

SUJET DE THESE :

Développement anisotherme de l'adhésion

entre deux composites thermoplastiques :

modélisation, caractérisation et application à des procédés industriels

- Lieu de réalisation : **Laboratoire de Thermique et Energie de Nantes (LTEN)**, Nantes Université
- Encadrement : **Steven Le Corre, Jean-Luc Bailleul, Arthur Lévy**

1. Contexte - état de l'art

La maîtrise de la qualité de l'adhésion dans les technologies d'assemblage des composites à matrice thermoplastique (TPC) est un verrou essentiel pour le développement de ces technologies, qui constituent un des intérêts majeurs des TPC dans l'aéronautique. Les matrices polymères thermoplastiques possèdent en effet la capacité d'être refondues et de réaliser une interface de soudage parfaite, laissant ainsi espérer des gains de masses importants en limitant au maximum les solutions d'assemblage mécaniques.

Les phénomènes liés à l'adhésion des TPC impliquent des phénomènes physiques complexes et couplés (thermique, mécanique, physico-chimique) et les concepts tels que le contact intime [Lee 1987, Yang 2002], l'auto-diffusion par reptation (cicatrisation) [De Gennes 1971, Dara 1985] et la co-cristallisation à l'interface sont aujourd'hui bien identifiés et font pour certains l'objet de modèles pertinents.

Dans des travaux récents, le LTEN a mis au point une nouvelle méthode de caractérisation de la cinétique d'adhésion de TPC à matrice PAEK en conditions de chauffage uniforme suivie par un refroidissement rapide permettant de bloquer l'adhésion à un certain niveau [Avenet 2020, Avenet 2021]. Les temps de mise en contact que permet cette méthode sont relativement courts, mais le facteur limitant est le temps de refroidissement des échantillons, limité par leur épaisseur. Il est aujourd'hui impossible d'étudier l'adhésion à des temps aussi courts que ceux rencontrés dans certains procédés de mise en forme ou d'assemblage [Lepoivre 2022, Le Mouellic 2022].

Le travail proposé vise à mettre en place une nouvelle méthodologie pour accéder aux cinétiques d'adhésion à des échelles de temps plus courtes, telles que celles rencontrées en surmoulage ou en soudage IR par exemple. L'approche sera basée sur l'utilisation de méthodes inverses sur la base d'essais transitoires, avec chauffage et refroidissement très rapide. Cette étude de l'adhésion en mode anisotherme et/ou dissymétrique permettra de mieux identifier les lois d'adhésion aux temps courts, dans des conditions très proches de celles rencontrées industriellement.

2. Verrous scientifiques et technologiques

Les verrous scientifiques liés à la caractérisation de l'adhésion en conditions anisothermes sont nombreux. Les vitesses de chauffage et refroidissement atteintes lors des procédés de soudage ou lors d'un surmoulage peuvent atteindre plusieurs dizaines de degrés par seconde. Dans une approche de type TACOMA, on sera toujours limité par le temps caractéristique de diffusion de la chaleur dans les échantillons composites. Ce sont globalement des matériaux isolants dans le sens de l'épaisseur (conductivité de l'ordre de 0.5 à 1W/m/K). Il n'existe pas aujourd'hui de méthode de caractérisation adaptée aux temps courts, encore moins très courts comme en AFP. Les limitations de l'approche par conduction de type TACOMA nécessitent d'envisager des approches en régime transitoire.

Il s'agit donc de développer une stratégie permettant la **caractérisation de l'adhésion dans un régime thermique transitoire**. Le banc existant peut être adapté pour réaliser un chauffage thermique différentiel des deux éléments à souder et de leur faire subir un choc thermique. On peut ainsi atteindre des vitesses de chauffe/refroidissement très rapides caractéristiques d'un surmoulage. Une stratégie alternative consiste à utiliser un complément de chauffage par infrarouge (dispositif TARAMA à améliorer) escamotable, qui permet d'apporter un flux de chaleur important pour dépasser la fusion et générer une vitesse de refroidissement rapide. Ces deux approches doivent être développées, validées et renforcées.

Un autre verrou est l'**identification du régime de mise en contact intime**, étape essentielle qui sera certainement prédominante aux fortes vitesses de chauffage (temps d'adhésion courts). Une instrumentation spécifique de fluxmétrie, inspirée de l'approche mise en place dans les travaux de Pierre Le Mouelliec devra être mise en place. Cette métrologie repose sur une méthode inverse qui nécessitera une modélisation numérique de la thermique du dispositif de caractérisation. L'ajout de capteurs de déplacement actuellement en cours viendra également enrichir cette analyse fine.

Comme il a été observé dans la littérature [Perrin 2022], la **déconsolidation** intervient plus facilement lors de l'imposition de forts gradients de température, inévitable dans les chauffages rapides. Les résultats de la thèse de Luc Amedewovo [2023] montrent qu'un traitement thermique de type recuit à moyenne température (au-dessus de T_g) permet de relaxer une grande partie des contraintes résiduelles d'élaboration et ainsi d'éviter la déconsolidation. Les résultats du LIST [Perrin 2022] montrent aussi qu'il est important de faire attention à la reprise d'humidité dans les couches superficielles du composite.

Enfin, la **cinétique de fusion/cristallisation** dans les conditions assez extrêmes imposées par le soudage TP pose la question de la validité des lois de fusion et de cristallisation obtenues par les outils de caractérisation classiques. Quand le temps de mobilité moléculaire devient similaire au temps de passage du point de fusion, on peut s'attendre à des modifications de la cinétique de fusion et de cristallisation [Baumard 2022]. Naturellement, cela impacte sensiblement les propriétés mécaniques de l'interface soudée et pose la question de la co-cristallisation à l'interface. Ce sujet de fond ne sera pas abordé dans ce travail, mais représente un challenge scientifique d'intérêt technologique majeur pour le futur.

3. Positionnement par rapport à l'état de l'art

L'adhésion des polymères thermoplastiques a été largement discutée dans la littérature depuis plusieurs dizaines d'années [De Gennes 1971, Doi 1981, Wool 1981] et il est largement admis que les phénomènes associés peuvent être décomposés en deux étapes :

- 1) Le développement du contact intime [Dara 1985, Lee 1987], où les deux surfaces sont mises en contact et où les porosités disparaissent progressivement sous l'effet combiné de la pression et de la tension de surface (mouillage).
- 2) L'étape de cicatrisation où le polymère à l'état fondu, sous l'effet de l'agitation thermique va diffuser à travers la surface de contact par phénomène de reptation, jusqu'à disparition complète de l'interface.

Dans le domaine des procédés de mise en œuvre des composites (formage, assemblage), la capacité de TPC à fondre a suscité et suscite toujours un fort intérêt, et des modèles de contact intime simplifiés [Lee 1987, Yang 2002], basés sur une modélisation newtonienne de l'écoulement des aspérités de surface, ont permis d'obtenir des ordres de grandeurs pertinents des temps de mise en contact intime. Pour ces matériaux particuliers, il a aussi été montré que l'effet de l'agencement des fibres sur le comportement adhésif des soudures était important à prendre en compte, de même que l'ajout d'une couche de la matrice polymère à l'interface [Hou 1992, Xiao 1992, Sacchetti 2018].

Les théories de l'adhésion pour les composites à matrice thermoplastique ont été initialement validées expérimentalement pour des temps de mise en contact à haute température longs, s'étalant de quelques minutes à quelques jours [Lee 1987, Yang 2002]. Récemment, Avenet et al. [Avenet 2020] ont permis une

avance significative dans le domaine. Leur approche est basée sur l'utilisation du dispositif TACOMA (Thermo-Adhesion by CONductive heating of composite MATerials) qui permet d'imposer une température initiale uniforme dans les échantillons jusqu'à 400°C, de les mettre en contact puis de les refroidir brutalement pour stopper très rapidement le processus de cicatrisation. Ils ont ainsi pu caractériser entièrement la cinétique de cicatrisation d'un composite PEKK/Carbone au-dessus de sa température de fusion. Ils ont montré l'existence de 3 régimes pour des composites avec une orientation à 0° des fibres mises en contact :

- Au temps courts un régime couplé contact intime/cicatrisation où le degré d'adhésion est très faible car l'adhésion ne se fait pas sur la totalité de la surface et que le temps de mise en contact est court,
- Aux temps intermédiaires, un régime de cicatrisation pure où le contact intime est parfaitement établi et où l'adhésion suit une loi d'évolution en $t^{1/4}$ conforme à la théorie, de De Gennes [1971].
- Aux temps longs, un régime d'interpénétration des fibres qui conduit à une « sur-adhésion ». Ce phénomène de migration/relaxation des fibres aux temps longs a été observé récemment dans une étude sur la consolidation du même type de matériau [Arquier 2023].

Dans un deuxième temps, ils ont aussi montré le lien direct, prévu par la théorie de la reptation, entre les temps d'adhésion et les temps rhéologiques, i.e. temps de reptation ou de relaxation mesurés en rhéométrie classique, [Cender 2018, Avenet 2021]. Les études de l'adhésion en surfusion, si elles n'étaient pas vraiment permises par leur dispositif, ont mis en évidence une problématique encore ouverte de co-cristallisation à l'interface [Avenet 2021b]

La méthodologie développée au LTEN apporte d'excellentes réponses à la question de la caractérisation dans des conditions académiques propres, mais peut sembler loin des conditions rencontrées dans des procédés de soudage. Toujours dans Avenet [2021b], une méthode transitoire par ajout d'une chaufferette infra-rouge appelée TARAMA (Thermo-Adhesion by Radiative heating of composite MATerials) a été développée. Elle permet de reproduire des conditions transitoires proche des cinétiques thermiques rencontrées dans le soudage. Toutefois, la technique reste encore à renforcer et a buté sur l'apparition d'une forte déconsolidation lors de chauffages trop brutaux. Les connaissances acquises lors de la thèse de Luc Amedewovo [2023] devraient permettre de remédier à cette limitation. En parallèle, un travail portant sur la qualité de l'adhésion lors du surmoulage [Le Mouellic, 2022] a permis de mettre en place une méthodologie de suivi thermique, via la mesure de la résistance thermique de contact au niveau de l'interface de soudage, du développement du contact intime et in fine de l'adhésion. Cette méthode, basée sur de la fluxmétrie associée à des méthodes inverses [Beck 1985] est parfaitement originale dans le domaine et pourra être mise à profit dans le cadre de la présente thèse.

Références

- Amedewovo 2023** Amedewovo L., Study of Thermoplastic Matrix Composites Deconsolidation Phenomenon by Considering the Consolidation Process, PhD Theses, Nantes Université, April 2023.
- Avenet 2020** Avenet, J., Levy, A., Bailleul, J. L., Le Corre, S., & Delmas, J. (2020). Adhesion of high performance thermoplastic composites: Development of a bench and procedure for kinetics identification. Composites Part A: 138. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2020.106054>
- Avenet 2021** Avenet J., Cender T. A., Le Corre S., Bailleul J.-L., Levy A. Experimental correlation of rheological relaxation and interface healing times in welding thermoplastic PEKK composites, Comp. Part A, (2021)
- Cender 2018** Cender T.A., Lévy A., Le Corre S. Continuous Welding of High Temperature Thermoplastic Composite Structures, ICMAC 2018 - Nottingham, UK
- Avenet 2021b** Avenet J., Assemblage par fusion de composites à matrice thermoplastique : caractérisation expérimentale et modélisation de la cinétique d'auto-adhésion hors équilibre, PhD Dissertation, Nantes Université (2021).
- Baumard 2022** T. Baumard, E. El Rassy, N. Boyard, S. Le Corre, J.-L. Bailleul, J. Bikard, L. Troulliet-Fonti, A stepwise method for the characterization of non-isothermal crystallization kinetics of poly(ether ether ketone) at processing-relevant cooling rates, proc. of ECCM20, Lausanne, 2020.

- Beck 1985** Beck, J. V., Blackwell, B., & Clair Jr, C. R. S. (1985). Inverse heat conduction: Ill-posed problems.
- Dara 1985** P. H. Dara and A. C. Loos, Thermoplastic Matrix Composite Processing Model, tech. rep., Virginia Tech - Center for Composite Materials and Structures, Blacksburg, Virginia, 1985.
- De Gennes 1971** P. G. De Gennes, Reptation of a polymer chain in the presence of fixed obstacles, J. Chem. Phys., vol. 55, pp. 571-579, 1971.
- Hou 1992** M Hou and K Friedrich. Resistance welding of continuous carbon fiber/polypropylene composites. Plast. Rubber Compos. Process. Appl., 18(4) :205-213, 1992
- Lee 1987** Woo Il Lee and G. S. Springer, "A Model of the Manufacturing Process of Thermoplastic Matrix Composites", J. Compos. Mater., vol. 21, no. 11, pp. 1017-1055, 1987]
- LeMouellic 2022** Le Mouellic, P., Boyard, N., Bailleul, J. L., Lefevre, N., Gaudry, T., & Veille, J. M. (2022). Development of an original overmoulding device to analyze heat transfer at polymer/polymer interface during overmoulding. Applied Thermal Engineering, 119042.
- Lepoivre 2020** Lepoivre, A., Boyard, N., Levy, A., & Sobotka, V. (2020). Heat transfer and adhesion study for the FFF additive manufacturing process. Procedia manufacturing, 47, 948-955.
- Perrin 2021** Perrin H., Senoussaoui N., Leroy Dubief C. and Vaudemont R., Experimental investigation and optimization of thermal gradients by infrared welding, ESAFORM 2021 [Online], Online since 02 April 2021, URL : <https://popups.uliege.be/esaform21/index.php?id=2816>
- Sacchetti 2018** F Sacchetti, W.J.B. Grouve, Laurent L Warnet, and I. Fernandez Villegas. Effect of resin-rich bond line thickness and fibre migration on the toughness of unidirectional Carbon/PEEK joints. Compos. Part A, 109:197-206, 2018
- Wool 1981** R. P. Wool and K. M. O'Connor, A theory of crack healing in polymers, J. Appl. Phys., vol. 52, no. 10, pp. 5953-5963, 1981
- Xiao 1992** X. R. Xiao, S. V. Hoa, and K. N. Street. Processing and Modelling of Resistance Welding of APC-2 Composite. J. Compos. Mater., 26(7) :1031-1049, 1992
- Yang 2002** F. Yang and R. Pitchumani, "Healing of thermoplastic polymers at an interface under nonisothermal conditions", Macromolecules, vol. 35, pp. 3213-3224, 2002.]

4. Thèses récentes ou en cours en lien avec ce sujet

- Assemblage par fusion de composites à matrice thermoplastique : caractérisation expérimentale et modélisation de la cinétique d'auto-adhésion hors équilibre, Julien Avenet, thèse de doctorat, Université de Nantes (2021).
- Etude des transferts thermiques et de l'adhésion à l'échelle du cordon dans le procédé de fabrication additive FFF (extrusion de filament fondu), Arthur Lepoivre, thèse de doctorant, Université de Nantes (2021).
- Compréhension et maîtrise de l'adhésion aux interfaces lors du surmoulage d'élastomères thermoplastiques, Pierre Le Mouellic, Nantes Université (2022).
- Study of Thermoplastic Matrix Composites Deconsolidation Phenomenon by Considering the Consolidation Process, Luc Amedewovo , these de Doctorat, Nantes Université (2023).

5. Contacts

au LTEN

Steven LE CORRE, steven.lecorre@univ-nantes.fr ; Jean-Luc BAILLEUL, jean-luc.bailleul@univ-nantes.fr ;

Arthur LEVY, arthur.levy@univ-nantes.fr

à l'IRT Jules Verne

Basile de Parscau du Plessix, basile.de-parscau@irt-jules-verne.fr