$  et  $E_{02}$  deux énergies d'activation,  $m$  et  $n$  sont les constantes catalytiques et  $(m+n)$  représente l'ordre global de la réaction.

Michaud et al. [30] proposent une extension du modèle de Kamal et Sourour [29] en ajoutant l'effet de la température sur l'avancement maximum qu'il est possible d'atteindre.

$$f(x, T) = (x_{max} - x)^n \left( k_1 e^{-\left(\frac{E_{01}}{RT_1}\right)} + k_2 e^{-\left(\frac{E_{02}}{RT_2}\right)} x^m \right), \quad (3.71)$$

avec

$$x_{max} = x_0 + BT, \text{ avec } x_{max} < 1, \quad (3.72)$$

où  $a_0$  et  $B$  sont des constantes.

### 3.4.5.4 Le modèle de Bailleul

Bailleul [31] a développé dans ses travaux un modèle en considérant que la fonction cinétique est un produit de deux fonctions, l'une dépendant de la température et l'autre de l'avancement:

$$f(x, T) = g(x)k(T), \quad (3.73)$$

avec

$$g(x) = \sum_{i=1}^n a_i x^i, \quad (3.74)$$

où les  $a_i$  sont les coefficients du polynôme  $g(x)$ , et

$$k(T) = k_{ref} e^{\left(-A \left(\frac{T_{ref}}{T} - 1\right)\right)}, \quad (3.75)$$

où  $k_{ref}$ ,  $A$  et  $T_{ref}$  sont des constantes.

Des variantes de ce modèle existent. A titre d'exemple, Nawab [32] l'a adapté à l'étude des résines vinylesters, en prenant en compte une fonction d'inhibition qui caractérise le début de la réaction ainsi qu'une fonction décrivant les effets de diffusion:

$$f(x, T) = W(v(T))g(x)k(T)F_{diff}(x), \quad (3.76)$$

avec

$$g(x) = \sum_{i=1}^n a_i x^i, \quad (3.77)$$

et

$$k(T) = k_{ref} e^{\left(-A \left(\frac{T_{ref}}{T} - 1\right)\right)}, \quad (3.78)$$

comme décrits pour le modèle de Bailleul, et

$$W(v(T)) = \begin{cases} 0, & \text{si } v(T) \geq 0 \\ 1, & \text{si } v(T) < 0 \end{cases}, \quad (3.79)$$

$$v(T) = t_{ref} - \int_0^t \exp\left[-B \left(\frac{T_{ref}}{T} - 1\right)\right] dt,$$

où  $t_{ref}$  est le temps d'induction et  $B$  une constante.

Enfin, la fonction de diffusion est donnée par la relation proposée par Chern et Poehlein [33], qui décrit la baisse de mobilité des molécules liée à la formation du réseau réticulé:

$$F_{diff}(x) = \frac{1}{1 + \exp(E_1(x - x_c))}, \quad (3.80)$$

où  $E_1$  et  $x_c$  sont des constantes.

### 3.4.5.5 Cas généraux

La structure de ces modèles est globalement la même. On retrouve une fonction polynômiale en  $x$ , que l'on notera  $g(x)$  et une fonction de la température sous la forme d'une loi d'Arrhenius, que l'on notera  $k(T)$ . On peut cependant distinguer trois cas de figure en fonction des expressions de ces fonctions, et ranger chacun des modèles précédents dans ces trois catégories. Elles sont décrites dans le Tableau 3.6.

Tableau 3.6: Structure générale des modèles cinétiques

	Cas 1	Cas 2	Cas 3
$k(T)$	$k(T) = k_{ref} e^{\left(-A \left(\frac{T_{ref}}{T} - 1\right)\right)}$	$k(T) = ke^{-\left(\frac{E_0}{RT}\right)}$	$k(T) = ke^{-\left(\frac{E_0}{RT}\right)}$
$g(a)$	$g(x) = \sum_{i=1}^n a_i x^i$	$G(x) = (1-x)^n$	$g(x) = x^m (1-x)^n$
Modèles	Bailleul	Ordre $n$	Auto-catalytique, Kamal et Sourour

L'identification expérimentale de la loi  $g(x)$  donne, pour le modèle de Bailleul, un encadrement de celle ci sur la gamme  $[0,1]$ , elle est donc déjà adimensionnée. Il en est de même pour le modèle d'ordre  $n$ , où le maximum de cette fonction est égal à 1 en  $x = 0$ . Pour les modèles dans le troisième cas, cette fonction admet un maximum inférieur à 1. Sa valeur maximale est atteinte en  $x_1$  (3.81) et est décrite dans (3.82).

$$x_1 = \frac{m}{m+n}, \quad (3.81)$$

$$g_{max} = g(x_1) = \left(\frac{m}{m+n}\right)^m \left(\frac{n}{m+n}\right)^n \quad (3.82)$$

Considérant cette valeur maximale, on a alors:

$$\begin{aligned} g(x) &= x^m (1-x)^n \\ &= \frac{g_{max}}{g_{max}} x^m (1-x)^n \\ &= g_{max} g^*(x), \text{ avec } g^*(x) = \frac{1}{g_{max}} x^m (1-x)^n, \end{aligned} \quad (3.83)$$

où  $g^*(x)$  est alors bornée entre 0 et 1. La valeur maximale de la fonction  $g$  est alors clairement  $g_{max}$ .

Le maximum de la fonction  $k(T)$  est également à définir. Pour les modèles du cas 1, on a directement une estimation de l'ordre de grandeur de  $k(T)$  donnée par  $k_{ref}$ . En exprimant  $k(T)$  à l'aide de la température adimensionnée  $T^* = (T - T_0)/(T_{ref} - T_0)$ , on a:

$$\begin{aligned} k(T) &= k_{ref} \exp\left[-A \left(\frac{T_{ref}}{T} - 1\right)\right] \\ &= k_{ref} \exp\left[-A \left(\frac{1 - T^*}{T^* + \frac{T_0}{T_{ref} - T_0}}\right)\right] \end{aligned} \quad (3.84)$$

Le terme en exponentielle est adimensionné et au voisinage de  $T_{ref}$ , il tendra vers 1.

Pour les modèles du second et du troisième cas, on a:

$$k(T) = ke^{-\left(\frac{E_0}{RT}\right)} \quad (3.85)$$

En faisant apparaître la température de référence  $T_{ref}$ , on obtient:

$$\begin{aligned}
 k(T) &= k \exp\left[-\left(\frac{E_0}{RT}\right)\right] \\
 &= k \exp\left[-\left(\frac{E_0}{RT_{ref}}\right)\right] \cdot \exp\left[-\left(\frac{E_0}{RT_{ref}}\right)\left(\frac{T_{ref}}{T} - 1\right)\right] \\
 &= k_c \cdot k^*(T), \text{ avec} \\
 k_c &= k \exp\left[-\left(\frac{E_0}{RT_{ref}}\right)\right], \text{ et } k^*(T) = \exp\left[-\left(\frac{E_0}{RT_{ref}}\right)\left(\frac{T_{ref}}{T} - 1\right)\right]
 \end{aligned} \tag{3.86}$$

L'expression de  $k^*(T)$  est de cette manière adimensionnée et en  $O(1)$ . On a donc une estimation de l'ordre de grandeur de la fonction  $k(T)$  donnée par sa grandeur caractéristique  $k_c$ . On retrouve une forme semblable à celle du cas 1, où  $k_{ref}$  est remplacé par  $k_c$ . Le temps caractéristique de la réaction est alors l'inverse de  $k_c$ , de  $k_{ref}$ , ou du produit  $k_c g_{max}$  suivant le cas étudié. Ces expressions sont résumées dans le Tableau 3.7.

**Tableau 3.7: Expression du temps de réaction pour les modèles cinétiques**

	Cas 1	Cas 2	Cas 3
$t_r$	$t_r = \frac{1}{k_{ref}}$	$t_r = \frac{1}{k_c}, k_c = K \exp\left[-\left(\frac{E_0}{RT_{ref}}\right)\right]$	$t_r = \frac{1}{k_c g_{max}}, \begin{cases} k_c = k \exp\left[-\left(\frac{E_0}{RT_{ref}}\right)\right] \\ g_{max} = \left(\frac{m}{m+n}\right)^m \left(\frac{n}{m+n}\right)^n \end{cases}$
Modèles	Bailleul	Ordre $n$	Auto-catalytique, Kamal et Sourour

Le temps de réaction est ainsi défini pour les différents modèles phénoménologiques présentés dans cette section.

### 3.4.6 Ordres de grandeur des nombres adimensionnels

Un encadrement des propriétés des différents constituants est donné dans le Tableau 3.8:

**Tableau 3.8: Ordres de grandeur des propriétés des constituants**

Propriété	Unité	Valeur minimale	Valeur maximale
$\Delta H$	(J.kg <sup>-1</sup> )	175 10 <sup>3</sup>	500 10 <sup>3</sup>
$t_r$	(s)	0.3	1.0 10 <sup>5</sup>
$\rho_m$	(kg.m <sup>-3</sup> )	900	1500
$\rho C p_m$	(J.m <sup>-3</sup> .K <sup>-1</sup> )	1.50 10 <sup>6</sup>	2.50 10 <sup>6</sup>
$v_f$		0.3	0.7
$\rho C p_f$	(J.m <sup>-3</sup> .K <sup>-1</sup> )	4.1 10 <sup>5</sup>	3.40 10 <sup>6</sup>
$\Delta T_c$	(K)	20	250
$K_m$	(W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	0.02	0.2
$K_f$	(W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	0.04	40
$L_c$	(m)	1.0 10 <sup>-4</sup>	1.0 10 <sup>-1</sup>

Ces valeurs sont basées sur une liste de matériaux comprenant une résine vinylester [32] quatre résines époxy [25,31,34,35], une résine polyester chargée [36] et une résine polyester [37]. Les propriétés des

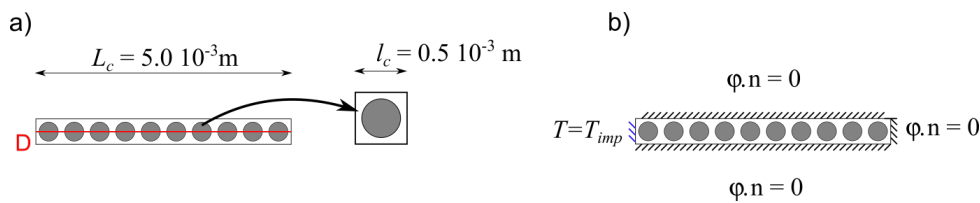
fibres se basent sur les fibres de lin, d'aramide, de verre et de carbone ex-PAN. Ces valeurs sont en adéquation avec celles proposées par Pitchumani et Yao [25]. A partir de ces données, un encadrement des nombres adimensionnels est possible (Tableau 3.9). On obtient ainsi, en arrondissant à la puissance de 10 inférieure pour les minimales et supérieure pour les maximales:

**Tableau 3.9: Ordres de grandeur des nombres adimensionnels**

Nombre adimensionnel	Valeur minimale	Valeur maximale
$S_t$	$1.0 \cdot 10^{-2}$	10
$R_t$	$1 \cdot 10^{-9}$	$1 \cdot 10^7$

### 3.4.7 Application à des cas concrets.

Les précédents développements sont à présent illustrés à l'aide de trois cas d'étude. Ces cas sont basés sur l'étude d'un même problème mais avec des propriétés différentes. Le problème à résoudre à l'échelle microscopique est donné par les équations (3.49). Le domaine étudié est décrit dans la Figure 3.23.

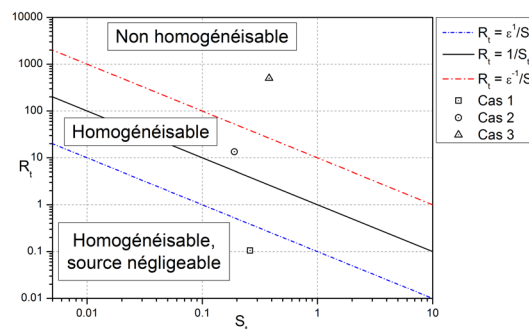


**Figure 3.23: Géométrie et conditions aux limites du problème thermo-chimique**

On a ainsi  $\varepsilon = 0.1$ . La section D est fixée à l'ordonnée  $y = 0.25 \cdot 10^{-3} \text{m}$ , soit à la moitié de la cellule périodique. Le cycle en température imposé est le suivant:

- Température de départ  $T_0$  de 304K,
- Montée à 450K à  $3\text{K}\cdot\text{min}^{-1}$ ,
- Isotherme à 450K pendant 120 minutes.

Les propriétés des trois cas étudiés sont décrites dans les paragraphes suivants. Ces matériaux sont choisis afin de représenter chacun des trois cas de figures que l'on peut rencontrer en homogénéisation du problème thermo-chimique couplé. Ils sont placés, en fonction de la situation rencontrée, dans la Figure 3. 24.



**Figure 3. 24: Situation rencontrée dans les trois cas d'étude**

Pour chaque cas, on compare les solutions hétérogène et homogénéisée en observant l'avancement et la température à cœur ainsi que le profil de température au pic de la réaction.

### 3.4.7.1 Premier cas: Composite carbone/époxy M21

Les propriétés des différents constituants sont donnés dans le Tableau 3.10. Le modèle cinétique est décrit à l'aide d'un modèle de Bailleul dont les paramètres sont donnés dans le Tableau 3.11.

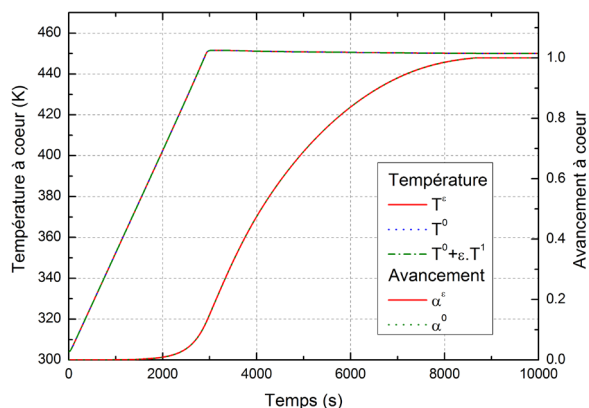
**Tableau 3.10: Propriétés des constituants pour le matériau carbone/M21 [35]**

Propriété	Unité	Valeur
$\Delta H$	(J.kg <sup>-1</sup> )	445 10 <sup>3</sup>
$\rho_m$	(kg.m <sup>-3</sup> )	1280
$\rho C p_m$	(J.m <sup>-3</sup> .K <sup>-1</sup> )	2.688 10 <sup>6</sup>
$v_f$		0.57
$\rho C p_f$	(J.m <sup>-3</sup> .K <sup>-1</sup> )	1.274 10 <sup>6</sup>
$T_c$	(K)	493
$K_m$	(W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	0.2
$K_f$	(W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	8.8

**Tableau 3.11: Paramètres du modèle cinétique de la résine M21 [35]**

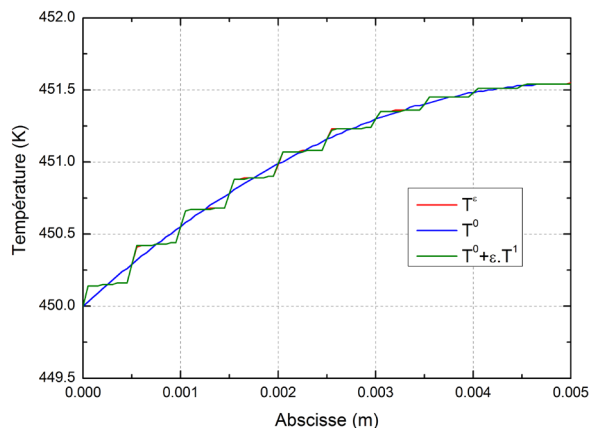
Paramètre	Valeur	Paramètre	Valeur
$a_0$	0.44	$a_1$	10.03
$a_2$	-80.35	$a_3$	364.46
$a_4$	-1041.6	$a_5$	1831.43
$a_6$	-1907.14	$a_7$	1076.5
$a_8$	-253.73	$k_{ref}$ (s <sup>-1</sup> )	0.00156
$A$	15.44	$T_{ref}$ (K)	493

Le cas alors étudié se trouve dans la zone "homogénéisable avec terme source négligeable". Les évolutions de la température et de l'avancement à cœur sont données en Figure 3.25.



**Figure 3.25: Evolutions de la température et de l'avancement à cœur pour le matériau carbone/époxy M21.**

Le modèle homogénéisé permet de prédire fidèlement la solution hétérogène. On remarque que l'élévation de température à cœur est faible, de l'ordre de 1.5K, ce qui est en accord avec la possibilité de négliger le terme source. Le profil de température le long de la section D et au moment du pic exothermique est représenté en Figure 3.26.



**Figure 3.26: Profil de température au pic exothermique dans le matériau carbone/époxy M21**

Là encore, une excellente adéquation entre modèle homogénéisé et modèle hétérogène est observée.

### 3.4.7.2 Second cas: Composite verre/polyester

On s'intéresse à présent à un matériau composé de fibres de verre et d'une matrice polyester. Les propriétés des différents constituants sont donnés dans le Tableau 3.12. Le modèle cinétique est décrit à l'aide d'un modèle de Bailleul avec une fonction d'induction dont les paramètres sont donnés dans le Tableau 3.13.

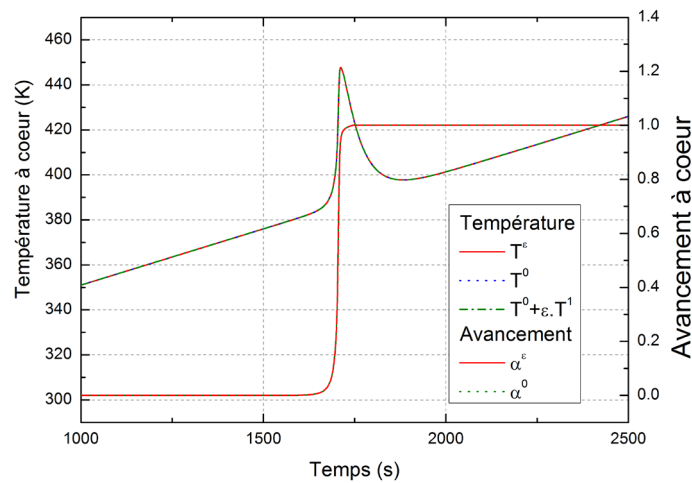
**Tableau 3.12: Propriétés des constituants pour le composite verre/polyester [36]**

Propriété	Unité	Valeur
$\Delta H$	(J.kg <sup>-1</sup> )	195 10 <sup>3</sup>
$\rho_m$	(kg.m <sup>-3</sup> )	1200
$\rho C p_m$	(J.m <sup>-3</sup> .K <sup>-1</sup> )	1.800 10 <sup>6</sup>
$v_f$		0.38
$\rho C p_f$	(J.m <sup>-3</sup> .K <sup>-1</sup> )	1.800 10 <sup>6</sup>
$T_c$	(K)	373
$K_m$	(W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	0.25
$K_f$	(W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	1.0

**Tableau 3.13: Paramètres du modèle cinétique de la résine polyester [36]**

Paramètre	Valeur	Paramètre	Valeur
$a_0$	5.0932 10 <sup>-5</sup>	$a_1$	2.2797 10 <sup>-1</sup>
$a_2$	-7.7730 10 <sup>-1</sup>	$a_3$	1.2529
$a_4$	-1.0881	$a_5$	3.8455 10 <sup>-1</sup>
$t_{ref}(s)$	325.14	$B$	68.85
$A$	32.8898	$k_{ref}(s^{-1})$	0.08246
$T_{ref}(K)$	373		

Les évolutions de la température et de l'avancement à cœur pour ce cas sont données dans la Figure 3.27.



**Figure 3.27: Evolution de la température et de l'avancement à cœur pour le matériau verre/polyester**

Encore une fois, le modèle homogénéisé permet une très bonne prédiction de la solution hétérogène. L'exothermie est plus prononcée que dans le cas précédent, entraînant au maximum un écart de 57K entre la paroi et le cœur du domaine (Figure 3.28).

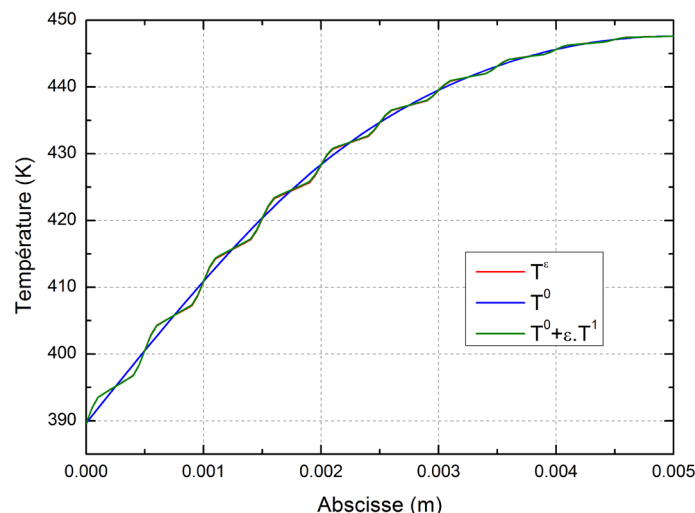


Figure 3.28: Profil de température au moment du pic exothermique pour le matériau verre/polyester

Bien que l'exothermie soit plus importante que précédemment, entraînant de fortes variations de température à travers l'épaisseur du domaine, la solution homogénéisée  $T^0$  reste en très bon accord avec la solution hétérogène. On remarque également que la correction d'ordre 1 permet de retrouver le profil réel  $T^e$  issu du calcul direct.

### 3.4.7.3 Troisième cas: Composite verre/vinylester

Le dernier cas proposé concerne un matériau composite à fibres de verre et résine vinylester. Les propriétés des différents constituants sont données dans le Tableau 3.14. Le modèle cinétique est décrit à l'aide d'un modèle de Bailleul avec une fonction d'induction dont les paramètres sont donnés dans le Tableau 3.15.

Tableau 3.14: Propriétés des constituants pour le composite verre/vinylester [32]

Propriété	Unité	Valeur
$\Delta H$	(J.kg <sup>-1</sup> )	324 10 <sup>3</sup>
$\rho_m$	(kg.m <sup>-3</sup> )	1280
$\rho C p_m$	(J.m <sup>-3</sup> .K <sup>-1</sup> )	1.960 10 <sup>6</sup>
$v_f$		0.3
$\rho C p_f$	(J.m <sup>-3</sup> .K <sup>-1</sup> )	2.250 10 <sup>6</sup>
$T_c$	(K)	373
$K_m$	(W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	0.2
$K_f$	(W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	1.0

Tableau 3.15: Paramètres du modèle cinétique pour la résine vinylester [32]

Paramètre	Valeur	Paramètre	Valeur
$a_0$	5.4232 10 <sup>-4</sup>	$a_1$	9.0522 10 <sup>-3</sup>
$a_2$	-2.3720 10 <sup>-2</sup>	$a_3$	2.6544 10 <sup>-2</sup>
$a_4$	-1.9107 10 <sup>-2</sup>	$a_5$	6.6887 10 <sup>-3</sup>
$t_{ref}(s)$	58.76	$B$	25.363
$A$	12.9238	$k_{ref}(s^{-1})$	2.937
$T_{ref}(K)$	373		

La réaction est rapide, comme en témoigne la constante  $k_{ref}$  qui est quasiment 2000 fois plus grande que pour le cas précédent. Le cas est, comme annoncé dans la Figure 3. 24, non homogénéisable.

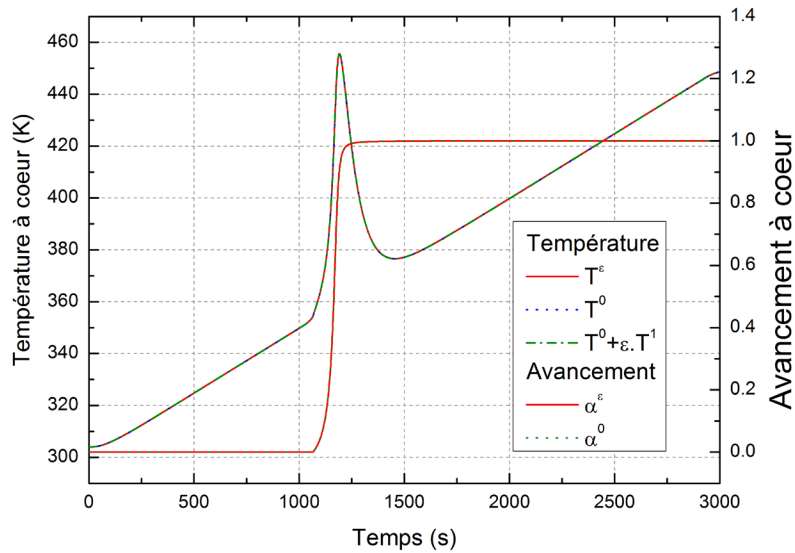


Figure 3.29: Evolution de la température et de l'avancement à coeur pour le matériau verre/vinylester

Bien que théoriquement non-homogénéisable, il apparaît que la solution homogénéisée est encore une fois fidèle à la solution hétérogène. Ceci s'explique par la grande flexibilité de la méthode des développements asymptotiques. Les frontières entre les différents cas ne sont pas précisément définies et un cas même identifié comme non-homogénéisable pourra tout de même être approché à l'aide d'un modèle homogène.

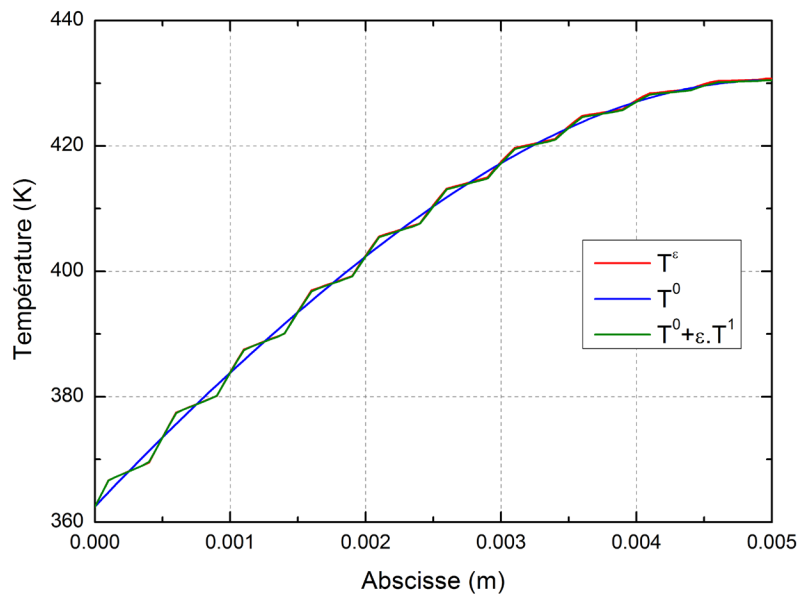


Figure 3.30: Profil de température au cours du pic exothermique pour le matériau verre/vinylester

On remarque cependant que l'écart entre la solution hétérogène et la solution homogène commence à se développer (Figure 3.30), notamment à coeur du domaine. Ces écarts sont d'autant plus importants que la section D s'éloigne de l'axe de symétrie horizontale du problème. Ils restent cependant inférieurs à 0.5K. Si l'on trace les profils de température aux sections verticales d'abscisses  $x = 4.50 \cdot 10^{-3}m$ ,  $x = 4.75 \cdot 10^{-3}m$  et  $x = 5.00 \cdot 10^{-3}m$  en Figure 3.31, on remarque que les écarts sont plus importants là où se trouve la résine. Ces trois sections sont comprises dans la dernière cellule périodique.

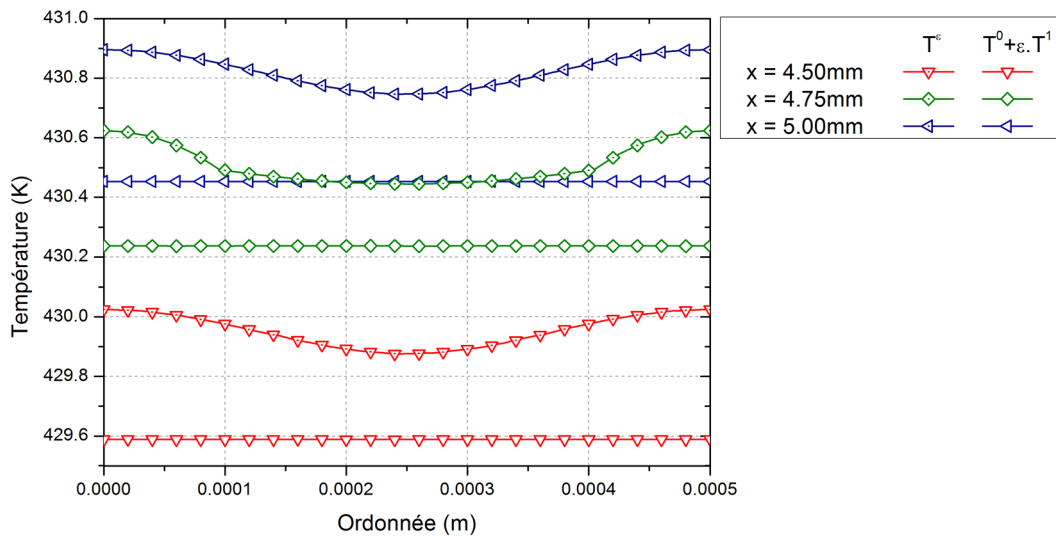


Figure 3.31: Profil de température au cours du pic exothermique suivant les sections d'abscisses 4.50, 4.75 et 5.00mm

La température moyenne sur la dernière cellule est de 430.16K et 430.50K, d'après le modèle homogénéisé et le modèle hétérogène, respectivement. L'homogénéisation de ce problème permet de déterminer le champ moyen à l'échelle d'une cellule, mais les variations de température liées à la réaction de la matrice ne sont pas suffisamment précises. Ainsi, la solution homogénéisée commence à négliger la présence de gradients de température et d'avancement qui, dans le cas d'une résine plus réactive, peuvent être plus importants. Une première variation de cet exemple est décrite dans le paragraphe suivant, permettant de montrer les premières limites de l'homogénéisation.

On modifie la conductivité des fibres  $K_f$  et l'enthalpie de réaction  $\Delta H$ , celles-ci étant désormais égales à  $0.2 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et  $500.10^3 \text{ J.kg}^{-1}$ , respectivement. Le problème est alors, en théorie, encore moins homogénéisable que précédemment. Les écarts de la température moyenne sur la dernière cellule entre la solution du problème hétérogène et celle du problème homogénéisé atteignent au maximum 1.0K durant le pic exothermique de réaction.

Enfin, une dernière variation de cet exemple est proposée. On modifie cette fois-ci la conductivité des fibres  $K_f$  et l'enthalpie de réaction  $\Delta H$  pour que celles-ci soient égales à  $0.2 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et  $1000 \cdot 10^3 \text{ J.kg}^{-1}$ . Le cycle de température est également modifié et on impose une température constante égale à la température de référence:  $T_{imp} = T_{ref}$ . La réaction commence alors quasiment instantanément et le pic exothermique est atteint à cœur en 290s. La température à cœur atteint d'ailleurs 830K. Les écarts de température entre la solution du problème hétérogène et celle du problème homogénéisé atteignent cette fois-ci 45K, les écarts d'avancement atteignent quant à eux 15%.

Ces exemples ne sont toutefois pas forcément représentatifs d'un matériau composite réel. La taille caractéristique de la cellule périodiques dans ces différents cas étant de 0.5 mm, nous sommes loin de la taille d'une fibre, qui est de l'ordre de quelques dizaines de micromètres. La séparation des échelles dans un matériau composite classique est généralement plus importante. Pour une pièce de 5mm d'épaisseur et une fibre de diamètre  $10\mu\text{m}$ , on obtient un  $\epsilon$  de  $2 \cdot 10^{-3}$ . Un cas comme le troisième deviendra donc homogénéisable. Il est cependant important de prendre tous ces paramètres en considération. En effet, le troisième cas et ses variantes nous indiquent que si l'on tente d'utiliser la méthode des développements asymptotiques afin d'étudier un cas qui ne serait pas homogénéisable, on se risque à négliger des gradients de température et d'avancement dans le matériau. Or, ces gradients ont un impact fort dans la prédiction du comportement thermo-chémo-mécanique du matériau. Les minimiser reviendrait donc à une estimation biaisée des déformations du matériau.

### 3.5 Conclusions et perspectives

Dans ce chapitre, la méthode d'homogénéisation par développements asymptotiques a été présentée puis appliquée à l'homogénéisation du problème thermique par conduction en régime transitoire dans un composite. L'avantage de cette méthode est, en plus de donner les propriétés équivalentes du milieu homogène équivalent, d'aboutir à un modèle du problème à l'échelle macroscopique qui permet une description fine des phénomènes sans considérer toutes les hétérogénéités. De plus, cette méthode est auto-consistante dans le sens où, si un problème n'est par nature pas homogénéisable, elle n'aboutira pas.

La prise en compte de propriétés non linéaires a fait l'objet d'une section de ce chapitre, mettant en avant l'importance de ce point. Le problème thermo-chimique de mise en forme des matériaux composites a également été considéré, une attention particulière ayant été portée sur l'homogénéisabilité d'un tel problème. Il en ressort deux nombres adimensionnels liés à l'intensité et à la vitesse de la réaction, respectivement. En fonction de l'ordre de grandeur de ces nombres, trois cas apparaissent. Le premier cas revient à négliger le terme source si l'enthalpie de réaction est faible ou si le temps de réaction est long. Le second cas prend en compte le terme source de réaction comme le ferait le problème hétérogène. Enfin, le dernier cas n'est pas homogénéisable si la réaction est trop forte ou trop rapide. La plupart des cas rencontrés dans la mise en forme des matériaux composites apparaissent comme homogénéisables, certains peuvent même être traités sans terme source, ce qui permettrait d'alléger les calculs tout en gardant une précision suffisante sur la prédiction des températures. Une attention particulière doit toutefois être apportée afin de savoir si le problème est homogénéisable ou non. De nombreuses études se basent sur une équation de la chaleur homogénéisée afin d'estimer l'état d'avancement et de température de leur matériau sans se soucier de l'homogénéisabilité de leur problème. Nous avons vu que dans certains cas, le problème n'est pas homogénéisable et des écarts peuvent apparaître entre la description hétérogène et la description homogénéisée. Il apparaît toutefois que ces cas surviennent dans des conditions assez particulières en mise en forme des composites: il faut une enthalpie de réaction élevée, une forte vitesse de réaction, donc une température propice à cela, et un cycle thermique particulier, avec une montée rapide en température suivie d'une isotherme où la réaction est assez rapide. Cette discussion étant basée sur des équations découplées entre transfert thermique et cinétique de réaction, une étude plus approfondie de l'homogénéisabilité de ce problème serait néanmoins à envisager.

Il serait intéressant de valider ces différentes méthodes en comparant des résultats expérimentaux aux résultats numériques. Plusieurs dispositifs de caractérisation présents au laboratoire pourraient se prêter à cette validation.

Ces différentes études prennent en compte une cellule périodique simple, représentant un cylindre centré dans un cube. Il serait intéressant de faire varier cette cellule périodique afin de voir son effet sur les différentes propriétés, notamment dans le problème thermochimique couplé.

Une étape majeure consiste à prendre en compte, dans le problème thermochimique couplé, de la dépendance des propriétés à la température et à l'avancement de la réaction. Avant de mettre en place cette méthode, il est nécessaire de prouver mathématiquement la convergence de ce nouveau problème homogénéisé vers la solution hétérogène. On peut, toutefois, déjà réfléchir à la méthode à suivre afin de remplir cet objectif. A titre d'exemple, le développement de Taylor de la conductivité thermique adimensionnée (3.39) deviendrait alors:

$$\begin{aligned}
K^*(\mathbf{y}^*, T^\varepsilon, \alpha^\varepsilon) &= K^*(\mathbf{y}^*, T^{(0)*} + \varepsilon^1 T^{(1)*} + \dots, \alpha^{(0)*} + \varepsilon^1 \alpha^{(1)*} + \dots) \\
&= K^*(\mathbf{y}^*, T^{(0)*}, \alpha^{(0)*}) + \varepsilon T^{(1)*} \frac{\partial K^*(\mathbf{y}^*, T^{(0)*}, \alpha^{(0)*})}{\partial T^{(0)*}} \\
&\quad + \varepsilon \alpha^{(1)*} \frac{\partial K^*(\mathbf{y}^*, T^{(0)*}, \alpha^{(0)*})}{\partial \alpha^{(0)*}} \\
&\quad + \dots \\
&= K^{(0)*} + \varepsilon^1 K^{(1)*} + \dots
\end{aligned} \tag{3.87}$$

Ces développements sont à poursuivre mais nécessiteraient encore une réflexion plus poussée. Ils sont nécessaires afin de simuler de façon plus précise l'état thermo-chimique d'une pièce durant sa mise en forme.

Comme annoncé au départ, les matériaux composites sont des matériaux à échelles multiples. L'étude présentée ici se limite à deux échelles, celle de la fibre et celle de la pièce. Ceci se prête bien à l'étude des matériaux de type unidirectionnels mais présentera ses limites lorsque la microstructure sera modifiée. Une étude à trois échelles (celle de la fibre dans le toron, du toron dans le pli et enfin du pli), comme entrepris dans l'étude des écoulements en milieu poreux [38], permettrait d'affiner la description des matériaux.

Enfin, le comportement thermo-chimique du matériau influence fortement son comportement mécanique. Un couplage avec cette physique est nécessaire afin de prédire les retraits à l'échelle macroscopique. Ce couplage et l'étude mécanique de la prédiction des retraits fait l'objet de l'annexe C.

## Bibliographie

- [1] J. Sanchez-Hubert, E. Sanchez-Palencia, Introduction aux méthodes asymptotiques et à l'homogénéisation: application à la mécanique des milieux continus, Masson, Paris, 1992.
- [2] E. Sanchez-Palencia, Non-Homogeneous Media And Vibration Theory, Springer-Verlag, 1980.
- [3] A. Bensoussan, J.L. Lions, G. Papanikolaou, Asymptotic analysis for periodic structures, North-Holland Publishing Company, Amsterdam - New York - Oxford, 1978.
- [4] J.-L. Auriault, Heterogeneous medium. Is an equivalent macroscopic description possible?, Int. J. Eng. Sci. 29 (1991) 785–795.
- [5] J.-P. Vassal, Contribution à la modélisation des propriétés physiques et rhéologiques des milieux fibreux application à la mise en forme et aux propriétés thermiques des matériaux composites à fibres courtes, Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble, France, 2007.
- [6] J.-L. Auriault, C. Boutin, C. Geindreau, Homogénéisation de phénomènes couplés en milieux hétérogènes, Hermès Science Publications, 2009.
- [7] A. Matine, Homogénéisation des transferts thermiques par développements asymptotiques dans des structures composites avec prise en compte des effets de bords, Thèse de doctorat, Ecole Centrale de Nantes, France, 2013.
- [8] M. Artola, G. Duvaut, Un résultat d'homogénéisation pour une classe de problèmes de diffusion non linéaires stationnaires, Ann. La Fac. Des Sci. Toulouse Mathématiques. 4 (1982) 1–28.
- [9] L. Boccardo, F. Murat, Remarques sur l'homogeneisation de certains problemes quasi-lineaires, Port. Math. 41 (1982) 535–562.
- [10] J.-L. Auriault, J. Lewandowska, Diffusion non linéaire en milieux poreux, Comptes Rendus l'Académie Des Sci. - Ser. IIB - Mech. 324 (1997) 293–298.
- [11] A. Gałka, J.J. Telega, S. Tokarzewski, Heat equation with temperature-dependent conductivity coefficients and macroscopic properties of microheterogeneous media, Math. Comput. Model. 33 (2001) 927–942.
- [12] J.J. Telega, S. Tokarzewski, A. Gałka, Effective Conductivity of Nonlinear Two-Phase Media : Homogenization and Two-Point Padé Approximants, Acta Appl. Math. 61 (2000) 295–315.
- [13] S. Tokarzewski, I. Andrianov, Effective coefficients for real non-linear and fictitious linear

- temperature-dependent periodic composites, *Int. J. Non. Linear. Mech.* 36 (2001) 187–195.
- [14] Z. Hashin, S. Shtrikman, A variational approach to the theory of the elastic behaviour of multiphase materials, *J. Mech. Phys. Solids.* 11 (1963) 127–140.
- [15] Z. Chen, W. Deng, H. Ye, Upscaling of a class of nonlinear parabolic equations for the flow transport in heterogeneous porous media, *Commun. Math. Sci.* 3 (2005) 493–515.
- [16] P.W. Chung, K.K. Tamma, R.R. Namburu, Homogenization of temperature-dependent thermal conductivity in composite materials, *J. Thermophys. Heat Transf.* 15 (2001) 10–17.
- [17] G. Laschet, S. Rex, D. Bohn, N. Moritz, Homogenization of Material Properties of Transpiration Cooled Multilayer Plates., *Asme Gt2003-38439.* 191 (2003) 4535–4554.
- [18] A. Alzina, E. Toussaint, A. Béakou, B. Skoczen, Multiscale modelling of thermal conductivity in composite materials for cryogenic structures, *Compos. Struct.* 74 (2006) 175–185.
- [19] X. Garnaud, X. Han, P. Jacquet, J.-M. Ndombo, I. Limaiem, Multiscale analysis of heat transfer in coated fuel particle compacts – Application to the HTTR, *Nucl. Eng. Des.* 282 (2015) 106–115.
- [20] Z. Abdessamad, S. Meliani, G. Panasenko, L. Paoli, Study of a thermo-chemical model of formation of a composite material, in: *Eur. Congr. Comput. Methods Appl. Sci. Eng.*, 2004: pp. 1–5.
- [21] S. Meliani, L. Paoli, Homogenization of a model of cure process for composites, *Nonlinear Anal.* 56 (2004) 385–413.
- [22] A.A. Amosov, G.P. Panasenko, The problem of thermo-chemical formation of a composite material. Properties of solutions and homogenization, *J. Math. Sci.* 181 (2012) 541–577.
- [23] S. Meliani, L. Paoli, Numerical analysis of a model of cure process for composites, *Math. Methods Appl. Sci.* 30 (2007) 449–478.
- [24] E. Broyer, C.W. Macosko, Heat transfer and curing in polymer reaction molding, *AIChE J.* 22 (1976) 268–276.
- [25] R. Pitchumani, S.-C. Yao, Non-Dimensional Analysis of an Idealized Thermoset Composites Manufacture, *J. Compos. Mater.* 27 (1993) 613–636.
- [26] A. Benard, S.G. Advani, Energy Equation and the Crystallization Kinetics of Semicrystalline Polymers - Regimes of Coupling, *Int. J. Heat Mass Transf.* 38 (1995) 819–832.
- [27] J.M. Kenny, A. Maffezzoli, L. Nicolais, A model for the thermal and chemorheological

- behavior of thermoset processing: (I) Processing of epoxy-based composites, *Compos. Sci. Technol.* 29 (1990) 339–358.
- [28] R.B. Prime, Differential scanning calorimetry of the epoxy cure reaction, *Polym. Eng. Sci.* 13 (1973) 365–371.
- [29] M.R. Kamal, S. Sourour, Kinetics and thermal characterization of thermoset cure, *Polym. Eng. Sci.* 13 (1973) 59–64.
- [30] D.J. Michaud, A.N. Beris, P.S. Dhurjati, Curing behavior of thick-sectioned RTM composites, *J. Compos. Mater.* 32 (1998) 1273–1296.
- [31] J.-L. Bailleul, Optimisation du cycle de cuisson des pièces épaisses en matériau composite. Application à un préimprégné résine époxyde/fibres de verre, Thèse de doctorat, Université de Nantes, 1997.
- [32] Y. Nawab, Characterization and modelling of cure dependent properties of thermoset composites - application to the simulation of residual stresses, Thèse de doctorat, Université de Nantes, 2012.
- [33] C.-S. Chern, G.W. Poehlein, A kinetic model for curing reactions of epoxides with amines, *Polym. Eng. Sci.* 27 (1987) 788–795.
- [34] D. Lecoq, Caractérisation et simulation des processus de transferts lors d'injection de résine pour le procédé RTM, Thèse de doctorat, Université de Nantes, 1999.
- [35] Y. Abou Msallem, Caractérisation thermique et mécanique d'un matériau composite aéronautique pendant le procédé d'élaboration - Contribution à l'estimation des contraintes résiduelles, Thèse de Doctorat, Ecole Centrale de Nantes, 2008.
- [36] R. Cardinaud, N. Boyard, S. Le Corre, M. Sager, Thermo-kinetic characterization and modelling of a new generation of SMC composites, in: *Proc. 19th Int. ESAFORM Conf.*, 2016.
- [37] J.M. Salla, X. Ramis, Comparative study of the cure kinetics of an unsaturated polyester resin using different procedures, *Polym. Eng. Sci.* 36 (1996) 835–851.
- [38] C.C. Mei, J.-L. Auriault, Mechanics of Heterogeneous Porous Media With Several Spatial Scales, *Proc. R. Soc. A Math. Phys. Eng. Sci.* 426 (1989) 391–423.





---

# CHAPITRE 4

## MESURE DES RETRAITS ANISOTROPES DANS LES MATERIAUX COMPOSITES

---

Un nouveau dispositif de mesure des retraits anisotropes est présenté dans ce chapitre. Ses caractéristiques principales et son fonctionnement sont détaillés, de même que le protocole de réalisation d'un essai. Les différentes validations expérimentales permettant de s'assurer de son bon fonctionnement sont décrites. Deux matériaux différents sont par la suite caractérisés. Les résultats présentent de bons accords avec des résultats expérimentaux issus d'appareils de caractérisation tels que le PvT $\alpha$ , un dilatomètre linéaire et une DSC et des résultats numériques issus de la méthode d'homogénéisation par développements asymptotiques.

---

### TABLE DES MATIERES

4.1	Introduction .....	159
4.2	Présentation du dispositif conçu .....	159
4.2.1	Principe de fonctionnement.....	160
4.2.2	L'échantillon .....	161
4.2.3	Contrôle de l'état mécanique .....	161
4.2.4	Système de chauffe.....	163
4.2.5	Mesure des déformations de l'échantillon .....	164
4.2.6	Capteurs de flux.....	165
4.2.7	Chaîne de pilotage et d'acquisition.....	165
4.3	Protocole expérimental.....	166
4.3.1	Préparation et découpe de l'échantillon .....	166
4.3.2	Mise en place de l'échantillon et fermeture du moule .....	168
4.3.3	Application de la pression et contrôle du piston.....	169
4.3.4	Démarrage de l'essai.....	170
4.4	Méthode d'analyse des résultats et validation.....	170
4.4.1	Mesure à travers l'épaisseur.....	170
4.4.2	Mesure latérale .....	171
4.4.3	Capteurs de flux.....	172

4.5	Matériaux et méthodes .....	174
4.5.1	Matériau SMC .....	174
4.5.2	Matériau UD fibres de carbone/époxy T700/M21 .....	175
4.6	Résultats et discussions .....	176
4.6.1	Matériau SMC - Premier cycle.....	176
4.6.1.1	Déplacements à travers l'épaisseur.....	176
4.6.1.2	Déplacements dans le plan .....	177
4.6.1.3	Analyse des données issues des capteurs de flux .....	180
4.6.1.4	Comparaison des déformations .....	182
4.6.1.5	Estimation des déformations .....	186
4.6.2	Matériau SMC - Deuxième cycle .....	187
4.6.3	Matériau UD fibres de carbone/époxy T700/M21 .....	189
4.7	Conclusions et perspectives.....	193
	Bibliographie.....	196

## 4.1 INTRODUCTION

Comme annoncé dans le premier chapitre, les retraits thermique et chimique de la résine ont un impact non négligeable dans le développement des contraintes résiduelles durant la mise en forme des matériaux composites. La détermination de ces propriétés, ainsi que leur évolution avec l'avancement de la réaction et la température, est alors indispensable afin d'alimenter les modèles de prédiction du comportement des matériaux durant leur mise en forme. Bien que l'on puisse les estimer à l'aide de nombreuses méthodes d'homogénéisation, comme présentées aux chapitres 1 et 3 ainsi qu'en annexe C, il est indispensable de disposer d'outils de caractérisation de ces propriétés afin de mieux comprendre ces phénomènes de retraits et de valider les méthodes prédictives des propriétés du matériau.

De nombreuses techniques de caractérisation de ces retraits existent pour la résine pure (*i.e.* sans fibres), et ont fait l'objet d'une revue exhaustive il y a quelques années [1]. Il apparaît que le retrait de la résine évolue généralement linéairement avec l'avancement de la réaction. Quelques études reportent une évolution bilinéaire, le changement de pente intervenant au passage de la température de transition vitreuse. La présence des fibres dans le matériau composite a plusieurs influences sur le retrait de la résine. Les fibres distribuent spatialement les variations de volume de la résine, rendant les retraits bien souvent anisotropes. Elles peuvent également bloquer une partie du retrait, ce qui favorise le développement des contraintes résiduelles.

Peu d'études existent afin de déterminer les retraits dans les matériaux composites à résine thermodurcissable durant leur cuisson. Le premier chapitre a permis de les exposer et d'analyser un certain nombre de verrous. La plupart des méthodes de caractérisation des retraits ne peuvent être appliquées qu'à partir du point de gel de la matrice et ne donnent aucune information sur les déformations du matériau à l'état cru. Une majorité des méthodes existantes est limitée à la mesure suivant une direction, que ce soit dans le plan ou à travers l'épaisseur de l'échantillon. Peu de méthodes permettent d'avoir une information précise sur la température et l'avancement dans l'échantillon. Enfin, seules quelques techniques de caractérisation sont effectuées dans des conditions de température et de pression proches de celles retrouvées dans l'industrie, à savoir jusqu'à 200°C et 1.0 MPa, respectivement. Ces limitations actuelles ont ainsi motivé le développement d'un nouveau dispositif de caractérisation des retraits anisotropes dans les matériaux composites. Il est présenté et son principe de fonctionnement détaillé. Le protocole expérimental est décrit, ainsi que la méthode d'analyse des résultats. Enfin, les premiers résultats obtenus sur deux matériaux différents sont présentés.

## 4.2 PRESENTATION DU DISPOSITIF CONÇU

Aux vues des précédentes limitations des méthodes actuelles de caractérisation des retraits dans les matériaux composites, le développement d'un nouveau dispositif de mesure est nécessaire. Il doit permettre la mesure des dilatations d'un échantillon de matériau composite suivant plusieurs directions et ce pendant la totalité du cycle de transformation. Dans un premier temps, on présente son principe de fonctionnement. Ses différentes caractéristiques sont ensuite abordées ainsi que les méthodes de mesure.

### 4.2.1 PRINCIPE DE FONCTIONNEMENT

Le principe du dispositif développé est illustré en Figure 4.1 et une représentation de la conception de celui-ci est donné en Figure 4.2. Un échantillon de base carrée est placé entre un plateau et un piston, les deux pièces étant réalisées en acier inoxydable. Le plateau est fixé sur un échangeur, lui même monté sur la partie fixe d'une presse. Le piston est quant à lui assemblé à la partie mobile de la presse. Le contrôle de la compression à travers l'épaisseur de l'échantillon est de ce fait assuré. Les variations de hauteur du piston sont également directement enregistrées, permettant de remonter aux variations d'épaisseur de l'échantillon. Le plateau et le piston sont tous les deux situés à l'intérieur d'une cavité en alliage d'aluminium. Cette cavité peut être remplie d'huile silicone, permettant d'une part de mettre sous pression les surfaces latérales de l'échantillon et également d'assurer le contrôle de la température en surface de celui-ci. Deux échangeurs thermiques situés de part et d'autre de la cavité assurent le pilotage en température de la cavité.

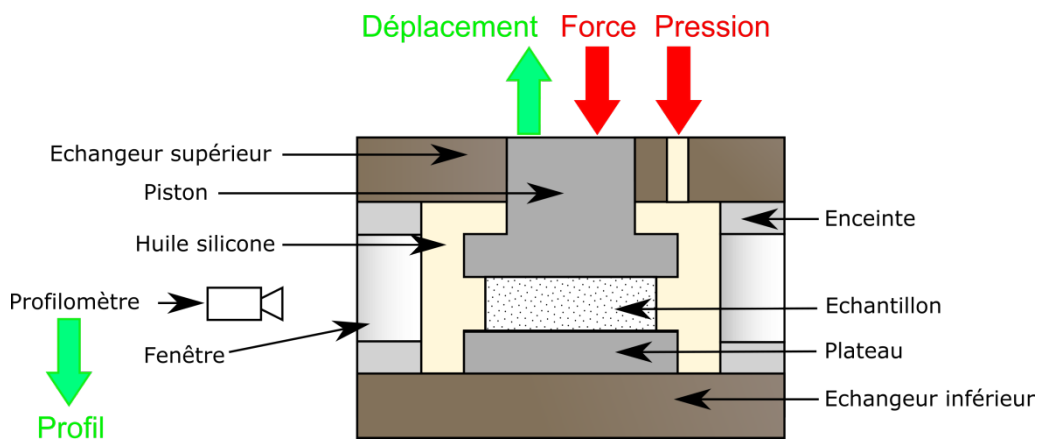


Figure 4.1: Schéma du principe du dispositif conçu

Chaque surface latérale de la cavité d'aluminium est équipée d'une fenêtre de verre. Devant l'une d'entre elles, un profilomètre sans contact est installé afin de mesurer la topologie locale de la surface latérale de l'échantillon le long d'une ligne parallèle à la direction transverse de son épaisseur. La vitre de verre et l'huile silicone étant transparentes à la longueur d'onde du capteur, les déformations de la surface latérale de l'échantillon sont alors elles aussi enregistrées au cours du temps.

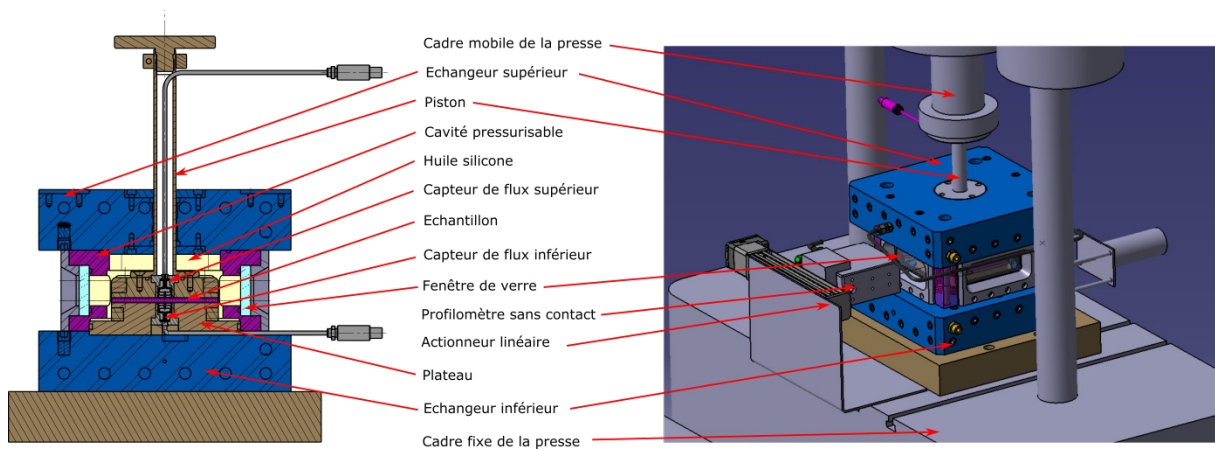


Figure 4.2: Illustration de la conception mécanique du dispositif

Deux capteurs de flux sont également placés de part et d'autre de l'échantillon, l'un dans le plateau et l'autre dans le piston. Le traitement des signaux issus de ces capteurs permet, comme pour le  $PvT\alpha$ , de

déterminer les échanges de chaleur, l'enthalpie de la réaction et ainsi connaître les température de surface de l'échantillon et l'avancement de la réaction au sein du matériau. De cette manière, on répond aux différents points du cahier des charges. Plus de détails concernant les différents éléments du système sont donnés dans les sections suivantes.

#### 4.2.2 L'ECHANTILLON

Les échantillons de composite placés dans le dispositif ont une surface de base carrée de longueur  $L$  égale à 105 mm, avec des congés de rayon  $R$  de 10 mm aux angles (Figure 4.3). Leur épaisseur peut aller de quelques millimètres à 2 centimètres. La préparation des échantillons est décrite dans la section 4.3.1.

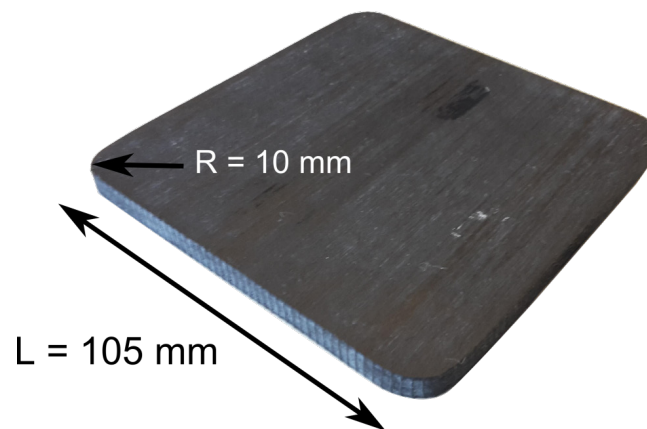


Figure 4.3: Représentation d'un échantillon utilisé dans le dispositif

Il n'est pas possible de placer dans le dispositif d'échantillon de résine pure ou faiblement chargée, la mise en place de l'échantillon étant alors compliquée et le dispositif n'étant ni conçu, ni adapté pour ce type de matière.

#### 4.2.3 CONTROLE DE L'ETAT MECANIQUE

Le contrôle de l'état mécanique de l'échantillon s'effectue de deux façons. Le piston étant placé sur la partie mobile d'une presse, il permet de comprimer l'échantillon dans la direction de son épaisseur. La presse est une machine de fatigue électrique Instron Electro Plus E10000. Elle permet d'appliquer un effort maximum de 10 kN, avec un écart-type de 0.45 N sur l'effort appliqué. La course du vérin est de 60mm, le déplacement du vérin peut être contrôlé sur toute cette gamme avec un écart-type de  $3.0 \cdot 10^{-5}$  mm. La presse peut être contrôlée en effort ou en déplacement et ce, avec une possible sollicitation en fréquence pouvant atteindre 100 Hz. La relation entre l'effort appliqué  $F_p$  et la contrainte normale  $\sigma_p$  sur la surface du piston  $S_p$  est donnée par la relation (4.1).

$$\sigma_p = \frac{F_p}{S_p} \quad (4.1)$$

L'huile silicone Rhodorsil 47 V 50 présente dans la cavité autour de l'échantillon est mise sous pression. Cette pression  $P_h$  s'exerce à la fois sur les surfaces latérales de l'échantillon et sur la partie supérieure du piston. La contrainte normale aux surfaces latérales de l'échantillon  $\sigma_l$  est donc directement égale à la pression  $P_h$ . La contrainte normale aux surfaces supérieure et inférieure de l'échantillon  $\sigma_e$  est alors égale à la somme des contributions du piston et de la pression d'huile exercée

sur la partie supérieure du piston  $S_{ps}$  (4.2). Une représentation des surfaces, pressions et efforts entrant en jeu dans le calcul de l'état de contrainte de l'échantillon est donnée en Figure 4.4.

$$\sigma_e = \frac{F_p}{S_p} + P_h \frac{S_{ps}}{S_p} \quad (4.2)$$

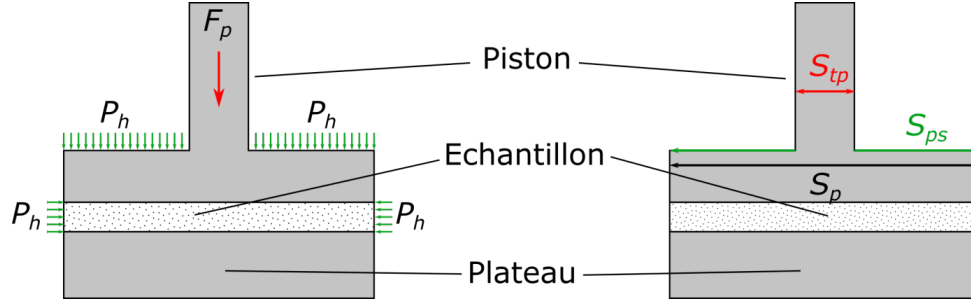


Figure 4.4: Représentation des surfaces, pressions et forces exercées autour de l'échantillon

En contrôlant à la fois la pression de l'huile silicone et l'effort appliqué par le vérin, il est possible d'appliquer un état de contraintes de compression biaxiale homogène autour de l'échantillon, à condition que les effets de frottement soient négligeables entre l'échantillon et les surfaces du piston et du plateau. Dans ces travaux, seul un état de compression hydrostatique a été appliqué autour des échantillons, en imposant l'égalité entre la contrainte latérale  $\sigma_l$  et la contrainte supérieure  $\sigma_e$ . Cette égalité nous permet de trouver la relation entre l'effort à appliquer à l'aide du piston et la pression d'huile pour obtenir un état de contrainte hydrostatique (Eq. (4.3)).

$$\begin{aligned} \sigma_e &= \sigma_l \\ \frac{F_p}{S_p} + P_h \frac{S_{ps}}{S_p} &= P_h \\ F_p &= (S_{ps} - S_p) P_h \\ F_p &= S_{tp} P_h \end{aligned} \quad (4.3)$$

où  $S_{tp}$  est la surface de la tige du piston où ne s'applique pas la pression de l'huile. On appelle par la suite  $F_p$  l'effort de compensation du piston.

La boucle de contrôle de la pression d'huile silicone est représentée en Figure 4.5. L'huile située dans la cavité est mise sous pression à l'aide d'un vérin de section  $S_h$ . Ce vérin est lui-même piloté à l'aide d'un second vérin de plus grande section  $S_a$  dont l'une des chambres est remplie d'air comprimé. Les entrées et sorties du vérin d'air sont connectées au réseau d'air comprimé ou à l'air ambiant alternativement à l'aide d'un distributeur, permettant ainsi de commander la mise sous pression ou le déchargement et la vidange de la cavité. Afin de piloter en pression la cavité, un capteur de pression est placé en sortie du vérin d'huile. Son signal de sortie permet à un régulateur d'ajuster la pression d'air  $P_a$  pour obtenir le niveau de pression  $P$  désiré, envoyé depuis l'unité centrale au régulateur et ainsi vérifier l'égalité  $P_h = P$ .

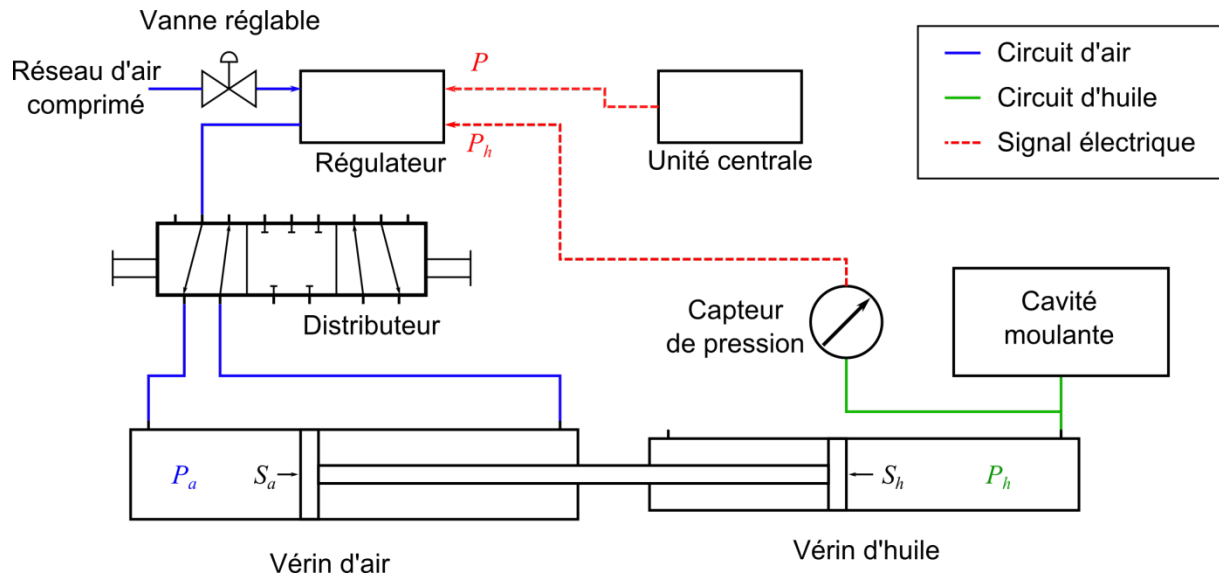


Figure 4.5: Circuit de régulation de la pression d'huile dans la cavité moulante

Grâce à cette installation, la pression dans la cavité moulante peut atteindre 1.0 MPa. En effet, la pression maximum du réseau d'air comprimé est de 0.7 MPa. La surface du vérin d'air étant plus grande que celle du vérin d'huile, la pression d'huile est décuplée et on a, par équilibre des forces:

$$P_h = \frac{S_a}{S_h} P_a = 1.56 P_a \quad (4.4)$$

La régulation en pression n'est malheureusement pas parfaite et la pression appliquée  $P_h$  oscille autour de la pression visée  $P$ . L'incertitude sur la pression est cependant faible et limitée à 0.01 MPa.

#### 4.2.4 SYSTEME DE CHAUFFE

Afin d'assurer la régulation thermique du dispositif (Figure 4.6), un thermostat Vulcatherm 10803 assure le contrôle thermique simultané des échangeurs placés de part et d'autre de la cavité moulante. Une sonde PT100 située dans l'échangeur inférieur sert d'entrée au PID du thermostat et permet l'asservissement en température.

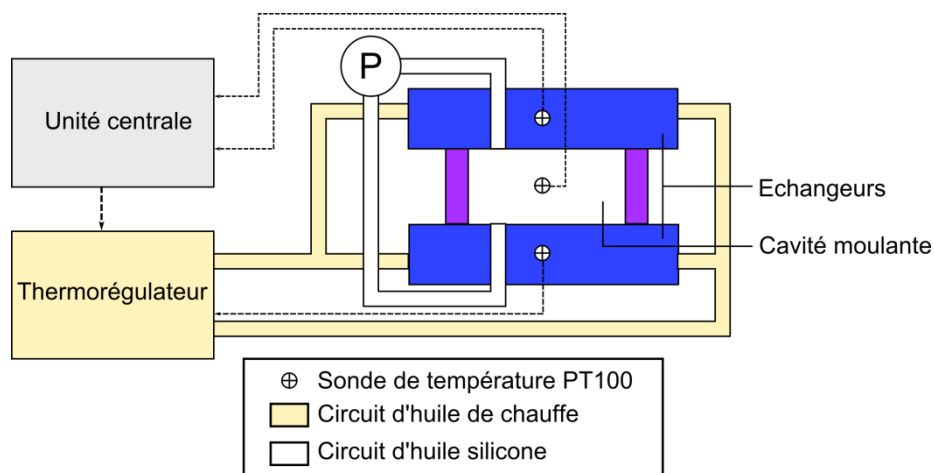


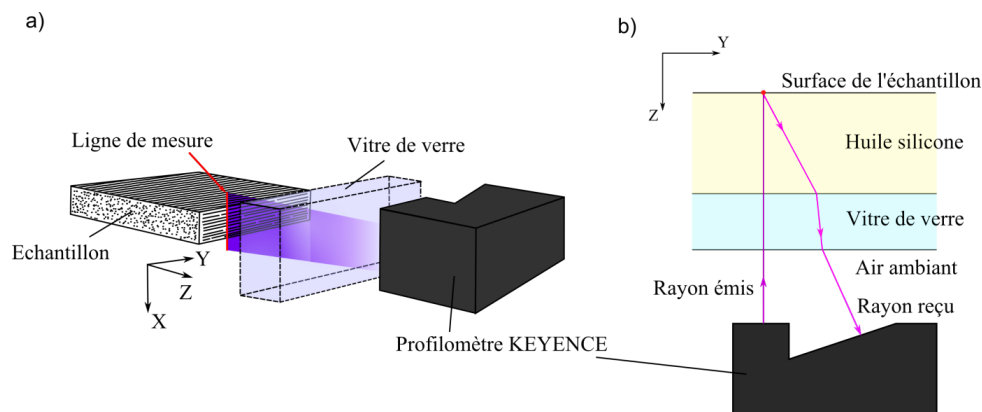
Figure 4.6: Schéma du circuit de chauffe du dispositif

Un circuit interne à la cavité moulante permet la recirculation de l'huile silicone afin d'homogénéiser sa température et favoriser les échanges entre l'huile et le piston. L'huile est aspirée à travers l'échangeur inférieur à l'aide d'une pompe et est réinjectée dans la cavité à travers l'échangeur supérieur, au dessus du piston. Le passage de l'huile successivement dans les deux échangeurs doit permettre à celle-ci d'être à la même température que la température de consigne. Une sonde PT100 est placée dans la cavité moulante au dessus du piston afin d'avoir une information sur la température de l'huile.

Le thermorégulateur permet, en théorie, d'atteindre une température de 250°C et des vitesses de montée et de descente en température de 16°C.min<sup>-1</sup>. En pratique, le système est limité du fait de la présence des vitres de verre. En effet, celles-ci sont très sensibles aux gradients de température et peuvent se fissurer lorsqu'elles sont soumises à un trop fort gradient. On se limite donc à des vitesses de chauffage et de refroidissement de 5°C.min<sup>-1</sup>.

#### 4.2.5 MESURE DES DEFORMATIONS DE L'ECHANTILLON

La mesure des déformations de l'échantillon est effectuée de deux façons, selon la direction considérée. Les variations de hauteur du piston permettent de remonter aux variations d'épaisseur de l'échantillon, le traitement spécifique de cette direction de mesure sera décrit plus tard, en section 4.4.1. D'autre part, le profilomètre sans contact, un capteur KEYENCE LJ-V 7080, permet la mesure des dilatations d'une des surfaces latérales de l'échantillon. La Figure 4.7a illustre la position de ce capteur par rapport à la vitre de verre et l'échantillon.



**Figure 4.7: a) Positions relatives du profilomètre, de la vitre de verre et de l'échantillon. b) Vue de haut de cette représentation**

La mesure de la topologie de la surface latérale de l'échantillon se fait le long d'une ligne de mesure. Cette ligne est parallèle à la direction transverse de l'épaisseur de l'échantillon (axe X). Le faisceau émis par le capteur est perpendiculaire à la surface de l'échantillon (axe Z, Figure 4.7b) puis il est réfléchi sur celle-ci et reçu par le capteur. La précision du capteur suivant la direction X est de 10 µm. La ligne de mesure est d'environ 30 mm de long, avec une résolution spatiale de 50 µm. Le capteur est placé sur un actionneur linéaire, permettant sa translation le long de la vitre (axe Y). Il est possible de commander le moteur linéaire à une position précise à 1.5 µm près, avec une vitesse de déplacement pouvant atteindre 0.5 m.s<sup>-1</sup>. De cette façon, il est possible d'enregistrer les variations de dimension de la surface latérale de l'échantillon en plusieurs points, voire même de reconstruire la surface latérale de l'échantillon en trois dimensions et son évolution au cours du temps. Enfin, il est à noter que les vitres latérales sont réalisées dans un verre borosilicaté Schott N-BK7 d'une épaisseur de 10 mm.

#### 4.2.6 CAPTEURS DE FLUX

Les capteurs de flux, situés de part et d'autre de l'échantillon, sont composés chacun de trois thermocouples chromel-alumel de 25  $\mu\text{m}$  de diamètre. Les fils composant chaque thermocouple sont soudés sur le substrat du capteur de flux à la même profondeur par rapport à la surface du capteur à l'aide de décharges capacitives (Figure 4.8). L'autre extrémité de chaque fil est connectée à une boîte calorifugée, dont la température de référence est mesurée à l'aide d'une sonde PT100.

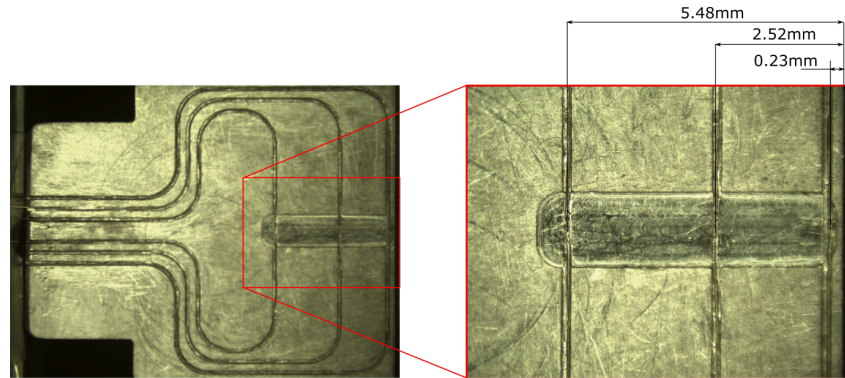


Figure 4.8: Vue en coupe d'un capteur de flux et position des thermocouples

Les capteurs de flux ont été réalisés de manière à fournir une information sur la densité de flux échangée par l'échantillon. Le dispositif a été conçu de sorte que les transferts thermiques soient 1D à travers l'épaisseur de l'échantillon. De cette façon, la densité de flux mesurée par les capteurs de flux est directement reliée au flux total sortant de l'échantillon. On peut alors, au moment de la réaction exothermique de réticulation, analyser le flux sortant de l'échantillon afin de remonter à l'avancement de la réaction dans celui-ci, comme ce qui est déjà réalisé à l'aide du  $PvT\alpha$  [2]. Le traitement des données se fait à l'aide d'un algorithme inverse séquentiel de Beck [3]. Cette méthode permet également d'estimer la température en surface des capteurs situés dans le plateau et le piston, de part et d'autre de l'échantillon.

#### 4.2.7 CHAÎNE DE PILOTAGE ET D'ACQUISITION

Le dispositif est composé de nombreux actionneurs et capteurs (Figure 4.9) qu'il faut piloter pour les premiers et dont les signaux doivent être enregistrés pour les seconds. Ainsi, la presse est contrôlée en force ou en déplacement à l'aide d'un logiciel, développé par INSTRON, installé sur l'ordinateur dédié au dispositif. Le logiciel permet de commander à la fois le piston et également d'enregistrer le déplacement de celui-ci et la force appliquée.

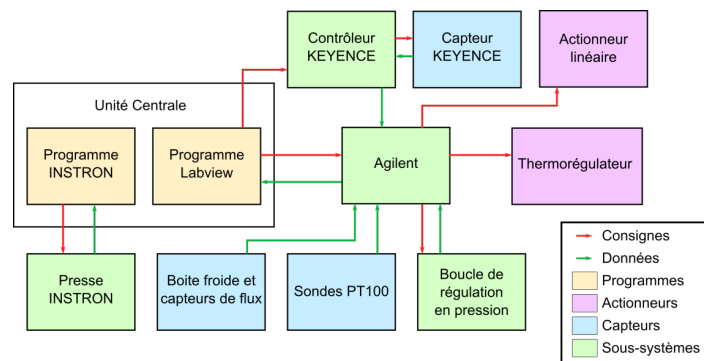


Figure 4.9: Schéma de la chaîne de pilotage et d'acquisition du dispositif

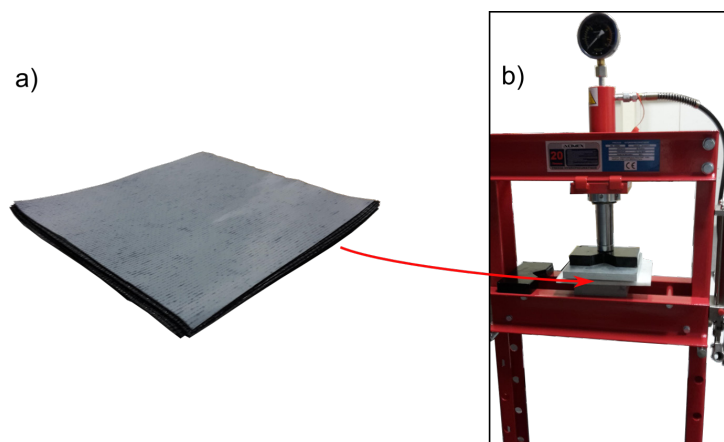
Un second programme, développé au laboratoire sous l'environnement LabView, permet de définir le cycle de température, la consigne de pression de la cavité moulante et les positions que prendra le profilomètre le long de la vitre. C'est également grâce à ce programme que le profilomètre est actionné, par l'intermédiaire du contrôleur KEYENCE LJ-V7001. Il affiche en temps réel les signaux issus des thermocouples des capteurs de flux, la pression de l'huile silicone, la température de l'huile dans la cavité moulante et le profil mesuré issu du profilomètre. Le lien entre l'ordinateur et les différents éléments du dispositif est réalisé à l'aide d'un boîtier d'acquisition Agilent 34970A.

## 4.3 PROTOCOLE EXPERIMENTAL

Le protocole à suivre afin d'effectuer un essai à l'aide du dispositif expérimental sur un échantillon va être maintenant décrit. Il fait intervenir d'autres éléments et permet d'avoir une vue d'ensemble sur le déroulement d'un essai.

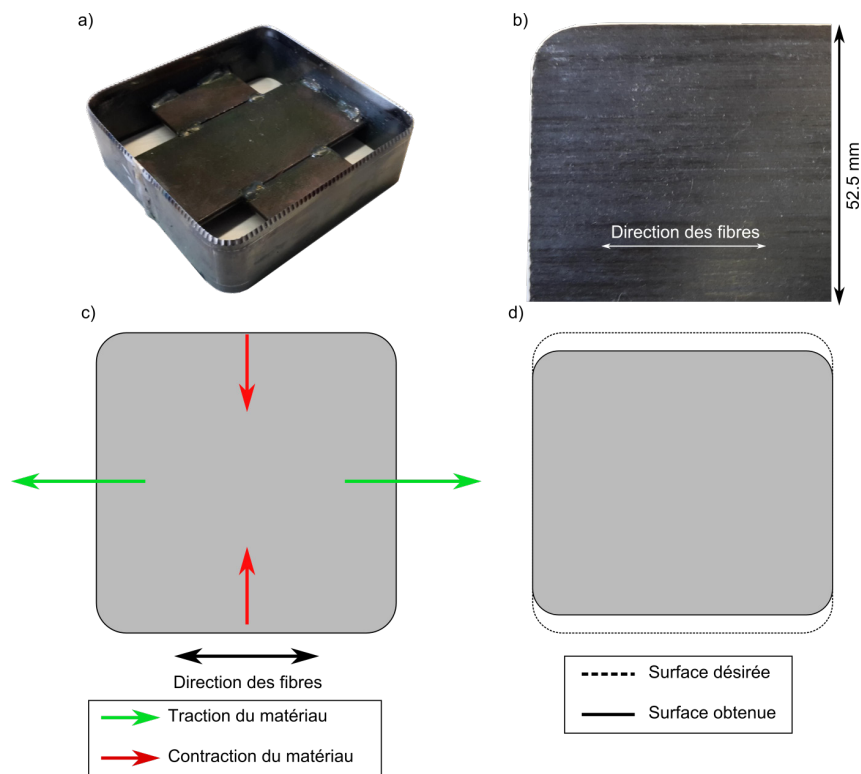
### 4.3.1 PREPARATION ET DECOUPE DE L'ECHANTILLON

La totalité de ces travaux ont été réalisés sur des matériaux pré-imprégnés. La préparation de l'échantillon commence par la découpe des plis le composant. Ils sont découpés en suivant une forme carrée dont le côté est supérieur à celui de l'échantillon final. On prend en général une longueur de 140 mm. Ils sont ensuite empilés en suivant la séquence d'empilement choisie (Figure 4.10a) et précompactés une première fois à 25°C sous une contrainte de 1.0 MPa à l'aide d'une presse hydraulique (Figure 4.10b) afin d'assurer une bonne adhésion entre les plis.



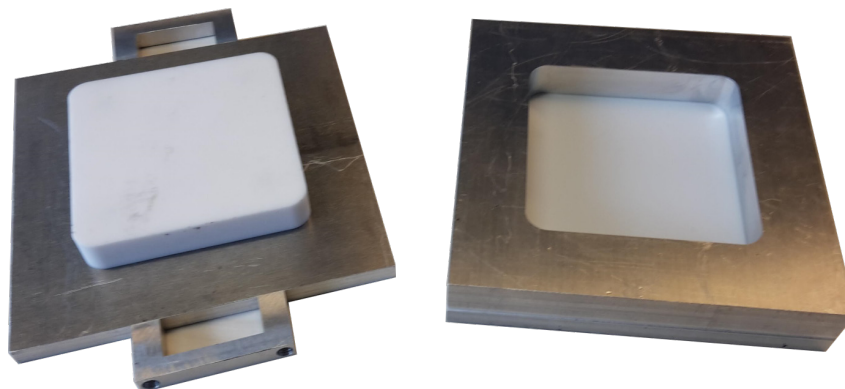
**Figure 4.10: a) Empilement des plis b) Précompactage de l'empilement**

Les plis sont ensuite découpés afin d'obtenir l'échantillon aux bonnes dimensions. Cette découpe s'effectue à l'aide d'un emporte-pièce (Figure 4.11a). Les feuillets (ou lames) de l'emporte pièce sont en acier inoxydable et leur profil de découpe est adapté à la découpe des tissus utilisés dans les matériaux composites. Cet emporte-pièce permet d'obtenir une section latérale plane de l'échantillon (Figure 4.11b), ce qui facilitera la mesure des dilatations de l'échantillon.



**Figure 4.11: a) Emporte-pièces utilisé b) Vue de la surface supérieure d'un échantillon découpé à l'emporte-pièce c) Représentation des phénomènes lors de la découpe d'un échantillon unidirectionnel d) Surface finale obtenue lors de la découpe d'un échantillon unidirectionnel**

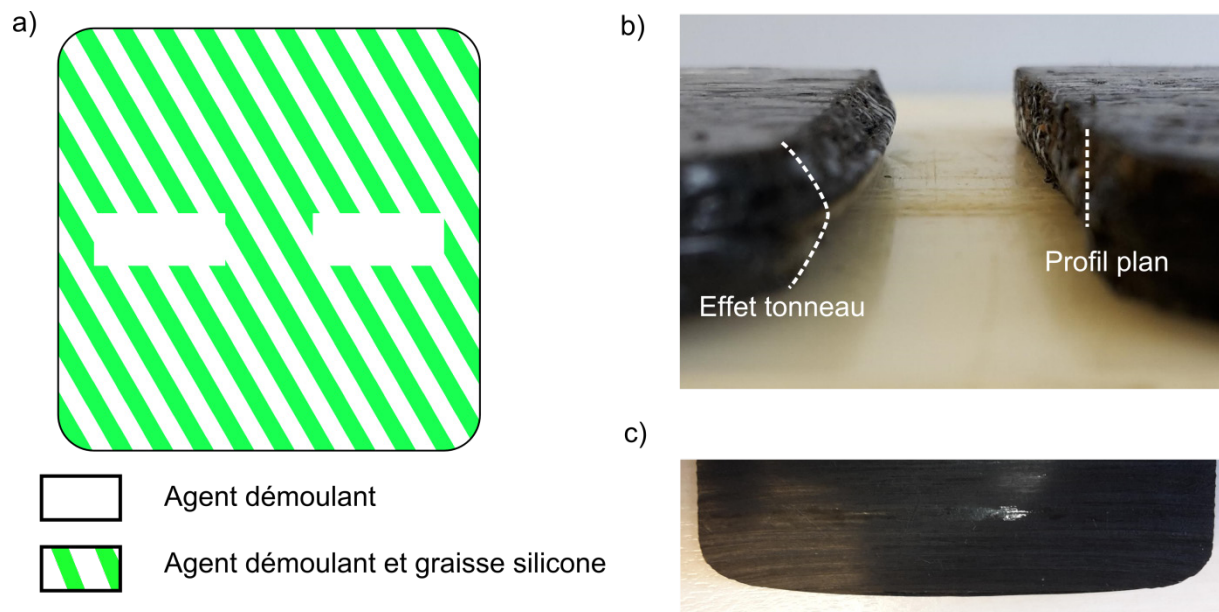
Il arrive que la découpe de l'échantillon entraîne une modification de ses dimensions même si l'emporte-pièce est aux bonnes dimensions. Ce phénomène apparaît surtout lors de la découpe de laminés unidirectionnels. Il s'explique par une tension des fibres lors de la découpe, suivant une seule direction (Figure 4.11c), entraînant une diminution de la longueur de l'échantillon dans la direction transverse aux fibres (Figure 4.11d). Pour contrer ce phénomène, l'échantillon est compacté une seconde fois dans un conformateur (Figure 4.12) sous une pression de 1.0 MPa, ce qui permet de chasser une partie de l'air présent entre les plis et d'obtenir les dimensions initiales attendues de l'échantillon.



**Figure 4.12: Photo du conformateur utilisé. A gauche: partie supérieure. A droite: Partie inférieure**

### 4.3.2 MISE EN PLACE DE L'ECHANTILLON ET FERMETURE DU MOULE

Avant de mettre en place l'échantillon dans le dispositif, plusieurs étapes de préparation sont nécessaires. Dans un premier temps, le piston est mis au contact du plateau inférieur afin d'effectuer le tarage de la presse. Ceci permettra de connaître l'épaisseur initiale de l'échantillon de façon précise. Ils sont ensuite désolidarisés. Un agent démoulant de type Loctite Frekote est appliqué préalablement sur les surfaces du piston et du plateau afin de faciliter l'extraction de l'échantillon à la fin de l'essai. De la graisse silicone est également appliquée sur la quasi-totalité de la surface du plateau et du piston (Figure 4.13a). Elle permet le glissement de l'échantillon sur les surfaces enduites, et le blocage en translation et en rotation de l'échantillon dans le dispositif, permettant de mesurer ses dilatations en évitant les mouvements d'ensemble. Cette solution est issue de plusieurs essais faisant intervenir différentes configurations afin de limiter les frottements et bloquer les mouvements d'ensemble de l'échantillon. A titre d'exemple, une autre des solutions faisait intervenir un film démoulant de type Cytec A5000 entre les surfaces de l'échantillon, du plateau et du piston. Elle n'a pas été retenue car, bien que le film démoulant n'adhérât pas aux surfaces du plateau et du piston, il collait parfaitement aux surfaces de l'échantillon. Bien qu'élastique, le film ne se déformait pas suffisamment durant la montée en température de l'échantillon, provoquant un effet "tonneau" sur la surface latérale de l'échantillon (Figure 4.13b)). Cette solution induisait également une déformation non homogène des fibres dans le cas d'un matériau unidirectionnel, les fibres initialement droites devenant courbes (Figure 4.13c)).



**Figure 4.13: a) Zones d'application de l'agent démoulant et de la graisse silicone sur les surfaces du piston et du plateau b) Effet tonneau obtenu lors de l'utilisation d'un film démoulant et profil plan obtenu en utilisant la graisse silicone c) Déformation des fibres lors de l'utilisation d'un film démoulant**

L'échantillon est ensuite déposé sur le plateau. Le piston est abaissé et vient compacter l'échantillon à un déplacement imposé. Lorsqu'aucun jour n'est visible entre le piston et l'échantillon, on considère que le piston est suffisamment descendu et que l'échantillon est prêt pour l'essai. Un film élastique de PTFE de 75  $\mu\text{m}$  d'épaisseur est alors appliqué sur les surfaces latérales de l'échantillon afin d'isoler ce dernier de l'huile silicone (Figure 4.14).

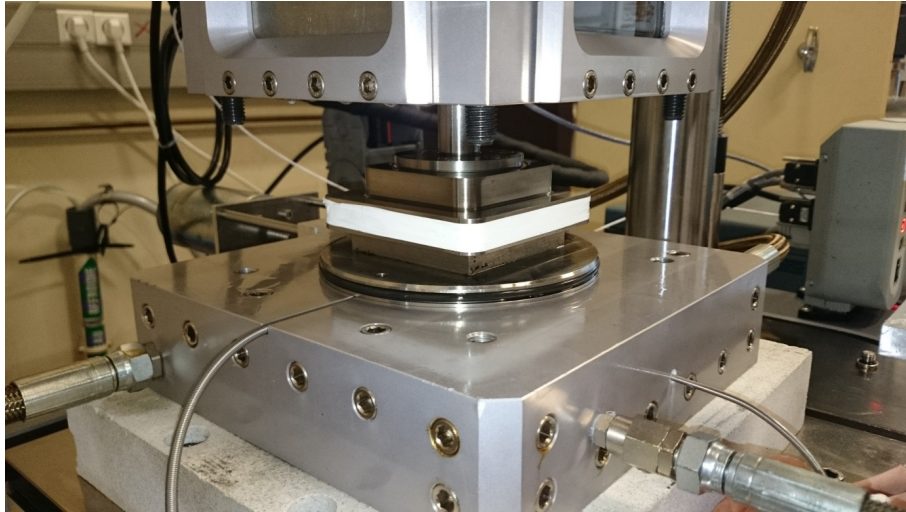


Figure 4.14: Echantillon placé dans le dispositif et entouré de film élastique de PTFE (en blanc)

### 4.3.3 APPLICATION DE LA PRESSION ET CONTROLE DU PISTON

L'échantillon étant placé dans le moule, ce dernier est fermé en abaissant la cavité moulante le long du piston à l'aide de vérins (Figure 4.15). L'assemblage entre la partie supérieure et la partie inférieure du dispositif est assuré à l'aide de 4 vis. Un effort de 30N est appliqué sur l'échantillon à l'aide du piston afin de le maintenir en légère compression durant la phase suivante.

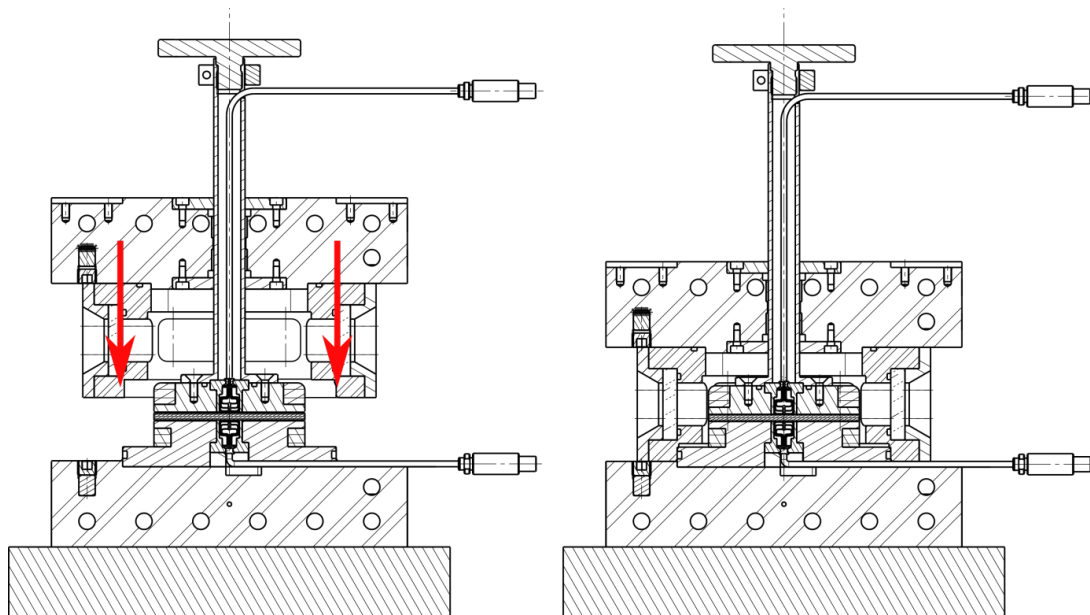


Figure 4.15: Fermeture du moule

La cavité moulante est ensuite remplie d'huile silicone et, une fois la cavité pleine, la vanne de remplissage supérieure est fermée. La mise sous pression de l'huile se fait progressivement et simultanément avec l'application de l'effort de compensation à l'aide du piston. La régulation en pression étant assez lente, cette application progressive est nécessaire afin de garder un état de contraintes hydrostatique autour de l'échantillon. Plusieurs essais ont été menés en n'appliquant pas simultanément et progressivement la pression et l'effort de compensation, menant à une déformation irréversible de l'échantillon.

#### 4.3.4 DEMARRAGE DE L'ESSAI

Les cycles de température, de pression et de la presse sont programmés avant le début de l'essai et, de préférence, avant de préparer l'échantillon pour ne pas perdre de temps en cas d'utilisation d'une résine réactive à température ambiante. Une fois le dispositif fermé, le profilomètre est mis en place sur l'actionneur linéaire. Le réglage du capteur est réalisé afin de mesurer correctement la surface latérale de l'échantillon. Le capteur est déplacé le long de la vitre de façon à ce que la ligne de mesure soit placée à la moitié de la longueur de l'échantillon, cette position est alors considérée comme la position de référence. On paramètre ensuite les différentes positions où le capteur sera déplacé le long de la surface latérale de l'échantillon. Enfin, l'essai est lancé simultanément à l'aide du logiciel de la presse et du programme Labview.

### 4.4 METHODE D'ANALYSE DES RESULTATS ET VALIDATION

Une fois l'essai réalisé, le traitement des signaux issus des différents capteurs n'est pas directement exploitable afin de déterminer les dilatations suivant les deux directions de mesure ainsi que les températures et flux issus des capteurs de flux. Le traitement de ces signaux est décrit dans les sections suivantes.

#### 4.4.1 MESURE A TRAVERS L'EPAISSEUR

Le déplacement mesuré par la presse est celui de la partie supérieure du piston. Il correspond à la fois à la variation d'épaisseur de l'échantillon mais également à la dilatation thermique et à la réponse mécanique de toute la ligne de mesure, comprenant le piston et la partie inférieure du moule. Afin d'extraire la seule variation d'épaisseur de l'échantillon, il faut soustraire la contribution de ces deux composants du déplacement du piston. Cela est possible en réalisant une ligne de base sous les mêmes conditions que l'essai de départ mais sans échantillon dans le dispositif. Le piston est donc directement appliqué contre le plateau et on mesure les déformations du piston et de la partie inférieure du dispositif. En soustrayant les déplacements issus de l'essai réalisé sur l'échantillon de ceux issus de la ligne de base, on peut donc estimer les variations d'épaisseurs de l'échantillon.

Afin de vérifier cette méthode, on l'applique à la mesure du coefficient de dilatation thermique d'un échantillon d'alliage d'aluminium. Un échantillon de 6.0 mm d'épaisseur et de base carrée de 105mm de longueur est placé dans le dispositif. Une pression de 0.1 MPa est appliquée dans la cavité et le piston applique un effort de compensation de 38.5 N. Le cycle thermique est le suivant:

- Isotherme à 30°C pendant 10 minutes,
- Montée à 120°C à 1.5K.min<sup>-1</sup>,
- Isotherme à 120°C pendant 30 minutes,
- Descente à 30°C à 1.5K.min<sup>-1</sup>.

Le déplacement du piston enregistré en fonction de la température est donné en Figure 4.16 et comparé au déplacement du piston issu de la ligne de base. Les pentes de ces courbes durant la montée en température sont directement reliées aux coefficients de dilatations thermiques. En soustrayant la pente de la ligne de base de celle de l'essai sur l'échantillon, on obtient ainsi la contribution de l'échantillon seul à la pente. Il suffit ensuite de diviser ce chiffre par l'épaisseur de l'échantillon d'aluminium afin d'obtenir le coefficient de dilatation thermique. La valeur de coefficient de dilatation thermique obtenue est alors de  $23.7 \pm 6.2 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ . Un tel écart type s'explique par les faibles

dilatations de l'échantillon de 6.0mm devant le reste du système. La mesure différentielle en soustrayant la ligne de base n'est peut être pas la plus apte à permettre une mesure précise.

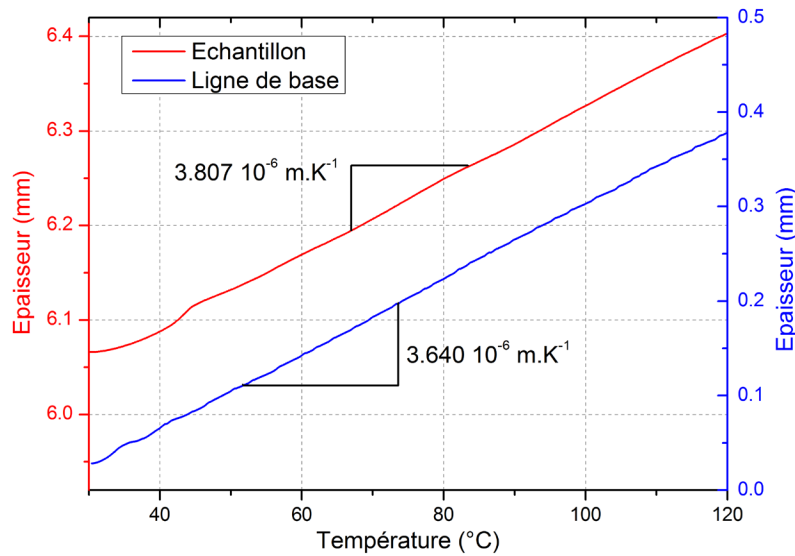


Figure 4.16: Variations d'épaisseur de la ligne de base et de l'échantillon d'aluminium

Un échantillon de ce même alliage d'aluminium a été placé dans un dilatomètre linéaire et testé sur la même gamme de température, permettant d'obtenir un coefficient de dilatation thermique de  $24.3 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ . Les deux valeurs étant en accord, on peut considérer la méthode d'analyse du coefficient de dilatation thermique suivant l'épaisseur de l'échantillon comme validée.

#### 4.4.2 MESURE LATÉRALE

Plusieurs expériences ont été réalisées afin de vérifier les performances de la mesure latérale à l'aide du profilomètre et sont présentées en annexe D. Il faut retenir de ces expériences que la mesure des déformations de la surface ne peut pas être faite de manière absolue. En effet, si l'on souhaite suivre un point A le long de la ligne de mesure du profilomètre au cours du temps, les variations de la position virtuelle mesurée A' dépendent alors de la position du point A, de la distance entre la vitre de verre et le capteur et de l'épaisseur de cette vitre. Cette dépendance est liée à la diffraction des rayons reçus par le profilomètre. Or, durant un essai, la dilatation thermique du dispositif entraîne un déplacement de la vitre de verre dans la direction de la mesure du profilomètre. Ce déplacement induit un effet "loupe" qui perturbe la mesure des déplacements du point A.

L'idée est alors de prendre, le long de la ligne de mesure, un point de référence virtuel B' dont on peut connaître la position exacte. On mesure alors une distance virtuelle A'B' qui devient insensible aux dilatations du dispositif et à l'effet loupe cité précédemment. La relation entre la distance virtuelle A'B' et la distance réelle AB est donnée par la relation (4.5).

$$A'B' = AB \frac{n_3}{n_1} \quad (4.5)$$

Le point B est choisi au niveau du plateau d'acier situé sous l'échantillon. Les dimensions du plateau, son coefficient de dilatation thermique et la température de celui-ci étant connus, il est possible de calculer le déplacement du point B et, par extension, ceux du point A.

Afin d'aller plus loin dans la vérification de la méthode de calcul des déformations latérales de l'échantillon, les données du profilomètre issues de l'essai réalisé sur l'échantillon d'alliage d'aluminium présenté dans la section précédente ont été analysées. En traitant l'évolution du profil de l'échantillon avec la température à l'aide de la méthode présentée dans les paragraphes précédents et détaillée en annexe D, on peut calculer le coefficient de dilatation thermique de l'échantillon. La valeur moyenne obtenue le long de la section de mesure lors de cet essai est de  $26.6 \pm 1.2 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ , ce qui est en accord à la fois avec la mesure réalisée à travers l'épaisseur de l'échantillon et celle obtenue par dilatomètre linéaire.

#### 4.4.3 CAPTEURS DE FLUX

Avant de mettre en place les capteurs de flux dans le dispositif en vue de déterminer les températures de surface et le flux échangé avec l'échantillon, il convient d'étalonner ceux-ci afin de vérifier leurs performances. Il existe, au laboratoire, un banc d'étalonnage de capteurs de flux permettant d'appliquer un flux connu et précis au capteur et ainsi de valider leur réponse. Cependant, celui-ci est adapté à une certaine nuance d'acier dont la conductivité est proche de  $29 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . La nuance d'acier utilisée dans la conception du dispositif présente une conductivité de  $20 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . Cette différence induirait une intrusivité du capteur dans le banc d'étalonnage qui empêche l'utilisation de celui-ci. La vérification des capteurs de flux se fait donc directement dans le dispositif conçu.

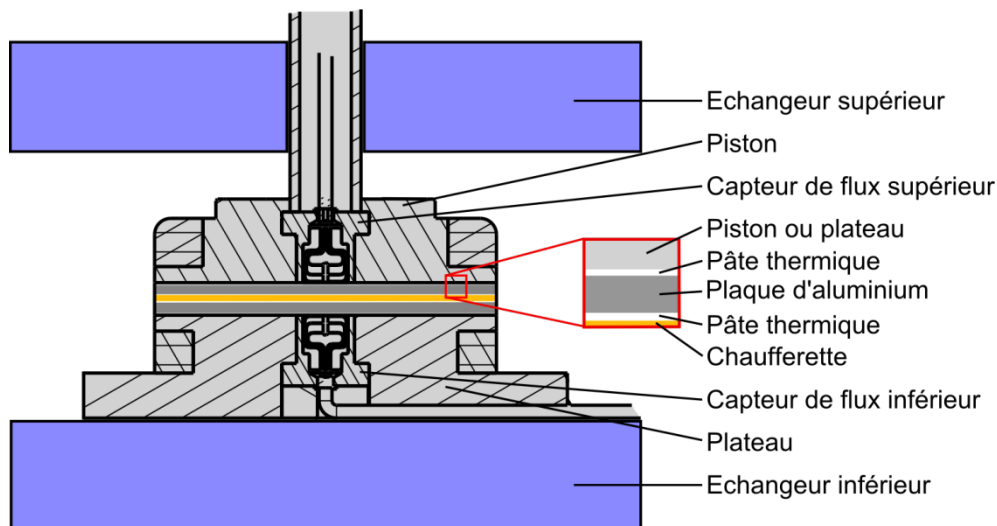


Figure 4.17: Montage réalisé pour tester les capteurs de flux

Pour cela, on place, entre le piston et le plateau, une chaufferette électrique aux dimensions du piston (Figure 4.17). La chaufferette est contenue entre deux plaques d'alliage d'aluminium de 1mm d'épaisseur. L'une d'elle est évidée au niveau de la connectique de la chaufferette afin d'assurer un bon contact entre la chaufferette et les surfaces d'aluminium. Un film de pâte thermique est également présent sur chaque surface afin d'homogénéiser la surface de contact thermique et donc de limiter les constriction. Le thermorégulateur impose une température fixe de  $30^{\circ}\text{C}$  dans les échangeurs et le circuit de circulation d'huile silicone est mis en route. La mise en régime du système est réalisée avant chaque essai. La puissance électrique dissipée dans la chaufferette au cours d'un essai est mesurée. Elle est directement reliée à la densité de flux de chaleur théoriquement partagée dans le piston et le plateau, qui est comparée à la somme des densités de flux issues des deux capteurs (Figure 4.18).

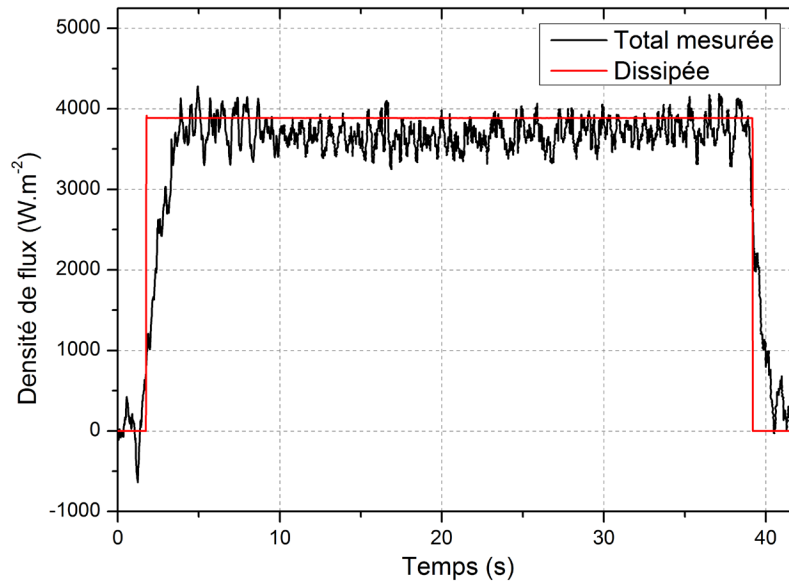


Figure 4.18: Comparaison entre densité de flux théoriquement dissipée et densité de flux totale mesurée

Un bon accord apparaît entre la densité de flux dissipée et la densité de flux totale mesurée. Malheureusement, le thermocouple en surface du capteur de flux du piston a été endommagé durant ces premiers essais, rendant le signal issu de ce capteur bruité. Ce bruit se répercute sur le flux total mesuré, ce qui explique les écarts. Pour une densité de flux dissipée de  $3880 \text{ W.m}^{-2}$ , l'erreur faite sur la densité de flux totale est de 4.6%, avec un bruit de mesure de  $172 \text{ W.m}^{-2}$ , ce qui est classique pour ce type de capteur. Le montage étant asymétrique, le flux issu d'un seul capteur n'est pas égal à la moitié du flux total. On ne peut donc conclure que sur le couple de capteurs de flux. On considère cette mesure comme validée, bien qu'une investigation plus poussée et individuelle de chacun des deux capteurs soit nécessaire.

## 4.5 MATERIAUX ET METHODES

Deux matériaux différents ont été utilisés dans le dispositif afin d'une part de développer le protocole présenté en section 4.3, et également de caractériser ces matériaux. Le premier est un matériau SMC à fibres de verre et résine vinylester, le second est un matériau UD à fibres de carbone et matrice époxy T700/M21. Ils sont brièvement présentés dans les paragraphes suivants.

### 4.5.1 MATERIAU SMC

Ce matériau a majoritairement été utilisé lors du développement de ce dispositif. Il est composé de 28% en volume de fibres de verre courtes orientées aléatoirement dans le plan des plis et de 72% de pâte mère composée de résine polyester, d'additifs thermoplastiques et de charges minérales. Les propriétés thermiques et la cinétique de réaction de la résine ont été décrites dans le chapitre 3, en section 3.4.7.2. La surface initiale de l'échantillon est celle décrite en section 4.2.2 et on réalise un empilement de deux plis. Le matériau étant considéré comme isotrope transverse, ses propriétés sont censées être indépendantes de l'orientation du pli. L'épaisseur initiale de l'échantillon est, dans ce cas, de  $6.5 \pm 0.3$  mm. Une grande variabilité de l'épaisseur des plis a été observée, ce qui peut s'expliquer par une distribution non homogène du taux volumique de fibres. Deux cycles de température différents ont été utilisés pour ce matériau, avec le même cycle de pression. Ils sont décrits en Figure 4.19 ainsi que dans le paragraphe suivant.

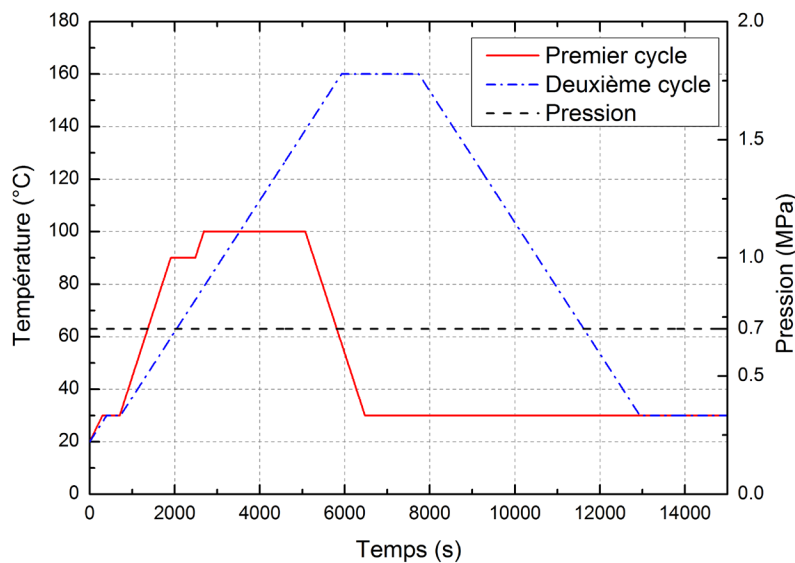


Figure 4.19: Cycles de température et de pression pour le matériau SMC

Le premier cycle de température proposé consiste en un premier palier isotherme à 30°C afin d'atteindre l'équilibre du système. La température est ensuite élevée à 90°C à  $3\text{K}\cdot\text{min}^{-1}$  et ce palier est maintenu pendant 10 minutes afin de limiter les gradients dans l'échantillon et s'assurer de la bonne compaction du matériau. Il est ensuite chauffé à 100°C à  $3\text{K}\cdot\text{min}^{-1}$  et le palier isotherme à 100°C est maintenu pendant 40 minutes. Le dispositif est ensuite refroidi à la température de 30°C à  $3\text{K}\cdot\text{min}^{-1}$ . D'après les expériences réalisées dans le cadre de la thèse de Cardinaud [4] sur un dispositif de type DSC, la réaction devrait débuter durant le palier isotherme à 100°C. Ce cycle permettrait donc de découpler les contributions thermique et chimique des variations d'épaisseur de l'échantillon. Il ne permet cependant pas théoriquement d'obtenir une réaction complète de la résine. Le retrait chimique mesuré ne sera donc théoriquement pas égal au retrait total du matériau.

Le second cycle de température proposé consiste en un palier isotherme à 30°C suivi d'une montée à 160°C à 1.5K.min<sup>-1</sup>. Le palier isotherme à 160°C est maintenu pendant 30 minutes avant de redescendre à la température de 30°C à 1.5K.min<sup>-1</sup>. Toujours d'après les travaux cités précédemment, ce cycle thermique entraîne une réaction durant la montée en température, réaction qui cette fois-ci est totale.

La pression appliquée durant ces deux cycles de température est égale à 0.7 MPa. Le piston applique un effort de compensation de 230N.

#### 4.5.2 MATERIAU UD FIBRES DE CARBONE/EPOXY T700/M21

Ce second matériau, développé par Hexcel, a déjà été présenté dans les chapitres 3 et en annexe C. Pour rappel, il est théoriquement constitué de 57% en volume de fibres de carbone unidirectionnelles T700 et de résine époxy M21. Il est communément utilisé dans l'industrie aéronautique pour sa faible exothermie et ses hautes performances mécaniques, et notamment sa résistance aux impacts. La surface des échantillons est toujours celle décrite en section 4.2.2 et on réalise un empilement de 30 plis orientés dans la même direction [0°]<sub>30</sub>. L'épaisseur initiale de l'échantillon est alors de 6.15 mm. Les cycles de température et de pression sont décrits en Figure 4.20.

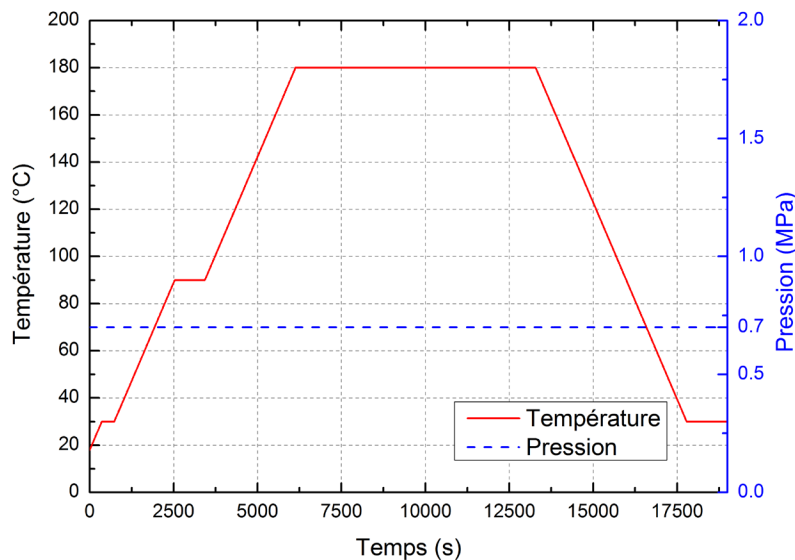


Figure 4.20: Cycles de température et de pression pour le matériau T700/M21

Un premier palier isotherme de 5 minutes à 30°C est réalisé, suivi d'une montée à 90°C à 2K.min<sup>-1</sup>. Un second palier isotherme de 15 minutes à 90°C est imposé, afin d'assurer la compaction du matériau et chasser les possibles bulles d'air formées lors de l'empilement des plis. Une seconde montée en température à 2K.min<sup>-1</sup> est réalisée jusqu'à la température de 180°C. S'en suit un troisième palier isotherme à 180°C de 120 minutes. A la fin de celui-ci, le dispositif est refroidi à 2K.min<sup>-1</sup> jusqu'à la température de 30°C. Pendant tout ce cycle de température, la pression appliquée est de 0.7 MPa, et le piston applique un effort de compensation de 230N.

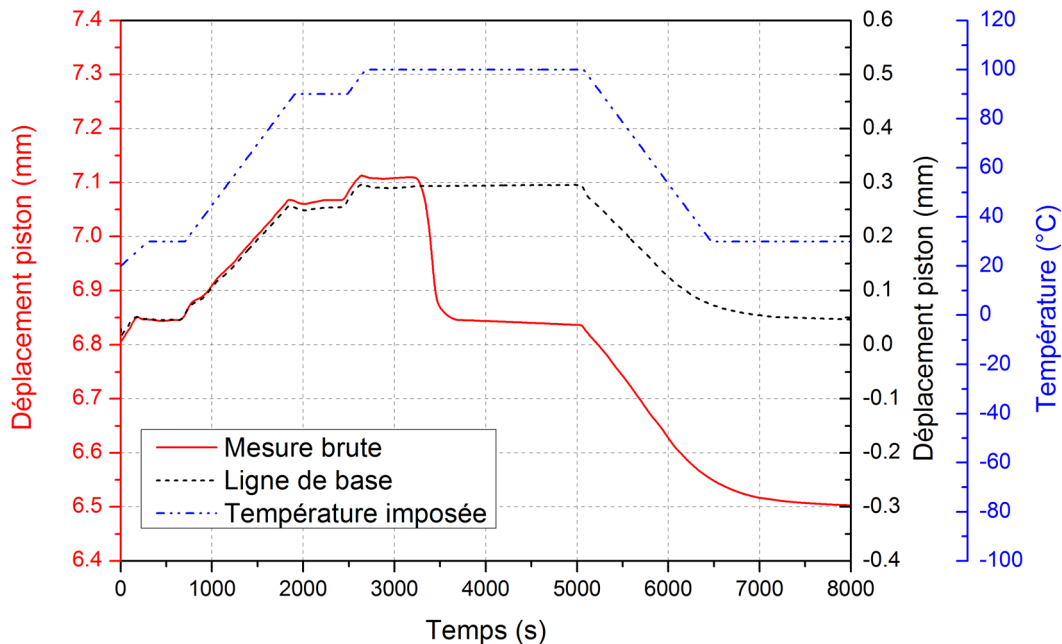
## 4.6 RESULTATS ET DISCUSSIONS

L'utilisation du dispositif avec les matériaux et méthodes décrits dans la section précédente a permis d'obtenir de premiers résultats confortant le bon fonctionnement du dispositif. D'autres essais, réalisés sans échantillon, ont permis d'expliquer certains phénomènes apparaissant durant le fonctionnement du dispositif. Ces différents résultats sont présentés dans les sections suivantes.

### 4.6.1 MATERIAU SMC - PREMIER CYCLE

#### 4.6.1.1 DEPLACEMENTS A TRAVERS L'ÉPAISSEUR

On s'intéresse dans un premier temps à l'essai réalisé avec le premier cycle de température. Les déplacements du piston mesurés à l'aide de la presse INSTRON durant l'essai sur l'échantillon et celui servant de ligne de base sont donnés dans la Figure 4.21 et comparés à l'évolution de la température imposée.



**Figure 4.21: Déplacements du piston pour l'essai sur le matériau SMC avec le premier cycle de température et ligne de base associée**

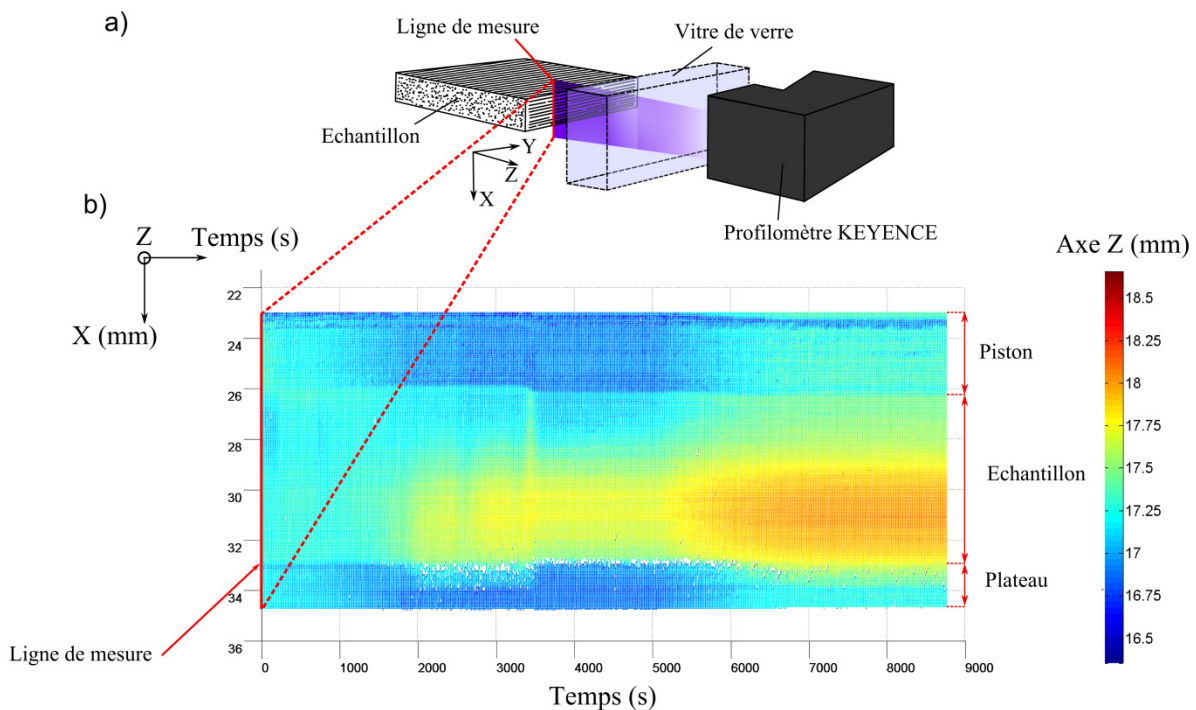
Les déplacements du piston dans le cas de la ligne de base suivent relativement bien le cycle de température imposé. On peut remarquer cependant que le thermorégulateur ne permet pas une régulation en température très fine dès lors que la température est proche de la température ambiante. La température de l'eau utilisée dans le circuit de régulation étant aux alentours de 20°C, plus on se rapproche de cette température et moins les transferts thermiques sont importants, menant à ces problèmes de régulation. On les remarque notamment autour du temps  $t = 750s$ , où plusieurs inflexions ont lieu dans le déplacement du piston, ainsi qu'à la fin de chaque montée en température et à la fin de la phase de refroidissement.

Dans le cas de l'essai réalisé sur l'échantillon, les déplacements du piston suivent, du palier isotherme à 30°C au début du palier isotherme à 100°C (avant  $t = 3200s$ ), les variations de température et ils sont plus importants que pour la ligne de base, du fait de la dilatation thermique dans l'épaisseur de l'échantillon. A partir de  $t = 3200s$ , le piston descend, traduisant le retrait chimique du matériau à

travers son épaisseur. Ce phénomène a majoritairement lieu jusqu'à  $t = 4000$ s. La suite du palier isotherme n'implique presque pas de déplacement du piston. Enfin, durant le refroidissement, le piston redescend, tout comme pour l'essai servant de ligne de base. La soustraction de la ligne de base des déplacements du piston issus de l'essai sur l'échantillon permet d'extraire les variations d'épaisseur de l'échantillon seul, et donc de connaître la déformation de l'échantillon dans cette même direction. Celle-ci sera présentée plus tard dans la section 4.6.1.4, et sera comparée aux déformations dans le plan de l'échantillon.

#### 4.6.1.2 DEPLACEMENTS DANS LE PLAN

Les données brutes issues du capteur KEYENCE, pour une position fixe le long de la vitre (axe Y, Figure 4.22a), sont données en Figure 4.22b. Elles décrivent l'évolution du profil le long de la ligne de mesure (axe X) au cours du temps. En d'autres termes, elles donnent l'évolution de la surface latérale de l'échantillon suivant la direction Z au cours du temps. On distingue clairement trois zones à l'aide du profilomètre. Celle comprise entre 23 et 26mm correspond au piston, celle entre 26 et 33 à l'échantillon et celle de 33 à 34.75mm au plateau inférieur.



**Figure 4.22:** a) Position du profilomètre, de la vitre et de l'échantillon b) Données brutes issues du profilomètre pour la matériau SMC

Une autre représentation de ces données brutes est proposée en Figure 4.23a. Si l'on regarde les déplacements dans la zone du plateau (grisées sur la figure), la surface semble reculer alors qu'on augmente la température. Ceci est dû à la dilatation thermique de la cavité, qui déplace la vitre le long de l'axe Z et induit ce déplacement négatif par effet loupe. Pour soustraire cet effet, on a recours à la relation (4.5). A chaque étape en temps, on prend comme point de référence B' la surface du plateau. En appliquant la correction optique à tous les points le long de la ligne de mesure on obtient la dilatation différentielle entre ces points et le plateau. D'autre part, on connaît les dimensions du plateau et ses propriétés thermo-mécaniques, ainsi que la température du plateau. On peut donc calculer la dilatation du plateau et l'ajouter à la dilatation différentielle obtenue précédemment. On obtient, en

Figure 4.23b, les déplacements corrigés de la surface de l'échantillon. Sur ces deux représentations, l'échantillon est situé

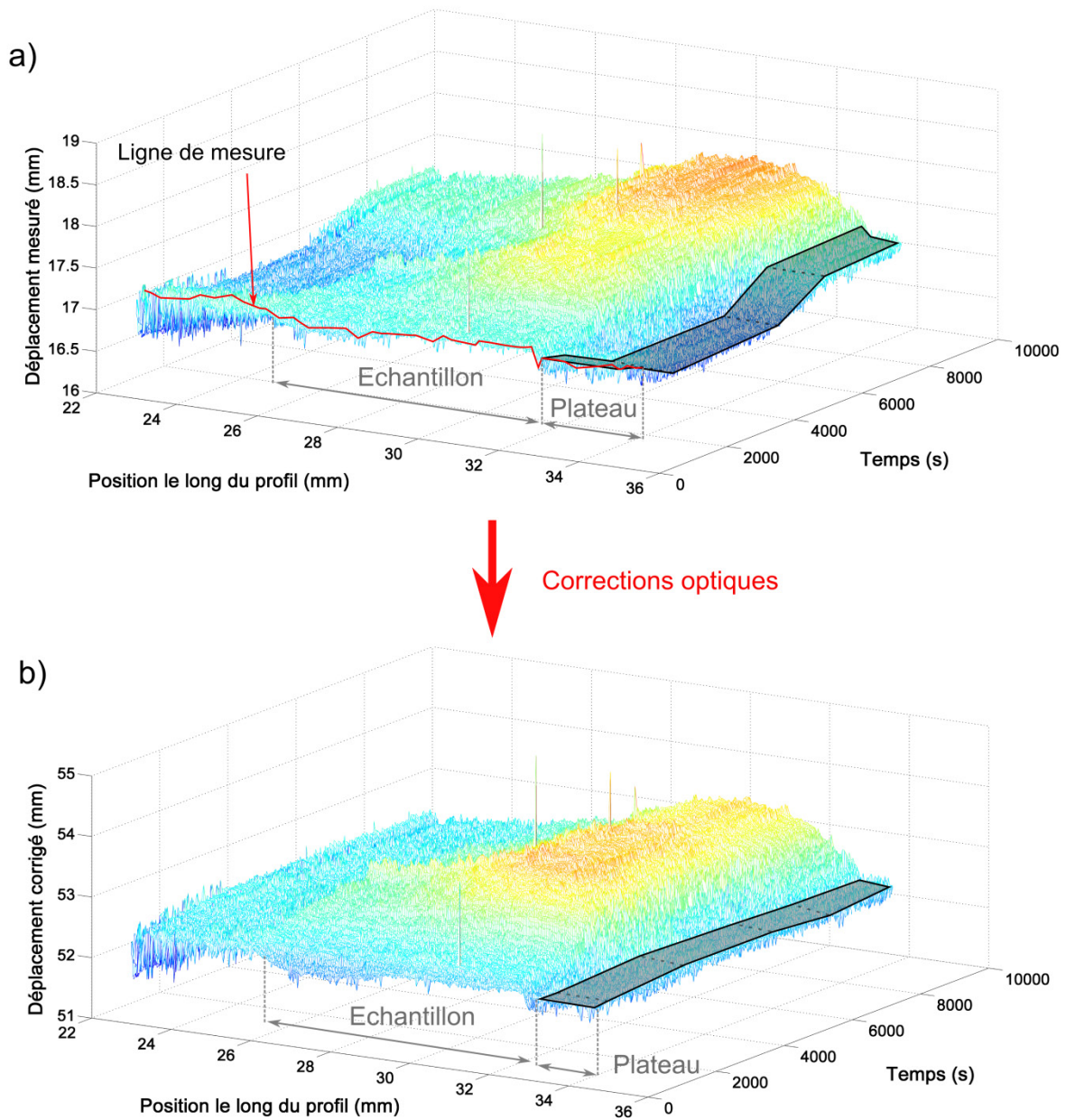


Figure 4.23: a) Représentation en trois dimensions de l'évolution au cours du temps des valeurs brutes issues du profilomètre b) Représentation en trois dimensions de l'évolution au cours du temps des valeurs optiquement corrigées

Il est alors possible d'étudier, à partir de la surface corrigée présentée en Figure 4.23b, un certain nombre de points et l'évolution de leur déplacement suivant la direction Z au cours du temps. On sélectionne 6 points (Figure 4.24), dont les positions le long du profil sont données dans le Tableau 4.1.

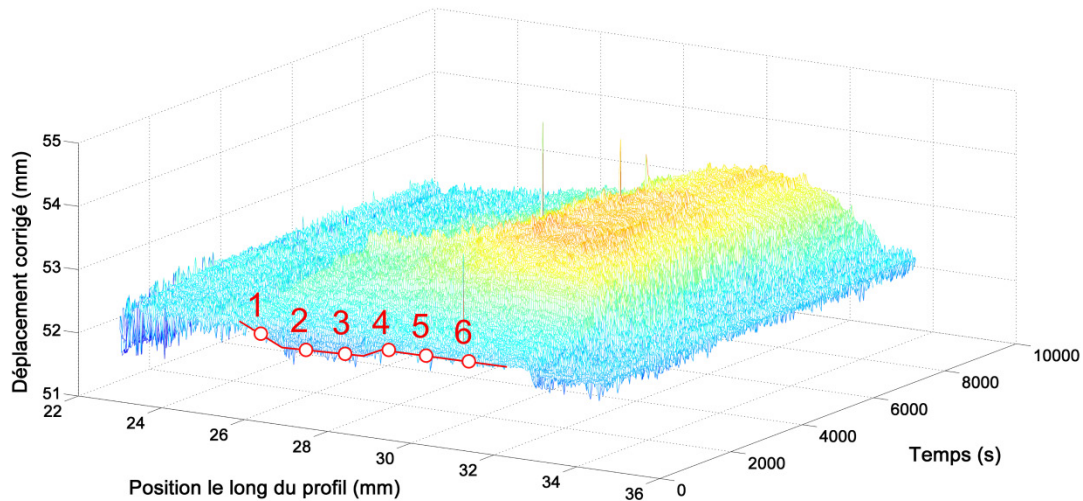


Figure 4.24: Position des points sélectionnés le long de la ligne de mesure

Tableau 4.1: Position des différents points le long de l'axe X

Point	1	2	3	4	5	6
Position (mm)	26.5	27.5	28.5	29.5	30.5	31.5

Les déplacements mesurés à partir de la position initiale en chacun de ces points au cours du temps sont représentés en Figure 4.25, avec la température imposée.

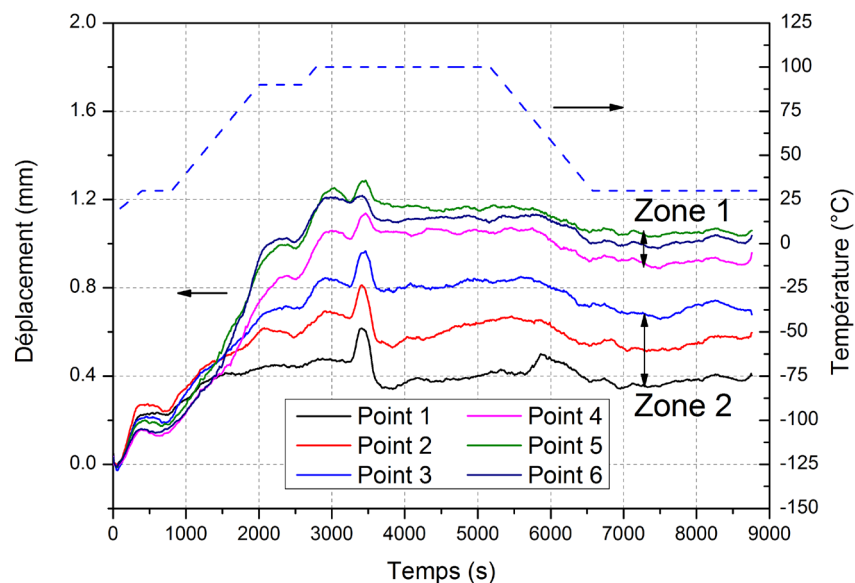


Figure 4.25: Evolution des déplacements pour les 6 points sélectionnés et de la température imposée

Si l'on suit, à titre d'exemple, le point 4 on remarque que, tout comme pour l'étude des déplacements du piston, le déplacement du point suit le cycle thermique durant la première phase allant du plateau isotherme à 30°C au début du palier isotherme à 100°C (avant  $t = 3200$ s). On observe ensuite une dilatation rapide, suivie d'un retrait qui lui aussi semble prendre fin avant  $t = 4000$ s. Les variations de déplacements sont faibles voire nulles durant la suite du palier isotherme à 100°C. Durant le refroidissement, le déplacement indique un retrait thermique. Il est à noter que l'allure des courbes est

chahutée. On peut sans doute l'attribuer aux micro-mécanismes de déformations dans ces matériaux très hétérogènes (contacts entre fibres, rotations dans le plan, ...).

Il apparaît un gradient dans les déplacements, les points les plus proches du plateau inférieur (zone 1) semblant se déplacer plus que les points les plus proches du piston (zone 2). La séparation entre ces deux zones est située aux environs de l'interface entre les deux plis constituant l'échantillon. Deux phénomènes peuvent expliquer cette distribution. D'une part, une variation des propriétés du matériau entre les deux plis et, d'autre part, la présence de gradients de température et d'avancement à travers l'épaisseur de l'échantillon peuvent induire un gradient de dilatations et de contractions.

Dans un premier temps, on peut considérer que les déplacements des points situés dans la zone 1 sont globalement identiques. On analysera alors les déformations dans cette zone, en se référant au déplacement du point 4. Les déformations de la zone 2 seront ensuite traitées de la même façon. L'étude des déformations dans le plan sera présentée en section 4.6.1.4, en complément des déformations à travers l'épaisseur et comparée aux températures et à l'avancement de la réaction.

#### 4.6.1.3 ANALYSE DES DONNEES ISSUES DES CAPTEURS DE FLUX

Les capteurs de flux situés de part et d'autre de l'échantillon permettent d'obtenir une information sur l'avancement de la réaction dans l'échantillon ainsi que sur les niveaux de température en surface de l'échantillon. Les températures en surface de piston et de plateau sont données en Figure 4.26.

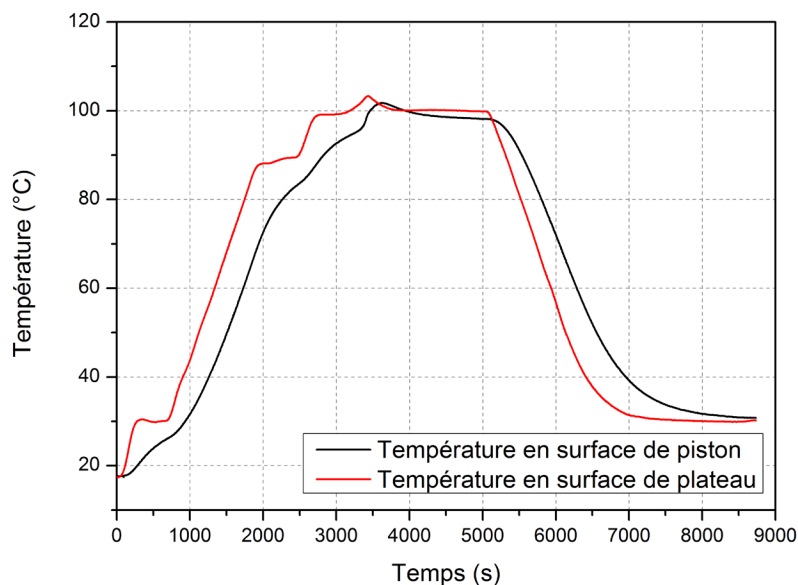


Figure 4.26: Evolution des températures en surface de piston et de plateau

On remarque une différence de température importante entre les surfaces du piston et du plateau, pouvant atteindre 19°C. Le palier effectué à 90°C est donc nécessaire, il permet de réduire la différence de température à 9°C avant le début de la réaction.

La densité de flux totale mesurée à l'aide des deux capteurs est représentée en Figure 4.27 avec l'évolution de la température sur la surface inférieure de l'échantillon.

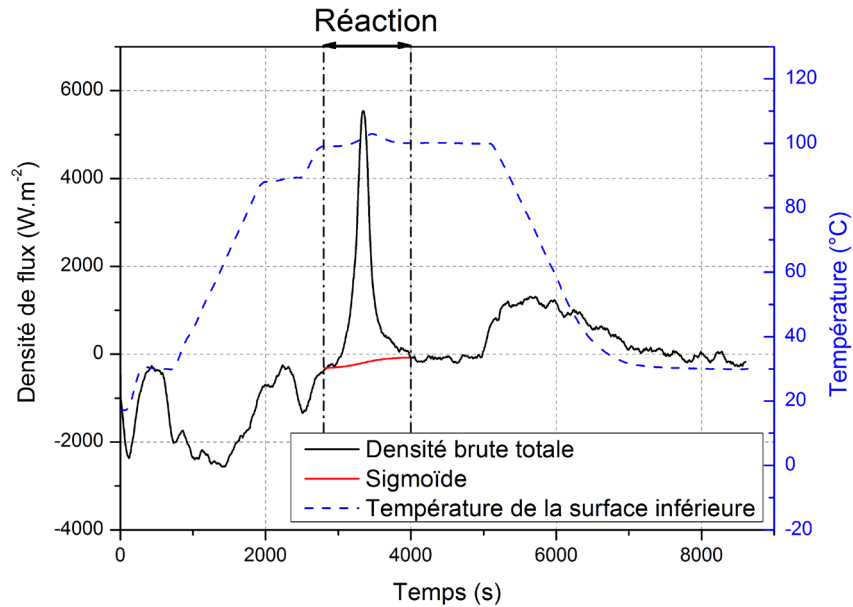


Figure 4.27: Evolution de la densité de flux totale mesurée et de la température en surface inférieure de l'échantillon

Au début du palier isotherme, la densité de flux tend vers 0, le système est alors quasiment à l'équilibre. La transformation du matériau semble commencer dès les premiers instants du plateau isotherme et est caractérisée par un pic exothermique se terminant vers  $t = 4200s$ . Afin de n'avoir que la contribution de la transformation à la densité de flux, on recale les données brutes à l'aide d'une sigmoïde (Figure 4.27). On obtient ainsi la densité de flux totale recalée (Figure 4.28).

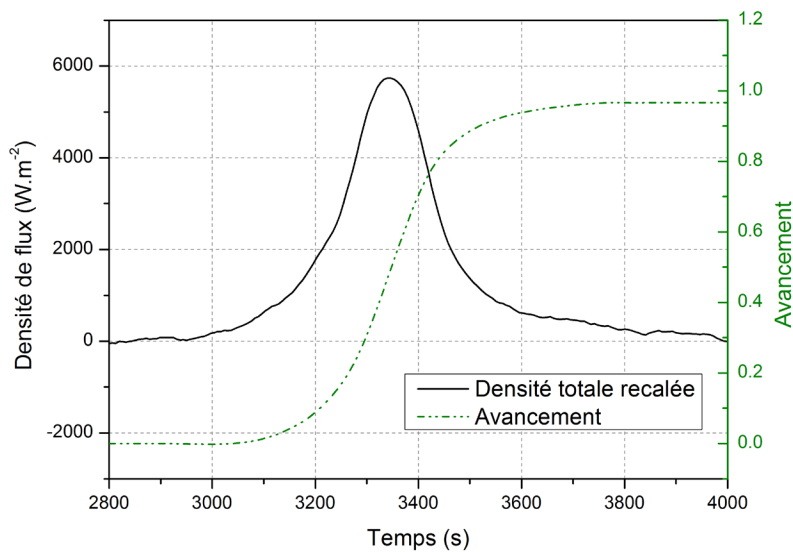


Figure 4.28: Densité de flux totale recalée et avancement de la réaction

Le calcul de l'aire sous la courbe de la densité de flux totale recalée permet d'estimer l'enthalpie totale de réaction  $\Delta H_{tot}$ . On obtient  $\Delta H_{tot} = 141 \pm 6 \text{ J.g}^{-1}$  au cours de cet essai. Les valeurs obtenues à l'aide d'un appareil de type DSC pour ce même matériau étant de  $\Delta H_{tot DSC} = 146 \text{ J.g}^{-1}$ , on en conclut que la réaction n'a probablement pas été totale, l'avancement final théorique est alors de 0.96.

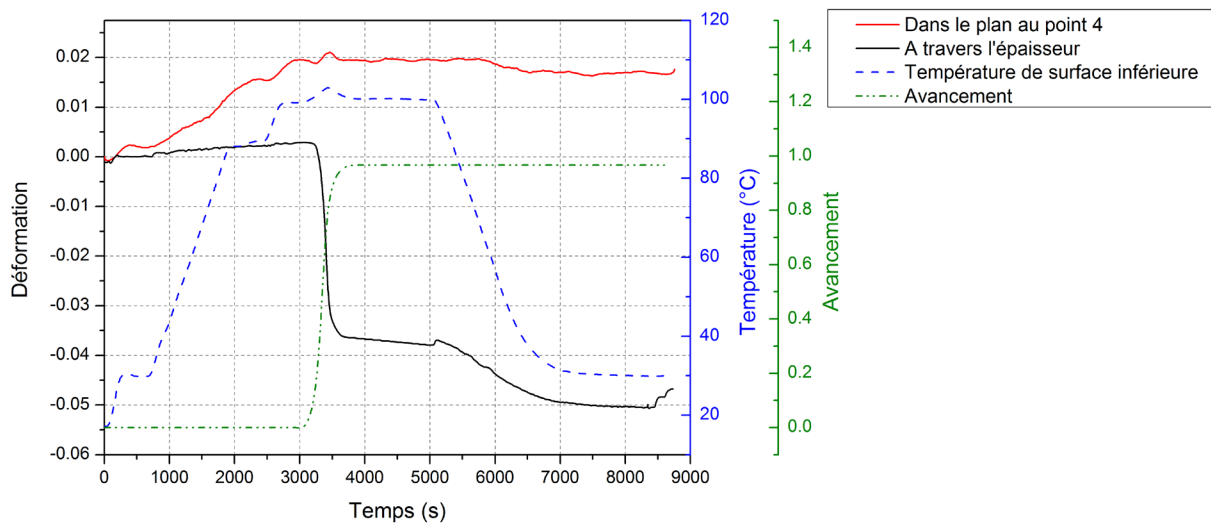
Afin de déterminer l'avancement  $x(t)$ , on calcule en chaque temps le ratio entre l'enthalpie instantanée et l'enthalpie totale (4.6)

$$x(t) = \frac{\int_0^t \Delta H(t) dt}{\Delta H_{tot DSC}} \quad (4.6)$$

L'avancement calculé est représenté en Figure 4.28.

#### 4.6.1.4 COMPARAISON DES DEFORMATIONS

Les différentes données brutes ayant été traitées, il est possible d'analyser plus finement les multiples phénomènes ayant lieu durant la transformation du matériau. Les déformations issues de la mesure à travers l'épaisseur et celles calculées dans le plan au point 4 sont comparées dans la Figure 4.29, où figurent également la température de la surface inférieure de l'échantillon et l'avancement global de la réaction dans celui-ci.



**Figure 4.29: Evolutions des déformations à travers l'épaisseur et dans le plan de l'échantillon, avec la température de la surface inférieure et l'avancement de la réaction**

Les analyses faites dans les sections 4.6.1.1 et 4.6.1.2 semblent être validées, la réaction ayant lieu entre le début du plateau isotherme à 100°C et t = 4000s. Il est désormais possible, à partir des courbes de déformations, de calculer les coefficients de dilatation thermique (CTE) du matériau dans les deux directions de mesure et ce à l'état cru et à l'état cuit de la matière.

Puisqu'on considère que la réaction a lieu entièrement durant le palier à 100°C, le CTE à l'état cru peut être estimé à l'aide des déformations durant toute la phase de chauffage et celui à l'état cuit durant toute la phase de refroidissement. On trace alors, pour chaque direction de mesure, l'évolution des déformations en fonction de la température. Celles-ci sont données en Figure 4.30 et Figure 4.31 pour la direction à travers l'épaisseur et dans le plan, respectivement.

Durant le chauffage, les déformations à travers l'épaisseur de l'échantillon évoluent linéairement avec la température. La pente de la courbe dans cette zone (représentée en 1 sur la Figure 4.30) est égale au CTE à l'état cru. Les déformations chutent ensuite durant le palier isotherme du fait du retrait chimique. Durant le refroidissement, les déformations évoluent encore une fois linéairement avec la température. La pente de la courbe dans la zone 2 est égale au coefficient de dilatation thermique à

l'état cuit. Les valeurs des coefficients de dilatation thermique aux différents états de la matière sont données dans le Tableau 4.2.

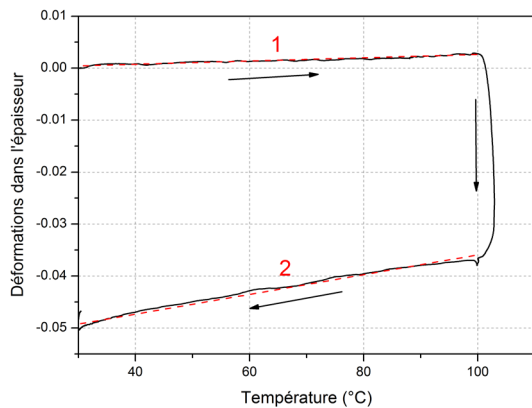


Figure 4.30: Evolution de la déformation à travers l'épaisseur de l'échantillon en fonction de la température

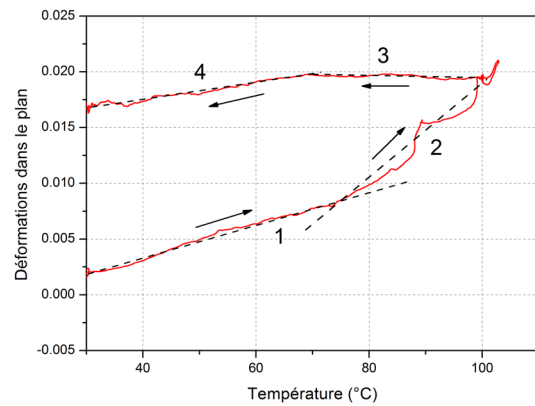


Figure 4.31: Evolution de la déformation dans le plan en fonction de la température

L'étude des déformations dans le plan (Figure 4.31) se révèle moins simple qu'à travers l'épaisseur. Les déformations durant la phase de chauffe n'évoluent pas parfaitement linéairement avec la température. On peut identifier deux pentes différentes, l'une entre 30°C et 70°C (zone 1), l'autre entre 70°C et 100°C (zone 2). Il en est de même durant la phase de refroidissement, où deux pentes différentes sont observées sur les mêmes gammes de température (zones 3 et 4). Ces changements de pente ne sont pour le moment pas expliqués. Il pourrait s'agir du passage de la température de transition vitreuse  $T_g$ , mais les mesures réalisées dans les travaux de Cardinaud [4] n'ont pas encore permis de valider cette hypothèse. Afin de calculer les coefficients de dilatation thermique aux états cru et cuit, on prendra la pente moyenne durant la chauffe et durant le refroidissement, respectivement. On obtient une valeur de CTE de  $247 \pm 12$  et de  $45 \pm 3 \text{ K}^{-1}$ , à l'état cru et à l'état cuit. Ces valeurs sont issues de la courbe au point 4. L'étude de la totalité du profil permet d'obtenir un encadrement des CTE dans le plan. Elles sont réunies dans le Tableau 4.2.

Tableau 4.2: Coefficients de dilatation thermique et de retrait chimique pour le matériau SMC aux états cru et cuit

	Unité	Etat cru	Etat cuit
CTE moy. dans le plan	$(10^{-6} \text{ K}^{-1})$	$180 \pm 67$	$38 \pm 7$
CTE dans l'épaisseur	$(10^{-6} \text{ K}^{-1})$	$40 \pm 2$	$189 \pm 10$
CTE vol. moy.	$(10^{-6} \text{ K}^{-1})$	$400 \pm 136$	$266 \pm 15$
<b>CTE vol. PvT<math>\alpha</math></b>	<b><math>(10^{-6} \text{ K}^{-1})</math></b>	<b><math>413 \pm 15</math></b>	<b><math>206 \pm 20</math></b>

A l'état cru, les CTE calculés dans le plan font l'objet d'une grande variabilité, la valeur maximale étant plus de deux fois supérieure à la valeur minimale. Les gradients de température dans l'échantillon ne peuvent pas expliquer entièrement cette différence, il est alors probable que la variabilité des propriétés du matériau soit la cause principale de ces écarts.

La valeur de CTE déterminée à travers l'épaisseur de l'échantillon est plus faible que celle dans le plan et égale à  $40 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ . Ce résultat est étonnant. En effet, le matériau SMC est composé de fibres courtes de verre orientées aléatoirement dans les différentes directions du plan des plis. La distribution des fibres permet alors *a priori* à la matrice de plus facilement se dilater suivant l'épaisseur de l'échantillon. On s'attendrait à ce que le CTE soit plus important à travers l'épaisseur plutôt que dans le plan de l'échantillon. La cause possible de cette différence de comportement provient de l'état de contraintes autour de l'échantillon. Le dispositif est conçu de manière à appliquer un état de contraintes hydrostatique autour de l'échantillon. Si cet état n'est pas parfaitement appliqué, l'échantillon est alors

soumis à des contraintes non sphériques. Lorsqu'il est à l'état cru, le matériau est beaucoup plus sensible à une petite variation de l'état de contraintes car il n'est que peu capable de supporter des contraintes de cisaillement. Si, à titre d'exemple, la contrainte appliquée sur la surface supérieure de l'échantillon est légèrement supérieure à celle appliquée sur les surfaces latérales, le matériau risque de se comprimer suivant la direction à travers l'épaisseur de l'échantillon et de s'étendre dans les différentes directions du plan. Cela explique la différence de comportement entre les deux directions. Il faut alors faire attention lors de l'analyse des données à l'état cru. Les CTE calculés ne sont pas seulement dus à la contribution des dilatations thermiques aux déformations mais également à celle du chargement mécanique. **Il ne s'agit donc que de CTE apparents et pas de CTE réels.**

Le matériau SMC est théoriquement isotrope transverse. Si l'on se place dans la base principale du matériau, les propriétés suivant les deux directions du plan sont alors égales. Les CTE dans le plan sont donc considérés comme égaux et la mesure suivant une seule des deux directions du plan permet de déterminer cette propriété. Connaissant les CTE dans les différentes directions principales, on peut calculer le CTE volumique du matériau en faisant la somme des CTE linéaires suivant les trois directions principales. La valeur obtenue à l'état cru présente une grande variabilité, due à la distribution dans les valeurs déterminées du CTE dans le plan, et vaut  $400 \pm 136 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ . Cette même propriété a pu être déterminée à l'aide du dispositif PvT $\alpha$ , donnant une valeur de  $413 \pm 15 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ . La valeur moyenne du CTE volumique mesurée est en accord avec la valeur déterminée à l'aide du PvT $\alpha$ .

**A l'état réticulé**, les CTE déterminés dans le plan présentent des valeurs plus proches, comprises entre  $31$  et  $45 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ . Celui déterminé à travers l'épaisseur de l'échantillon est de  $189 \pm 10 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ . La valeur à travers l'épaisseur est bien supérieure à celle mesurée dans le plan. Cette modification de la distribution des dilatations thermiques s'explique par le développement des propriétés mécaniques de la matrice durant la transformation. A l'état cuit, elle est capable de supporter des contraintes de cisaillement beaucoup plus importantes, rendant l'échantillon beaucoup moins sensible à une légère perturbation de l'état de contraintes hydrostatiques. Les dilatations de l'échantillon étant alors indépendantes de son état de contraintes, on obtient comme attendu théoriquement un CTE plus important à travers l'épaisseur.

Le CTE volumique déterminé est de  $266 \pm 15 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ . Cette valeur est inférieure à celle déterminée à l'état cru. Cette diminution est liée à la modification de structure de la matrice qui, durant la transformation, devient plus compacte et se dilate alors moins. La valeur déterminée est supérieure à celle obtenue à l'aide du PvT $\alpha$ , qui est de  $206 \pm 20 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ . Cet écart peut s'expliquer par la variabilité des propriétés du SMC qui se fait plus ressentir dans les essais réalisés sur le PvT $\alpha$ , la surface des échantillons utilisés dans ce dernier étant plus faible que ceux utilisés dans le nouveau dispositif.

**Pendant la transformation**, il est désormais possible de calculer les déformations purement thermiques  $\varepsilon_{th}$  (4.7), à partir de l'évolution du CTE, noté à présent  $\alpha$  et de la température  $T$  avec le temps. L'évolution du CTE avec le temps est donné par la relation (4.8), qui consiste en une loi des mélanges entre le CTE à l'état cru  $\alpha_{cru}$  et celui à l'état cuit  $\alpha_{cuit}$ . En soustrayant les déformations thermiques des déformations totales  $\varepsilon_{tot}$  mesurées (4.9), on obtient la contribution du retrait chimique  $\varepsilon_{ch}$  aux déformations, à partir de laquelle on peut déterminer les coefficients de retrait chimique.

$$\varepsilon_{th}(t) = \int_0^t \alpha(t) \frac{\partial T}{\partial t} dt \quad (4.7)$$

$$\alpha(t) = \alpha(x(t)) = (1 - x(t))\alpha_{cru} + (x(t))\alpha_{cuit} \quad (4.8)$$

$$\varepsilon_{tot} = \varepsilon_{th} + \varepsilon_{ch} \quad (4.9)$$

A titre d'exemple, on effectue cette analyse sur les déformations à travers l'épaisseur de l'échantillon. Celles-ci sont représentées en Figure 4.32, avec la contribution thermique calculée à partir de la température moyenne et la contribution chimique résultante.

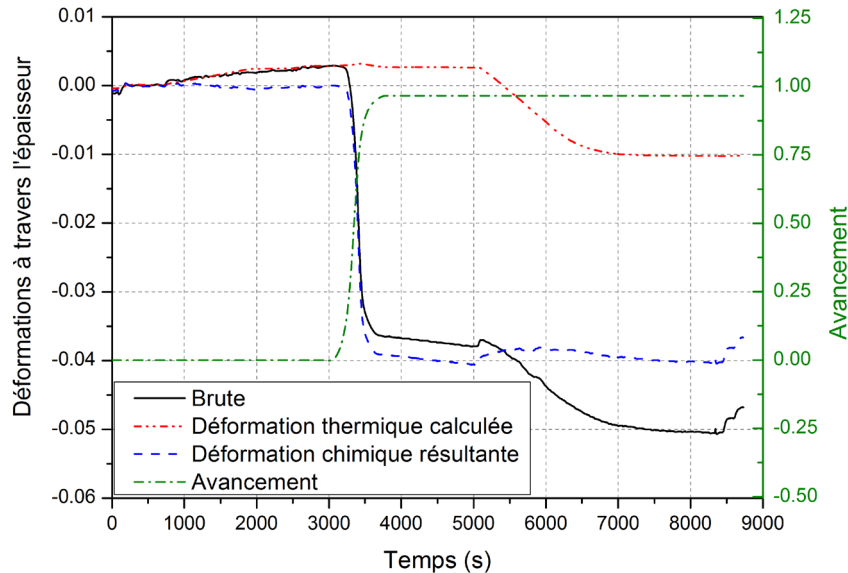


Figure 4.32: Déformations à travers l'épaisseur de l'échantillon, contribution thermique et déformation chimique résultante

La déformation chimique résultante est naturellement nulle jusqu'au début de la réaction, puis atteint une valeur de 3.9% à la fin de la réaction. Durant la suite du plateau isotherme à 100°C, elle diminue légèrement, atteignant 4.0% à la fin du plateau. Au début du refroidissement, cette contribution augmente, mais cette augmentation est liée à la régulation thermique du piston, qui entraîne cet artefact de mesure. Durant toute la durée du refroidissement, la déformation chimique résultante a une valeur proche de -4.0%. On peut alors tracer l'évolution du retrait chimique en fonction de l'avancement (Figure 4.33).

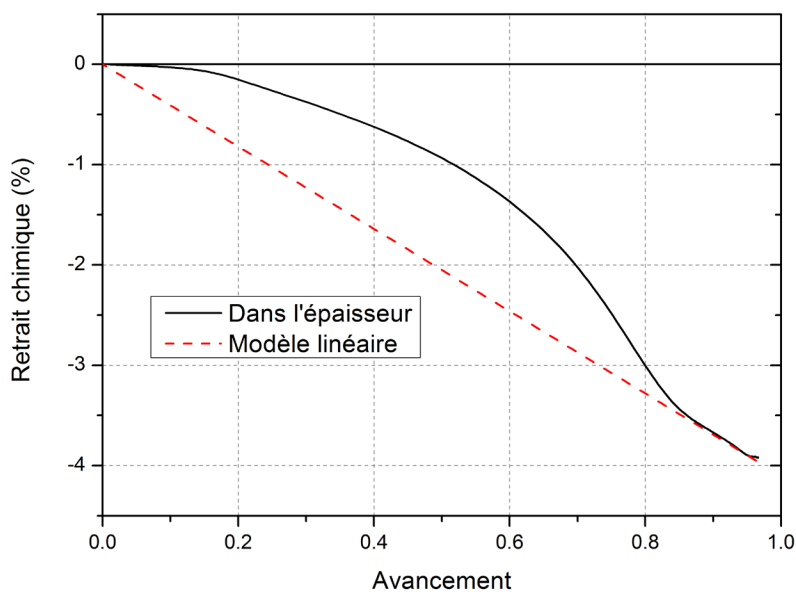


Figure 4.33: Evolution du retrait chimique avec l'avancement à travers l'épaisseur de l'échantillon

Il semble que les retraits n'évoluent pas linéairement avec l'avancement de la réaction. Il est cependant à noter que, puisque l'évolution des déformations chimiques estimées découle du calcul des CTE, l'identification de ceux-ci a une forte influence sur les résultats présentés. La difficulté rencontrée dans l'analyse du CTE à l'état cru peut donc influencer ces résultats. De plus, l'avancement mesuré à l'aide des capteurs de flux représente une valeur moyenne à travers l'épaisseur de l'échantillon. Les gradients de température et d'avancement ne sont pas pris en compte durant l'exploitation des données expérimentales, ce qui contribue aux incertitudes dans la caractérisation des coefficients de retrait chimique. Les prendre en compte serait une amélioration majeure de la méthode d'analyse des résultats qui n'a pu être entreprise par manque de temps.

On peut néanmoins s'attarder aux valeurs du retrait chimique en fin de réaction, résumées dans le Tableau 4.3. La valeur déterminée à travers l'épaisseur de l'échantillon est de -4.0% et elle représente la contribution la plus importante. Ceci s'explique de la même façon que pour les CTE. La distribution spatiale des fibres fait qu'il est plus facile pour la résine de se dilater ou se contracter à travers l'épaisseur de l'échantillon. Ainsi, le retrait chimique est plus important suivant cette direction. Les valeurs mesurées dans le plan sont quant à elles comprises entre -0.1 et -0.3% de retrait. Il est possible, tout comme pour le CTE, de déterminer le retrait chimique volumique du matériau en sommant les contributions suivant les différentes directions. On obtient une valeur de -4.4%, ce qui est cohérent avec la valeur de -4.2% déterminée à l'aide du  $PvT\alpha$ .

Tableau 4.3: Valeurs finales du retrait chimique

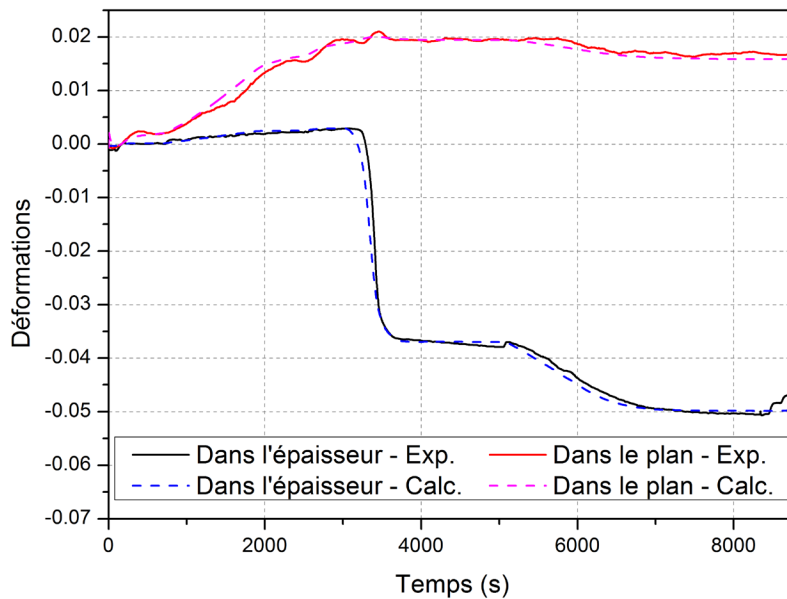
	Unité	Valeur finale
Dans le plan moy.	(%)	-0.2±0.1
Dans l'épaisseur	(%)	-4.0
Volumique moy.	(%)	-4.4±0.2
<b>Volumique <math>PvT\alpha</math></b>	<b>(%)</b>	<b>-4.2</b>

#### 4.6.1.5 ESTIMATION DES DEFORMATIONS

La méthode présentée précédemment permet de déterminer, à l'état cru comme à l'état cuit de la matière, les composantes des tenseurs de dilatation thermique et de retrait chimique du matériau. Puisqu'on connaît la température en surface de l'échantillon et l'avancement, il est possible d'estimer à l'aide d'un modèle simple les déformations suivant les deux directions. Les déformations thermiques sont déjà données grâce aux relations (4.7) et (4.8). Si on considère une relation linéaire entre le retrait chimique et l'avancement, on peut calculer les déformations chimiques à l'aide de la relation (4.10), où  $\beta$  représente le coefficient de retrait total.

$$\varepsilon_{ch}(t) = \int_0^t \beta \frac{\partial x}{\partial t} dt \quad (4.10)$$

En sommant la contribution thermique à la contribution chimique, on arrive alors à une estimation des déformations qu'il est possible de comparer aux déformations obtenues expérimentalement. Cette comparaison suivant les deux directions de mesure est illustrée en Figure 4.34. On s'intéresse toujours au point 4 pour les déformations dans le plan.



**Figure 4.34: Comparaison entre déformations expérimentales et déformations calculées dans les deux directions de mesure**

On remarque un très bon accord global entre les déformations calculées et celles mesurées expérimentalement. Les écarts obtenus sont liés aux gradients de température et d'avancement dans l'échantillon qui ne sont pas pris en compte dans les calculs, et aux différentes simplifications qui ont été faites lors de l'estimation des propriétés du matériau.

Ces résultats sont cependant discutables, notamment les CTE déterminés à l'état cru. Comme annoncé précédemment, le CTE à travers l'épaisseur de l'échantillon devrait être plus important. Du fait d'une possible perturbation de l'état de contraintes hydrostatique de l'échantillon, on ne mesure pas les CTE réels à l'état cru mais un CTE apparent, dépendant de l'état de contraintes. Plusieurs éléments peuvent être la cause de cette perturbation. Le capteur de pression permettant l'asservissement de la pression dans la cavité moulante ne donne peut être pas la valeur exacte de la pression dans la cavité. Les variations de pression autour de la valeur cible peuvent également déséquilibrer l'état de contraintes. De possibles frottements dans la liaison entre le piston et la cavité moulante peuvent eux aussi mener à ce problème.

#### 4.6.2 MATERIAU SMC - DEUXIEME CYCLE

Un second essai est réalisé sur le matériau SMC à l'aide du deuxième cycle de température présenté en section 4.5.1. On utilise la même méthode que celle décrite en section 4.6.1. Les différents résultats pour cet essai sont présentés dans les paragraphes suivants. L'analyse de la densité de flux totale a permis d'obtenir une enthalpie de réaction  $\Delta H_{tot} = 148 \pm 6 \text{ J.g}^{-1}$ , ce qui est encore une fois en accord avec l'enthalpie totale obtenue par DSC. La réaction est donc complète.

L'analyse des déformations ne sera pas présentée en détails et on s'intéressera aux coefficients déterminés (Tableau 4.4) en utilisant la même méthode que précédemment. On remarque, comme pour le premier essai, que le CTE à l'état cru dans le plan est supérieur au CTE estimé à travers l'épaisseur de l'échantillon, ce dernier étant même négatif. Cette différence est encore due à l'état de contraintes autour de l'échantillon. La comparaison des CTE à l'état cru n'est pas possible, ceux-ci n'étant que des CTE apparents.

**Tableau 4.4: Coefficients de dilatation thermique estimés dans le SMC aux états cru et cuit**

	Unité	Etat cru	Etat cuit
CTE moy. dans le plan	( $10^{-6} \text{ K}^{-1}$ )	190±10	41±2
CTE dans l'épaisseur	( $10^{-6} \text{ K}^{-1}$ )	-20±2	142±8
CTE vol. moy.	( $10^{-6} \text{ K}^{-1}$ )	360±25	224±12
<b>CTE vol. PvTα</b>	<b>(<math>10^{-6} \text{ K}^{-1}</math>)</b>	<b>413±15</b>	<b>206±20</b>

On peut toutefois en estimer un CTE volumique comme dans la section 4.6.1. La valeur obtenue est légèrement inférieure à celle obtenue à l'aide du PvTα ce qui peut s'expliquer par la variabilité des propriétés de la matière première. Les valeurs de CTE obtenues à l'état cuit peuvent quant à elles être comparées. Dans le plan, le CTE moyen est de  $41 \pm 2 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ , ce qui est en accord avec la valeur de  $38 \pm 7 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  trouvée dans la section précédente. Le CTE déterminé dans l'épaisseur est plus faible que dans la section précédente. Cela s'explique par la variabilité des propriétés du matériau SMC. Si l'on compare le CTE volumique déterminé à l'état cru, on remarque une bonne corrélation avec les résultats issus du PvTα.

Les coefficients de retrait chimique dans les différentes directions sont déterminés en suivant la même démarche qu'en section 4.6.1. Ceux-ci sont présentés dans le Tableau 4.5.

**Tableau 4.5: Retrait total mesuré dans les différentes directions pour le SMC**

	Unité	Valeur
Dans le plan	(%)	-0.3
Dans l'épaisseur	(%)	-3.1
Volumique	(%)	-3.7
<b>Volumique PvTα</b>	<b>(%)</b>	<b>-4.2</b>

Les retraits étant sensiblement les mêmes dans la direction du plan pour différents points du profil, seule la valeur moyenne de -0.3% y est indiquée. Elle est en accord avec le retrait dans le plan déterminé précédemment, qui était compris entre -0.1 et -0.3%. La valeur déterminée dans l'épaisseur est cependant plus faible cette fois-ci, atteignant -3.1% contre -4.0% précédemment. Le retrait volumique qui en découle est, de ce fait, lui aussi plus faible que la valeur précédente et atteint -3.7%. L'une des explications provient de la méthode utilisée afin de déterminer ces coefficients. Les gradients de température et d'avancement à travers l'épaisseur de l'échantillon ont été négligés. Or, ce matériau est très réactif, et des essais réalisés sur le PvTα ont mené à des élévations de température au cœur d'un échantillon de 6mm d'épaisseur chauffé à  $3 \text{ K} \cdot \text{min}^{-1}$  dépassant  $70^\circ\text{C}$  relativement à la surface de l'échantillon. Deux phénomènes ont alors lieu pendant la transformation, d'une part une dilatation liée à l'élévation de température à cœur et d'autre part le retrait chimique. Celui-ci est alors en partie masqué par les dilatations si les gradients de température et d'avancement sont négligés. Cela explique la valeur inférieure déterminée dans l'épaisseur de l'échantillon. L'autre explication plausible provient de la variabilité des propriétés du matériau.

Il apparaît alors nécessaire d'avoir recours à un modèle numérique prenant en compte ces gradients afin d'identifier correctement les retraits. Il est possible de remplir cet objectif en deux étapes. Dans un premier temps, un modèle homogénéise thermo-chimique 1D à travers l'épaisseur de l'échantillon permettrait d'estimer les gradients de température et d'avancement dans l'échantillon. Ce modèle a déjà été développé dans le cas du dispositif PvTα [5] et n'a pu être adapté à ce nouveau dispositif par manque de temps. La seconde étape serait d'utiliser les outils d'homogénéisation et de modélisation multi-physiques développés et présentés au chapitre 3 et en annexe C afin de modéliser le

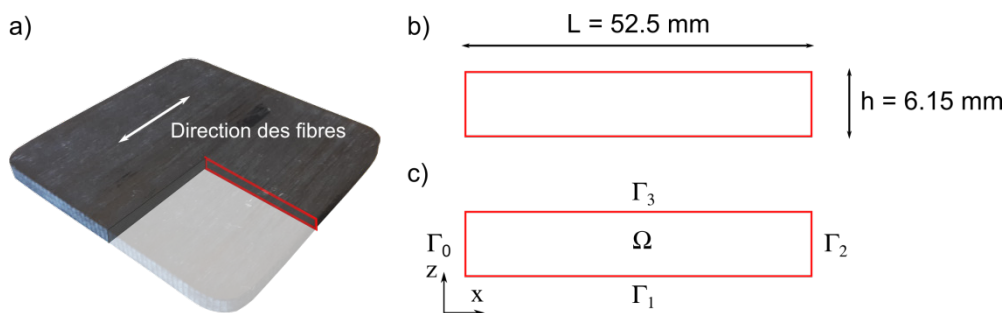
comportement de la totalité de l'échantillon durant sa transformation. Ces outils n'ont pas été appliqués au matériau SMC du fait de sa structure fibreuse complexe.

On peut toutefois conclure sur le SMC que la majorité des retraits s'effectuent dans l'épaisseur de l'échantillon, ce qui est dû à la structure fibreuse qui favorise les déformations à travers l'épaisseur de la matière. On retrouve une relation similaire dans les CTE à l'état cuit, où le CTE dans l'épaisseur est plus important que celui dans le plan. Les valeurs des coefficients de retrait volumique et de dilatation thermique volumique à l'état cuit sont en accord avec les résultats provenant d'essais PvTa.

#### 4.6.3 MATERIAU UD FIBRES DE CARBONE/EPOXY T700/M21

Ce deuxième matériau présente l'intérêt d'être théoriquement isotrope transverse. On doit donc s'attendre à mesurer les mêmes déformations suivant les deux directions transverses aux fibres. Cela permettra alors de valider le principe de mesure du dispositif.

Les données issues des capteurs de flux n'ont pas permis de déterminer l'enthalpie de réaction lors de la réticulation du matériau, la réaction étant lente comparée au matériau SMC. De ce fait, il n'est pas possible d'en calculer l'avancement au cours du temps. Afin de pallier ce défaut, une simulation du comportement thermo-chimique effectif est réalisée en se basant sur les développements théoriques d'homogénéisation décrits dans le chapitre 3. Les propriétés homogènes équivalentes du matériau sont obtenues à partir des propriétés données dans le chapitre 3, et calculées sur une cellule périodique 3D représentant une fibre cylindrique dans un cube de matrice. La fibre a un diamètre de  $10\mu\text{m}$ , ce qui est représentatif du diamètre des fibres de carbone. Le taux volumique de fibres est de 57%. Le problème thermo-chimique couplé est alors résolu sur un domaine représentant une coupe de l'échantillon suivant le plan transverse aux fibres (Figure 4.35a).



**Figure 4.35: a) Représentation du plan de l'étude dans l'échantillon b) Dimensions du domaine étudié c) Désignation du domaine et des frontières**

Les dimensions du domaine sont précisées en Figure 4.35b. Les conditions aux limites autour du domaine sont décrites en thermique par un flux nul sur les surfaces  $\Gamma_0$  et  $\Gamma_2$  (Figure 4.35c), et une température imposée sur les surfaces  $\Gamma_1$  et  $\Gamma_3$ , correspondant aux températures de surface expérimentales déterminées par l'analyse des données des capteurs de flux inférieur et supérieur, respectivement. La résolution du problème nous donne une information sur l'avancement au cœur de l'échantillon. Plus de détails concernant cette simulation sont donnés en Annexe C.

On peut alors comparer les déformations mesurées à travers l'épaisseur avec celles dans le plan. Ces déformations sont présentées en Figure 4.36 avec l'avancement et la température calculés précédemment au cœur de l'échantillon. Les déformations dans le plan étant sensiblement les mêmes le long du profil de l'échantillon, on s'intéresse par la suite aux déformations prises au milieu de l'échantillon.

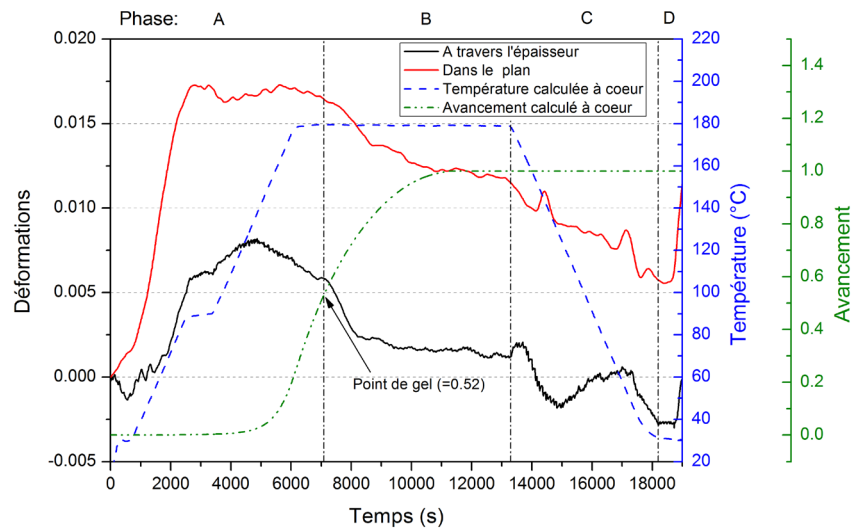


Figure 4.36: Déformations à travers l'épaisseur et dans le plan de l'échantillon d'UD T700/M21 avec l'avancement et la température calculés à cœur

L'avancement à cœur de l'échantillon nous permet de savoir à quel moment est-ce que le point de gel de la matrice est passé. D'après la littérature [6,7], l'avancement au point de gel est de 0.52 pour la résine M21.

**Avant le point de gel (Phase A)**, l'analyse et le traitement des données sont délicats. La matière est encore à l'état cru jusqu'à  $t = 4000s$  et la réaction débute aux alentours de cet instant. La matrice est incapable de soutenir le moindre effort de compression simple ou de cisaillement jusqu'au point de gel. Plusieurs phénomènes entrent alors en jeu durant ces différentes phases. La matière se dilate thermiquement, le retrait chimique a lieu à partir de  $t = 4000s$ , la viscosité de la résine chute fortement pendant le chauffage et l'état de contraintes mécaniques n'est, comme pour les essais précédents, pas parfaitement hydrostatique. Gartska *et al.* [8] font part des mêmes difficultés lors de l'étude des déformations d'un matériau UD pendant les phases précédentes le point de gel de la résine. Par conséquent, on ne s'intéressera pas aux instants précédents le point de gel.

**Pendant la phase B**, où la température est constante et égale à  $180^{\circ}C$ , le point de gel est dépassé, la matrice est donc théoriquement capable de supporter des états de contraintes autres qu'isotropes. L'avancement continue d'augmenter, et le retrait est observé dans les deux directions de mesure, les déformations diminuant jusqu'à atteindre une valeur relativement stable à la fin du palier isotherme à  $180^{\circ}C$ . Afin de pouvoir comparer le comportement du matériau suivant les deux directions à partir du point de gel, on propose de recalculer les déformations en fixant leur 0 au passage au point de gel. De cette manière, on "oublie" en quelques sortes ce qu'il se passe avant le point de gel et dont l'interprétation, comme on l'a vu, reste incertaine. Les déformations suivant les deux directions recalculées au point de gel sont représentées en Figure 4.37.

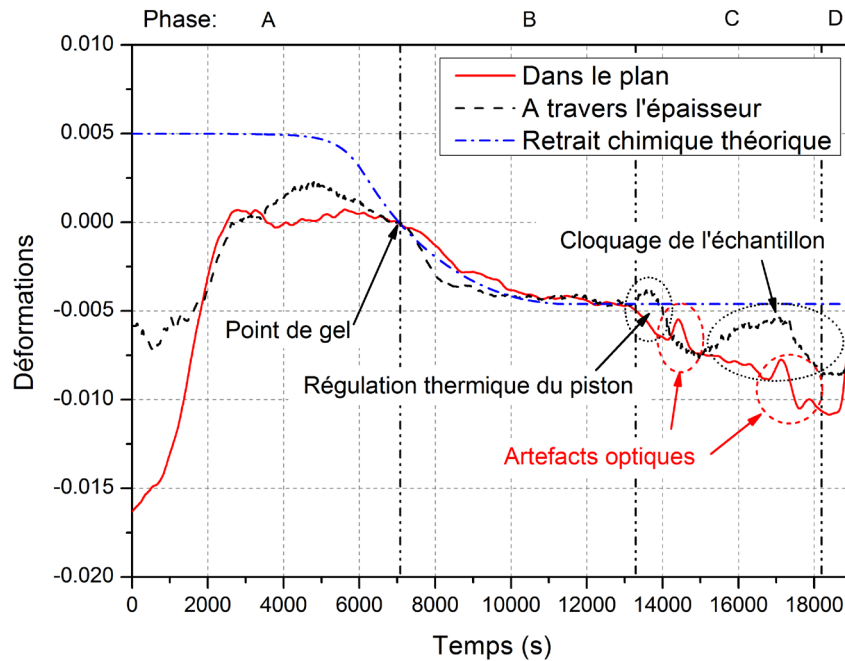


Figure 4.37: Déformations à travers l'épaisseur et dans le plan de l'échantillon recalées au point de gel

On remarque alors que la valeur atteinte par les déformations suivant les deux directions de mesure à la fin du plateau isotherme à 180°C sont identiques et correspondent à un retrait partiel de -0.46% (Tableau 4.6).

Tableau 4.6: Valeurs du retrait partiel mesuré dans les deux directions

Coefficient de retrait partiel mesuré	Unité	Valeur
Dans le plan	(%)	-0.46
Dans l'épaisseur	(%)	-0.46

Le point de gel étant à 52%, si on considère une relation linéaire entre l'avancement et le retrait chimique sur toute la gamme d'avancement, on peut estimer le retrait total dans les deux directions par simple règle de trois (Tableau 4.7).

Tableau 4.7: Valeurs du retrait total estimé expérimentalement et à l'aide de méthodes d'homogénéisation

Coefficient de retrait total estimé	Unité	Valeur
Dans le plan	(%)	-0.88
Dans l'épaisseur	(%)	-0.88
<b>Modèle homogénéisé cru (Dév. Asympt.)</b>	<b>(%)</b>	<b>-1.24</b>
<b>Modèle homogénéisé cuit (Dév. Asympt.)</b>	<b>(%)</b>	<b>-0.92</b>

Si l'on prend la valeur estimée expérimentalement de -0.88% et que l'on trace l'évolution du retrait chimique à l'aide de la relation (4.10), on obtient le retrait chimique théorique. Celui-ci est recalé au point de gel et tracé en Figure 4.37.

On remarque alors une bonne adéquation entre le retrait chimique théorique et les déformations dans les deux directions durant la phase B. Les valeurs de retrait chimique total estimées expérimentalement sont également comparées aux résultats issus de la méthode présentée en Annexe C (Tableau 4.7). Les développements asymptotiques donnent une valeur de retrait de -1.24% à l'état

cru et de  $-0.92\%$  à l'état réticulé, ce qui est proche de la valeur estimée expérimentalement. Il n'est pas possible d'estimer expérimentalement la valeur de retrait à l'état cru.

**Durant la phase C**, l'étude des déformations permettrait de déterminer les CTE à l'état cuit du matériau. On remarque que les déformations dans le plan suivent globalement les variations de température, les deux variations abruptes observées étant liées à des artefacts optiques de mesure. Le CTE déterminé pendant cette phase dans le plan de l'échantillon est alors de  $38 \pm 7 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ . Ces valeurs sont à peu près en accord avec celles issues du calcul à l'aide des développements asymptotiques, qui donnent une valeur de  $35 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ .

Ce n'est par contre pas le cas des déformations à travers l'épaisseur de l'échantillon. Celles-ci présentent en effet un pic au début du refroidissement dû à la régulation thermique du piston. Elles rejoignent les déformations dans le plan à  $t = 15000\text{s}$  avant d'augmenter alors que la température diminue. Ce phénomène est dû aux gradients de température à travers l'épaisseur de l'échantillon, provoquant un cloquage de celui-ci, faisant vriller sa surface supérieure. Il n'est donc malheureusement pas possible d'estimer de CTE à l'état cuit à travers l'épaisseur de l'échantillon.

### Comparaison au modèle homogénéisé équivalent

Le dernier point de comparaison est fait entre les déformations mesurées expérimentalement et recalées au point de gel et celles issues de la modélisation à l'aide des développements asymptotiques de la mise en forme de l'échantillon (Annexe C). En couplant l'approche thermo-chimique développée au chapitre 3 et présentée au début de cette section avec un modèle élastique linéaire prenant en compte les dilatations thermiques et le retrait chimique, il est possible d'estimer les déformations dans les deux directions de mesure.

Les propriétés mécaniques effectives du matériau sont déterminées à l'aide des relations présentées en annexe C sur la même cellule périodique que pour les propriétés thermo-chimiques. Le problème thermo-chémo-mécanique est résolu sur le même domaine 2D présenté en Figure 4.35. On considère la longueur des fibres infinies par rapport aux autres dimensions, on peut ainsi se placer dans l'hypothèse d'un état plan de déformation. Les conditions aux limites sont telles que les déplacements en  $\Gamma_0$  sont bloqués suivant  $x$ , ceux sur  $\Gamma_1$  en  $z$ , et une pression normale de  $0.7\text{MPa}$  est appliquée sur  $\Gamma_2$  et  $\Gamma_3$ .

A chaque étape en temps, le problème thermo-chimique est résolu, donnant ainsi les champs de température et d'avancement homogénéisés dans l'échantillon. Le problème thermo-chémo-mécanique est ensuite résolu à l'aide des champs précédents, donnant ainsi les champs de déformation et de contraintes. Ces résultats permettent de calculer les déformations moyennes sur la surface supérieure et la surface latérale de l'échantillon. Celles-ci sont comparées aux résultats expérimentaux en Figure 4.38, en recalant les courbes au point de gel pour éliminer la phase initiale.

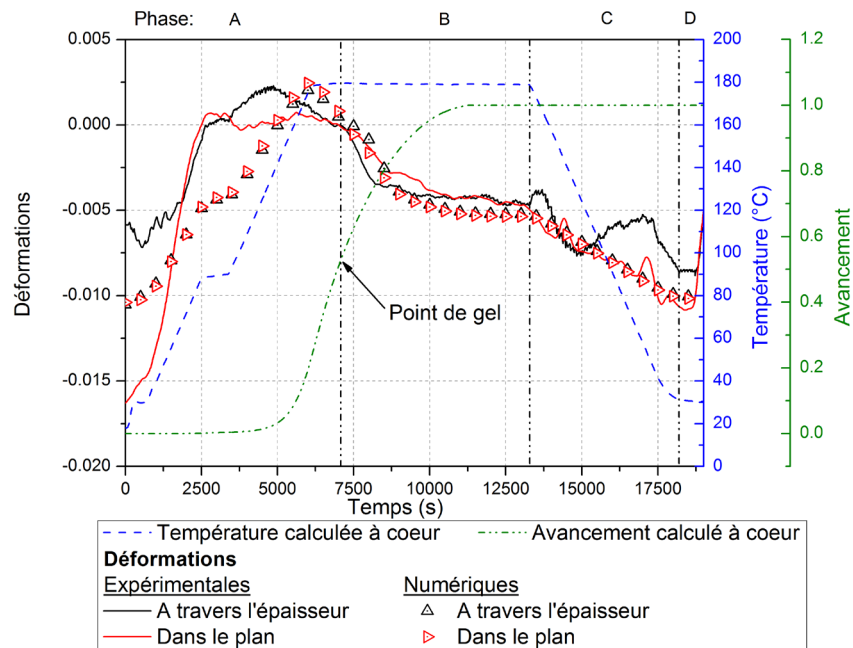


Figure 4.38: Déformations expérimentales et issues du modèle homogénéisé recalées au point de gel

Les déformations prédites par le modèle sont en accord avec les résultats expérimentaux durant la phase B. Durant le refroidissement (phase C), le modèle permet de prédire les déformations dans le plan. Les écarts existant proviennent d'une part du phénomène de cloquage de l'échantillon mais également du modèle mécanique utilisé dans la méthode d'homogénéisation. Celui-ci ne prend pas encore correctement en compte le développement des propriétés mécaniques de la résine, contrairement à ce qui a déjà été développé au chapitre 2.

Ces premiers résultats sont néanmoins rassurants à la fois vis-à-vis du dispositif développé mais également de l'approche d'homogénéisation en cours de développement. On retrouve dans les deux approches et à partir du point de gel un comportement isotrope transverse.

## 4.7 CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Aux vues des limitations existantes dans les méthodes actuelles d'identification des retraits chimiques dans les matériaux composites durant leur mise en forme, un nouveau dispositif a été conçu. Celui-ci permet la mesure simultanée suivant deux directions, des dilatations thermiques et retraits chimiques pouvant avoir lieu durant la transformation de la matière. L'échantillon a des dimensions représentatives des pièces fabriquées dans l'industrie, et les conditions opératoires sont elles aussi proches des conditions industrielles de mise en forme pour des préimprégnés, à savoir une température allant jusqu'à 200°C et une pression pouvant atteindre 1.0 MPa.

Les premiers essais ont été réalisés sur deux types de matériaux. Un SMC à fibres de verre et résine polyester d'une part, et un matériau UD à fibres de carbone et résine époxy d'autre part. Les résultats issus de ces essais ont permis d'améliorer le protocole de préparation et de réalisation des essais et de prouver la capacité du dispositif à pallier les manques des méthodes actuelles de caractérisation des retraits.

Dans le cas du matériau SMC, ils ont permis de montrer que la majeure partie des retraits avait lieu à travers l'épaisseur de l'échantillon, avec une valeur maximale de -4.0% contre -0.3% dans le plan. Les

CTE déterminés à l'état cuit sont en accord avec des mesures volumiques réalisées à l'aide du dispositif PvT $\alpha$ , dispositif de caractérisation déjà largement étudié et validé par ailleurs. La présence de gradients de température et d'avancement rend cependant l'analyse des déformations difficile. L'enthalpie de réaction mesurée à l'aide des capteurs de flux est en accord à la fois avec des mesures réalisées sur DSC et également à l'aide du PvT $\alpha$ .

Dans le cas du matériau UD, les déformations dans les deux directions sont bien identiques à partir du point de gel et jusqu'à la fin de la réaction. Le retrait total estimé suivant les deux directions de mesure est de -0.88%, ce qui est en accord avec la valeur de -0.92% issue de l'homogénéisation par développements asymptotiques. Le CTE mesuré dans le plan est de  $38 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  en moyenne, ce qui est également en accord avec la valeur de  $35 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  issue de l'homogénéisation. Il n'a malheureusement pas été possible d'analyser les données issues des capteurs de flux. La réaction étant lente (elle dure plus de 2 heures), le rapport signal sur bruit des capteurs est trop important pour détecter la faible exothermie de réaction.

Ces différents essais n'ont pu être réalisés qu'une fois. Afin de s'assurer de la répétabilité des mesures, des essais complémentaires sont nécessaires.

### Correction des défauts de conception

Il reste plusieurs points à améliorer. L'état de contraintes mécaniques autour du matériau devait, en théorie, être hydrostatique. Aux vues des déformations mesurées à l'état cru pour les deux matériaux de l'étude, il semble que cet état ne soit pas parfaitement maîtrisé. Un meilleur contrôle de ce paramètre permettrait de déterminer des CTE à l'état cru et limiter les incertitudes de mesure.

Une modification de la conception du dispositif permettrait d'assurer une meilleure régulation thermique du piston. En plus d'améliorer la mesure des déformations à travers l'épaisseur de l'échantillon, cela limiterait les différences de température entre la surface supérieure et la surface inférieure de l'échantillon, et donc les problèmes de gauchissement de l'échantillon.

Enfin, il pourrait être bénéfique d'améliorer la stabilité du profilomètre sans contact afin de limiter le bruit de mesure dans la direction du plan de l'échantillon ainsi que les artefacts optiques.

Malgré ces modifications à réaliser, les résultats sont encourageants et permettent une meilleure compréhension du comportement des matériaux composites durant leur mise en forme. L'utilisation de ce dispositif permettrait d'aller encore plus loin dans la caractérisation des matériaux composites, et plusieurs perspectives et pistes de recherche émanent de ces premiers travaux.

### Améliorations et perspectives

Dans un premier temps, l'utilisation d'un modèle numérique en complément des mesures expérimentales est nécessaire afin de prendre en compte les gradients de température et d'avancement. Cette modélisation doit être faite en trois dimensions afin de prendre en compte l'anisotropie du matériau et les gradients cités précédemment. On pourrait alors caractériser plus précisément les coefficients de dilatation thermique et de retrait chimique. Ce modèle est en partie réalisé et est présenté au chapitre 3 et en Annexe C. Il reste donc à l'exploiter. Il nécessite cependant de connaître la microstructure complexe et aléatoire du matériau dont il faut trouver le VER.

Le dispositif est monté sur une presse capable d'appliquer une sollicitation périodique de faible amplitude et à haute fréquence sur l'échantillon. En interrogeant mécaniquement l'échantillon en cours

de transformation, il pourrait être possible d'estimer une évolution des propriétés mécaniques du matériau durant sa transformation, à l'instar d'un appareil de type DMA.

L'ajout d'un deuxième profilomètre dans une direction du plan perpendiculaire à celle du capteur actuel permettrait, en un seul essai, de déterminer les tenseurs de dilatation thermique et de retrait chimique suivant les trois directions principales du matériau.

Enfin, une fois le dispositif complètement au point, il sera alors possible de tester un large éventail de matériaux, avec des empilements variés, et d'étudier l'influence des conditions de mise en forme sur les retraits dans ces matériaux durant leur transformation. Pour aller plus loin, on peut adapter ce dispositif à la caractérisation de matériaux composites à matrices thermoplastiques afin d'étendre l'éventail de possibilités.

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] Y. Nawab, S. Shahid, N. Boyard, F. Jacquemin, Chemical shrinkage characterization techniques for thermoset resins and associated composites, *J. Mater. Sci.* 48 (2013) 5387–5409.
- [2] N. Boyard, M. Vayer, C. Sinturel, R. Erre, D. Delaunay, Analysis and modeling of PVTX diagram of an unsaturated polyester resin, thermoplastic additive, and mineral fillers blend, *J. Appl. Polym. Sci.* 88 (2003) 1258–1267.
- [3] J. Beck, B. Blackwell, C. Clair, *Inverse heat conduction*, Wiley, New York, 1985.
- [4] R. Cardinaud, *Couplages thermo-cinétiques et mécaniques au cours du procédé de compression SMC*, Thèse de doctorat, Université de Nantes, 2016.
- [5] Y. Nawab, X. Tardif, N. Boyard, V. Sobotka, P. Casari, F. Jacquemin, Determination and modelling of the cure shrinkage of epoxy vinylester resin and associated composites by considering thermal gradients, *Compos. Sci. Technol.* 73 (2012) 81–87.
- [6] Y. Abou Msallem, F. Jacquemin, A. Poitou, Residual stresses formation during the manufacturing process of epoxy matrix composites: resin yield stress and anisotropic chemical shrinkage, *Int. J. Mater. Form.* 3 (2010) 1363–1372.
- [7] Y. Nawab, F. Jacquemin, P. Casari, N. Boyard, V. Sobotka, Evolution of chemical and thermal curvatures in thermoset-laminated composite plates during the fabrication process, *J. Compos. Mater.* (2012).
- [8] T. Garstka, N. Ersoy, K.D. Potter, M.R. Wisnom, In situ measurements of through-the-thickness strains during processing of AS4/8552 composite, *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.* 38 (2007) 2517–2526.





## CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

Ces travaux de thèse comportaient deux objectifs principaux. Il s'agissait, d'une part, de modéliser les phénomènes de retraits dans les matériaux composites, en prenant en compte les états thermique, chimique et mécanique de la matière. Cette modélisation devait être alimentée soit par des propriétés mesurées sur le matériau composite, soit estimées à partir des propriétés des constituants et d'une méthode d'homogénéisation. D'autre part, ils devaient permettre de mesurer les retraits anisotropes dans les matériaux composites durant leur mise en forme.

Le premier chapitre de cette thèse a permis de présenter un état de l'art des outils de caractérisation des propriétés physiques des résines thermodurcissables durant leur transformation et des propriétés physiques des fibres. Les différentes méthodes d'homogénéisation des propriétés des matériaux composites y sont également décrites. Enfin, les méthodes de caractérisation des propriétés physiques des matériaux composites durant leur transformation ont également été abordées. Cet état de l'art a permis de soulever plusieurs problématiques. D'une part, la mesure des propriétés mécaniques de la résine, et notamment son module de compressibilité, fait l'objet de peu de travaux. Le changement d'état de la matrice est une contrainte qu'il est difficile de maîtriser. Ensuite, il existe un nombre important de méthodes d'estimation des propriétés équivalentes des matériaux composites à partir de celles de leurs constituants. Peu d'entre elles reposent sur un formalisme permettant de déterminer si un milieu homogène équivalent existe bel et bien. La méthode des développements asymptotiques permet de répondre à cette question. L'homogénéisabilité du problème thermo-chimique couplé de la mise en forme des matériaux composites n'a cependant jamais été discutée. De même, l'utilisation de cette méthode afin de prédire le retrait chimique ne semble pas avoir été abordée. Enfin, tout comme pour les propriétés mécaniques de la résine, la mesure des retraits anisotropes dans les matériaux composites durant la totalité de la transformation est limitée par un certain nombre de verrous. Parmi ces verrous, on peut citer l'intrusivité des capteurs locaux, les conditions de réalisation des essais non représentatives des conditions de mise en forme rencontrées dans l'industrie ou encore l'absence d'information précise sur l'état thermo-chimique de l'échantillon.

La mesure des propriétés thermo-mécaniques de la résine au cours de la transformation fait l'objet du second chapitre. Le dispositif  $PvT\alpha$ , dédié à la caractérisation des résines thermodurcissables et aux composites associés, y est décrit. Un récent développement a permis d'estimer l'évolution du module de compressibilité de la résine au cours de sa transformation à l'aide de ce dispositif. Cette estimation repose sur une méthode directe, basée sur les seuls résultats expérimentaux. Un certain nombre d'hypothèses qu'il n'est pas possible de vérifier expérimentalement a toutefois été posé. Afin de les vérifier, un modèle multi-physiques du dispositif est proposé. Celui-ci décrit les comportements thermo-chimique de l'échantillon et de la capsule le contenant dans le dispositif, ainsi que leurs comportements mécaniques, là où les modèles existant et utilisés dans le passé ne s'intéressaient qu'aux seuls comportements thermo-chimique et volumique de l'échantillon. Ce nouveau modèle a été validé à l'aide de résultats expérimentaux et numériques. Cette validation faite, un certain nombre d'essais numériques ont été entrepris afin de vérifier les hypothèses de départ et d'estimer le module de compressibilité de l'échantillon virtuel à l'aide de la méthode directe. D'importantes erreurs sont réalisées dans l'estimation du module de compressibilité de la résine en dehors et durant la transformation. Une partie de ces erreurs provient du comportement thermo-mécanique de la capsule, mais elle reste cependant acceptable. La part la plus importante de ces erreurs est due à la présence de gradients de température et d'avancement dans l'échantillon, que la méthode directe ne permet pas de prendre en compte. Le modèle numérique multi-physiques développé dans ce travail permet de mieux

comprendre et analyser l'état mécanique de l'échantillon et de la capsule au cours de la transformation. Il permet d'estimer les erreurs commises et de proposer des protocoles de mesure améliorés. A terme, il permettra une identification précise des propriétés mécaniques de la résine au cours de la transformation.

Dans le troisième chapitre, on propose d'étudier le problème thermo-chimique de la mise en forme des matériaux composites à l'aide de la méthode d'homogénéisation par développements asymptotiques. Cette méthode se base sur la description à l'échelle microscopique du problème et permet de déterminer si le problème est homogénéisable, auquel cas elle assure l'estimation des propriétés homogènes équivalentes du matériau composite. L'homogénéisabilité du problème thermo-chimique est discutée. Deux nombres adimensionnels sont identifiés, et caractérisent le ratio de la chaleur latente de réaction sur la chaleur sensible du matériau, et le ratio du temps caractéristique de la réaction sur le temps de diffusion thermique. Il apparaît que, sous certaines conditions telles qu'une réaction de réticulation trop intense ou trop rapide, le problème n'est pas forcément homogénéisable. Ces cas restent cependant anecdotiques et la majorité des problèmes de mise en forme des matériaux composites usuels sont homogénéisables. Le terme source homogène équivalent est alors obtenu par simple loi des mélanges entre les propriétés des fibres et de la résine sur la cellule périodique, si on suppose la cinétique inchangée par la présence des fibres. La méthode d'homogénéisation par développements asymptotiques peut également être appliquée au modèle thermo-chimio-mécanique de mise en forme des matériaux composites. A ce titre, on s'est basé en annexe C sur une approche élastique linéaire prenant en compte les dilatations thermiques et le retrait chimique des fibres et de la matrice. Les premiers résultats semblent prometteurs et permettent de prédire des retraits anisotropes comparables aux résultats expérimentaux.

Enfin, le dernier chapitre porte sur la mesure des retraits anisotropes dans les matériaux composites. Un nouveau dispositif de caractérisation de ces retraits y est présenté. Il permet la mesure simultanée des déformations d'un échantillon de composite suivant deux directions: une à travers l'épaisseur de l'échantillon et l'autre dans son plan. En plus de cela, d'autres grandeurs physiques telles que l'avancement de la réaction, la température en surface de l'échantillon et la pression sont mesurées. De nombreuses validations expérimentales ont été menées, permettant de s'assurer du bon fonctionnement du dispositif. Deux matériaux composites ont par la suite été caractérisés: un SMC verre-polyester et un UD carbone-époxy. Les résultats pour le SMC ont été comparés à ceux issus d'essais réalisés sur le dispositif PvT $\alpha$  et sur un dispositif DSC, permettant de valider le nouveau dispositif de mesure en terme de mesure des dilatations et de l'enthalpie de réaction. Les résultats suggèrent que la majorité du retrait chimique a lieu à travers l'épaisseur de l'échantillon, et que le matériau n'est pas parfaitement isotrope transverse. Concernant le matériau UD, le modèle présenté au chapitre précédent a été appliqué à cet essai afin d'estimer l'avancement dans l'échantillon. Les résultats indiquent qu'à partir du point de gel de la résine, le comportement est identique suivant les deux directions transverses aux fibres. La valeur de retrait total estimé expérimentalement dans les deux directions est en accord avec celle estimée par développements asymptotiques et présentée en annexe C. Bien qu'il reste de nombreux points à améliorer dans la conception de ce dispositif, celui-ci semble très prometteur dans la caractérisation des retraits anisotropes en cours de transformation.

Les perspectives liées à ces travaux sont nombreuses. La modélisation du PvT $\alpha$  présentée dans le second chapitre a permis de mettre en évidence l'influence du développement du module de cisaillement de l'échantillon sur l'état de contraintes de la capsule. En instrumentant le dispositif à l'aide d'un capteur de pression sur la partie latérale de la cavité moulante au niveau de la capsule, il serait théoriquement envisageable de mesurer l'évolution de ce module au cours de la transformation. Le PvT $\alpha$  serait alors en mesure de caractériser de manière encore plus complète les résines thermodurcissables durant leur transformation.

La modélisation du problème thermo-chimique de mise en forme dans les matériaux composites durant leur transformation présentée au chapitre 3 nécessiterait encore quelques développements. En effet, celle-ci ne prend pas en compte une possible dépendance simultanée des propriétés thermo-physiques à la température et à l'avancement de la réaction, seule la thermodépendance ayant été traitée. Ces non-linéarités sont pourtant indispensables afin de décrire finement l'état thermo-chimique de la matière durant sa transformation. Les incorporer dans le modèle thermo-chimique homogénéisé demande quelques développements qui, *a priori*, ne présenteraient pas de difficultés particulières. Ces modèles ont également besoin d'un certain nombre de validations expérimentales afin que l'on soit sûr qu'ils décrivent précisément les phénomènes ayant lieu durant la mise en forme des matériaux composites. La prise en compte de plus de deux échelles, *e.g.* de la fibre dans la mèche, de la mèche dans le pli et du pli dans la pièce, est une étape supplémentaire dans l'amélioration de la finesse de la description des phénomènes ayant lieu durant la transformation de la matière.

Les premiers développements présentés en annexe C et relatifs à la modélisation du comportement thermo-chimio-mécanique des matériaux composites sont à poursuivre. Le modèle utilisé pour décrire le comportement mécanique de la résine ne prend pour le moment pas correctement en compte le développement des propriétés mécaniques de la résine. Or, celles-ci se développent considérablement durant la transformation, prenant plusieurs ordres de grandeur dans le cas du module de cisaillement. Une étude de l'homogénéisabilité du problème s'impose également, les rigidités des différentes phases étant alors très contrastées durant les premiers instants de la transformation.

Enfin, le dispositif de caractérisation des retraits anisotropes dans les matériaux composites durant leur transformation a un fort potentiel d'exploitation. Un certain nombre de modifications sont à prévoir, notamment en ce qui concerne la régulation thermique du piston. Il serait également possible de rajouter un second profilomètre afin d'obtenir, en un essai, les déformations de l'échantillon suivant les trois principales directions de l'espace. Une fois les améliorations réalisées en terme de conception du dispositif, il permettra d'étudier un vaste éventail de matériaux aux empilements différents et ce afin de mieux comprendre les phénomènes de retraits et l'influence des conditions de mise en forme sur ceux-ci. La prise en compte des gradients d'avancement et de température à travers l'épaisseur de l'échantillon est une étape indispensable à l'amélioration de la méthode d'analyse des résultats. Celle-ci peut se faire en deux temps. Tout d'abord, un simple modèle 1D à travers l'épaisseur permettrait de prédire ces gradients et d'analyser le comportement de l'échantillon à travers son épaisseur. Dans un second temps, l'utilisation d'un modèle thermo-chimio-mécanique couplé tel que celui présenté en annexe C permettrait d'améliorer l'analyse des résultats expérimentaux en prenant en compte les potentiels gradients de température et d'avancement présents dans l'échantillon, et de décrire son comportement 3D en prenant en compte l'anisotropie du matériau. Finalement, l'appareil étant monté sur une presse pouvant appliquer une sollicitation cyclique, il serait possible d'interroger mécaniquement l'échantillon au cours de la transformation afin d'estimer l'évolution de ses propriétés mécaniques. On obtiendrait alors un appareil de caractérisation multi-fonctionnel et multi-axial des matériaux composites durant la totalité de leur mise en forme, sous conditions de mise en forme industrielles

Pour résumer les perspectives développées précédemment, ces travaux permettraient d'améliorer la caractérisation mécanique des résines thermodurcissables durant leur mise en forme. A l'aide des propriétés ainsi identifiées et des méthodes d'homogénéisation par développements asymptotiques, il serait possible de prédire les retraits anisotropes dans les matériaux composites ainsi que le développement des contraintes résiduelles en leur sein. Les modèles utilisés afin de prédire le comportement thermo-chimio-mécanique des matériaux prendraient en compte la dépendance des différentes propriétés à l'avancement de la réaction et la température, ainsi que les possibles gradients d'avancement, de température, et par conséquent de propriétés au sein des pièces, et ce, à différentes échelles. Enfin, le dispositif expérimental conçu permettrait de caractériser finement les phénomènes de retraits anisotropes dans les matériaux composites, ce qui représente une étape nécessaire et importante dans la compréhension du développement des contraintes résiduelles.

---

# ANNEXE A

## DISCRETISATION DU MODELE ELEMENTS FINIS DU $PvT\alpha$

---

---

### TABLE DES MATIERES

A.1	Modèle thermo-chimique .....	204
A.1.1	Formulation faible .....	204
A.1.2	Schéma temporel .....	204
A.1.3	Discrétisation.....	205
A.1.4	Matrice tangente .....	206
A.2	Modèle mécanique de la capsule.....	208
A.2.1	Formulation faible .....	208
A.2.2	Discrétisation et écriture matricielle.....	208
A.3	Modèle mécanique de l'échantillon .....	210
A.3.1	Formulation faible .....	210
A.3.2	Discrétisation et écriture matricielle.....	210

## A.1 MODELE THERMO-CHEMIQUE

### A.1.1 FORMULATION FAIBLE

Pour rappel, la formulation faible du problème thermo-chimique est donné par les équations:

$$\int_{\Omega_c} \rho_c C p_c \frac{\partial T_c}{\partial t} T_c^* dV + \int_{\Omega_c} \lambda_c \nabla T_c \nabla T_c^* dV + \int_{\Gamma_{top}} \left( \frac{T_c - T_{ext}}{\gamma_{sup}} \right) T_c^* d\Gamma + \int_{\Gamma_{int}} \varphi T_c^* d\Gamma = 0, \forall T_c^* \quad (\text{A.1})$$

$$\int_{\Omega_e} \rho_e C p_e \frac{\partial T_e}{\partial t} T_e^* dV + \int_{\Omega_e} \lambda_e \nabla T_e \nabla T_e^* dV - \int_{\Omega_e} \rho_e \Delta H_e \frac{\partial x_e}{\partial t} T_e^* dV - \int_{\Gamma_{int}} \varphi T_e^* = 0, \forall T_e^* \quad (\text{A.2})$$

$$\int_{\Omega_e} \frac{\partial x_e}{\partial t} x_e^* dV - \int_{\Omega_e} F(T_e, x_e) x_e^* dV = 0, \forall x_e^* \quad (\text{A.3})$$

$$\int_{\Gamma_{int}} \varphi \varphi^* - \int_{\Gamma_{int}} \frac{T_c - T_e}{\gamma_{int}} \varphi^* = 0, \forall \varphi^* \quad (\text{A.4})$$

### A.1.2 SCHEMA TEMPOREL

Afin de résoudre le problème temporel, on utilise un schéma d'Euler implicite. On écrit alors:

$$\dot{T}_i = \frac{T_i(t_{n+1}) - T_i(t_n)}{\Delta t}, \quad \dot{x}_e = \frac{x_e(t_{n+1}) - x_e(t_n)}{\Delta t}, \quad (\text{A.5})$$

où  $\Delta t$  représente l'incrément de temps tel que  $t_{n+1} = t_n + \Delta t$ . Pour alléger les équations suivantes, on notera:

$$X_i^t = X_i(t), \quad (\text{A.6})$$

où  $X_i$  est un champ défini dans le domaine  $i$ .

Les équations (A.1) à (A.4) deviennent alors:

$$\int_{\Omega_c} \rho_c C p_c \frac{T_c^{t_{n+1}} - T_c^{t_n}}{\Delta t} T_c^* dV + \int_{\Omega_c} \lambda_c \nabla T_c^{t_{n+1}} \nabla T_c^* dV + \int_{\Gamma_{top}} \left( \frac{T_c^{t_{n+1}} - T_{ext}^{t_{n+1}}}{\gamma_{sup}} \right) T_c^* + \int_{\Gamma_{int}} \varphi^{t_{n+1}} T_c^* d\Gamma = 0, \forall T_c^* \quad (\text{A.7})$$

$$\int_{\Omega_e} \rho_e C p_e \frac{T_e^{t_{n+1}} - T_e^{t_n}}{\Delta t} T_e^* dV + \int_{\Omega_e} \lambda_e \nabla T_e^{t_{n+1}} \nabla T_e^* dV - \int_{\Omega_e} \rho_e \Delta H_e \frac{x_e^{t_{n+1}} - x_e^{t_n}}{\Delta t} T_e^* dV - \int_{\Gamma_{int}} \varphi^{t_{n+1}} T_e^* = 0, \forall T_e^* \quad (\text{A.8})$$

$$\int_{\Omega_e} \frac{x_e^{t_{n+1}} - x_e^{t_n}}{\Delta t} x_e^* dV - \int_{\Omega_e} F(T_e^{t_{n+1}}, x_e^{t_{n+1}}) x_e^* dV = 0, \forall x_e^* \quad (\text{A.9})$$

$$\int_{\Gamma_{int}} \varphi^{t_{n+1}} \varphi^* - \int_{\Gamma_{int}} \frac{T_c^{t_{n+1}} - T_e^{t_{n+1}}}{\gamma_{int}} \varphi^* = 0, \forall \varphi^* \quad (\text{A.10})$$

### A.1.3 DISCRETISATION

Afin de résoudre le problème précédent à l'aide de la méthode des éléments finis, on doit discrétiser les différents champs introduits. On pose alors:

$$\begin{aligned} T_c^{t_{n+1}} &= [N_c] \{T_c^{t_{n+1}}\}, T_c^{t_n} = [N_c] \{T_c^{t_n}\}, T_c^* = [N_c] \{T_c^*\} \\ T_e^{t_{n+1}} &= [N_e] \{T_e^{t_{n+1}}\}, T_e^{t_n} = [N_e] \{T_e^{t_n}\}, T_e^* = [N_e] \{T_e^*\} \\ x_e^{t_{n+1}} &= [N_e] \{x_e^{t_{n+1}}\}, x_e^{t_n} = [N_e] \{x_e^{t_n}\}, x_e^* = [N_e] \{x_e^*\} \\ \varphi^{t_{n+1}} &= [N_\varphi] \{\varphi^{t_{n+1}}\}, \varphi^* = [N_\varphi] \{\varphi^*\} \end{aligned}$$

On définit également l'expression des gradients:

$$\nabla X_c = [B_c] \{X_c\}, \nabla X_e = [B_e] \{X_e\}$$

L'équation (A.7) devient, une fois discrétisée:

$$\{T_c^*\}^T \left( [C]_c \{T_c^{t_{n+1}}\} + [\lambda]_c \{T_c^{t_{n+1}}\} - \{F\}_c \right) = \{T_c^*\}^T \{R_T\}_c \quad (\text{A.11})$$

avec

$$[C]_c = \frac{1}{\Delta t} \int_{\Omega_c} \rho_c C p_c [N_c]^T [N_c] dV, \quad (\text{A.12})$$

$$[\lambda]_c = \int_{\Omega_c} \lambda_c [B_c]^T [B_c] dV + \frac{1}{\gamma_{sup}} \int_{\Gamma_{top}} [N_c]^T [N_c] d\Gamma - \int_{\Gamma_{int}} \lambda_c [N_c]^T [G_c]^T [B_c] d\Gamma, \quad (\text{A.13})$$

$$\{F\}_c = \frac{1}{\Delta t} \int_{\Omega_c} \rho_c C p_c [N_c]^T [N_c] \{T_c^{t_n}\} dV + \frac{1}{\gamma_{sup}} \int_{\Gamma_{top}} [N_c]^T T_{ext} d\Gamma + \int_{\Gamma_{int}} [N_c]^T [N_\varphi] \{\varphi\} d\Gamma, \quad (\text{A.14})$$

où  $[G_c]$  représente la matrice des normales à la surface  $\Gamma_{int}$ .

De la même façon (A.8) devient:

$$\{T_e^*\}^T \left( [C]_e \{T_e^{t_{n+1}}\} + [\lambda]_e \{T_e^{t_{n+1}}\} - \{F\}_e \right) = \{T_e^*\}^T \{R_T\}_e \quad (\text{A.15})$$

avec

$$[C]_e = \frac{1}{\Delta t} \int_{\Omega_e} \rho_e C p_e [N_e]^T [N_e] dV, \quad (\text{A.16})$$

$$[\lambda]_e = \int_{\Omega_e} \lambda_e [B_e]^T [B_e] dV - \int_{\Gamma_{int}} \lambda_e [N_e]^T [G_e]^T [B_e] d\Gamma, \quad (\text{A.17})$$

$$\begin{aligned} \{F\}_e &= \frac{1}{\Delta t} \int_{\Omega_e} \rho_e C p_e [N_e]^T [N_e] \{T_e^{tn}\} dV - \int_{\Gamma_{int}} [N_e]^T [N_\varphi] \{\varphi\} d\Gamma \\ &+ \frac{1}{\Delta t} \int_{\Omega_e} \rho_e \Delta H_e [N_e]^T [N_e] \{x_e^{tn+1}\} dV - \frac{1}{\Delta t} \int_{\Omega_e} \rho_e \Delta H_e [N_e]^T [N_e] \{x_e^{tn}\} dV. \end{aligned} \quad (\text{A.18})$$

En appliquant un procédé similaire à l'équation (A.9), il vient:

$$\{x_e^*\}^T \left( [C_x]_e \{x_e^{tn+1}\} - \{F_x\}_e \right) = \{x_e^*\}^T \{R_x\}_e, \quad (\text{A.19})$$

avec

$$[C_x]_e = \frac{1}{\Delta t} \int_{\Omega_e} [N_e]^T [N_e] dV, \quad (\text{A.20})$$

$$\{F_x\}_e = \frac{1}{\Delta t} \int_{\Omega_e} [N_e]^T [N_e] \{x_e^{tn}\} dV + \int_{\Omega_e} [N_e]^T F(T_e, x_e) dV. \quad (\text{A.21})$$

Enfin, l'équation (A.10) devient:

$$\{\varphi^*\}^T \left( [C]_\varphi \{\varphi^{tn+1}\} - \{F\}_\varphi \right) = \{\varphi^*\}^T \{R\}_\varphi, \quad (\text{A.22})$$

avec

$$[C]_\varphi = \int_{\Gamma_{int}} [N_\varphi]^T [N_\varphi] d\Gamma, \quad (\text{A.23})$$

$$\{F\}_\varphi = \frac{1}{\gamma_{int}} \int_{\Gamma_{int}} [N_e]^T \left( [N_c] \{T_c^{tn+1}\} - [N_e] \{T_e^{tn+1}\} \right) dV. \quad (\text{A.24})$$

#### A.1.4 MATRICE TANGENTE

Le résidu général du problème  $\{R\}$  est donné par les équations (A.11), (A.15), (A.19) et (A.22):

$$\{w^*\}^T \{R\} = \begin{Bmatrix} \{T_c^*\} \\ \{T_e^*\} \\ \{x_e^*\} \\ \{\varphi^*\} \end{Bmatrix}^T \begin{Bmatrix} \{R_r\}_c \\ \{R_r\}_e \\ \{R_x\}_e \\ \{R\}_\varphi \end{Bmatrix} \quad (\text{A.25})$$

On définit également le vecteur général des inconnues du problème  $\{w\}$ :

$$\{w\} = \begin{Bmatrix} \{T_c\} \\ \{T_e\} \\ \{x_e\} \\ \{\varphi\} \end{Bmatrix} \quad (\text{A.26})$$

On cherche l'incrément  $\Delta w$  de manière à annuler le résidu de  $w+\Delta w$ . Celui-ci est donné par:

$$\{\Delta w\} = [\mathbf{K}]^{-1} \{R(w)\} \quad (\text{A.27})$$

et la matrice tangente du problème général  $\mathbf{K}$  est donnée par:

$$[\mathbf{K}] = - \left. \frac{\partial \{R(w)\}}{\partial \{w\}} \right|_w \quad (\text{A.28})$$

La forme complète de la matrice  $\mathbf{K}$  est alors:

$$[\mathbf{K}] = \begin{bmatrix} K_{T_c T_c} & 0 & 0 & K_{T_c \varphi} \\ 0 & K_{T_e T_e} & K_{T_e x_e} & K_{T_e \varphi} \\ 0 & K_{x_e T_e} & K_{x_e x_e} & 0 \\ K_{\varphi T_c} & K_{\varphi T_e} & 0 & K_{\varphi \varphi} \end{bmatrix} \quad (\text{A.29})$$

Avec:

$$\begin{aligned} K_{T_c T_c} &= - \left. \frac{\partial \{R_T\}_c}{\partial \{T_c\}} \right|_w, & K_{T_c \varphi} &= - \left. \frac{\partial \{R_T\}_c}{\partial \{\varphi\}} \right|_w, & K_{T_e T_e} &= - \left. \frac{\partial \{R_T\}_e}{\partial \{T_e\}} \right|_w, \\ K_{T_e x_e} &= - \left. \frac{\partial \{R_T\}_e}{\partial \{x_e\}} \right|_w, & K_{T_e \varphi} &= - \left. \frac{\partial \{R_T\}_e}{\partial \{\varphi\}} \right|_w, & K_{x_e T_e} &= - \left. \frac{\partial \{R_x\}_e}{\partial \{T_e\}} \right|_w, \\ K_{x_e x_e} &= - \left. \frac{\partial \{R_x\}_e}{\partial \{x_e\}} \right|_w, & K_{\varphi T_c} &= - \left. \frac{\partial \{R\}_\varphi}{\partial \{T_c\}} \right|_w, & K_{\varphi T_e} &= - \left. \frac{\partial \{R\}_\varphi}{\partial \{T_e\}} \right|_w, \\ K_{\varphi \varphi} &= - \left. \frac{\partial \{R\}_\varphi}{\partial \{\varphi\}} \right|_w \end{aligned} \quad (\text{A.30})$$

On donne, à titre d'exemple, l'expression de la matrice  $K_{T_c T_c}$ :

$$\begin{aligned} K_{T_c T_c} &= - \left. \frac{\partial \{R_T\}_c}{\partial \{T_c\}} \right|_w \\ &= \left[ - [C]_c - \frac{\partial [C]_c}{\partial \{T_c\}} \{T_c^{n+1}\} - [\lambda]_c - \frac{\partial [\lambda]_c}{\partial \{T_c\}} \{T_c^{n+1}\} - \frac{\partial \{F\}_c}{\partial \{T_c\}} \right] \Bigg|_w, \end{aligned} \quad (\text{A.31})$$

avec

$$\frac{\partial [C]_c}{\partial \{T_c\}} = \frac{1}{\Delta t} \int_{\Omega_c} \frac{\partial \rho_c C p_c}{\partial \{T_c\}} [N_c] [N_c]^T [N_c] dV \quad (\text{A.32})$$

$$\frac{\partial [\lambda]_c}{\partial \{T_c\}} = \int_{\Omega_c} \frac{\partial \lambda_c}{\partial \{T_c\}} [N_c] [B_c]^T [B_c] dV - \int_{\Gamma_{int}} \frac{\partial \lambda_c}{\partial \{T_c\}} [N_c] [N_c]^T [G_c]^T [B_c] d\Gamma \quad (\text{A.33})$$

Le détail du calcul des autres matrices n'est pas présenté par soucis de clarté.

## A.2 MODELE MECANIQUE DE LA CAPSULE

### A.2.1 FORMULATION FAIBLE

La formulation faible du problème mécanique de la capsule est donnée par les équations:

$$\int_{\Omega_c} 2\mu_c \boldsymbol{\varepsilon}_c^d : \nabla \mathbf{u}_c^* dV - \int_{\Omega_c} p_c \mathbf{I} : \nabla \mathbf{u}_c^* dV - \int_{\Gamma_{int}} \mathbf{t}_{e/c} \cdot \mathbf{u}_c^* dV + \int_{\Gamma_{sup}} \text{tg}\nu (u_{zc} - u_p) \mathbf{u}_c^* d\Gamma = 0, \forall \mathbf{u}_c^* \quad (\text{A.34})$$

$$\int_{\Omega_c} \left( \frac{-p_c}{K_c} - \text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}_c) + \text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}_c^{th}) \right) p_c^* dV = 0, \forall p_c^* \quad (\text{A.35})$$

$$\left( \int_{\Gamma_{sup}} (\boldsymbol{\sigma}_c \cdot \mathbf{n}_c) \cdot \mathbf{n}_c d\Gamma - F_{imp}(t) \right) u_p^* = 0, \forall u_p^* \quad (\text{A.36})$$

### A.2.2 DISCRETISATION ET ECRITURE MATRICIELLE

On discrétise alors les différents champs recherchés et les fonctions test associées à l'aide des relations suivantes:

$$\mathbf{u}_c = [N_c^u] \{U_c\}, u_{zc} = [N_c^{uz}] \{U_c\}, p_c = [N_c^p] \{P_c\}, \mathbf{u}_c^* = [N_c^u] \{U_c^*\}, p_c^* = [N_c^p] \{P_c^*\}, \quad (\text{A.37})$$

auxquelles on rajoute:

$$\begin{aligned} \mathbf{u}_c &= [N_c^u] \{U_c\}, p_c = [N_c^p] \{P_c\} \\ \boldsymbol{\varepsilon}_c^d &= [B_c^d] \{U_c\}, \text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}_c) = [B_c^{vol}] \{U_c\}, \text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon}_c^{th}) = [N_c^u] \{U_c^{th}\}, \end{aligned} \quad (\text{A.38})$$

$u_p$  étant une variable scalaire, on n'a pas besoin de la discrétiser.

La participation de la condition de contact mécanique entre l'échantillon et la capsule n'est pas prise en compte dans les équations suivantes. Elle est traitée plus en détails en annexe B.

L'équation (A.34) devient:

$$\{U_c^*\}^T \left( [K_{u_c u_c}] \{U_c\} - [K_{u_c p_c}] \{P_c\} - [K_{u_c u_p}] u_p \right) = \{U_c^*\}^T \{R_u\}_c, \quad (\text{A.39})$$

avec

$$K_{u_c u_c} = \int [B_c^d]^T [D] [B_c^d] dV + \int t g v [N_c^u]^T [N_c^{uz}] d\Gamma, \quad (\text{A.40})$$

$$K_{u_c p_c} = \int [B_c^{vol}]^T [N_c^p] dV, \quad (\text{A.41})$$

$$K_{u_c u_p} = \int t g v [N_c^u]^T dV. \quad (\text{A.42})$$

De la même façon, l'équation (A.35) devient:

$$\{P_c^*\}^T \left( -[K_{p_c u_c}] \{U_c\} - [K_{p_c p_c}] \{P_c\} + \{U_c^{th}\} \right) = \{P_c^*\}^T \{R_p\}_c, \quad (\text{A.43})$$

où  $\{U_c^{th}\}$  représente les valeurs nodales de la dilatation thermique de la capsule, et avec

$$K_{p_c u_c} = \int [N_c^p]^T [B_c^{vol}] dV, \quad (\text{A.44})$$

$$K_{p_c p_c} = \int \frac{1}{K_c} [N_c^p]^T [N_c^p] dV. \quad (\text{A.45})$$

Enfin l'équation (A.36) devient:

$$u_p^\circ \left( [K_{u_p u_c}] \{U_c\} - [K_{u_p p_c}] \{P_c\} - F_{imp}(t) \right) = u_p^\circ R_{u_p}, \quad (\text{A.46})$$

avec

$$K_{u_p u_c} = \int \{\mathbf{n}_c\}^T [G_c] [D_c] [B_c^d] d\Gamma \quad (\text{A.47})$$

$$K_{u_p p_c} = \int \{\mathbf{n}_c\}^T \{\mathbf{n}_c\} [N_c^p] d\Gamma \quad (\text{A.48})$$

où  $\{\mathbf{n}_c\}$  représente le vecteur des normales à la surface du domaine  $\Omega_c$ .

La matrice tangente du problème mécanique de la capsule est directement donnée par:

$$[\mathbf{K}_{cc}] = \begin{bmatrix} K_{u_c u_c} & K_{u_c p_c} & K_{u_c u_p} \\ K_{p_c u_c} & K_{p_c p_c} & 0 \\ K_{u_p u_c} & K_{u_p p_c} & 0 \end{bmatrix} \quad (\text{A.49})$$

## A.3 MODELE MECANIQUE DE L'ECHANTILLON

### A.3.1 FORMULATION FAIBLE

La formulation faible du modèle mécanique de l'échantillon est donnée par:

$$\begin{aligned} & \int_{\Omega_e} \boldsymbol{\sigma}_e(t_n) : \nabla \mathbf{u}_e^* dV + 2 \int_{\Omega_e} \mu_e(t_{n+1}) \boldsymbol{\varepsilon}_e^d(t_{n+1}) : \nabla \mathbf{u}_e^* dV - 2 \int_{\Omega_e} \mu_e(t_{n+1}) \boldsymbol{\varepsilon}_e^d(t_n) : \nabla \mathbf{u}_e^* dV \\ & - \int_{\Omega_e} p_e(t_{n+1}) \mathbf{I} : \nabla \mathbf{u}_e^* dV + \int_{\Omega_e} p_e(t_n) \mathbf{I} : \nabla \mathbf{u}_e^* dV - \int_{\Gamma_{int}} \mathbf{t}_{c/e} \cdot \mathbf{u}_e^* dV = 0, \forall \mathbf{u}_e^* \end{aligned} \quad (\text{A.50})$$

$$\begin{aligned} & \int_{\Omega_e} \left( \frac{1}{K_e(t_{n+1})} [p_e(t_{n+1}) - p_e(t_n)] + [tr(\boldsymbol{\varepsilon}_e(t_{n+1})) - tr(\boldsymbol{\varepsilon}_e(t_n))] \right. \\ & \left. + [tr(\boldsymbol{\varepsilon}_e^{th}(t_{n+1})) - tr(\boldsymbol{\varepsilon}_e^{th}(t_n))] + [tr(\boldsymbol{\varepsilon}_e^{ch}(t_{n+1})) - tr(\boldsymbol{\varepsilon}_e^{ch}(t_n))] \right) p_e^* dV = 0, \forall p_e^* \end{aligned} \quad (\text{A.51})$$

### A.3.2 DISCRETISATION ET ECRITURE MATRICIELLE

Tout comme pour la capsule, on discrétise les champs recherchés et les fonctions test associées au problème décrit précédemment à l'aide des relations:

$$\mathbf{u}_e = [N_e^u] \{U_e\}, p_e = [N_e^p] \{P_e\}, \mathbf{u}_e^* = [N_e^u] \{U_e^*\}, p_e^* = [N_e^p] \{P_e^*\} \quad (\text{A.52})$$

L'écriture du résidu issu de l'équation (A.50) est explicité alors par:

$$\{U_e^*\}^T \left( [K_{ueue}] \{U_e^{t_{n+1}}\} - [K_{uepe}] \{P_e^{t_{n+1}}\} - \{F_{ue}\} \right) = \{U_e^*\}^T \{R_u\}_e \quad (\text{A.53})$$

avec

$$K_{ueue} = \int [B_e^d]^T [D_e^{t_{n+1}}] [B_e^d] dV \quad (\text{A.54})$$

$$K_{uepe} = \int [B_e^{vol}]^T [N_e^p] dV \quad (\text{A.55})$$

$$\begin{aligned} F_{ue} &= \int [B_e^d]^T [N_e^p] \{\boldsymbol{\sigma}_e^{tn}\} dV - \int [B_e^d]^T [D_e^{t_{n+1}}] [B_e^d] \{U_e^{tn}\} dV \\ &+ \int [B_e^{vol}]^T [N_e^p] \{P_e^{tn}\} dV \end{aligned} \quad (\text{A.56})$$

Le résidu de l'équation (A.51) est donné par:

$$\{P_e^*\}^T \left( -[K_{peue}] \{U_e^{t_{n+1}}\} - [K_{pepe}] \{P_e^{t_{n+1}}\} - \{F_{pe}\} \right) = \{P_e^*\}^T \{R_p\}_e \quad (\text{A.57})$$

avec

$$K_{peue} = \int [N_e^p]^T [B_e^{vol}] dV \quad (\text{A.58})$$

$$K_{pepe} = \int \frac{1}{K_e^{t_{n+1}}} [N_e^p]^T [N_e^p] dV \quad (\text{A.59})$$

$$F_{ue} = \int \frac{1}{K_e^{t_{n+1}}} [N_e^p]^T [N_e^p] \{P_e^{tn}\} dV - \int [N_e^p]^T [B_e^{vol}] \{U_e^{tn}\} dV \\ + \int [N_e^p]^T \Delta \{U_e^{th}\} dV + \int [N_e^p]^T \Delta \{U_e^{ch}\} dV, \quad (\text{A.60})$$

où

$$\Delta \{U_e^{th}\} = \{U_e^{th}\}(t_{n+1}) - \{U_e^{th}\}(t_n) \quad (\text{A.61})$$

$$\Delta \{U_e^{ch}\} = \{U_e^{ch}\}(t_{n+1}) - \{U_e^{ch}\}(t_n) \quad (\text{A.62})$$

En définissant le vecteur généralisé des inconnues du problème et la fonction test généralisée

$$\{w_e^{t_{n+1}}\} = \left\{ \begin{array}{c} \{U_e^{t_{n+1}}\} \\ \{p_e^{t_{n+1}}\} \end{array} \right\}, \quad \{w_e^*\} = \left\{ \begin{array}{c} \{U_e^*\} \\ \{p_e^*\} \end{array} \right\}, \quad (\text{A.63})$$

on peut écrire le vecteur résidu général du problème mécanique de l'échantillon:

$$\{w_e^*\}^T \{R_e\} = \left\{ \begin{array}{c} \{U_e^*\} \\ \{p_e^*\} \end{array} \right\}^T \left\{ \begin{array}{c} \{R_u\}_e \\ \{R_p\}_e \end{array} \right\} \quad (\text{A.64})$$

Et la matrice tangente associée est alors:

$$[\mathbf{K}_{ee}] = \begin{bmatrix} K_{ueue} & K_{uepe} \\ K_{peue} & K_{pepe} \end{bmatrix}, \quad (\text{A.65})$$



---

# ANNEXE B

## TRAITEMENT NUMERIQUE DU DECOLLEMENT

---

---

### TABLE DES MATIERES

B.1	Conditions de contact .....	214
B.2	Premier cas: un solide déformable et un solide rigide.....	215
B.2.1	Multiplicateurs de Lagrange.....	216
B.2.2	Pénalisation .....	217
B.2.3	Lagrangien augmenté .....	218
B.2.4	Comparaison des méthodes .....	219
B.3	Deuxième cas: Deux solides déformables.....	222
B.3.1	Solution adoptée .....	222
B.3.2	Validation - Cas du contact de Hertz.....	225
B.3.3	Accélération de la convergence.....	227
B.3.3.1	Line Search.....	227
B.3.3.2	Damping.....	227
B.3.3.3	Application et comparaison.....	227
B.4	Bibliographie.....	229

## B.1 CONDITIONS DE CONTACT

La condition imposée afin d'assurer la non-pénétration d'un solide dans un autre en garantissant un possible décollement est légèrement différente du cas collant présenté dans le chapitre 2.

Considérons les deux volumes  $\Omega_c$  et  $\Omega_e$ , représentant respectivement la capsule et l'échantillon, entrant en contact. La surface de contact est toujours représentée par  $\Gamma_c$ . En se référant à la Figure B.1,  $\mathbf{x}_i$  représente les coordonnées de la configuration courante  $\varphi_i(\Omega_i)$  du volume  $\Omega_i$ .  $\mathbf{x}_i = \mathbf{X}_i + \mathbf{u}_i$ , où  $\mathbf{X}_i$  est relié à la configuration initiale  $\Omega_i$  et  $\mathbf{u}_i$  est le champ de déplacements actuel. On définit également  $\mathbf{n}_i$  comme la normale à la surface du volume  $\Omega_i$ .

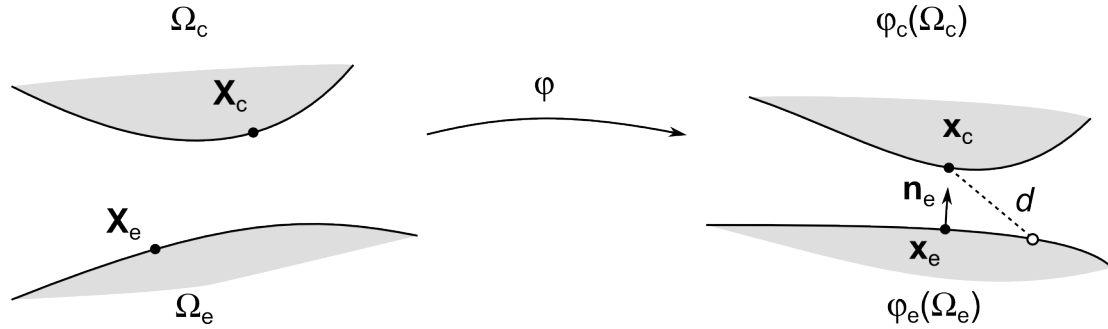


Figure B.1: Géométrie de la zone de contact dans la configuration initiale et la configuration déformée

On peut alors, sous la condition que les surfaces décrivent localement des régions convexes, relier chaque point  $\mathbf{x}_c$  à un point  $\mathbf{x}_e$  minimisant la distance  $d$  entre  $\mathbf{x}_c$  et la surface de  $\Omega_e$ . On définit ainsi l'écart ou la pénétration entre les deux volumes à l'aide de:

$$\mathbf{g}_n = (\mathbf{x}_c - \mathbf{x}_e) \cdot \mathbf{n}_e \quad (\text{B.1})$$

Ainsi, le point de coordonnées  $\mathbf{x}_e$  représente la projection orthogonale du point  $\mathbf{x}_c$  sur la surface de  $\varphi_e(\Omega_e)$ .

La condition de non-pénétration entre les deux volumes est exprimée à l'aide de  $\mathbf{g}_n$  et se traduit par:

$$\mathbf{g}_n = (\mathbf{x}_c - \mathbf{x}_e) \cdot \mathbf{n}_e \geq 0 \quad (\text{B.2})$$

Le contact entre les deux volumes a lieu lorsque  $\mathbf{g}_n$  s'annule. A ce moment là, la composante normale associée au contact  $p_n$  du vecteur de contraintes  $\mathbf{t}_e = \boldsymbol{\sigma}_e \mathbf{n}_e$  sur  $\Gamma_c$  doit être non nulle, où on a:

$$\mathbf{t}_e = p_n \mathbf{n}_e \quad (\text{B.3})$$

Le vecteur de contraintes n'est porté que par la normale lorsqu'on se place dans le cas d'une condition de glissement parfait entre les solides. Ce vecteur des contraintes agit sur les deux surfaces en contact et obéit au principe d'action-réaction. Ainsi,  $\mathbf{t}_e = -\mathbf{t}_c$  au point de contact  $\mathbf{x}_e$ , les normales  $\mathbf{n}_e$  et  $\mathbf{n}_c$  étant opposées. Les contraintes adhésives n'étant pas considérées, seules des contraintes de compression peuvent exister sur la surface et on aura  $p_n < 0$  lors du contact.

En regroupant la condition sur  $\mathbf{g}_n$  et celle sur  $p_n$ , on arrive aux conditions de Hertz-Signorini-Moreau pour un contact sans frottement, permettant d'exprimer sous forme mathématique concise les conditions dans la zone de contact:

- l'inter-pénétration n'est pas autorisée:  $\mathbf{g}_n \geq 0$ ,

- un contact induit une contrainte compressive:  $p_n < 0$ ,
- quand le contact est perdu, la contrainte s'annule et la contrainte est négative quand le contact est créé:  $p_n = 0$  si  $g_n > 0$  et  $p_n < 0$  si  $g_n = 0$ .

On en déduit:

$$g_n \geq 0, p_n \leq 0, p_n g_n = 0 \quad (\text{B.4})$$

Ces conditions forment la base du traitement du contact sans frottements entre solides déformables. On retrouve ce type de condition en optimisation sous contraintes sous le nom de conditions de Kuhn-Tucker-Karush.

La surface de contact n'étant a priori pas connue, de même que la contrainte associée, le problème à résoudre est non-linéaire. Plusieurs techniques issues de l'optimisation numérique permettent de résoudre le problème mécanique sous la contrainte (B.2). On retrouve, parmi les plus connues, l'utilisation de multiplicateurs de Lagrange [1], mais aussi les méthodes de pénalisation [2], de Lagrangien augmenté [3], de Lagrangien perturbé [4] et de nombreuses autres méthodes [5,6]. L'utilisation des trois premières méthodes est décrite succinctement dans les paragraphes suivants. Elles y sont alors appliquées à un cas simple sur un solide déformable en contact avec un solide rigide.

## B.2 PREMIER CAS: UN SOLIDE DEFORMABLE ET UN SOLIDE RIGIDE

On étudie une surface carrée  $\Omega$ , de côté  $l$  (Figure B.2), dont le comportement est élastique et quasi-incompressible, et décrit par le même modèle que pour la capsule. Ses frontières sont décomposées en 3. Sur  $\Gamma_a$ , les déplacements suivant la direction horizontale sont interdits, sur  $\Gamma_b$ , les déplacements suivant la direction verticale sont interdits et enfin sur  $\Gamma_c$ , une condition de contact est appliquée.

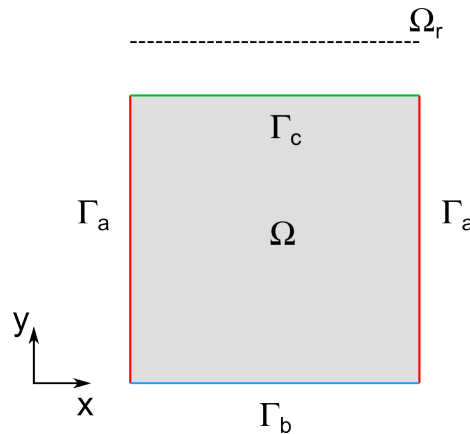


Figure B.2: Géométrie du cas test dans le cas d'un solide déformable

La condition de contact fait intervenir un solide rigide  $\Omega_r$ , représenté par une ligne horizontale d'ordonnée  $h$ . La fonction  $g_n$  est donc définie, en chaque point de  $\Gamma_c$  par:

$$g_n = (h - y) \quad (\text{B.5})$$

On utilise la méthode des éléments finis afin de résoudre le problème de contact. Cela implique de discrétiser la surface à l'aide de nœuds où sont définis les degrés de liberté du problème, en l'occurrence les déplacements.

La résolution du problème mécanique sans la contribution du contact s'écrit, dans le cas d'un problème non-linéaire, sous la forme:

$$\mathbf{K}_{méca} \Delta \mathbf{u} = \mathbf{R}_{méca}, \quad (\text{B.6})$$

où  $\mathbf{K}_{méca}$  et  $\mathbf{R}_{méca}$  sont la matrice tangente et le vecteur résidu du problème mécanique, respectivement, et où  $\Delta \mathbf{u}$  représente l'incrément des inconnues recherchées.

On s'intéresse alors aux différentes méthodes permettant d'imposer la condition (B.2).

### B.2.1 MULTIPLICATEURS DE LAGRANGE

Comme présenté lors du traitement du contact parfait collant, la méthode des multiplicateurs consiste en l'intégration d'un champ d'inconnues  $\lambda_n$ , appelées multiplicateurs de Lagrange, afin d'imposer la condition:

$$\lambda_n g_n = 0 \quad (\text{B.7})$$

Le parallèle entre les multiplicateurs de Lagrange  $\lambda_n$  et la contrainte normale de contact  $p_n$  est désormais évidente.

La contribution du contact traité par multiplicateurs de Lagrange à la formulation faible du problème mécanique s'écrit alors:

$$C_c^{ML} = \int_{\Gamma_c} \lambda_n g_n^* d\Gamma + \int_{\Gamma_c} \lambda_n^* g_n d\Gamma, \quad \forall g_n^*, \quad \forall \lambda_n^* \quad (\text{B.8})$$

La première intégrale décrit le travail virtuel des multiplicateurs de Lagrange pour une petite variation  $g_n^*$  de l'écart  $g_n$ . Les petites variations de  $g_n$  sont directement liées à celles de  $y$ , de par la relation (B.5). La seconde représente l'imposition de la condition (B.7). Dans notre cas, le problème de contact se définissant aux nœuds du maillage, on peut directement écrire la formulation faible aux nœuds (B.9).

$$C_c^{ML} = -\lambda_n y^* + \lambda_n^* g_n, \quad \forall g_n^*, \quad \forall \lambda_n^* \quad (\text{B.9})$$

Le problème étant non-linéaire, on utilise une méthode incrémentale de type Newton-Raphson afin de le résoudre. Le calcul de la matrice de rigidité est nécessaire. La contribution du contact à cette matrice est donné par la linéarisation de (B.9):

$$\Delta C_c^{ML} = -\Delta \lambda_n y^* - \lambda_n^* \Delta y, \quad \forall y^*, \quad \forall \lambda_n^* \quad (\text{B.10})$$

D'où, en écriture matricielle et en ajoutant la contribution du contact à la résolution du problème:

$$\begin{bmatrix} \mathbf{K}_{méca} & \mathbf{K}_{u\lambda} \\ \mathbf{K}_{\lambda u} & \mathbf{0} \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} \Delta \mathbf{u} \\ \Delta \boldsymbol{\lambda} \end{Bmatrix} = \begin{Bmatrix} \mathbf{R}_\lambda \\ \mathbf{R}_g \end{Bmatrix} + \begin{Bmatrix} \mathbf{R}_{méca} \\ \mathbf{0} \end{Bmatrix}, \quad (\text{B.11})$$

avec

$$\mathbf{K}_{u\lambda} = \mathbf{K}_{\lambda u}^T, \text{ avec} \quad \left\{ \mathbf{y}^* \right\}^T [\mathbf{K}_{u\lambda}] \{ \Delta \lambda_n \} = \left\{ \mathbf{y}^* \right\}^T [-1] \{ \Delta \lambda_n \} \quad (\text{B.12})$$

$$\mathbf{R}_\lambda = \{ -\lambda_n \}, \quad (\text{B.13})$$

$$\mathbf{R}_g = \{ g_n \}, \quad (\text{B.14})$$

ce qui, sous forme condensée, peut s'écrire:

$$\mathbf{K}_{\text{gén}} \Delta \mathbf{w} = \mathbf{R}_{\text{gén}} \quad (\text{B.15})$$

Le structure de l'algorithme de résolution est donné en Figure B.3.

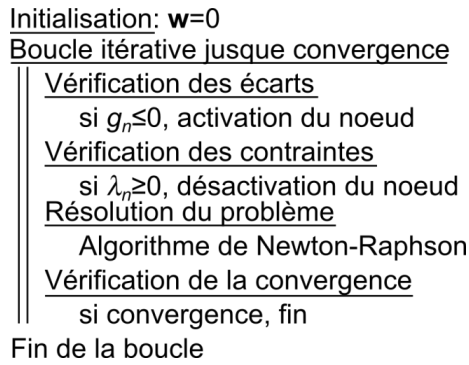


Figure B.3: Algorithme de résolution du problème de contact par multiplicateurs de Lagrange

## B.2.2 PENALISATION

La méthode de pénalisation est plus simple à mettre en place, puisqu'elle ne demande pas l'ajout de degrés de liberté supplémentaires afin d'imposer la condition de contact. Celle-ci est imposée à l'aide de l'équation (B.16):

$$a \varepsilon_n g_n^k = 0 \quad (\text{B.16})$$

où  $a$  est un réel et  $k$  un entier et où  $\varepsilon_n$  est appelé coefficient de pénalisation. Généralement,  $a$  est égale à 0.5 et  $k$  à 2. Dans ce cas, la contribution du contact à la formulation faible du problème mécanique s'écrit simplement:

$$C_c^P = \int_{\Gamma_c} \varepsilon_n g_n g_n^* d\Gamma, \quad \forall g_n^* \quad (\text{B.17})$$

La contrainte normale de contact  $p_n$  s'identifie ici à  $\varepsilon_n g_n$  et, pour une valeur de  $\varepsilon_n$  tendant vers l'infini, on retombe sur le traitement par multiplicateurs de Lagrange [5–7]. Cependant, dans ce cas le problème numérique devient mal conditionné et donc difficilement résoluble. De la même manière que pour Eq. (B.8), Eq. (B.17) s'exprime au nœud de manière simple:

$$C_c^P = -\varepsilon_n g_n y^*, \quad \forall y^* \quad (\text{B.18})$$

La contribution du contact à la forme incrémentale du problème s'écrit alors:



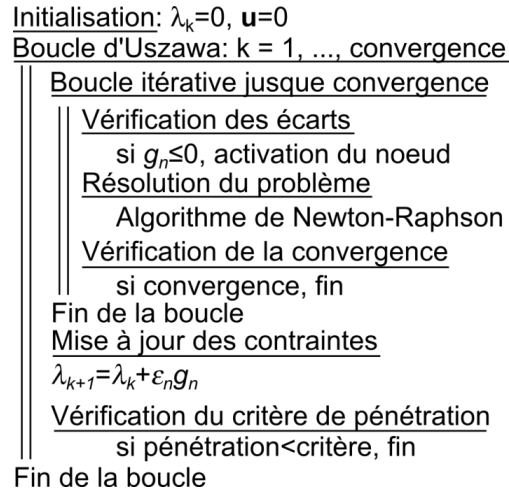


Figure B.5: Algorithme de résolution du problème de contact par Lagrangien augmenté

Le coefficient de pénalisation utilisé ici peut être plus faible que dans le cas de la pénalisation simple. Les multiples passages dans la boucle d'Uzawa permettent d'atteindre des distances de pénétration plus faibles que dans le cas de la pénalisation. Cette technique a donc l'avantage de mener à une matrice mieux conditionnée que dans le cas de la pénalisation, mais elle souffre d'un plus long temps de calcul lié à la boucle d'Uzawa.

#### B.2.4 COMPARAISON DES METHODES

Les différentes méthodes envisagées étant présentées, on peut désormais les appliquer à la résolution du cas concret. Pour rappel, on part du même modèle que celui utilisé pour la capsule. Les propriétés sont celles de l'élastomère et sont rappelées dans le Tableau B.1:

Tableau B.1: Propriétés du matériau élastique

Propriété	Valeur
$K$ (MPa)	500
$\mu$ (MPa)	0.43

On impose  $h = 0.95 l$ , avec  $l = 4.0 \cdot 10^{-3}$  m, d'où  $h = 3.8 \cdot 10^{-3}$  m. Le solide se trouve alors en compression. On s'intéresse dans un premier temps à la méthode de pénalisation. Le cas présenté est traité pour différentes valeurs de  $\varepsilon_n$ . La valeur du coefficient de pénalisation se base sur la valeur maximum de la diagonale de la matrice de rigidité  $\mathbf{K}_{méca}$ , que l'on multiplie par un coefficient  $\varepsilon_0$ :

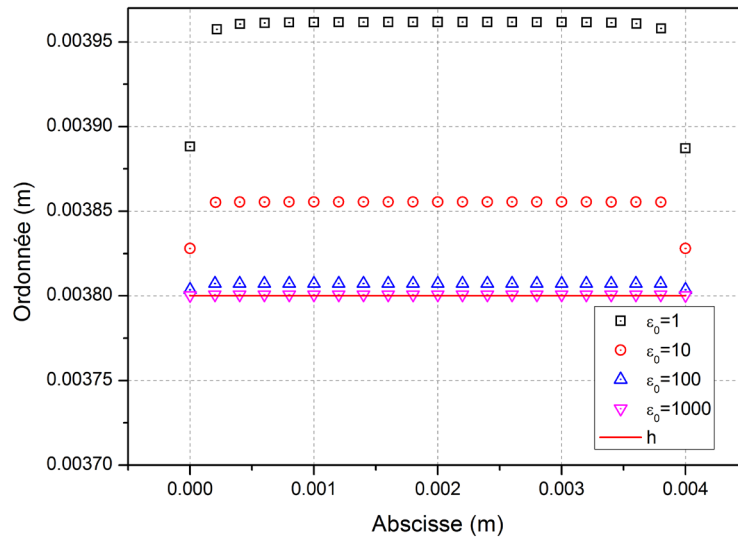
$$\varepsilon_n = \varepsilon_0 \max(\text{diag}(\mathbf{K}_{méca})) \quad (\text{B.26})$$

Dans le cas traité ici, on a

$$\max(\text{diag}(\mathbf{K}_{méca})) = 6.58 \cdot 10^6 \quad (\text{B.27})$$

Cette valeur dépend à la fois du maillage et des propriétés du matériau.

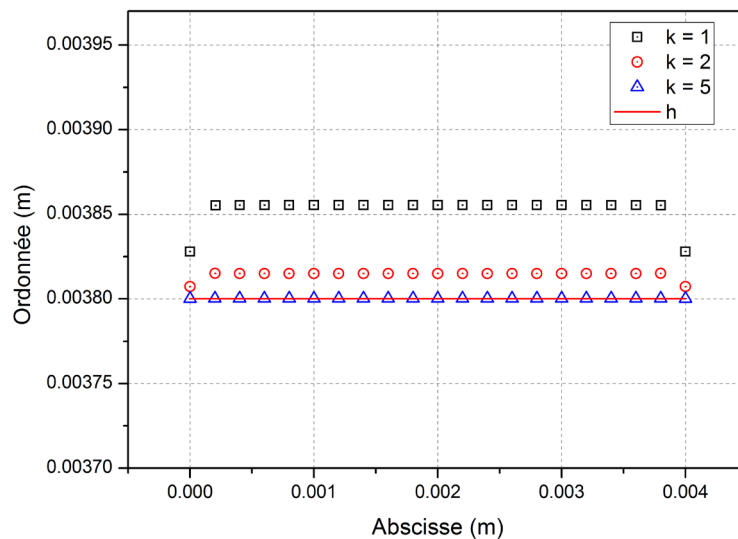
On s'intéresse dans un premier temps à la méthode de pénalisation. Le cas présenté est traité pour différentes valeurs de  $\varepsilon_0$  comprises entre 1 et 1000. La déformée finale de la surface  $\Gamma_c$  est donnée en Figure B.6 pour ces différentes valeurs.



**Figure B.6: Déformation de la surface de contact pour différentes valeurs du coefficient de pénalisation**

Plus le coefficient  $\varepsilon_0$  est grand et plus la condition est respectée mais, comme annoncé précédemment, plus le problème devient mal conditionné, les coefficients de la matrice de rigidité associée au problème de contact étant alors beaucoup plus grands que ceux de la matrice de rigidité du problème mécanique.

Le même problème est résolu à l'aide de la méthode du Lagrangien augmenté. Le coefficient de pénalisation est pris de la même façon que pour la méthode de pénalisation, avec  $\varepsilon_0 = 10$ . La déformée finale de la surface est donnée en Figure B.7 pour le premier passage dans la boucle d'Uszawa ( $k = 1$ ), le deuxième ( $k = 2$ ) et le cinquième ( $k = 5$ ).



**Figure B.7: Déformation de la surface de contact pour différents passages dans la boucle d'Uszawa**

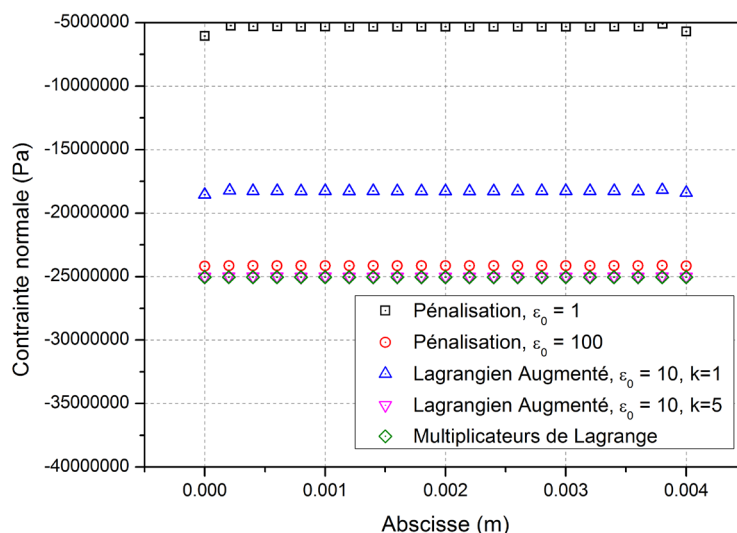
Malgré la faible valeur de coefficient de pénalisation employée, la méthode du Lagrangien augmenté permet de mieux vérifier la condition de contact au prix d'un nombre plus important de calculs.

On peut alors comparer les différentes méthodes entre elles, en termes de valeur de pénétration maximale à l'issue du calcul, ainsi que de contraintes de contact. Les valeurs maximales de pénétration pour les différentes méthodes sont données dans le Tableau B.2. Elles permettent d'appuyer les

observations précédentes. Les distributions des contraintes de contact pour ces mêmes cas sont données en Figure B.8.

**Tableau B.2: Comparaison de la pénétration finale pour les différentes méthodes de traitement du contact**

Méthode	Pénalisation, $\varepsilon_0 = 1$	Pénalisation, $\varepsilon_0 = 100$	Lagrangien Augmenté, $\varepsilon_0 = 10, k=1$	Lagrangien Augmenté, $\varepsilon_0 = 10, k=5$	Multiplicateurs de Lagrange
Pénétration finale (m)	$1.61 \cdot 10^{-4}$	$7.33 \cdot 10^{-6}$	$1.16 \cdot 10^{-5}$	$6.27 \cdot 10^{-8}$	0.0



**Figure B.8: Distribution des contraintes de contact pour les différentes méthodes envisagées**

Comme annoncé précédemment, la méthode des multiplicateurs de Lagrange permet d'imposer parfaitement la condition de non-interpénétration par le biais des contraintes de contact. La méthode de pénalisation donne un résultat approché et la solution dépend alors fortement du coefficient de pénalisation utilisé. Afin d'imposer correctement la condition de non-interpénétration, le coefficient est parfois largement supérieur aux coefficients de la matrice de rigidité du problème mécanique. Enfin, la méthode du Lagrangien augmenté représente un bon compromis entre ces deux méthodes. Pour une valeur du coefficient de pénalisation plus faible que pour la méthode de pénalisation et au prix de calculs supplémentaires, il est possible de mieux vérifier la condition de non-interpénétration sans trop modifier le conditionnement de la matrice. Les avantages et inconvénients majeurs des différentes méthodes est donné dans le Tableau B.3.

**Tableau B.3: Avantages et inconvénients des différentes méthodes de traitement du contact**

Méthode	Multiplicateurs de Lagrange	Pénalisation	Lagrangien Augmenté
Avantages	- Condition parfaitement imposée	- Simple, ne nécessite pas de degrés de liberté supplémentaires	- Idem à pénalisation - Condition mieux vérifiée que pour la pénalisation - La matrice n'est pas mal conditionnée
Inconvénients	- Ajout de degrés de liberté - Bloc nul sur la diagonale de la matrice	- Condition approchée - La matrice peut être mal conditionnée si le $\varepsilon$ est trop élevé	- Plus lent du fait de la boucle d'Uzawa

## B.3 DEUXIEME CAS: DEUX SOLIDES DEFORMABLES

Dans le cas où plusieurs solides déformables peuvent entrer en contact, ce qui est le cas entre la capsule et l'échantillon, on a besoin d'une autre discrétisation des interfaces de contact afin d'exprimer  $g_n$ . Plusieurs discrétisations existent, chacune ayant ses avantages et inconvénients. Parmi celles-ci, les plus courantes sont le nœud-à-nœud, le nœud-à-segment, le segment-à-segment, ou encore l'utilisation d'une surface de contact intermédiaire.

### B.3.1 SOLUTION ADOPTEE

On fait le choix d'adopter la discrétisation de nœud-à-segment. Celle-ci est en effet adaptée aux problèmes où les surfaces en contact peuvent glisser l'une sur l'autre, elle est facile à mettre en place et à linéariser, ce qui permet d'obtenir une convergence quadratique lors de la résolution du problème. Cette discrétisation a fait l'objet de nombreux travaux [1,2] et est succinctement décrite dans les paragraphes suivants.

L'utilisation de la méthode nœud-à-surface impose de sélectionner une des surfaces comme "maitre" et une autre comme "esclave". Chaque élément de contact (Figure B.9) est alors constitué d'un nœud "esclave", S, et du segment le plus proche sur la surface "maitre", appelé segment "maitre". Il s'agit alors généralement du segment contenant la projection orthogonale du nœud "esclave". Ce segment est composé de deux nœuds que l'on repèrera par les numéros 1 et 2.

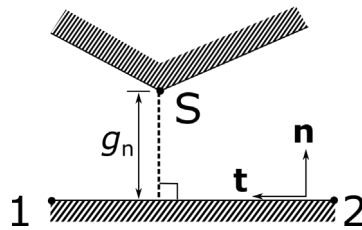


Figure B.9: Géométrie de l'élément de contact dans la méthode nœud-à-surface

On définit alors l'écart entre les deux surfaces pour ce point "esclave" par:

$$\mathbf{g}_n = (\mathbf{x}_s - \mathbf{x}_1) \mathbf{n}, \quad (\text{B.28})$$

où  $\mathbf{n}$  est la normale au segment "maitre" et  $\mathbf{x}_s$  et  $\mathbf{x}_1$  représentent les coordonnées respectives des points S et 1.

Avant d'aller plus loin, il est nécessaire de choisir la méthode de résolution du problème de contact. On se place dans le cadre d'une résolution par pénalisation, cette méthode étant simple à mettre en place, efficace et représentant un bon compromis par rapport à ce qui a été présenté dans la partie précédente.

On cherche alors à vérifier l'équation Eq. (B.16). La contribution du contact à la formulation faible du problème est faite en chaque nœud, faisant disparaître la forme intégrale. On a ainsi:

$$C_c^P = \varepsilon_n \mathbf{g}_n \mathbf{g}_n^* \quad (\text{B.29})$$

Afin de résoudre le problème à l'aide de l'algorithme de Newton-Raphson, il est nécessaire d'avoir la matrice de rigidité associée à la formulation faible. Celle-ci s'obtient, dans le cas du contact, en linéarisant la précédente équation et on obtient:

$$\Delta C_c^P = \varepsilon_n \Delta g_n g_n^* + \varepsilon_n g_n \Delta g_n^* \quad (\text{B.30})$$

Les différents termes intervenant dans les équations (B.29) et (B.30) sont maintenant à expliciter à l'aide de la discrétisation en noeud-à-segment. Ces expressions ont été précisément détaillées dans les travaux de Zavarise et De Lorenzis [2]. Cette étude a permis d'établir le traitement de cas spéciaux ayant lieu lors du traitement du contact par la discrétisation noeud-à-segment. On donne tout de même le cheminement afin d'obtenir l'expression matricielle des contributions du contact au résidu et à la matrice tangente du problème dans le cas classique.

Plusieurs vecteurs, issus de la géométrie de l'élément de contact doivent être d'abord décrits (Figure B.10). On définit dans un premier temps le vecteur maître  $\mathbf{m}$  et le vecteur écart  $\mathbf{g}$  par :

$$\begin{aligned} \mathbf{m} &= \mathbf{x}_2 - \mathbf{x}_1 \\ \mathbf{g} &= \mathbf{x}_S - \mathbf{x}_1 \end{aligned} \quad (\text{B.31})$$

où  $\mathbf{x}_2$  représente les coordonnées du point 2. Les différents vecteurs et grandeurs définis par la suite sont représentés en Figure B.10.

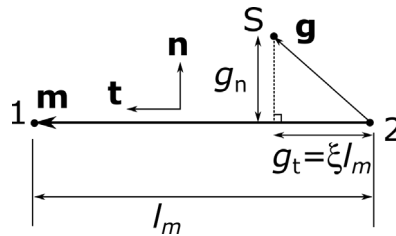


Figure B.10: Grandeurs et vecteurs dans l'élément de contact de la méthode noeud-à-surface

La longueur  $l_m$  du vecteur  $\mathbf{m}$  est donnée par :

$$l_m = \|\mathbf{m}\| \quad (\text{B.32})$$

On peut alors décrire la base locale de l'élément de contact à l'aide de trois vecteurs. Le vecteur tangent  $\mathbf{t}$  est le vecteur unitaire parallèle au segment maître.

$$\mathbf{t} = \frac{\mathbf{m}}{l_m} \quad (\text{B.33})$$

Le vecteur orthogonal unitaire  $\mathbf{e}_3$  est le vecteur orthogonal au plan contenant l'élément de contact. La base locale est alors définie à l'aide du dernier vecteur  $\mathbf{n}$ , qui est le vecteur normal unitaire sortant au segment maître :

$$\mathbf{n} = \mathbf{t} \times \mathbf{e}_3 \quad (\text{B.34})$$

La base locale étant définie, on peut exprimer deux écarts entre le noeud esclave et le segment maître, l'un normal  $g_n$  (que l'on a déjà décrit plus tôt) et l'autre tangentiel  $g_t$ .

$$g_n = \mathbf{g} \cdot \mathbf{n}, \quad g_t = \mathbf{g} \cdot \mathbf{t} \quad (\text{B.35})$$

Enfin, on définit la coordonnée tangentielle normalisée du point S le long du vecteur  $\mathbf{t}$  par :

$$\xi = \frac{g_t}{l_m} = \frac{\mathbf{g} \cdot \mathbf{t}}{l_m} \quad (\text{B.36})$$

Ces différentes grandeurs étant explicitées, on peut désormais développer les expressions données par (Eq. (B.29)) et (Eq. (B.30)). Le détail de l'obtention des équations suivantes est donné dans [2].

$$C_c^P = \varepsilon_n g_n \{\delta\}^T \{\mathbf{N}_s\}, \quad (\text{B.37})$$

$$\begin{aligned} \Delta C_c^P = & \varepsilon_n \{\delta\}^T \{\mathbf{N}_s\} \{\mathbf{N}_s\}^T \{\Delta\} \\ & - \frac{\varepsilon_n g_n}{l_m} \{\delta\}^T \left( \{\mathbf{T}_s\} \{\mathbf{N}_0\}^T + \{\mathbf{N}_0\} \{\mathbf{T}_s\}^T \right) \{\Delta\} - \frac{\varepsilon_n g_n^2}{l_m^2} \{\delta\}^T \{\mathbf{N}_0\} \{\mathbf{N}_0\}^T \{\Delta\}, \end{aligned} \quad (\text{B.38})$$

avec

$$\{\delta\} = \begin{Bmatrix} \mathbf{x}_S^* \\ \mathbf{x}_1^* \\ \mathbf{x}_2^* \end{Bmatrix}, \quad \{\Delta\} = \begin{Bmatrix} \Delta \mathbf{x}_S \\ \Delta \mathbf{x}_1 \\ \Delta \mathbf{x}_2 \end{Bmatrix}, \quad \{\mathbf{N}_s\} = \begin{Bmatrix} \mathbf{n} \\ -(1-\xi)\mathbf{n} \\ -\xi\mathbf{n} \end{Bmatrix}, \quad \{\mathbf{T}_s\} = \begin{Bmatrix} \mathbf{t} \\ -(1-\xi)\mathbf{t} \\ -\xi\mathbf{t} \end{Bmatrix}, \quad \{\mathbf{N}_0\} = \begin{Bmatrix} 0 \\ -\mathbf{n} \\ \mathbf{n} \end{Bmatrix}, \quad (\text{B.39})$$

où  $\{\delta\}$  représente le vecteur des fonctions tests associées aux degrés de liberté des trois points de l'élément de contact et  $\{\Delta\}$  celui des incréments.

On en déduit alors la contribution du contact au résidu et à la matrice tangente du problème global, en écrivant:

$$\begin{aligned} C_c^P &= \{\delta\}^T \{\mathbf{R}_C\}, \\ \Delta C_c^P &= \{\delta\}^T [\mathbf{K}_C] \{\Delta\}, \end{aligned} \quad (\text{B.40})$$

où  $\mathbf{R}_C$  est le résidu lié au contact et  $\mathbf{K}_C$  la matrice tangente. On obtient:

$$\{\mathbf{R}_C\} = \varepsilon_n g_n \{\mathbf{N}_s\}, \quad (\text{B.41})$$

$$[\mathbf{K}_C] = \varepsilon_n \{\mathbf{N}_s\} \{\mathbf{N}_s\}^T - \frac{\varepsilon_n g_n}{l_m} \left( \{\mathbf{T}_s\} \{\mathbf{N}_0\}^T + \{\mathbf{N}_0\} \{\mathbf{T}_s\}^T \right) - \frac{\varepsilon_n g_n^2}{l_m^2} \{\mathbf{N}_0\} \{\mathbf{N}_0\}^T, \quad (\text{B.42})$$

Ces vecteur et matrice sont à assembler pour chaque nœud en contact avec un segment maître. Le premier terme de  $\mathbf{K}_C$  correspond à l'écriture matricielle du premier terme de (Eq. (B.38)) et les deux suivants à celle du deuxième terme de (Eq. (B.38)). Ces deux derniers termes sont souvent négligés [5]. Les prendre en compte et réaliser une linéarisation consistante permet d'atteindre la convergence quadratique lors de la résolution du problème [2].

La configuration présentée en Figure B.10 est une configuration idéalisée lors des problèmes de contact. Il arrive cependant que des cas spéciaux, où il est par exemple difficile d'identifier le segment maître associé au nœud esclave, apparaissent. Ils sont traités en détail dans [2] et ont également été implantés dans l'algorithme utilisé par la suite.

### B.3.2 VALIDATION - CAS DU CONTACT DE HERTZ

On se propose d'appliquer l'algorithme brièvement présenté précédemment au contact entre deux sphères élastiques identiques (Figure B.11). La solution analytique de ce problème a été prouvée par Hertz et permettra donc de valider l'algorithme.

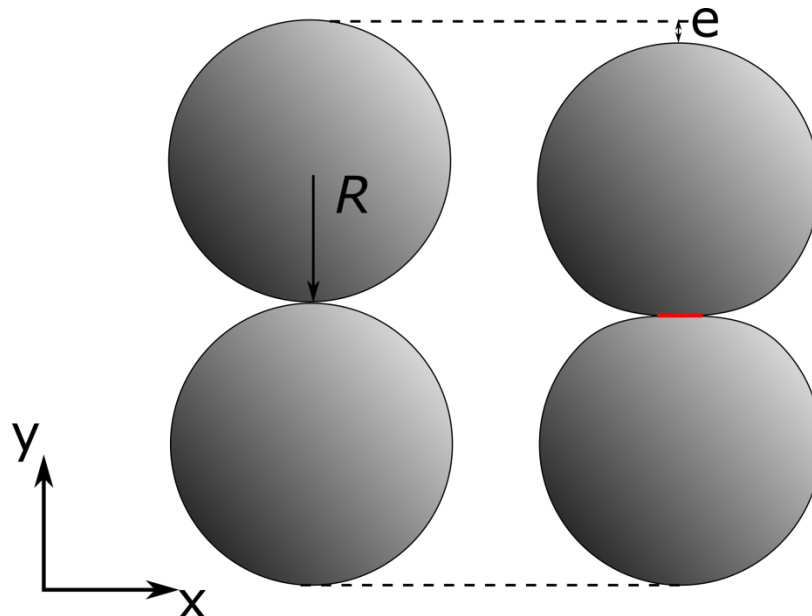


Figure B.11: Géométrie du problème de contact entre deux sphères élastiques déformables

Le comportement mécanique des deux sphères est donné par le modèle de la capsule. Elles ont le même rayon  $R = 10^{-2}\text{m}$ , et les mêmes propriétés données en Tableau B.4. Le problème étant axisymétrique, la géométrie des sphères peut être simplifiée en conséquence. La sphère supérieure est alors déplacée dans la direction négative de l'axe  $y$  d'un enfoncement  $e$ , provoquant la pénétration de la sphère inférieure. L'étude de Hertz donne, dans le cas de deux sphères élastiques, l'état de contrainte dans la zone de contact (en rouge dans la Figure B.11) pour un enfoncement donné.

Tableau B.4: Propriétés mécaniques des sphères en contact

Propriété	Valeur
$K$ (MPa)	10
$\mu$ (MPa)	3.75

Les distributions des contraintes numériques et analytique pour un enfoncement de  $4 \cdot 10^{-4}$  m sont données en Figure B.12.

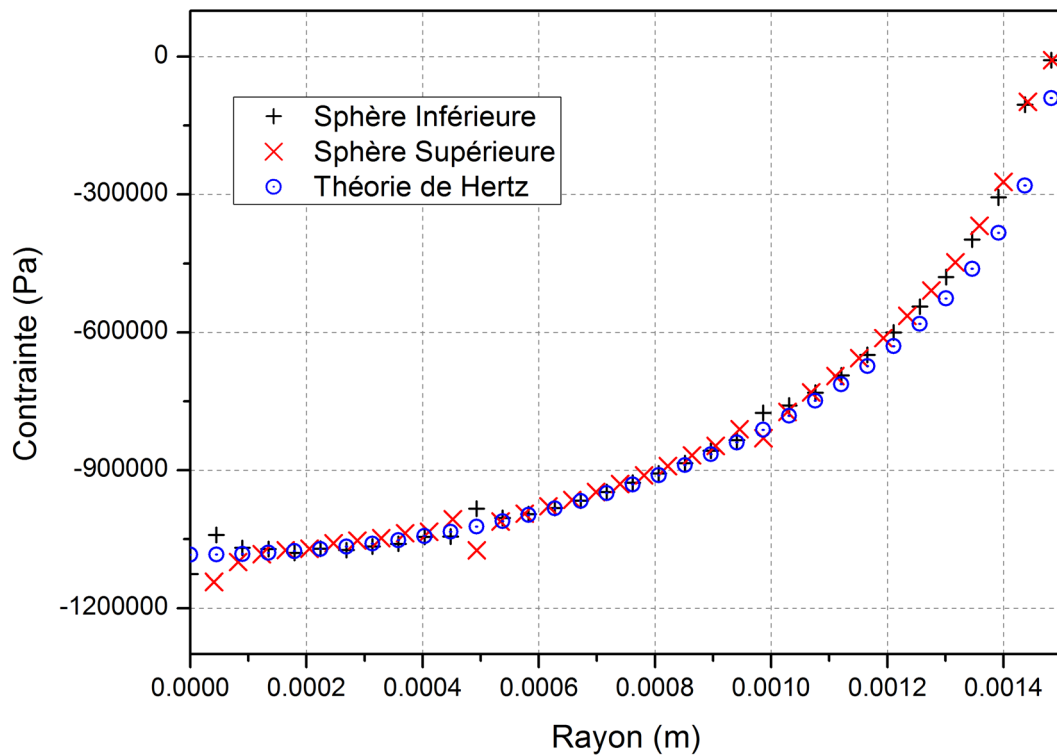


Figure B.12: Distribution des contraintes numériques et analytiques dans la zone de contact

Les résultats numériques sont conformes à ceux issus de la théorie de Hertz, les écarts étant dus à la méthode de pénalisation qui ne permet pas de vérifier parfaitement la condition de contact, notamment lorsque l'on s'éloigne de l'axe de symétrie. La distribution de contraintes  $\sigma_{yy}$  dans les deux demi-sphères déformées pour l'enfoncement de  $4 \cdot 10^{-4}$  m est illustrée en Figure B.13 à titre d'exemple.

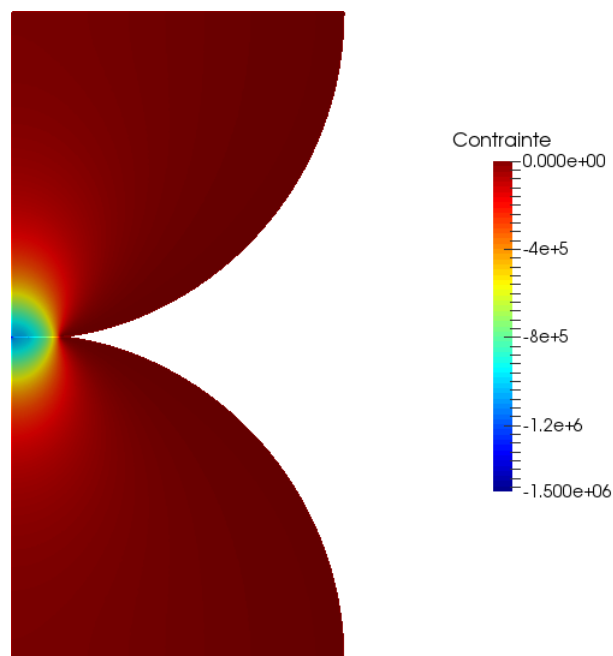


Figure B.13: Champs des contraintes  $\sigma_{yy}$  dans les deux sphères

### B.3.3 ACCELERATION DE LA CONVERGENCE

Il arrive parfois que le problème non-linéaire ait du mal à converger et ce même si la linéarisation consistante du résidu, menant à une matrice tangente complète, est bien réalisée. La méthode de Newton-Raphson est, en effet, très bien adaptée pour des problèmes faiblement linéaires et converge rapidement à proximité de la solution. On peut alors avoir recours à des méthodes d'accélération de la convergence, telles que le "Line Search" [8] ou le "Damping". Ces deux méthodes sont présentées rapidement et comparées sur un cas test.

#### B.3.3.1 LINE SEARCH

Cette méthode permet d'accélérer la convergence en calculant la valeur du résidu à l'étape  $k+1$  et en la comparant à sa valeur à l'étape  $k$ . On cherche alors le scalaire  $\alpha$  de manière à annuler  $\{\Delta \mathbf{u}_k\} \cdot \{\mathbf{R}(\mathbf{u}_k + \alpha \Delta \mathbf{u}_k)\}$ . Celui-ci s'obtient communément à l'aide de la relation:

$$\alpha = \frac{\{\Delta \mathbf{u}_k\} \cdot \{\mathbf{R}(\mathbf{u}_k)\}}{\{\Delta \mathbf{u}_k\} \cdot \{\mathbf{R}(\mathbf{u}_k)\} - \{\Delta \mathbf{u}_k\} \cdot \{\mathbf{R}(\mathbf{u}_k + \Delta \mathbf{u}_k)\}} \quad (\text{B.43})$$

Si la valeur de  $\alpha$  est inférieure à 1, on mettra à jour le champ de déplacement par:

$$\mathbf{u}_{k+1} = \mathbf{u}_k + \alpha \Delta \mathbf{u}_k \quad (\text{B.44})$$

Bien que nécessitant le calcul d'un résidu supplémentaire  $\{\mathbf{R}(\mathbf{u}_k + \alpha \Delta \mathbf{u}_k)\}$ , le "Line Search" accélère bien souvent la convergence du problème.

#### B.3.3.2 DAMPING

Il arrive parfois que le résidu oscille entre deux valeurs, ou que le résidu à l'étape  $k+1$  soit supérieur à celui à l'étape  $k$ . Afin de remédier à ce problème, on peut alors facilement calculer le résidu lié à au demi incrément  $\mathbf{R}(\mathbf{u}_k + 0.5 \Delta \mathbf{u}_k)$ . Si celui-ci est plus faible que  $\mathbf{R}(\mathbf{u}_k)$  et  $\mathbf{R}(\mathbf{u}_k + \Delta \mathbf{u}_k)$ , on prendra  $\mathbf{u}_{k+1} = \mathbf{u}_k + 0.5 \Delta \mathbf{u}_k$ . On retrouve sensiblement la même solution que pour le Line Search en imposant  $\alpha = 0.5$ .

#### B.3.3.3 APPLICATION ET COMPARAISON

Afin de comparer ces différentes méthodes et de voir leur utilité face à un traitement classique, on propose d'étudier le contact entre deux solides élastiques  $B_1$  et  $B_2$  (Figure B.14).

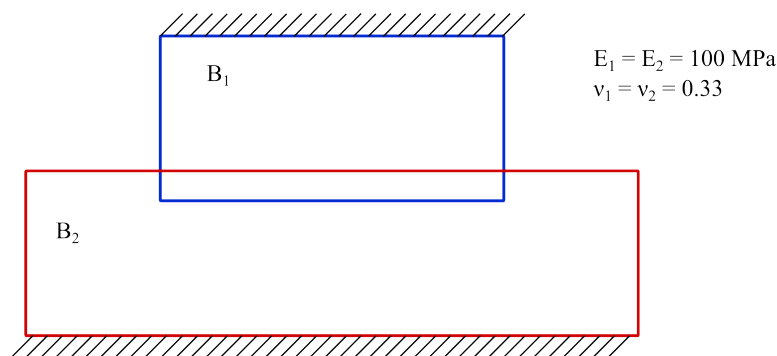


Figure B.14: Géométrie du problème pour la comparaison des méthodes d'accélération de la convergence

Il s'agit de deux pavés d'épaisseur  $10.0 \cdot 10^{-3}$  m, le pavé supérieur ayant une longueur de  $30.0 \cdot 10^{-3}$  m et le supérieur de  $40.0 \cdot 10^{-3}$  m. Les propriétés mécaniques des deux pavés sont les mêmes, leur module de Young étant de 100 MPa et leur coefficient de Poisson de 0.33. Un déplacement uniforme d'une valeur de  $-2.0 \cdot 10^{-4}$  m est imposé sur la surface supérieure de B1 suivant la direction verticale. La convergence de l'algorithme de traitement du contact par la méthode de pénalisation est comparée aux convergences en utilisant le "Line Search" et le "Damping" (Figure B.15).

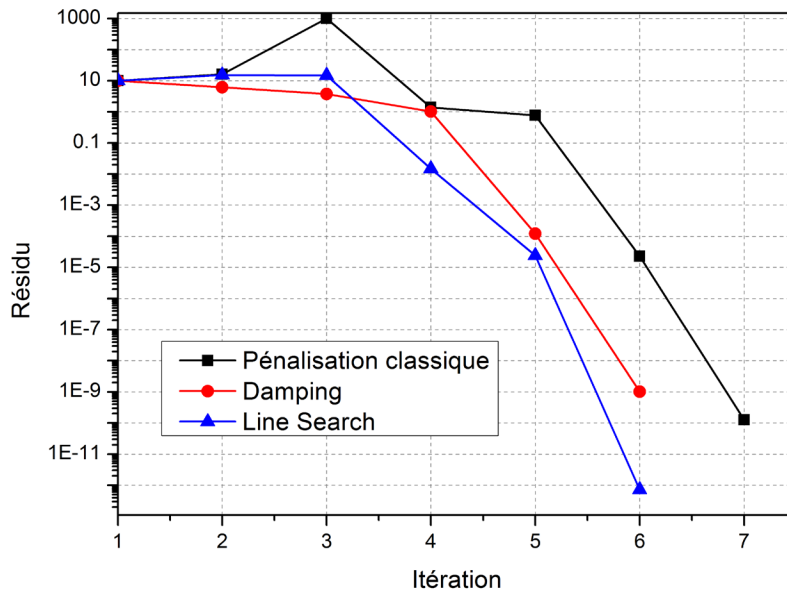


Figure B.15: Vitesses de convergence pour les différentes méthodes d'accélération de la convergence

Peu importe la méthode utilisée, le résidu chute de manière quasi-quadratique dès que l'on se trouve à proximité de la solution. Cependant, les méthodes d'accélération de la convergence permettent d'atteindre plus rapidement une valeur de résidu suffisamment petite pour considérer le problème comme convergé. Elles permettent, dans ce cas simple, d'économiser une itération par rapport au traitement classique. Leur intérêt est donc avéré, surtout dans le cas de problèmes plus riches en degrés de liberté où le calcul d'une itération nécessite l'assemblage et l'inversion d'une matrice parfois conséquente.

Il est à noter que, pour ces trois méthodes, la valeur finale de pénétration moyenne est identique et égale à  $6.62 \cdot 10^{-8}$  m. Les méthodes d'accélération de la convergence n'altèrent donc pas le traitement du contact.

---

## B.4 BIBLIOGRAPHIE

- [1] K.J. Bathe, A. Chaudary, A solution method for planar and axisymmetric contact problems, *Int. J. Numer. Methods Eng.* 21 (1985) 65–88.
- [2] G. Zavarise, L. De Lorenzis, The node-to-segment algorithm for 2D frictionless contact: Classical formulation and special cases, *Comput. Methods Appl. Mech. Eng.* 198 (2009) 3428–3451.
- [3] P. Wriggers, Penalty and augmented Lagrangian formulations for contact problems, in: *Proc. NUMETA Conf.*, 1985.
- [4] J.C. Simo, P. Wriggers, R.L. Taylor, A perturbed Lagrangian formulation for the finite element solution of contact problems, *Comput. Methods Appl. Mech. Eng.* 50 (1985) 163–180.
- [5] P. Wriggers, Finite element algorithms for contact problems, *Arch. Comput. Methods Eng.* 2 (1995) 1–49.
- [6] P. Wriggers, G. Zavarise, Chapter 6 Computational Contact Mechanics, *Encycl. Comput. Mech.* (2004) 195–226.
- [7] P. Wriggers, J.C. Simo, A note on tangent stiffness for fully nonlinear contact problems, *Commun. Appl. Numer. Methods.* 1 (1985) 199–203.
- [8] O.C. Zienkiewicz, R.L. Taylor, J.Z. Zhu, *The Finite Element Method: its Basis and Fundamentals*, Sixth Edit, Butterworth-Heinemann, Oxford, 2005.



---

## ANNEXE C

# HOMOGENEISATION ET COUPLAGES MULTIPHYSIQUES

---

La méthode d'homogénéisation par développements asymptotique est appliquée à l'étude du problème thermo-chémo-élastique de transformation d'un matériau composite. Elle permet d'estimer l'évolution des propriétés mécaniques, ainsi que les coefficients de dilatation thermique et de retrait chimique d'un matériau composite, ainsi que d'obtenir le modèle homogène équivalent à l'échelle macroscopique. Appliquée à l'expérience sur l'UD T700/M21 présentée au chapitre 4, elle permet une prédiction des dilatations de l'échantillon durant sa transformation en accord avec les résultats expérimentaux.

---

## TABLE DES MATIERES

C.1	Introduction .....	232
C.2	Homogénéisation en mécanique et couplages .....	232
C.2.1	Homogénéisation par développements asymptotiques en élasticité linéaire .....	232
C.2.2	Prise en compte de la thermoélasticité .....	239
C.2.3	Application à la thermo-chémo-élasticité .....	240
C.3	Matériau .....	241
C.4	Evolution des propriétés équivalentes avec le degré d'avancement .....	242
C.4.1	Propriétés équivalentes .....	243
C.4.2	Comparaison à une approche auto-cohérente .....	245
C.5	Application à l'expérience réalisée sur le T700/M21 .....	245
C.6	Conclusions et perspectives .....	247
	Bibliographie .....	249

## C.1 INTRODUCTION

La prédiction du comportement mécanique des matériaux composites durant leur mise en forme a fait l'objet de nombreux travaux, comme présenté dans le chapitre 1. Les méthodes développées ont besoin d'un certain nombre de propriétés des matériaux afin d'alimenter les modèles mécanique et thermo-chimique. De nombreuses méthodes existent également afin de déterminer ces propriétés. L'intérêt des développements asymptotiques dans ce cas est direct: à l'aide d'une même méthode, on détermine d'une part le modèle homogène équivalent à l'échelle macroscopique à l'aide du modèle à l'échelle microscopique, ainsi que les propriétés effectives alimentant ce modèle.

On propose, dans cette annexe, des premiers développements relatifs à la modélisation des interactions thermo-chémo-mécaniques et leur couplage durant la mise en forme des matériaux composites à l'aide des développements asymptotiques. Notre approche se base sur un modèle élastique linéaire à l'échelle microscopique, on n'étudiera que le cas des petites déformations en prenant en compte les dilatations thermiques et le retrait chimique.

Dans un premier temps, on présente l'application des développements asymptotiques à l'homogénéisation du problème d'élasticité linéaire simple, sans participation des déformations de nature thermique ou chimique et en se référant aux travaux présentés par Chung *et al.* [1] et Pinho-da-Cruz *et al.* [2]. La prise en compte des dilatations thermiques est par la suite ajoutée [3]. En suivant la même démarche, le retrait chimique est incorporé au modèle. Cette méthode est par la suite appliquée au matériau UD T700/M21. Les propriétés équivalentes issues des calculs sont présentées et comparées aux valeurs provenant d'une approche auto-cohérente. Enfin, l'expérience réalisée sur ce même matériau et présentée au chapitre 4 est simulée afin d'obtenir les champs d'avancement et de température dans l'échantillon, ainsi que les déformations.

## C.2 HOMOGENEISATION EN MECANIQUE ET COUPLAGES

### C.2.1 HOMOGENEISATION PAR DEVELOPPEMENTS ASYMPTOTIQUES EN ELASTICITE LINEAIRE

L'homogénéisation par développements asymptotiques dans le cadre de l'élasticité linéaire présente de fortes similitudes avec l'étude des transferts de chaleur par conduction. Ainsi, on ne développera pas autant les calculs que dans le chapitre 3. On part du même formalisme et on désigne par  $\mathbf{X}$  la variable d'espace macroscopique et par  $\mathbf{Y}$  la variable d'espace microscopique. Les équations ne seront pas adimensionnées dans ces travaux, le problème sera considéré comme homogénéisable. Nous reviendrons sur ce dernier point plus tard. Toute grandeur physique  $u$  est considérée comme dépendante des deux variables d'espace, et on notera:

$$u = u(\mathbf{X}, \mathbf{Y}) \tag{C.1}$$

Si l'on considère la séparation des échelles, on peut alors écrire le développement asymptotique de la grandeur  $u$  en fonction des puissances successives de  $\varepsilon$ .

$$u(\mathbf{X}, \mathbf{Y}) = \varepsilon^0 u^{(0)}(\mathbf{X}, \mathbf{Y}) + \varepsilon^1 u^{(1)}(\mathbf{X}, \mathbf{Y}) + \varepsilon^2 u^{(2)}(\mathbf{X}, \mathbf{Y}) + \dots, \tag{C.2}$$

avec

$$\varepsilon = \frac{\mathbf{X}}{\mathbf{Y}} \ll 1 \quad (\text{C.3})$$

Les grandeurs définies dans le domaine qui dépendent de  $\mathbf{Y}$  sont considérées comme  $P$ -périodiques, où  $P$  représente la cellule périodique. On repart alors de l'étude de l'équilibre mécanique dans un domaine  $\Omega$  (Figure C.1a) composé de deux phases,  $\Omega_f$  et  $\Omega_m$ , chacune considérée comme homogène et isotrope. La microstructure du domaine  $\Omega$  est périodique et la cellule périodique  $P$  est décrite dans la Figure C.1b.

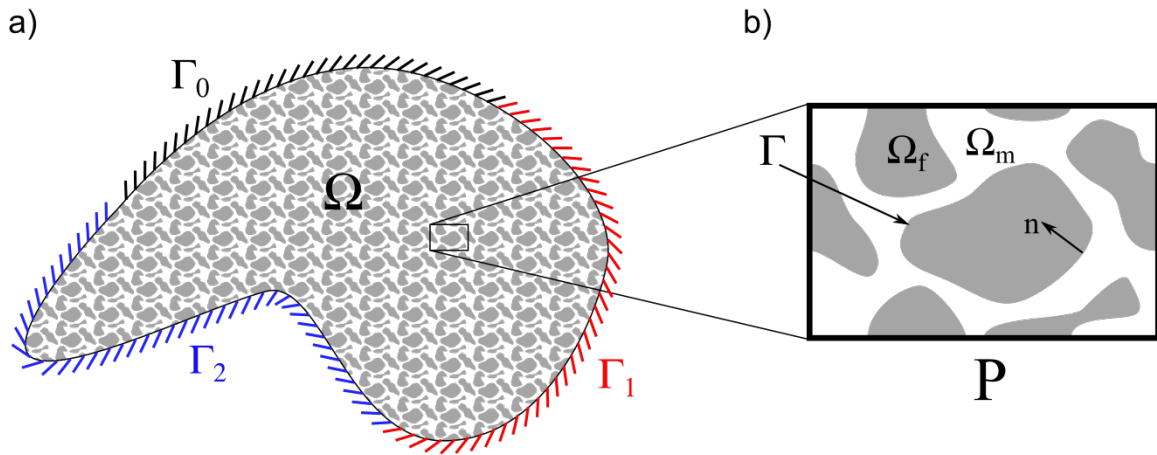


Figure C.1: a) Domaine hétérogène et frontières b) Cellule périodique

Les propriétés mécaniques dans le domaine  $\Omega$  sont alors  $P$ -périodiques. Elles sont données à l'aide du tenseur  $\mathbf{D}$ , décrit par ses composantes  $D_{ijkl}$ . Le caractère périodique des propriétés mécaniques peut s'exprimer à l'aide de la relation d'échelle

$$D_{ijkl}^\varepsilon(\mathbf{X}) = D_{ijkl}\left(\frac{\mathbf{X}}{\varepsilon}\right), \quad (\text{C.4})$$

où la fonction  $D_{ijkl}^\varepsilon$  représente l'hétérogénéité réelle des propriétés dans le domaine  $\Omega$ . La fonction  $D_{ijkl}$  est quant à elle  $P$ -périodique et représente les variations de propriétés mécaniques à l'échelle de la cellule périodique  $P$ . Les propriétés décrites à l'échelle macroscopique par  $D_{ijkl}^\varepsilon$  sont alors modélisées à l'échelle d'une cellule périodique par la fonction  $D_{ijkl}(\mathbf{X}/\varepsilon)$ .

On peut alors passer à l'étude du modèle mécanique dans le matériau composite. Afin de simplifier les notations par la suite, on considère qu'il y a continuité du champ de déplacements et de contraintes à l'interface entre les fibres et la matrice. On considère également que le modèle mécanique est le même dans les deux domaines. La seule différence provient alors du champ de propriétés qui varie localement à l'échelle d'une cellule périodique  $P$ . On peut alors écrire le problème d'élasticité linéaire à l'aide de l'équation d'équilibre mécanique (C.5), la relation déplacement-déformation linéarisée (C.6) et l'équation constitutive du modèle (C.7).

$$\frac{\partial \sigma_{ij}^\varepsilon}{\partial X_j} + f_i = 0 \text{ dans } \Omega, \quad (\text{C.5})$$

$$\varepsilon_{ij}^\varepsilon = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i^\varepsilon}{\partial X_j^\varepsilon} + \frac{\partial u_j^\varepsilon}{\partial X_i^\varepsilon} \right) \text{ dans } \Omega, \quad (\text{C.6})$$

$$\sigma_{ij}^\varepsilon = D_{ijkl}^\varepsilon \varepsilon_{kl}^\varepsilon \text{ dans } \Omega, \quad (\text{C.7})$$

où  $\sigma_{ij}$  sont les composantes du tenseur des contraintes de Cauchy  $\boldsymbol{\sigma}$ ,  $X_j$  sont les composantes du vecteur  $\mathbf{X}$ ,  $f_i$  sont les forces volumiques appliquées au domaine  $\Omega$ ,  $\varepsilon_{ij}$  sont les composantes du tenseur de déformations,  $u_i$  sont les composantes du champ de déplacement  $\mathbf{u}$ , et où l'exposant  $\varepsilon$  signifie que la grandeur en question décrit le comportement réel du matériau.

Les conditions aux limites du problème macroscopique sont décrites par

$$u_i^\varepsilon = u_{imp} \quad \text{sur } \Gamma_1, \quad (\text{C.8})$$

$$\sigma_{ij}^\varepsilon n_j = F_i \quad \text{sur } \Gamma_2, \quad (\text{C.9})$$

où  $u_{imp}$  est un champ de déplacement imposé sur la surface  $\Gamma_1$ ,  $n_j$  sont les composantes de la normale sortante à la surface  $\Gamma_2$  et  $F_i$  sont les composantes de l'effort appliqué sur cette dernière.

On cherche désormais à écrire les composantes du champ de déplacement réel  $\mathbf{u}^\varepsilon$  sous la forme d'un développement asymptotique en puissances entières de  $\varepsilon$ :

$$u_i^\varepsilon(\mathbf{X}) = \varepsilon^0 u_i^{(0)}(\mathbf{X}, \mathbf{Y}) + \varepsilon^1 u_i^{(1)}(\mathbf{X}, \mathbf{Y}) + \varepsilon^2 u_i^{(2)}(\mathbf{X}, \mathbf{Y}) + \dots \quad (\text{C.10})$$

Afin de procéder à l'homogénéisation du problème décrit dans les équations (C.5) à (C.9), il faut exprimer la dérivée spatiale de ce champ. Etant donné que les grandeurs du problème dépendent des deux coordonnées  $\mathbf{X}$  et  $\mathbf{Y}$ , l'expression de l'opérateur dérivé s'exprime à l'aide de la relation en chaîne:

$$\frac{\partial}{\partial X_i^\varepsilon} = \frac{\partial}{\partial X_i} + \frac{1}{\varepsilon} \frac{\partial}{\partial Y_i} \quad (\text{C.11})$$

où les  $Y_i$  sont les composantes du vecteur  $\mathbf{Y}$ . Il est à noter que, communément, il y a égalité entre  $X_i^\varepsilon$  et  $X_i$ .

En réinjectant les équations (C.10) et (C.11) dans (C.6), on peut alors exprimer le développement asymptotique du tenseur de déformations. Celui-ci s'exprime alors par:

$$\varepsilon_{ij}^\varepsilon = \varepsilon^{-1} \varepsilon_{ij}^{(0)} + \varepsilon^0 \varepsilon_{ij}^{(1)} + \varepsilon^1 \varepsilon_{ij}^{(2)} + \dots, \quad (\text{C.12})$$

où

$$\varepsilon_{ij}^{(0)} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i^{(0)}}{\partial Y_j} + \frac{\partial u_j^{(0)}}{\partial Y_i} \right) \quad (\text{C.13})$$

$$\varepsilon_{ij}^{(1)} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i^{(0)}}{\partial X_j} + \frac{\partial u_j^{(0)}}{\partial X_i} + \frac{\partial u_i^{(1)}}{\partial Y_j} + \frac{\partial u_j^{(1)}}{\partial Y_i} \right), \quad (\text{C.14})$$

$$\varepsilon_{ij}^{(r)} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i^{(r-1)}}{\partial X_j} + \frac{\partial u_j^{(r-1)}}{\partial X_i} + \frac{\partial u_i^{(r)}}{\partial Y_j} + \frac{\partial u_j^{(r)}}{\partial Y_i} \right), \quad (\text{C.15})$$

où  $r \in \mathbb{N}$ . En réinjectant le développement asymptotique du tenseur des déformations dans (C.7), on obtient:

$$\sigma_{ij}^\varepsilon = \varepsilon^{-1} \sigma_{ij}^{(0)} + \varepsilon^0 \sigma_{ij}^{(1)} + \varepsilon^1 \sigma_{ij}^{(2)} + \dots, \quad (\text{C.16})$$

où

$$\sigma_{ij}^{(0)} = \frac{1}{2} D_{ijkl}(\mathbf{Y}) \left( \frac{\partial u_k^{(0)}}{\partial Y_l} + \frac{\partial u_l^{(0)}}{\partial Y_k} \right), \quad (\text{C.17})$$

$$\sigma_{ij}^{(1)} = \frac{1}{2} D_{ijkl}(\mathbf{Y}) \left( \frac{\partial u_k^{(0)}}{\partial X_l} + \frac{\partial u_l^{(0)}}{\partial X_k} + \frac{\partial u_k^{(1)}}{\partial Y_l} + \frac{\partial u_l^{(1)}}{\partial Y_k} \right), \quad (\text{C.18})$$

$$\sigma_{ij}^{(r)} = \frac{1}{2} D_{ijkl}(\mathbf{Y}) \left( \frac{\partial u_k^{(r-1)}}{\partial X_l} + \frac{\partial u_l^{(r-1)}}{\partial X_k} + \frac{\partial u_k^{(r)}}{\partial Y_l} + \frac{\partial u_l^{(r)}}{\partial Y_k} \right) \quad (\text{C.19})$$

Le développement asymptotique du tenseur des contraintes, décrit par les équations (C.16) à (C.19), peut alors être réinjecté dans l'équation d'équilibre (C.5). On obtient alors, en rassemblant les termes en puissances identiques de  $\varepsilon$ :

$$\varepsilon^{-2} \frac{\partial \sigma_{ij}^{(0)}}{\partial Y_j} + \varepsilon^{-1} \left( \frac{\partial \sigma_{ij}^{(0)}}{\partial X_j} + \frac{\partial \sigma_{ij}^{(1)}}{\partial Y_j} \right) + \varepsilon^0 \left( \frac{\partial \sigma_{ij}^{(1)}}{\partial X_j} + \frac{\partial \sigma_{ij}^{(2)}}{\partial Y_j} + f_i \right) + \dots = 0 \quad (\text{C.20})$$

Cette équation doit être vérifiée quelque soit la valeur de  $\varepsilon$  lorsque  $\varepsilon \rightarrow 0$ . Dès lors, chaque terme en puissance de  $\varepsilon$  doit être nul. On a alors

En  $\varepsilon^{-2}$ :

$$\frac{\partial \sigma_{ij}^{(0)}}{\partial Y_j} = 0 \quad (\text{C.21})$$

En  $\varepsilon^{-1}$ :

$$\frac{\partial \sigma_{ij}^{(0)}}{\partial X_j} + \frac{\partial \sigma_{ij}^{(1)}}{\partial Y_j} = 0 \quad (\text{C.22})$$

En  $\varepsilon^0$ :

$$\frac{\partial \sigma_{ij}^{(1)}}{\partial X_j} + \frac{\partial \sigma_{ij}^{(2)}}{\partial Y_j} + f_i = 0 \quad (\text{C.23})$$

En  $\varepsilon^r$ :

$$\frac{\partial \sigma_{ij}^{(r+1)}}{\partial X_j} + \frac{\partial \sigma_{ij}^{(r+2)}}{\partial Y_j} = 0 \quad (\text{C.24})$$

L'expression des conditions aux limites données par les équations (C.8) et (C.9) peut également incorporer les développements asymptotiques des différents champs donnés précédemment. On a alors:

$$\varepsilon^0 u_i^{(0)} + \varepsilon^1 u_i^{(1)} + \varepsilon^2 u_i^{(2)} + \dots = u_{imp} \quad \text{sur } \Gamma_1, \quad (\text{C.25})$$

et

$$(\varepsilon^{-1} \sigma_{ij}^{(0)} + \varepsilon^0 \sigma_{ij}^{(1)} + \varepsilon^1 \sigma_{ij}^{(2)} + \dots) n_j = F_i \quad \text{sur } \Gamma_2 \quad (\text{C.26})$$

Encore une fois, en analysant les puissances successives de  $\varepsilon$ , on obtient:

En  $\varepsilon^0$ :

$$u_i^{(0)} = u_{imp} \quad \text{et} \quad (\text{C.27})$$

En  $\varepsilon^r$ :

$$u_i^{(r)} = 0 \quad \text{sur } \Gamma_1, \quad (\text{C.28})$$

pour le champ de déplacements, et

En  $\varepsilon^{-1}$ :

$$\sigma_{ij}^{(0)} n_j = 0, \quad (\text{C.29})$$

En  $\varepsilon^0$ :

$$\sigma_{ij}^{(1)} n_j = F_i \quad \text{et} \quad (\text{C.30})$$

En  $\varepsilon^r$ :

$$\sigma_{ij}^{(r)} n_j = 0 \quad \text{sur } \Gamma_2 \quad (\text{C.31})$$

pour le champ de contraintes.

A partir de l'équation différentielle à l'ordre  $\varepsilon^{-2}$  du champ de contraintes (C.21), il découle que

$$\sigma_{ij}^{(0)} = \sigma_{ij}^{(0)}(\mathbf{X}) \quad (\text{C.32})$$

Si l'on considère désormais l'équation (C.17), et par symétrie du tenseur d'élasticité,

$$\sigma_{ij}^{(0)} = D_{ijkl}(\mathbf{Y}) \frac{\partial u_k^{(0)}}{\partial Y_l} \quad (\text{C.33})$$

$u_i^{(0)}(\mathbf{X}, \mathbf{Y})$  étant  $P$ -périodique, et par positivité du tenseur de rigidité, il est conclu que

$$\sigma_{ij}^{(0)} = 0 \quad (C.34)$$

$$u_i^{(0)} = u_i^{(0)}(\mathbf{X}) \quad (C.35)$$

Le champ de déplacements  $\mathbf{u}^{(0)}$  est alors indépendant de la variable d'espace microscopique  $\mathbf{Y}$ . Il s'agit donc d'un champ traduisant les déplacements à l'échelle macroscopique du matériau homogénéisé.

En réinjectant l'équation (C.34) dans (C.22), on a

$$\frac{\partial \sigma_{ij}^{(1)}}{\partial Y_j} = 0 \quad (C.36)$$

En développant l'expression de  $\sigma_{ij}^{(1)}$  grâce à (C.18) et par symétrie du tenseur de rigidité, on obtient:

$$\sigma_{ij}^{(1)} = D_{ijkl}(\mathbf{Y}) \left( \frac{\partial u_k^{(0)}}{\partial X_l} + \frac{\partial u_k^{(1)}}{\partial Y_l} \right) \quad (C.37)$$

Réinjecter (C.37) dans (C.36) mène à

$$\frac{\partial}{\partial Y_j} \left[ D_{ijkl}(\mathbf{Y}) \left( \frac{\partial u_k^{(0)}}{\partial X_l} + \frac{\partial u_k^{(1)}}{\partial Y_l} \right) \right] = 0 \quad (C.38)$$

$u_k^{(0)}$  étant indépendant de  $\mathbf{Y}$ , il est possible de déterminer le champ  $\mathbf{u}^{(1)}$  en connaissant le champ  $\mathbf{u}^{(0)}$  à l'aide du principe de superposition [2,4]. Il vient alors:

$$u_i^{(1)}(\mathbf{X}, \mathbf{Y}) = -\chi_i^{kl}(\mathbf{Y}) \frac{\partial u_k^{(0)}}{\partial X_l}(\mathbf{X}) + \bar{u}_i^{(1)}(\mathbf{X}) \quad (C.39)$$

Le champ de déplacements  $\mathbf{u}^{(1)}$  est directement proportionnel au gradient macroscopique du champ de déplacement macroscopique  $\mathbf{u}^{(0)}$  par le biais du tenseur de déplacements caractéristique, de composantes  $\chi_i^{kl}$ , à une constante d'intégration  $\bar{\mathbf{u}}^{(1)}$  près.

Le tenseur de déplacements caractéristique s'obtient en résolvant le problème de cellule donné par:

$$\int_P D_{ijkl} \frac{\partial \chi_k^{mn}}{\partial Y_l} \frac{\partial v_i}{\partial Y_j} dP = \int_P D_{ijmn} \frac{\partial v_i}{\partial Y_j} dP, \quad \forall v_i \in \tilde{\mathbf{V}}_Y, \quad (C.40)$$

où  $\tilde{\mathbf{V}}_Y$  est l'ensemble des fonctions  $P$ -périodiques continues et suffisamment régulières de moyenne nulle sur la cellule périodique  $P$ . La valeur moyenne d'un champ  $\varphi(\mathbf{X}, \mathbf{Y})$  sur la cellule périodique est donnée par:

$$\langle \varphi \rangle_P = \frac{1}{|P|} \int_P \varphi(\mathbf{X}, \mathbf{Y}) dP \quad (C.41)$$

La condition posée sur la moyenne des champs  $\chi_k^{mn}$  permet d'assurer leur unicité.

Ainsi, en remplaçant  $u_i^{(1)}$  par son expression (C.39) dans l'équation (C.18), on obtient:

$$\sigma_{ij}^{(1)} = D_{ijkl}(\mathbf{Y}) \left( I_{kl}^{mn} - \frac{\partial \chi_k^{mn}}{\partial Y_l} \right) \frac{\partial u_m^{(0)}}{\partial X_n}, \quad (\text{C.42})$$

avec

$$I_{kl}^{mn} = \delta_{km} \delta_{ln}, \quad (\text{C.43})$$

où  $\delta_{ij}$  est l'opérateur de Kronecker.

Enfin, l'équation d'équilibre à l'ordre  $\varepsilon^0$  est, encore une fois, un problème d'équilibre sur la cellule périodique  $P$ . Afin d'assurer l'existence et l'unicité du champ  $\sigma^{(2)}$ , la condition de compatibilité doit être vérifiée. Elle implique que:

$$\left\langle \frac{\partial \sigma_{ij}^{(1)}}{\partial X_j} \right\rangle_P + \langle f_i \rangle_P = 0 \quad (\text{C.44})$$

L'opérateur moyenne sur la cellule périodique  $\langle \cdot \rangle_P$  pouvant commuter avec l'opérateur  $\partial./\partial X_j$ , et puisque les forces volumiques  $f_i$  sont indépendantes de  $\mathbf{Y}$ , l'équation (C.44) devient:

$$\frac{\partial \langle \sigma_{ij}^{(1)} \rangle_P}{\partial X_j} + f_i = 0 \quad (\text{C.45})$$

Cette équation représente la description macroscopique du problème homogénéisé.

En reprenant l'expression de  $\sigma_{ij}^{(1)}$  dans (C.42) et en appliquant l'opérateur moyenne, l'équation constitutive homogénéisée apparaît:

$$\langle \sigma_{ij}^{(1)} \rangle_P = D_{ijkl}^h \frac{\partial u_m^{(0)}}{\partial X_n}, \quad (\text{C.46})$$

avec

$$D_{ijkl}^h = \frac{1}{|P|} \int_P D_{ijkl}(\mathbf{Y}) \left( I_{kl}^{mn} - \frac{\partial \chi_k^{mn}}{\partial Y_l} \right) dP, \quad (\text{C.47})$$

le tenseur de rigidité homogénéisé.

On peut également appliquer l'opérateur moyenne sur l'équation (C.30) afin de faire apparaître la forme homogénéisée des conditions limites de Neumann. On obtient:

$$\langle \sigma_{ij}^{(1)} \rangle_P n_j = F_i \quad \text{sur } \Gamma_2 \quad (\text{C.48})$$

On définit enfin les composantes du tenseur des contraintes homogénéisée  $\Sigma_{ij}$  à l'aide de la relation

$$\Sigma_{ij} = \langle \sigma_{ij}^{(1)} \rangle_P \quad (\text{C.49})$$

A l'aide des équations (C.49), (C.45), (C.27), (C.48) et (C.46), on peut alors considérer que le champ de déplacements  $\mathbf{u}^{(0)}$  est la solution du problème d'élasticité homogénéisé, défini par:

$$\frac{\partial \Sigma_{ij}}{\partial X_j} + f_i = 0 \text{ dans } \Omega, \quad (\text{C.50})$$

$$u_i^{(0)} = u_{imp} \text{ sur } \Gamma_1, \quad (\text{C.51})$$

$$\Sigma_{ij} n_j = F_i \text{ sur } \Gamma_2, \quad (\text{C.52})$$

$$\Sigma_{ij} = D_{ijkl}^h \frac{\partial u_m^{(0)}}{\partial X_n} \text{ dans } \Omega, \quad (\text{C.53})$$

Les composantes du tenseur de rigidité sont alors calculées à l'aide de la relation (C.47).

Les bases de l'homogénéisation par développements asymptotiques en élasticité linéaire étant posées, on peut désormais s'intéresser aux phénomènes de dilatations thermiques et de retraits chimiques dans les matériaux composites durant leur mise en forme.

### C.2.2 PRISE EN COMPTE DE LA THERMOELASTICITE

Afin de prendre en compte les dilatations thermiques en élasticité linéaire, il est nécessaire de modifier la loi de comportement décrite dans (C.7). La loi de comportement modifiée est donnée dans l'équation (C.54).

$$\sigma_{ij}^\varepsilon = D_{ijkl}^\varepsilon \varepsilon_{kl}^\varepsilon - \Delta T^\varepsilon A_{ij}^\varepsilon \text{ dans } \Omega, \quad (\text{C.54})$$

avec

$$\Delta T^\varepsilon = T^\varepsilon - T_0, \quad (\text{C.55})$$

et

$$A_{ij}^\varepsilon = D_{ijkl}^\varepsilon \alpha_{kl}^\varepsilon = A_{ij}^\varepsilon(\mathbf{X}/\varepsilon) \quad (\text{C.56})$$

où  $T^\varepsilon$  est le champ de température,  $T_0$  est la température de référence,  $A_{ij}$  sont les composantes du tenseur de module thermique et  $\alpha_{kl}$  sont les composantes du tenseur de coefficients de dilatation thermique.

Comme nous l'avons vu au chapitre précédent, il est possible d'écrire le champ de température sous la forme d'un développement asymptotique (C.57). Ce champ est déterminé en utilisant les développements présentés dans le chapitre 4.

$$T^\varepsilon = \varepsilon^0 T^{(0)} + \varepsilon^1 T^{(1)} + \varepsilon^2 T^{(2)} + \dots, \quad (\text{C.57})$$

La résolution du problème thermo-élastique revient à déterminer la solution  $u_i^{(0)}$  du problème homogénéisé décrit par les équations (C.58) à (C.61).

$$\frac{\partial \Sigma_{ij}}{\partial X_j} + f_i = 0 \text{ dans } \Omega, \quad (\text{C.58})$$

$$u_i^{(0)} = u_{imp} \text{ sur } \Gamma_1, \quad (\text{C.59})$$

$$\Sigma_{ij} n_j = F_i \text{ sur } \Gamma_2, \quad (\text{C.60})$$

$$\Sigma_{ij} = D_{ijkl}^h \frac{\partial u_m^{(0)}}{\partial X_n} - (T^{(0)} - T_0) A_{ij}^h \text{ dans } \Omega, \quad (\text{C.61})$$

où  $\beta_{ij}^h$  sont les composantes du tenseur homogénéisé de module thermique, données par:

$$A_{ij}^h = \frac{1}{|P|} \int_P \left( A_{ij}(\mathbf{Y}) - D_{ijkl}(\mathbf{Y}) \frac{\partial \Psi_k}{\partial Y_l} \right) dP, \quad (\text{C.62})$$

avec  $\Psi_k$ , les composantes du tenseur thermomécanique caractéristique. Ces composantes sont les solutions du problème de cellule (C.63).

$$\int_P D_{ijkl} \frac{\partial \Psi_k}{\partial Y_l} \frac{\partial v_i}{\partial Y_j} dP = \int_P A_{ij} \frac{\partial v_i}{\partial Y_j} dP, \quad \forall v_i \in \tilde{V}_Y, \quad (\text{C.63})$$

Les composantes du tenseur de rigidité homogénéisé  $D_{ijkl}^h$  sont décrites par la relation (C.47) et ne sont pas influencées par le comportement thermo-élastique du matériau.

### C.2.3 APPLICATION A LA THERMO-CHEMO-ELASTICITE

De la même façon que pour les dilatations thermiques, la prise en compte du retrait chimique nécessite de modifier la loi de comportement décrite dans (C.7). La loi de comportement modifiée est donnée par:

$$\sigma_{ij}^\varepsilon = D_{ijkl}^\varepsilon \varepsilon_{kl}^\varepsilon - \Delta T^\varepsilon A_{ij}^\varepsilon - \Delta x^\varepsilon B_{ij}^\varepsilon \text{ dans } \Omega, \quad (\text{C.64})$$

avec

$$\Delta x^\varepsilon = x^\varepsilon - x_0, \quad (\text{C.65})$$

et

$$B_{ij}^\varepsilon = D_{ijkl}^\varepsilon \beta_{kl}^\varepsilon = B_{ij}^\varepsilon(\mathbf{X}/\varepsilon) \quad (\text{C.66})$$

où  $x^\varepsilon$  est le champ d'avancement,  $x_0$  est l'avancement de référence,  $B_{ij}$  sont les composantes du tenseur de module chimique et  $\beta_{kl}$  sont les composantes du tenseur de coefficients de retrait chimique.

Comme vu au chapitre précédent, il est possible d'écrire le champ d'avancement sous la forme d'un développement asymptotique (C.57). Ce champ est déterminé en utilisant les développements présentés dans le chapitre 4.

$$x^\varepsilon = \varepsilon^0 x^{(0)} + \varepsilon^1 x^{(1)} + \varepsilon^2 x^{(2)} + \dots, \quad (\text{C.67})$$

La résolution du problème thermo-chémo-élastique homogénéisé revient à déterminer la solution  $u_i^{(0)}$  du problème décrit par les équations (C.58) à (C.61).

$$\frac{\partial \Sigma_{ij}}{\partial X_j} + f_i = 0 \text{ dans } \Omega, \quad (\text{C.68})$$

$$u_i^{(0)} = u_{imp} \text{ sur } \Gamma_1, \quad (\text{C.69})$$

$$\Sigma_{ij} n_j = F_i \text{ sur } \Gamma_2, \quad (\text{C.70})$$

$$\Sigma_{ij} = D_{ijkl}^h \frac{\partial u_m^{(0)}}{\partial X_n} - (T^{(0)} - T_0) A_{ij}^h - (x^{(0)} - x_0) B_{ij}^h \text{ dans } \Omega, \quad (\text{C.71})$$

où  $x_0$  est l'avancement de référence et  $B_{ij}^h$  sont les composantes du tenseur homogénéisé de module chimique, données par:

$$B_{ij}^h = \frac{1}{|P|} \int_P \left( B_{ij}(\mathbf{Y}) - D_{ijkl}(\mathbf{Y}) \frac{\partial \Xi_k}{\partial Y_l} \right) dP, \quad (\text{C.72})$$

avec  $\Xi_k$ , les composantes du tenseur chémo-mécanique caractéristique. Ces composantes sont les solutions du problème de cellule (C.63).

$$\int_P D_{ijkl} \frac{\partial \Xi_k}{\partial Y_l} \frac{\partial v_i}{\partial Y_j} dP = \int_P B_{ij} \frac{\partial v_i}{\partial Y_j} dP, \quad \forall v_i \in \tilde{\mathbf{V}}_Y, \quad (\text{C.73})$$

Les composantes du tenseur de rigidité homogénéisé  $D_{ijkl}^h$  sont toujours décrites par la relation (C.47), celles du tenseur homogénéisé de module thermique sont données par (C.62). Ces deux tenseurs ne sont pas influencés par le comportement chémo-élastique du matériau.

## C.3 MATERIAU

Afin d'appliquer cette méthode, on s'intéresse au cas du matériau UD à fibres de carbone et résine époxy T700/M21. Il est composé de 57% de fibres de carbone en volume. Les propriétés thermo-physiques du matériau ont déjà été présentées en chapitre 3. Les propriétés mécaniques des fibres et de la résine sont données dans [5–7] et rappelées dans les tableaux Tableau C.1 et Tableau C.2, respectivement.

**Tableau C.1: Propriétés mécaniques des fibres**

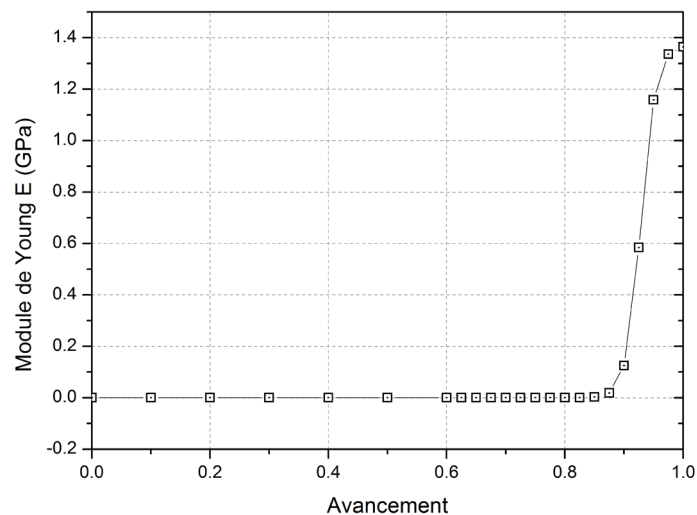
Propriété	Unité	Valeur	Propriété	Unité	Valeur
$E_1^f$	GPa	230	$G_{12}^f$	GPa	27.6
$E_2^f, E_3^f$	GPa	20.7	$\alpha_1^f$	$10^{-6} \text{ K}^{-1}$	-3.8
$\nu_{12}^f, \nu_{13}^f$		0.2	$\alpha_2^f$	$10^{-6} \text{ K}^{-1}$	20
$G_{23}^f$	GPa	6.89	$\beta_1^f, \beta_2^f$	%	0

où  $E_i$  représente le module de Young dans la direction  $i$ ,  $\nu_{ij}$  le coefficient de Poisson dans le plan contenant les directions  $i$  et  $j$ ,  $G_{ij}$  le module de cisaillement dans le plan contenant les directions  $i$  et  $j$ ,  $\alpha_i$  le coefficient de dilatation thermique dans la direction  $i$  et  $\beta_i$  le coefficient de retrait dans la direction  $i$ . Les directions 2 et 3 sont les directions transverses aux fibres, la direction 1 est la direction longitudinale aux fibres.

**Tableau C.2: Propriétés mécaniques de la résine**

Propriété	Unité	Valeur
$\nu^r$		0.35
$\alpha_{\text{cru}}^r$	$10^{-6} \text{ K}^{-1}$	200
$\alpha_{\text{cuit}}^r$	$10^{-6} \text{ K}^{-1}$	45
$\beta^r$	%	1.9
$x_{\text{gel}}^r$		0.52

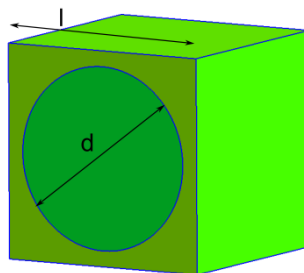
où  $x_{\text{gel}}$  est l'avancement au point de gel de la matrice. On considère le coefficient de Poisson de la résine  $\nu^r$  comme constant au cours de la transformation. En complément, l'évolution du module de Young de la matrice au cours de la transformation est donné en Figure C.2.

**Figure C.2: Evolution du module de Young E de la résine avec l'avancement [5]**

L'évolution du coefficient de dilatation thermique de la résine au cours de la transformation est régie par une loi des mélanges entre la valeur à l'état cru  $\alpha_{\text{cru}}$  et celle à l'état cuit  $\alpha_{\text{cuit}}$ .

## C.4 EVOLUTION DES PROPRIETES EQUIVALENTES AVEC LE DEGRE D'AVANCEMENT

A l'aide des différentes propriétés présentées précédemment, on peut calculer les propriétés équivalentes du matériau UD T700/M21. La cellule périodique utilisée afin de calculer ces propriétés est un cube de résine contenant un cylindre représentant la fibre (Figure C.3).

**Figure C.3: Cellule périodique**

Le cylindre a un diamètre  $d$  de  $8.5\mu\text{m}$  et le côté  $l$  du cube mesure  $10\mu\text{m}$ . On retrouve bien 57% de fibres en volume.

#### C.4.1 PROPRIETES EQUIVALENTES

On s'intéresse dans un premier temps aux composantes du tenseur de rigidité homogénéisé du matériau  $D_{ijkl}^h$ . Peu importe l'avancement de la réaction, on remarque que la matrice de rigidité a la structure suivante:

$$\begin{bmatrix} D_{1111}^h & D_{1122}^h & D_{1122}^h & 0 & 0 & 0 \\ D_{1122}^h & D_{2222}^h & D_{2233}^h & 0 & 0 & 0 \\ D_{1122}^h & D_{2233}^h & D_{2222}^h & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & D_{2323}^h & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & D_{1212}^h & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & D_{1212}^h \end{bmatrix}$$

On reconnaît alors la matrice de rigidité d'un matériau isotrope transverse. Afin d'appréhender plus simplement les propriétés mécaniques calculées, on utilise les relations qui existent entre les composantes du tenseur  $D_{ijkl}^h$  et les propriétés mécaniques d'un matériau isotrope transverse telles que les modules de Young longitudinal  $E_1$  et transversal  $E_2$  ou  $E_3$  ou encore les modules de cisaillement  $G_{12}$ ,  $G_{13}$  et  $G_{23}$  [8]. On remarque que, peu importe l'avancement de la réaction, le module de Young longitudinal du matériau  $E_1$  reste constant à une valeur de 131 GPa. Les propriétés des fibres gouvernent donc les propriétés équivalentes dans cette direction là.

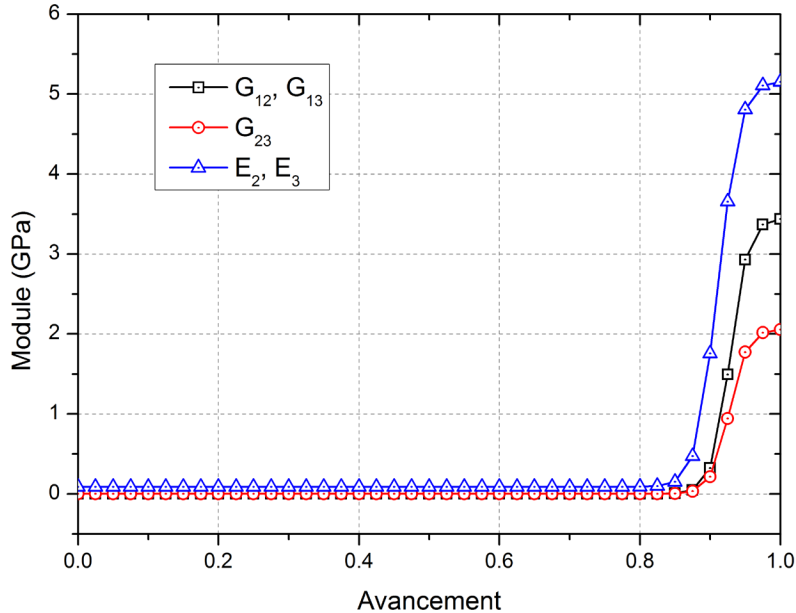


Figure C.4: Evolution des modules de Young transverse et des modules de cisaillement avec l'avancement

L'évolution des autres propriétés mécaniques du matériau composite est présentée en Figure C.4. On remarque que toutes ces propriétés sont fortement influencées par le développement du module de Young de la résine. Le module de cisaillement dans le plan 23 est plus faible que ceux dans les plans comprenant la direction de la fibre. Cela s'explique par une influence plus faible du comportement mécanique de la fibre dans ce plan.

Les coefficients de dilatation thermique dans les trois directions  $\alpha_1$ ,  $\alpha_2$  et  $\alpha_3$  sont donnés en Figure C.5. Le coefficient longitudinal  $\alpha_1$  est fortement dépendant des propriétés des fibres, sa valeur restant proche de  $\alpha_1^f$  durant toute la transformation. Les coefficients transverses  $\alpha_2$  et  $\alpha_3$  sont quant à eux liés au coefficient de dilatation de la résine et à son évolution avec l'avancement. Ils suivent globalement une loi des mélanges entre leur valeur à l'état cru qui avoisine  $140 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  et celle à l'état cuit de  $35 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ . La diminution de leur valeur à la fin de la réaction se fait cependant plus rapidement et est liée au développement des propriétés mécaniques de la résine, rendant sa contribution plus importante.

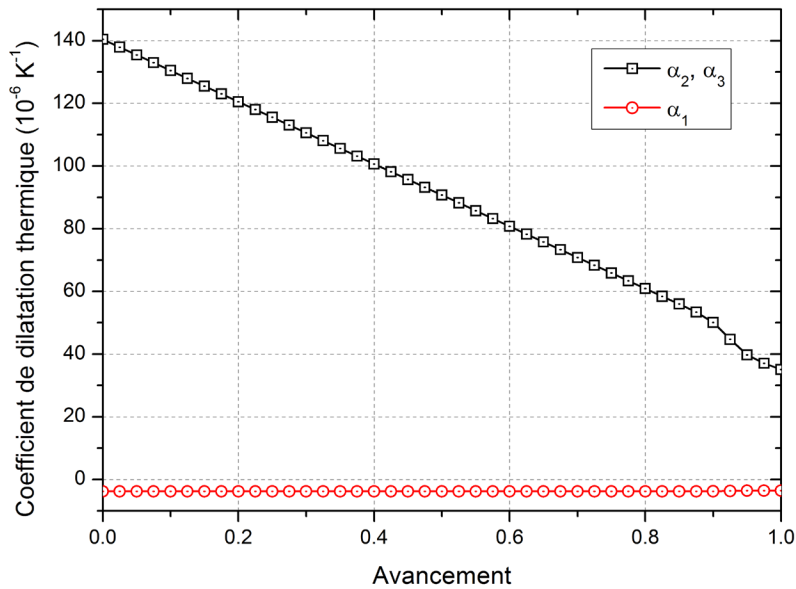


Figure C.5: Evolution des coefficients de dilatation thermique avec l'avancement

Les variations avec l'avancement des coefficients de retrait chimique  $\beta_1$ ,  $\beta_2$  et  $\beta_3$  sont représentées en Figure C.6. Les coefficients de retrait chimique transverses sont supérieurs au coefficient longitudinal et passent d'une valeur de  $-1.22\%$  en début de transformation à  $-0.92\%$  en fin de transformation. Cette diminution en valeur absolue est due au développement des propriétés mécaniques de la résine et est compensée par une augmentation des retraits dans la direction longitudinale. En effet, le coefficient dans cette dernière direction passe d'une valeur nulle à  $-0.01\%$  en fin de transformation lorsque la résine est suffisamment rigide pour transmettre des efforts aux fibres.

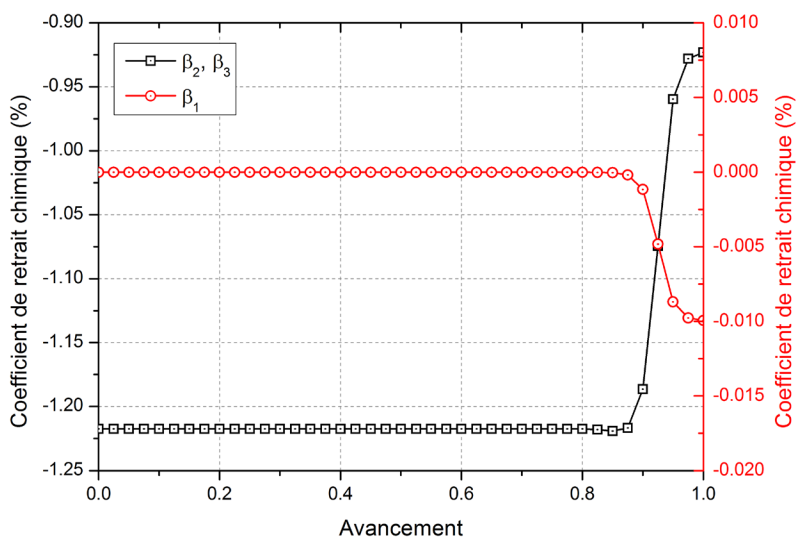


Figure C.6: Evolution des coefficients de retrait chimique avec l'avancement

### C.4.2 COMPARAISON A UNE APPROCHE AUTO-COHERENTE

Ces différentes propriétés avaient déjà été estimées par Abou Msallem *et al.* [5,6] et par Nawab *et al.* [7] à l'aide d'une approche auto-cohérente. Les résultats ne sont cependant pas identiques, excepté le module de Young dans la direction longitudinale  $E_1$ . A titre d'exemple, ils ont estimé que la valeur finale du module de Young transverse  $E_2$  atteint 5.63 GPa, contre 5.15 GPa avec l'approche décrite ici. Leur module de cisaillement  $G_{12}$  atteint une valeur de 6.40 GPa, alors que le notre n'a une valeur finale que de 3.44 GPa. Plus étonnant, leurs coefficients de retrait chimique dans la direction transverse aux fibres  $\beta_2$  et  $\beta_3$  sont nuls jusqu'au point de gel et tendent vers -0.67% à la fin de la transformation. Bien que les propriétés mécaniques de la résine ne soient pas très élevées avant le point de gel, celle-ci subit quand même un retrait chimique qui devrait se faire ressentir au niveau du matériau composite, et d'autant plus dans la direction transverse aux fibres.

Ces écarts peuvent en partie s'expliquer par la différence entre les deux méthodes d'estimation des propriétés. L'approche auto-cohérente est basée sur le formalisme mathématique de Kröner [9] et d'Eshelby [10], qui considère la présence d'une inclusion ellipsoïdale dans un milieu homogène infini. Dans un matériau composite, les fibres interagissent les unes avec les autres aux petites échelles et leur comportement dépend de celui des fibres voisines. L'approche auto-cohérente utilisée par Abou Msallem et Nawab ne considère qu'une seule fibre dans un milieu homogène infini, l'interaction entre les fibres proches n'est pas prise en compte. Dans la méthode d'homogénéisation par développements asymptotiques, la cellule périodique sur laquelle les propriétés effectives sont calculées est, comme son nom l'indique, périodique. Toutes les fonctions calculées sur cette cellule prennent en compte une infinité de cellules identiques dans l'environnement de la cellule de par la périodicité de ces fonctions. Cette différence dans le formalisme mathématique des deux méthodes peut expliquer les écarts existants. Il serait intéressant de comparer les résultats pour de faibles taux de fibres, où la présence des fibres voisines se fait moins ressentir.

## C.5 APPLICATION A L'EXPERIENCE REALISEE SUR LE T700/M21

On propose de modéliser l'expérience réalisée sur l'UD T700/M21 à l'aide du dispositif conçu et présenté au chapitre 4. Pour ce faire, on étudie les transferts thermiques, la réaction de réticulation et les déformations mécaniques dans l'échantillon. La géométrie de celui-ci est simplifiée afin de se ramener à un problème en deux dimensions. Le plan dans lequel on se place passe par le milieu de l'échantillon et contient les deux directions de mesure: celle à travers l'épaisseur de l'échantillon et celle dans le plan, transverse à la direction des fibres (Figure C.7a).

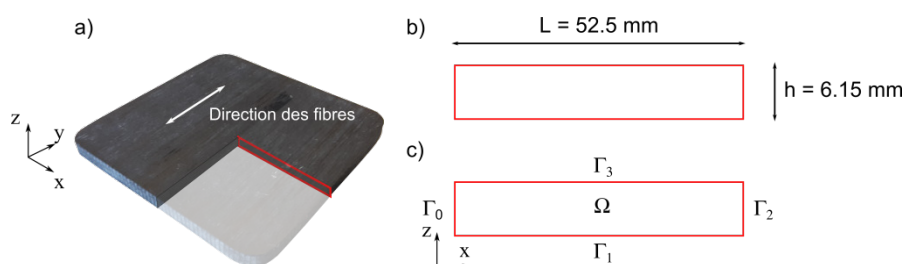


Figure C.7: a) Représentation du plan de l'étude dans l'échantillon b) Dimensions du domaine étudié c) Désignation du domaine et des frontières

Les dimensions du domaine sont données dans la Figure C.7b. Les conditions aux limites autour du domaine sont décrites en thermique par un flux nul sur les surfaces  $\Gamma_0$  et  $\Gamma_2$  (Figure C.7c), et une température imposée sur les surfaces  $\Gamma_1$  et  $\Gamma_3$ , correspondant aux températures de surface déterminées par l'analyse des données des capteurs de flux inférieur et supérieur, respectivement. On résout donc le problème thermo-chimique couplé de mise en forme du matériau, à l'aide des propriétés données dans le chapitre 3, section 3.4.7.1. Il faut tout de même préciser que les propriétés thermiques sont considérées comme constantes durant la transformation, ce qui est une hypothèse forte. De futurs développements permettront de prendre en compte la dépendance à l'avancement et à la température des propriétés thermo-physiques.

Le problème thermo-chémo-mécanique est résolu à l'aide des propriétés présentées dans la section précédente. Les conditions aux limites sont telles que les déplacements en  $\Gamma_0$  sont bloqués suivant  $x$ , ceux sur  $\Gamma_1$  en  $z$ , et une pression normale de 0.7MPa est appliquée sur  $\Gamma_2$  et  $\Gamma_3$ .

A chaque étape en temps, le problème thermo-chimique est résolu, donnant ainsi les champs de température et d'avancement homogénéisés dans l'échantillon. Le problème thermo-chémo-mécanique est ensuite résolu à l'aide des champs précédents, donnant ainsi les champs de déformation et de contraintes.

La distribution de température et d'avancement à travers l'épaisseur est donnée en Figure C.8, pour trois points: un en haut de l'échantillon, un au centre et un en bas.

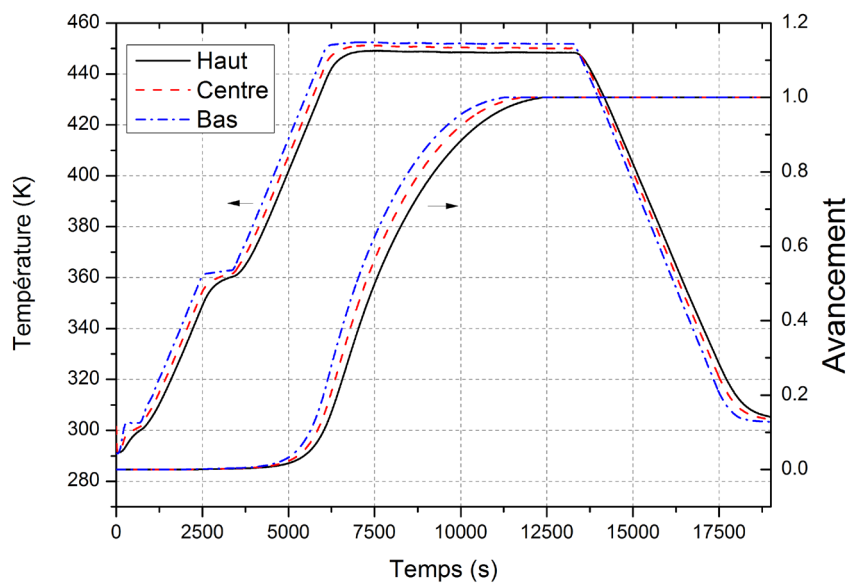
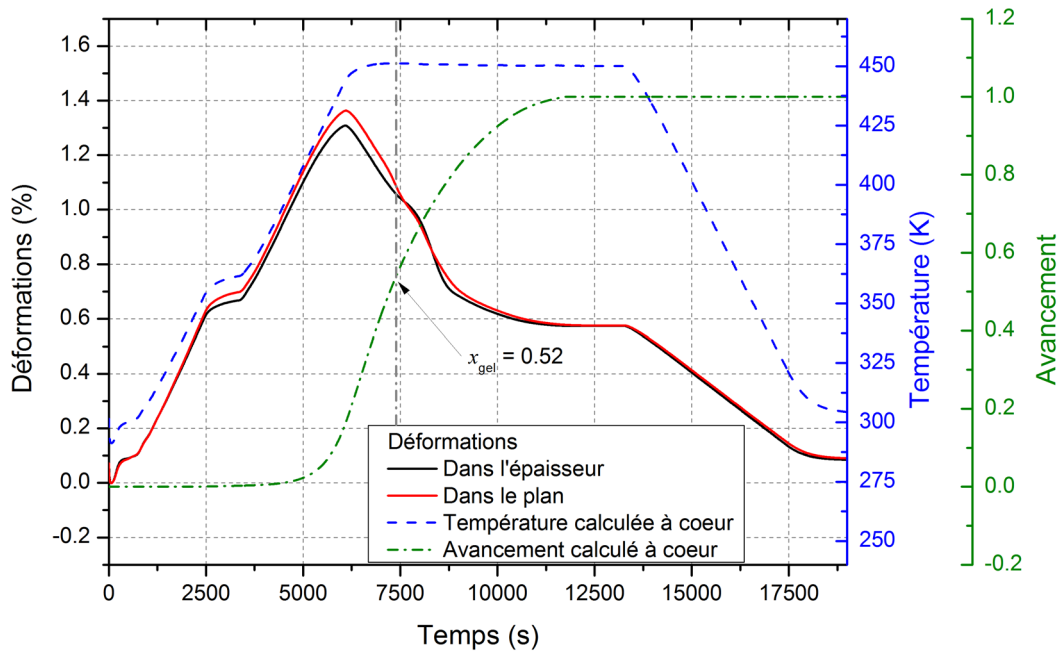


Figure C.8: Température et avancement en haut, au centre et en bas de l'échantillon

Durant la montée en température, on a au maximum 12 K d'écart entre la température en surface inférieure et celle en surface supérieure de l'échantillon. Durant la réaction, on a au maximum un écart de 0.14 d'avancement entre ces deux surfaces. La réaction ne provoque pas d'élévation élevée de température dans le cœur de l'échantillon.

Les déformations moyennes à travers l'épaisseur et dans le plan de l'échantillon issues du modèle thermo-chémo-mécanique sont représentées en Figure C.9. On étudie les déformations moyennes car il existe peu d'écarts entre les déformations des différents points d'une même surface  $\Gamma_i$ . Il semble que le comportement mécanique ne soit pas parfaitement isotrope transverse, les déformations suivant les deux directions n'étant pas parfaitement identiques notamment avant le point de gel de la résine.



**Figure C.9: Déformations à travers l'épaisseur et dans le plan de l'échantillon, avancement et température calculés à cœur**

Quoi qu'il en soit, on observe, durant toute la phase de montée en température, une dilatation proportionnelle à l'élévation de température suivant les deux directions étudiées et ce jusqu'à  $t = 5000$ s. Ensuite, la réaction débute et le retrait chimique commence à affecter les dilatations. Au début du plateau isotherme ( $t = 6000$ s), le retrait devient le phénomène prédominant et les dilatations diminuent. Une légère perturbation a lieu durant le retrait, induisant un changement de pentes après le point de gel de la résine (vers  $t = 7500$ s). Ceci est lié au développement des propriétés mécaniques de la résine qui n'est pas pris en compte correctement dans la loi de comportement (C.64). La réaction se termine à la fin du plateau isotherme. Durant le refroidissement, les dilatations diminuent du au retrait thermique.

## C.6 CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Dans cette annexe, on présente comment l'homogénéisation par développements asymptotiques peut être utilisée afin de modéliser le comportement mécanique des matériaux composites durant leur mise en forme. Ces développements viennent compléter la démarche présentée au chapitre 3. Le couplage multiphysique est alors opéré, afin de prendre en compte les transferts thermiques, la réaction de réticulation ainsi que les déformations d'ordre mécanique, les dilatations thermiques et le retrait chimique du matériau. Cette méthode a été appliquée à un matériau UD connu, référencé T700/M21. Les propriétés mécaniques ainsi que les tenseurs de dilatation thermique et de retrait chimique estimés ont été présentés et comparés aux résultats issus d'une approche auto-cohérente. L'intérêt de la méthode utilisée ici est de prendre en compte les possibles interactions entre les fibres, ce que ne permet pas l'approche auto-cohérente. Cette différence explique les écarts obtenus sur les propriétés estimées. Une fois les propriétés équivalentes déterminées, la méthode d'homogénéisation par développements asymptotiques a permis de modéliser une expérience réalisée sur le même matériau et présentée au chapitre 4. Un bon accord existe entre résultats expérimentaux et numériques, mais une vérification de la répétabilité des mesures expérimentales est nécessaire à la validation de ces résultats.

Les différents outils présentés dans cette annexe ainsi que dans le chapitre 4 permettent en théorie de prédire l'évolution des déformations et contraintes résiduelles au sein d'une pièce en matériau composite durant tout le cycle de mise en forme. L'approche mécanique présentée ici est cependant limitée et nécessiterait des efforts supplémentaires. En effet, le modèle élastique utilisé pour décrire le comportement de la résine à l'échelle microscopique ne prend pas bien en compte le développement des propriétés mécaniques de celle-ci au cours de la transformation. Il serait intéressant d'utiliser un modèle tel que celui présenté au chapitre 2 [11], qui lui prend bien en compte ces phénomènes. L'adimensionnement des équations constitutives du modèle n'a pas non plus été réalisée. Il existe cependant, durant les premières phases de la transformation, un fort contraste entre les propriétés mécaniques de la résine et celle des fibres. Ce contraste peut avoir une influence sur l'homogénéisabilité du problème ainsi que sur l'expression des propriétés équivalentes et sur le modèle homogénéisé à l'échelle macroscopique. Ces différents points permettraient de décrire plus finement les phénomènes ayant lieu durant la mise en forme des matériaux composites. Une fois pris en compte, il sera possible d'utiliser cet outil afin d'étudier l'influence de nombreux paramètres sur les retraits et les contraintes résiduelles dans des pièces plus complexes en terme de formes et de structure microscopique.

---

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] P.W. Chung, K.K. Tamma, R.R. Namburu, Asymptotic expansion homogenization for heterogeneous media: Computational issues and applications, *Compos. - Part A Appl. Sci. Manuf.* 32 (2001) 1291–1301.
- [2] J. Pinho-da-Cruz, J.A. Oliveira, F. Teixeira-Dias, Asymptotic homogenisation in linear elasticity. Part I: Mathematical formulation and finite element modelling, *Comput. Mater. Sci.* 45 (2009) 1073–1080.
- [3] G.A. Francfort, Homogenization and Linear Thermoelasticity, *SIAM J. Math. Anal.* 14 (1983) 696–708.
- [4] J. Sanchez-Hubert, E. Sanchez-Palencia, Introduction aux méthodes asymptotiques et à l'homogénéisation: application à la mécanique des milieux continus, Masson, Paris, 1992.
- [5] Y. Abou Msallem, Caractérisation thermique et mécanique d'un matériau composite aéronautique pendant le procédé d'élaboration - Contribution à l'estimation des contraintes résiduelles, Thèse de Doctorat, Ecole Centrale de Nantes, 2008.
- [6] Y. Abou Msallem, F. Jacquemin, A. Poitou, Residual stresses formation during the manufacturing process of epoxy matrix composites: resin yield stress and anisotropic chemical shrinkage, *Int. J. Mater. Form.* 3 (2010) 1363–1372.
- [7] Y. Nawab, F. Jacquemin, P. Casari, N. Boyard, V. Sobotka, Evolution of chemical and thermal curvatures in thermoset-laminated composite plates during the fabrication process, *J. Compos. Mater.* (2012).
- [8] R.M. Christensen, F.M. Waals, Effective Stiffness of Randomly Oriented Fibre Composites, *J. Compos. Mater.* 6 (1972) 518–535.
- [9] E. Kroner, Berechnung der Elastischen Konstant des Vielkristalls aus den Konstant des Einkristalls, *Z. Phys.* 151 (1958) 504–518.
- [10] J.D. Eshelby, The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion, and related problems, *Proc. R. Soc. London Ser. A Math. Phys. Sci.* 241 (1957) 376–396.
- [11] M. Hossain, G. Possart, P. Steinmann, A small-strain model to simulate the curing of thermosets, *Comput. Mech.* 43 (2009) 769–779.



# ANNEXE D

## CORRECTIONS OPTIQUES POUR LA MESURE DE DEFORMATIONS LATÉRALES

---

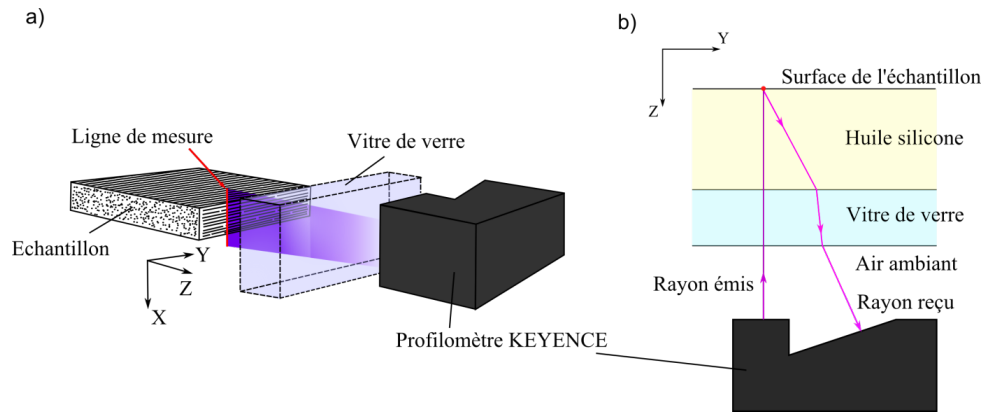
---

### TABLE DES MATIÈRES

D.1	Introduction .....	252
D.2	Performances du profilomètre optique en conditions classiques de mesure .....	252
D.3	Influence de la vitre de verre et de l'huile silicone sur les performances du profilomètre .....	254
D.4	Corrections optiques.....	254
D.5	Application au dispositif de mesure des retraits.....	258
D.6	Conclusion.....	259

## D.1 INTRODUCTION

Pour rappel, on cherche à mesurer les déformations de la surface latérale de l'échantillon durant sa mise en forme à l'aide d'un profilomètre sans contact. Ce dernier émet un faisceau de rayons visibles (proche ultra-violet), qui traverse alors une vitre de verre et de l'huile silicone avant d'être réfléchi sur la surface latérale de l'échantillon (Figure D.1a).



**Figure D.1 a) Positions relatives du profilomètre, de la vitre de verre et de l'échantillon b) Vue de haut de cette représentation**

Les rayons du faisceau émis sont orthogonaux à la surface de la vitre de verre. Ils ne sont théoriquement pas soumis aux phénomènes de diffraction. Les rayons réfléchis sur la surface de l'échantillon et reçus par le profilomètre sont, quant à eux, légèrement inclinés par rapport aux surfaces de la vitre (Figure D.1b). Ceci est dû à la position de la cellule sensible du capteur qui n'est pas coïncidente de la surface d'émission des rayons. De fait, les rayons reçus subissent la diffraction liée aux différences d'indices de réfraction entre l'huile, le verre et l'air.

On propose dans un premier temps de valider les performances du profilomètre en condition de mesure classique (*i.e.* dans l'air seul). Puis, l'influence de la présence du verre et de l'huile sur ces performances seront étudiées.

## D.2 PERFORMANCES DU PROFILOMETRE OPTIQUE EN CONDITIONS CLASSIQUES DE MESURE

Plusieurs expériences ont été réalisées afin de vérifier les performances de la mesure latérale à l'aide du profilomètre. Dans un premier temps, la répétabilité de la mesure annoncée par le fabricant est vérifiée à l'aide d'une expérience simple. Pour cela, le profilomètre est placé de telle sorte à mesurer la distance entre la surface d'une cale étalon de dimension connue et la surface d'une cale support, servant de plan de référence (Figure D.2). Cette distance est égale à l'épaisseur  $e$  de la cale étalon. Deux cales de 1.005 mm et de 1.010 mm d'épaisseur sont utilisées, et le profilomètre est placé à différentes distances  $L$  (égale à 70, 80 et 90  $\pm 0.5$  mm, respectivement) des surfaces mesurées.

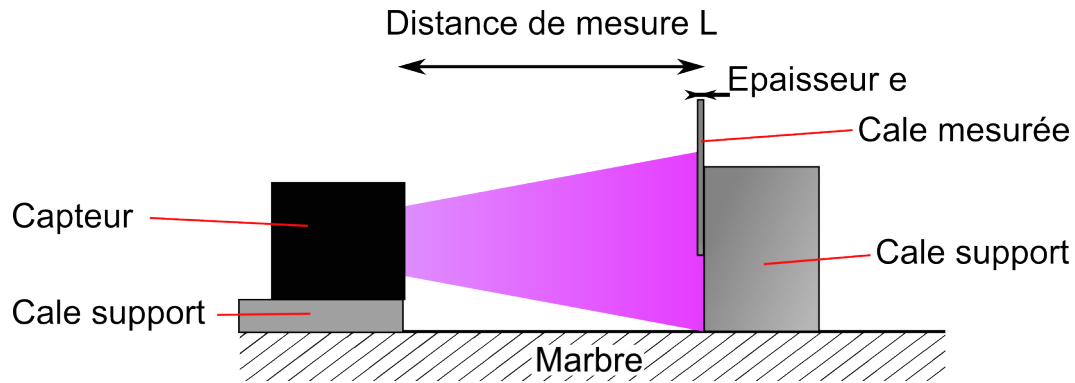


Figure D.2: Schéma du montage réalisé afin de quantifier les performances du profilomètre en conditions classiques de mesure

Les résultats des différents essais sont donnés dans le Tableau D.1.

Tableau D.1: Résultats des mesures réalisées à l'air libre

Epaisseur $e$ (mm)	1,005			1,010		
Distance $L$ (mm)	70	80	90	70	80	90
Mesure 1 (mm)	1,0045	1,0051	1,0045	1,0102	1,0100	1,0101
Mesure 2 (mm)	1,0042	1,0039	1,0037	1,0098	1,0097	1,0099
Mesure 3 (mm)	1,0048	1,0040	1,0050	1,0095	1,0101	1,0097
Mesure 4 (mm)	1,0040	1,0049	1,0041	1,0092	1,0098	1,0100
Mesure 5 (mm)	1,0042	1,0040	1,0049	1,0101	1,0100	1,0102
Moyenne (mm)	1,0043	1,0044	1,0044	1,0098	1,0099	1,0100
Ecart-Type (mm)	0,0003	0,0006	0,0005	0,0004	0,0002	0,0002
Erreur de mesure (%)	0,066	0,062	0,056	0,024	0,008	0,002

La justesse de mesure du capteur, correspondant à l'aptitude de celui-ci à donner une mesure égale à la valeur réelle, est liée à l'erreur de mesure. Cette dernière atteint au maximum 0.07% et correspond à une distance d'environ quelques dixièmes de micromètres. Elle n'est pas spécifiée dans les données du constructeur. Ensuite, la fidélité du profilomètre est sa capacité à délivrer, pour une même valeur de la grandeur mesurée, des mesures répétitives concordantes entre elles. L'erreur de fidélité correspond à l'écart type obtenu sur une série de mesures correspondant à une mesurande constante. Dans notre cas, on voit que l'écart-type est de l'ordre de 0.5 micromètres, ce qui correspond à la valeur annoncée par le fabricant pour cette direction de mesure. Cependant, en métrologie, il convient que les mesures effectuées soient réparties autour de la moyenne selon une loi normale. 95% des mesures sont alors comprises entre plus et moins trois écarts-types autour de la moyenne. Si l'on se base sur l'écart-type trouvé précédemment, on obtient une répétabilité de 3 $\mu$ m, ce qui est largement supérieur à la valeur annoncée. Un tel écart peut s'expliquer de deux façons:

- le nombre d'essais réalisés est faible. Afin d'obtenir une loi normale, il est courant d'effectuer une centaine de mesures.
- les cales étalon sont faites en acier et leur surface est très réfléchissante. La mesure peut donc facilement être perturbée par des phénomènes de réflexion. Les mesures réalisées par le fabricant ont été faites sur un matériau plastique blanc diffusant, limitant ainsi ce phénomène.

Il convient désormais de déterminer l'influence de la vitre et de l'huile sur les performances du profilomètre.

### D.3 INFLUENCE DE LA VITRE DE VERRE ET DE L'HUILE SILICONE SUR LES PERFORMANCES DU PROFILOMETRE

Une seconde expérience est alors réalisée sur un montage représentatif du dispositif conçu. Une cuve d'acier est munie d'une fenêtre de verre de 10mm d'épaisseur et de même nuance que les vitres du dispositif. Elle est remplie d'huile silicone dont l'indice de réfraction est proche de l'huile utilisée dans le dispositif conçu. Deux cales étalon de dimensions connues sont placées dans l'huile silicone. La configuration des cales fait que l'on mesure la largeur  $l$  de l'une d'elles (Figure D.3). Cette largeur est donnée par le fabricant de cales étalon et vaut 10.000 mm avec une précision à 20°C de  $\pm 0.2 \mu\text{m}$ .

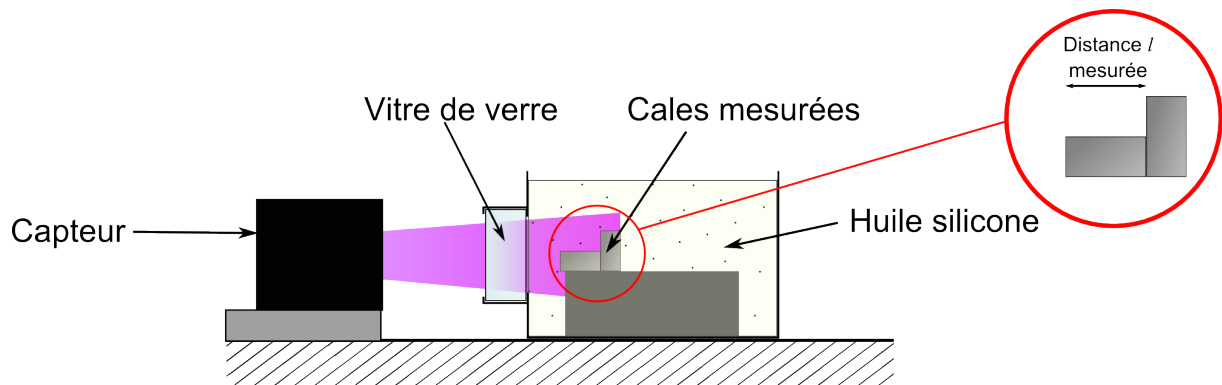


Figure D.3: Schéma du montage réalisé afin de quantifier les performances du profilomètre à travers la vitre et l'huile silicone

Une série de mesures est encore une fois réalisée et les résultats sont donnés dans le Tableau D.2.

Tableau D.2: Résultats des mesures à travers la vitre et l'huile silicone

	Mesure 1	Mesure 2	Mesure 3	Mesure 4	Mesure 5	Mesure 6
Distance $l$ (mm)	7,2205	7,2199	7,2197	7,2200	7,2203	7,2198
	<b>Moyenne</b>		<b>Ecart-Type</b>		<b>Erreur (%)</b>	
	7,2200		0,0003		27,8	

L'écart-type est encore une fois égal à  $0.3 \mu\text{m}$ , ce qui permet de valider la répétabilité de la mesure. Par contre, la valeur moyenne obtenue présente un écart de 27.8% avec la grandeur réelle mesurée. Cet écart est lié à la présence de la vitre et de l'huile qui ne sont pas neutres dans la mesure de la topographie. Un tel écart peut être expliqué à l'aide de l'optique géométrique, ce qui fait l'objet de la section suivante.

### D.4 CORRECTIONS OPTIQUES

Les rayons émis et reçus par le profilomètre ne traversent plus seulement l'air ambiant, mais également le verre et l'huile silicone. Ces trois milieux possèdent des indices de réfraction différents. Les interfaces entre ces trois milieux transparents sont parallèles, à la précision de fabrication de la vitre près. On considère alors qu'ils forment un bilame à faces parallèles.

Chacune des deux interfaces, entre l'air ambiant et la vitre ou entre la vitre et l'huile silicone forme un dioptre optique. Il s'agit d'une interface plane  $\Sigma$  entre deux milieux d'indice de réfraction  $n_1$  et  $n_2$ . Bien que les rayons émis par le capteur traversent les interfaces optiques perpendiculairement aux surfaces, les rayons réfléchis sur l'échantillon et reçus par le capteur présentent un angle non-nul, dû au fait que le récepteur du capteur n'est pas coïncident avec l'émetteur. La Figure D.4 schématise le chemin suivi par un rayon de lumière issu d'un objet réel  $A_1$  et traversant le dioptre avec un angle d'incidence non nul, représentant alors un rayon réfléchi sur la surface de l'échantillon et capté par le profilomètre.

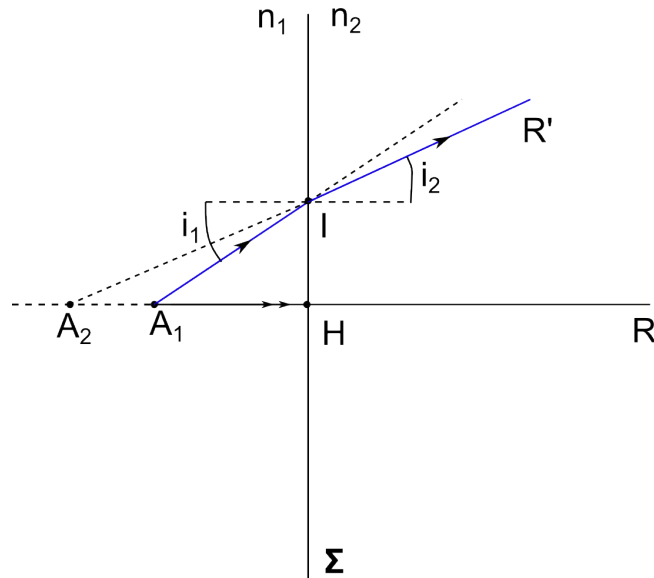


Figure D.4: Chemin suivi par un rayon traversant un dioptre

Le rayon issu de  $A_1$  et incident d'un angle  $i_1$  au point  $I$  à l'interface est réfracté et dévié suivant une direction  $R'$ , avec un angle  $i_2$ . L'image issue de  $A_1$  semble alors venir d'un objet virtuel  $A_2$  sur l'axe optique  $R$ . On peut, à l'aide de la loi de Snell-Descartes et de relations géométriques simples, déterminer la relation liant l'objet réel  $A_1$  à l'objet virtuel  $A_2$ . Dans les triangles  $HA_1I$  et  $HA_2I$ , on a :

$$HI = \tan(i_1)HA_1 = HA_2 \tan(i_2) \quad (D.1)$$

Ainsi,

$$HA_2 = HA_1 \frac{\tan(i_1)}{\tan(i_2)} = HA_1 \frac{\sin(i_1) \cos(i_2)}{\sin(i_2) \cos(i_1)} \quad (D.2)$$

Or, par la loi de Snell-Descartes, on a :

$$n_1 \sin(i_1) = n_2 \sin(i_2) \quad (D.3)$$

On obtient alors

$$HA_2 = HA_1 \frac{n_1 \cos(i_2)}{n_2 \cos(i_1)} \quad (D.4)$$

On peut développer l'expression des cosinus à l'aide de la relation:

$$\cos(i_i) = \sqrt{1 - \sin^2(i_i)} \quad (\text{D.5})$$

La relation (D.4) devient:

$$HA_2 = HA_1 \frac{n_1 \sqrt{1 - \sin^2(i_2)}}{n_2 \sqrt{1 - \sin^2(i_1)}} \quad (\text{D.6})$$

La position de l'objet virtuel  $A_2$  dépend alors de la valeur de l'angle d'incidence et des indices de réfraction des deux milieux transparents traversés. Si l'on se place dans le cadre de l'approximation de Gauss, qui considère que les rayons sont peu inclinés par rapport à l'axe optique R, on peut négliger les valeurs prises par  $\sin^2(i_i)$  devant 1. La relation (D.6) devient alors:

$$HA_2 = HA_1 \frac{n_1}{n_2} \quad (\text{D.7})$$

De cette propriété fondamentale des dioptries, les propriétés du bilame à faces parallèles peuvent être déduites. La Figure D.5 schématise cette fois-ci le chemin parcouru par un rayon issu de l'objet réel A et traversant deux dioptries, et donc un bilame à faces parallèles.

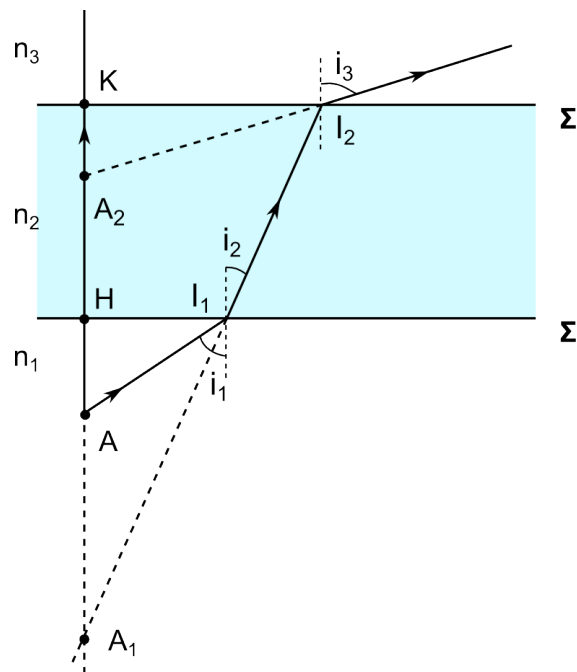


Figure D.5: Chemin suivi par un rayon traversant un bilame à faces parallèles

Le rayon incident en  $I_1$  à la surface  $\Sigma$  a un angle  $i_1$  avec la normale à cette surface dans le domaine d'indice de réfraction  $n_1$  et est réfracté à un angle  $i_2$  dans le milieu d'indice de réfraction  $n_2$ . Il semble alors provenir du point virtuel  $A_1$ . Ce rayon arrive ensuite à la surface  $\Sigma'$  en  $I_2$  et est encore une fois réfracté dans le domaine d'indice  $n_3$  d'un angle  $i_3$ . Cette fois-ci, le rayon issu du bilame à face parallèle provenant du point réel A semble provenir du point virtuel  $A_2$ . En utilisant de nouveau la relation de

Snell-Descartes et la géométrie du problème, on trouve la relation entre la distance  $AA_2$  et les grandeurs du bilame à faces parallèles. Sans entrer dans les détails, on obtient la relation:

$$AA_2 = AH \left( 1 - \frac{n_1}{n_3} \right) + KH \left( 1 - \frac{n_1}{n_2} \right) \quad (D.8)$$

Un bilame à faces parallèles induit donc un décalage dans la mesure d'une topographie, un point réel étant alors vu comme un point virtuel pouvant paraître plus proche de la surface si les indices de réfractions des différents milieux ne sont pas identiques. Si l'on applique ce qui a été développé précédemment à la mesure d'une longueur  $L$  de 10.000mm présentée dans la Figure D.3, on peut représenter les chemins optiques des rayons issus de deux points  $A$  et  $B$ . La distance  $AB$  représente la longueur  $L$  que l'on souhaite mesurer.

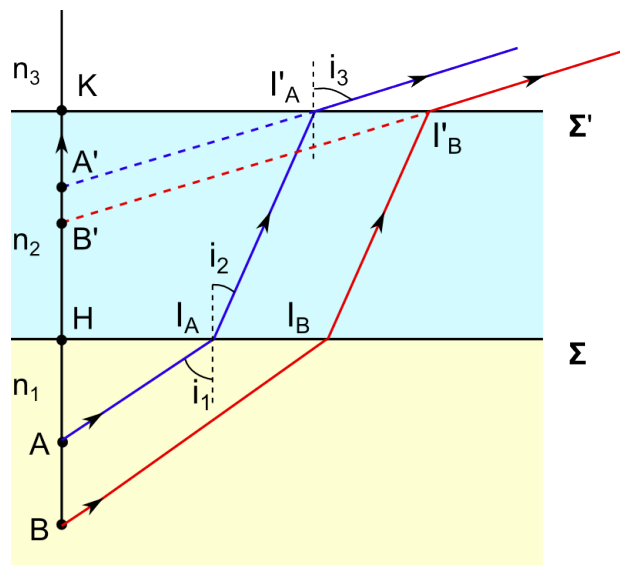


Figure D.6: Chemins suivis par des rayons issus de deux points traversant un bilame à faces parallèles

Les rayons issus de ces deux points réels sont perçus par le capteur comme provenant de deux points virtuels  $A'$  et  $B'$ . Les indices de réfractions des différents domaines n'étant pas les mêmes, il existe *a priori* un décalage entre la longueur  $AB$  réelle et la longueur  $A'B'$  mesurée. La relation entre ces deux longueurs s'obtient encore à l'aide de relations géométriques entre les différents points donnés en Figure D.6 et de la relation (D.8). On obtient:

$$A'B' = AB \frac{n_3}{n_1} \quad (D.9)$$

Dans le cas de la mesure de la cale étalon, l'indice  $n_3$  est celui de l'air ambiant et  $n_1$  celui de l'huile silicone. On remarque que l'indice du verre  $n_2$  n'a aucune influence sur la relation. A l'aide de cette relation, on peut alors corriger les mesures  $l$  données dans le Tableau D.2. On obtient les valeurs  $l'$  données dans le Tableau D.3. On prend pour cela  $n_3 = 1.000$  et  $n_1 = 1.400$ .

Tableau D.3: Résultats obtenus à travers la vitre et l'huile après correction optique

	Mesure 1	Mesure 2	Mesure 3	Mesure 4	Mesure 5	Mesure 6
<b>Distance <math>l'</math> (mm)</b>	10,1087	10,10786	10,10758	10,108	10,10842	10,10772
<b>Moyenne</b>	10,1080		<b>Ecart-Type</b>		<b>Erreur (%)</b>	
	10,1080		0,0004		1,08	

L'écart-type de ces mesures est encore une fois très faible et proche de celui déterminé initialement. L'erreur faite sur la mesure est significativement inférieure à celle obtenue avant correction. Elle est de plus en accord avec l'erreur de mesure donnée par le constructeur, qui est de 1%. Ces différents résultats sont donc encourageants et permettent une première validation de la mesure latérale réalisée à l'aide du profilomètre à travers la vitre et l'huile silicone.

## D.5 APPLICATION AU DISPOSITIF DE MESURE DES RETRAITS

On cherche désormais à mesurer la dilatation de l'échantillon suivant une des directions du plan de celui-ci. On mesure alors le profil de la tranche de l'échantillon et ses variations au cours du temps. Cette indication seule n'est cependant pas suffisante afin de connaître précisément les déformations le long de cette surface. On mesurerait alors, le long du profil, l'évolution d'un point virtuel  $A_2$  comme décrit dans la Figure D.5. Afin de remonter aux déformations au point réel A, la relation implique beaucoup trop de grandeurs qu'il est difficile de mesurer, comme les variations de position de la vitre par rapport au capteur ou la variation d'épaisseur de la vitre. L'idée est alors de prendre un point servant de référence à l'intérieur du dispositif, le long de la ligne de mesure et dont on connaît les dilatations. La mesure de celui-ci, couplée à celle du profil virtuel A', permet de mesurer une distance A'B' virtuelle. A l'aide de la relation (D.9), on peut remonter à la distance réelle AB. Le point B est pris au niveau du plateau en inox (Figure D.7). Les déplacements de ce point sont directement liés aux variations de température et au coefficient de dilatation thermique de l'acier. Il est alors aisé d'estimer les déplacements du point B. Ceux-ci étant considérés comme connus, on peut déterminer les déplacements du point A.

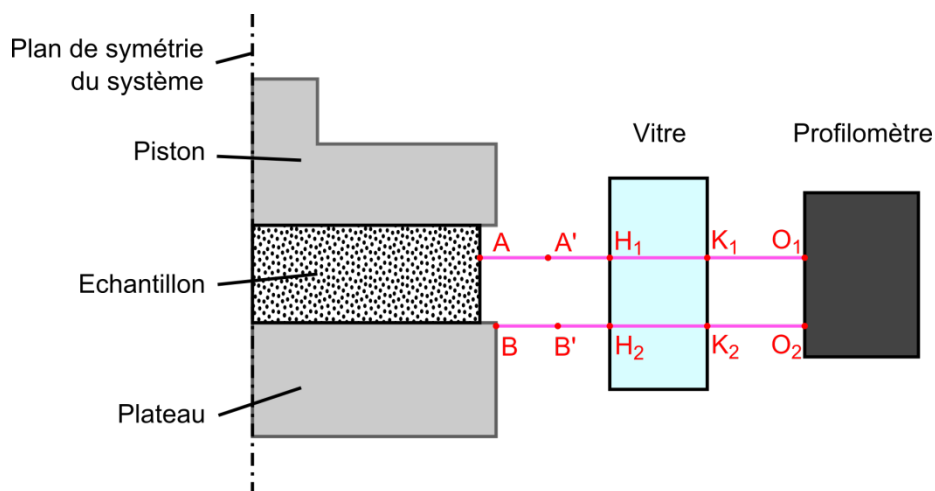


Figure D.7: Ligne de mesure des dilatations de la surface latérale de l'échantillon

L'avantage de cette méthode de mesure des déformations de la surface latérale de l'échantillon est qu'elle permet de s'affranchir des mouvements d'ensemble du dispositif. Un tel phénomène induirait un artefact de mesure sur le profil mesuré et sur la référence, qui serait alors retranché au moment du calcul de la distance A'B'. On se passe également des effets de l'indice de réfraction du verre, ainsi que des variations de dimension de la cavité moulante et de la position relative du capteur par rapport au dispositif.

## D.6 CONCLUSION

Les performances du profilomètre sans contact utilisé afin de mesurer les déformations latérales de l'échantillon ont été vérifiées en fonctionnement normal. L'influence de la présence de la vitre de verre et de l'huile silicone a été étudiée. Il apparaît que, sans traitement particulier des données, les distances mesurées par le profilomètre à travers le verre et l'huile ne sont pas représentatives des distances réelles. Une correction optique est proposée et vérifiée, permettant de diminuer l'erreur commise sur la mesure de 28% à 1%, pour une distance de 10mm. Cette correction, appliquée au dispositif expérimental présenté au chapitre 4, permet également de supprimer l'influence des dilatations du dispositif sur la mesure des déformations.





# Thèse de Doctorat

Mael PERON

## Mesure et modélisation des phénomènes de retraits anisotropes dans les matériaux composites durant leur mise en forme

### Résumé

La prédiction des formes et des propriétés finales de pièces composites nécessite le recours à une modélisation fine du comportement thermo-chémo-mécanique de la matière. Pour alimenter ces modèles, on peut soit estimer les propriétés du matériau composite à partir de celles des constituants, soit mesurer directement les propriétés du matériau. Dans un premier temps, un modèle multiphysique du dispositif de caractérisation des résines thermodurcissables PvT $\alpha$  a été développé. Il a été validé à l'aide d'essais expérimentaux et a permis de montrer l'importance des gradients de température et d'avancement lors de la caractérisation expérimentale du module de compressibilité de la résine. Ensuite, la méthode d'homogénéisation par développements asymptotiques a permis la modélisation des transferts thermiques durant la mise en forme des matériaux composites. L'homogénéisabilité du problème a été discutée. Appliquée à un modèle élastique, cette méthode a permis d'estimer les tenseurs de dilatation thermique et de retrait chimique, ainsi que l'évolution des propriétés mécaniques d'un matériau durant sa transformation. Le couplage entre les différentes physiques a également été réalisé, permettant de prédire les déformations d'une pièce durant sa mise en forme. Finalement, un nouveau dispositif de caractérisation a été développé. Il permet la mesure des dilatations du matériau suivant deux directions simultanées durant toute sa transformation. Les résultats qui en sont issus sont en accord à la fois avec des mesures réalisées sur d'autres dispositifs et les résultats issus de la méthode d'homogénéisation.

### Mots clés

**Matériau composite, Matrice thermodurcissable, Comportement anisotrope, Retrait chimique, Dilatation thermique, Caractérisation expérimentale, Homogénéisation multi-physique**

### Abstract

A fine thermo-chemo-mechanical modeling of the material behavior is necessary in order to predict composite parts final shape and properties. There are two options in order to feed these models: estimating the material effective properties thanks to the properties of its constituents, or directly measuring the composite material properties. At first, a multiphysics model of the thermosetting resins characterization device called PvT $\alpha$  was developed. It was validated compared to experimental results and suggested that temperature and degree of cure gradients had to be taken into account when measuring the resin bulk modulus. Then, asymptotic expansion homogenization method was used to model the heat transfers during the cure of composite materials. The upscaling possibility was discussed. This method was then applied to a linear elasticity model, allowing to estimate thermal expansion and chemical shrinkage tensors, as well as the mechanical properties evolution of a unidirectional material during cure. The coupling of these different physics was performed, leading to the prediction of the deformation of a part during cure. Finally, a new characterization device was developed. It allows for the simultaneous recording of the material deformations along two different directions, as well as the degree of cure and temperature. The first results are very promising and validated compared to other measurements and to numerical results from the homogenization method.

### Key Words

**Composite material, Thermoset resin, Anisotropic behavior, Chemical shrinkage, Thermal expansion, Experimental characterization, Multiphysics homogenization**