

Identification de la saturation d'un renfort fibreux par analyse thermique

Maxime VILLIERE^{1*}, Sébastien GUEROULT², Vincent SOBOTKA¹, Nicolas BOYARD¹, Joël BREARD², Didier DELAUNAY¹

1 : Université de Nantes, CNRS, Laboratoire de Thermocinétique, UMR 6607,
La Chantrerie, rue Christian Pauc, BP 50609, 44306 Nantes - cedex 3 - France

2 : Laboratoire d'Ondes et Milieux Complexes, UMR 6294 CNRS, Université du Havre,
53 rue de Prony, BP 540, 76058 Le Havre, France

*(auteur correspondant : maxime.villiere@univ-nantes.fr)

Résumé - Ce travail est réalisé dans le cadre de l'ANR RTM-Plast, qui vise à produire des pièces composites à matrices thermoplastiques par un procédé de type RTM (Resin Transfer Molding). On s'intéresse plus particulièrement à la phase d'injection de ce procédé, phase durant laquelle l'apparition de porosités peut être dommageable pour la qualité des pièces produites. On propose de détecter le taux de saturation d'un renfort fibreux en cours d'imprégnation grâce à une analyse thermique. Pour cela, un banc expérimental instrumenté permettant l'injection d'un fluide modèle dans un renfort de verre a été mis au point. Une modélisation des propriétés thermiques en fonction du taux de saturation du renfort est proposée. L'identification des paramètres du profil de saturation est réalisée en comparant les flux thermiques mesurés lors d'une injection à ceux issus d'un modèle d'écoulement simplifié.

Nomenclature

ρ	Masse volumique, kg.m^{-3}	T	Température, K
C_p	Capacité thermique massique, $\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$	τ_m	Taux de mèches dans le composite
λ	Conductivité thermique, $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$	t_c	Taux de fibres dans le composite
λ_x	Conductivité thermique plane, $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$	φ	Flux thermique transverse numérique, W.m^{-2}
λ_z	Conductivité thermique transverse, $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$	$\tilde{\varphi}$	Flux thermique transverse experimental, W.m^{-2}
S	Section de la cavité moulante, m^2	Q	Débit volumique, $\text{m}^3.\text{s}^{-1}$
Φ	Taux volumique de fibres	u	Vitesse globale, m.s^{-1}
S_T	Saturation	k	Numéro du fluxmètre
S_μ	Micro-saturation		
S_M	Macro-saturation		
n	pas de temps		

1. Introduction

Les matériaux composites représentent, par définition, tous les alliages ou matières premières nécessitant l'association intime d'au moins deux composants : le renfort et la matrice. Les procédés de type LCM (Liquid Composite Molding) sont couramment employés pour produire des pièces composites complexes et de grandes dimensions, notamment dans l'industrie aéronautique. Le terme LCM englobe en réalité de nombreux procédés de mise en forme de ces matériaux, tels que le Resin Transfer Molding (RTM), le Liquid Resin Infusion (LRI), ou encore le Vacuum Assisted Resin Infusion (VARI). Bien que de nombreuses variantes aient été développées, ils consistent dans tous les cas à injecter à faible pression ($<0.1\text{MPa}$) une résine polymère dans un renfort fibreux

préalablement disposé dans une cavité moulante. Dans le cas du RTM, l'injection est anisotherme, la température de la résine étant généralement inférieure à celle du moule. Initialement dédié aux composites à matrice therm durcissable, ce procédé s'étend aujourd'hui aux résines thermoplastiques. Pour pallier le problème de la forte viscosité des polymères thermoplastiques (~1000 Pa.s), on se propose d'injecter un fluide de faible viscosité dans le moule, qui polymérisera in situ, puis cristallisera en se refroidissant, en conférant à la pièce ses propriétés définitives. La qualité des pièces dépend essentiellement de la maîtrise des paramètres du cycle lors des phases d'imprégnation et de consolidation.

Un des principaux défauts rencontrés lors de l'étape de remplissage est la création de porosités, zones non imprégnées par la résine. La création de porosités est principalement au caractère multi-échelle des écoulements dans les renforts; à l'intérieur des mèches du renfort fibreux et entre les mèches. L'existence de ces défauts après réticulation altère de manière significative les caractéristiques mécaniques de la pièce finale. On introduit alors la notion de saturation qui permet de décrire plus précisément l'imprégnation progressive de la préforme fibreuse par la résine fluide. L'objectif de cette étude est d'identifier la saturation du renfort par le fluide en cours de remplissage, par le biais de mesures thermiques.

Même si de nombreux auteurs ont contribué à mieux comprendre et modéliser les mécanismes de formation et de transport des bulles lors de l'injection [1,2], les études ayant permis une mesure directe de la saturation lors de l'imprégnation du renfort sont plus rares. On peut citer notamment les travaux de Nordlund et al [3], ainsi que Ruiz [4], qui utilisent une mesure optique, ou encore ceux de Labat [5] et Guéroult [6], qui font appel à des techniques de conductimétrie ou de diélectrimétrie.

2. Définition de la micro- et de la macro-saturation

Les renforts les plus couramment utilisés dans les procédés LCM sont généralement constitués de mèches, de l'ordre de quelques mm, tissées entre elles, qui sont elles-mêmes constituées de plusieurs milliers de fibres, de diamètre de l'ordre de 10µm. Cette double échelle amène à considérer deux types de porosités, qu'il est nécessaire de distinguer afin de décrire les propriétés thermiques du milieu poreux pendant l'injection, c'est-à-dire lorsque la saturation S_T évolue entre 0 et 1. On distingue :

- les micro-porosités, dont la taille est comprise entre 10 et 50µm, qui sont formées à l'intérieur des mèches.
- les macro-porosités, qui sont formées entre plusieurs mèches, dont les dimensions typiques sont de l'ordre du millimètre.

En conséquence, on définit deux saturations :

-une micro-saturation, notée S_μ , définie comme le taux de remplissage des espaces intra-mèches.

-une macro-saturation, notée S_M , définie comme le taux de remplissage des espaces inter-mèches.

Ces deux scalaires sont reliés à la saturation totale S_T grâce à des paramètres liées à la géométrie du renfort, tel que :

$$S_T = \left(\frac{\tau_m - t_c}{1 - t_c} \right) S_\mu + \left(\frac{1 - \tau_m}{1 - t_c} \right) S_M \quad (1)$$

3. Banc expérimental

3.1 Description du banc expérimental

Un banc expérimental (fig. 1) permettant l'injection d'un fluide modèle dans un renfort fibreux a été utilisé. Une préforme fibreuse, de longueur voisine de 400mm sur 100mm de largeur, est placée à l'intérieur d'une cavité moulante. Une seringue doseuse montée sur presse garantit un débit de fluide constant au cours du temps. L'écoulement est supposé unidirectionnel selon la longueur de la préforme. L'épaisseur de la préforme, et donc le taux de fibre, peut être réglé finement au moyen de comparateurs. Des chaufferettes électriques transparentes, fixées sur la partie inférieure de la plaque de verre, permettent de dissiper un flux de chaleur à la surface de la préforme. Trois capteurs de flux de chaleur disposés à différentes positions dans la partie inférieure du moule permettent de mesurer la réponse thermique du matériau lors de la phase d'imprégnation.

Un capteur permettant de quantifier la saturation par méthode conductimétrique [5] est également intégré au montage. Constitué de deux électrodes en laiton placées de part et d'autre du renfort fibreux, il mesure la conductance électrique du milieu, qui est ensuite reliée à la saturation du renfort. Ce capteur a fait l'objet d'un étalonnage au moyen de billes de verre de différents diamètres représentant les bulles d'air. La dépendance des conductivités électriques à la température a également été prise en compte.

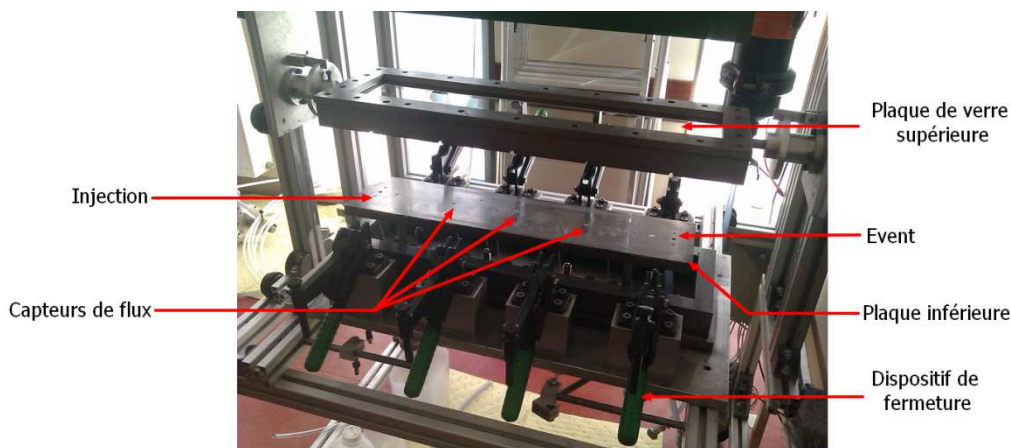


Figure 1 : Vue d'ensemble du banc expérimental

3.2 Protocole expérimental

La préforme est constituée d'un empilement de plusieurs plis d'unidirectionnels de fibres, orientés selon l'axe de l'écoulement. Le fluide modèle utilisé pour imprégner le renfort est constitué d'un mélange d'eau, de glycérol, et de tensioactif (respectivement 87%-11.7%-0.3% en masse), dont les propriétés (viscosité, angle de contact, masse volumique) se rapprochent de celles d'une résine classique. Le taux volumique de fibres dans le moule est fixé à 50%. Durant toute la durée de l'injection, un flux constant est dissipé par les chaufferettes. L'élévation de température ne dépassant pas 5°C dans la préforme, les propriétés thermophysiques et rhéologiques sont gardées indépendantes de la température.

4. Modélisation de la saturation

4.1 Modélisation des transferts de chaleur lors l'écoulement

Les transferts de chaleur dans le milieu poreux sont modélisés de façon simplifiée par l'équation de convection-diffusion et résolus avec le code éléments finis Comsol Multiphysics™.

$$\rho C_p \left(\frac{\partial T}{\partial t} + \vec{u} \cdot \nabla T \right) = \vec{\nabla} \cdot (\lambda \nabla T) \quad (2)$$

où \vec{u} est la vitesse globale du fluide (au sens de Darcy) à travers le renfort, qu'on peut relier au débit imposé par :

$$u = \frac{Q}{S(1-\phi)} \quad (3)$$

La présence de fluide dans la préforme modifie les propriétés thermiques du milieu, celui-ci passant d'un état totalement insaturé ($S_T=0$) à un état de saturation maximale ($S_T=1$). Le profil de saturation peut être représenté par la courbe caractéristique représentée sur la figure 2. Cette courbe est définie par plusieurs paramètres géométriques [6]: l la longueur du front non saturé, y_2 le taux de saturation du renfort après le passage du front non saturé et S_{\max} qui correspond à la saturation maximale atteinte dans la préforme.

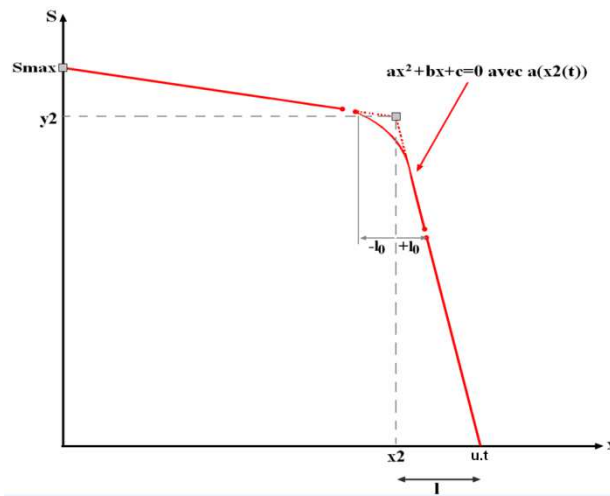


Figure 2 : Description géométrique de la courbe de saturation

Dans les cas où le renfort est non saturé ($S_T=0$) ou complètement saturé ($S_T=1$), ces propriétés sont mesurées au moyen de plusieurs dispositifs (voir tableau 1) dans les directions transverses et longitudinales. Les résultats sont ensuite confrontés entre eux et à différents modèles présentés dans [7].

Paramètre mesuré	$s=0$	$s=1$
λ_x	Chaufferette instrumentée Analyse transitoire [7]	Analyse transitoire [7]
λ_z	Sonde Gustafsson Plaque chaude gardée Chaufferette instrumentée	Sonde Gustafsson
C_p	DSC Chaufferette instrumentée	

Tableau 1 : Moyens expérimentaux mis en œuvre pour estimer les propriétés thermophysiques du milieu poreux sec ou complètement saturé.

Une loi des mélanges est utilisée pour décrire l'évolution de la masse volumique et de la chaleur spécifique en fonction du taux de saturation. Une modélisation plus avancée doit être considérée pour la conductivité thermique.

4.2 Détermination de la conductivité thermique effective

En posant l'hypothèse d'une morphologie de porosités, une méthode d'homogénéisation par développements asymptotique a été développée afin d'estimer la conductivité thermique effective transverse du milieu poreux en fonction de la saturation. Des volumes élémentaires représentatifs périodiques sont définis à chaque échelle, comme on le voit sur la figure 3, dans lesquels on fait varier les aires des porosités. Un premier calcul permet d'obtenir la conductivité effective transverse d'une mèche, en fixant le paramètre S_μ . Ce résultat est ensuite réutilisé comme paramètre d'entrée pour déterminer la conductivité effective transverse du milieu global, en fixant cette fois S_M . Les résultats nous fournissent un abaque (fig. 4) valable pour toutes les combinaisons de micro et macro-saturations.

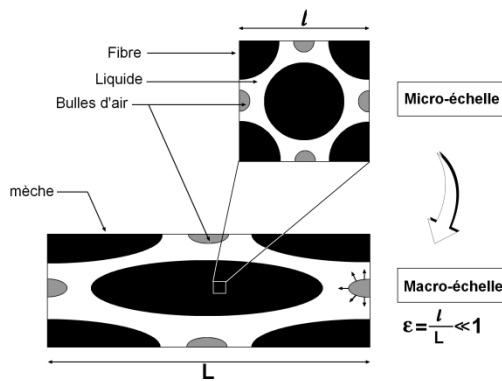


Figure 3 : Volumes élémentaires représentatifs utilisés pour estimer la conductivité thermique effective en fonction de la saturation

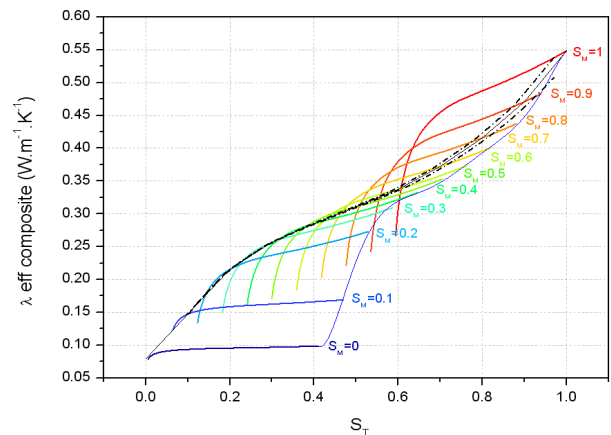


Figure 4 : Abaque de la conductivité thermique transverse en fonction des saturations micro et macro.

En faisant certaines hypothèses [6] sur l'équilibre entre micro-saturation et macro-saturation au cours du remplissage, on définit une enveloppe de conductivités qui tient compte des cas les plus probables. Cette évolution de conductivité est conservée dans la suite de l'étude.

5. Identification de la saturation

5.1 Etude de sensibilité

Dans un premier temps, une étude de sensibilité a été menée afin de montrer que les paramètres de la courbe de saturation étaient suffisamment influents sur les flux thermiques enregistrés. Celle-ci a permis de mettre en évidence une bonne sensibilité à tous les paramètres géométriques de la saturation telle qu'elle a été définie figure 2. D'autre part, cette étude a révélé que le terme inertiel (ρC_p) ainsi que la conductivité plane de la préforme n'étaient pas des paramètres sensibles. Ils ne seront donc pas estimés dans la suite.

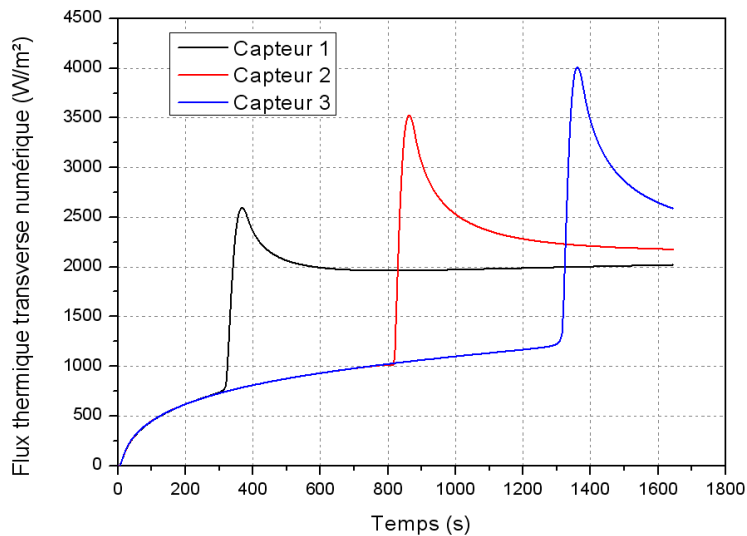


Figure 5 : Flux thermiques numériques pour tous les capteurs de flux placés dans la cavité moulante.

5.2 Identification de la saturation par méthode inverse

Les paramètres de la courbe de saturation sont estimés par minimisation d'une fonctionnelle J (voir équation 4), définie comme le carré de la différence des flux thermiques pariétaux numériques et expérimentaux.

$$J(S_{max}, y_2, l) = \sum_n \sum_{k=1}^3 (\tilde{\varphi}_k^n - \varphi_k^n)^2 \quad (4)$$

Les flux thermiques transverse expérimentaux sont présentés sur la figure suivante :

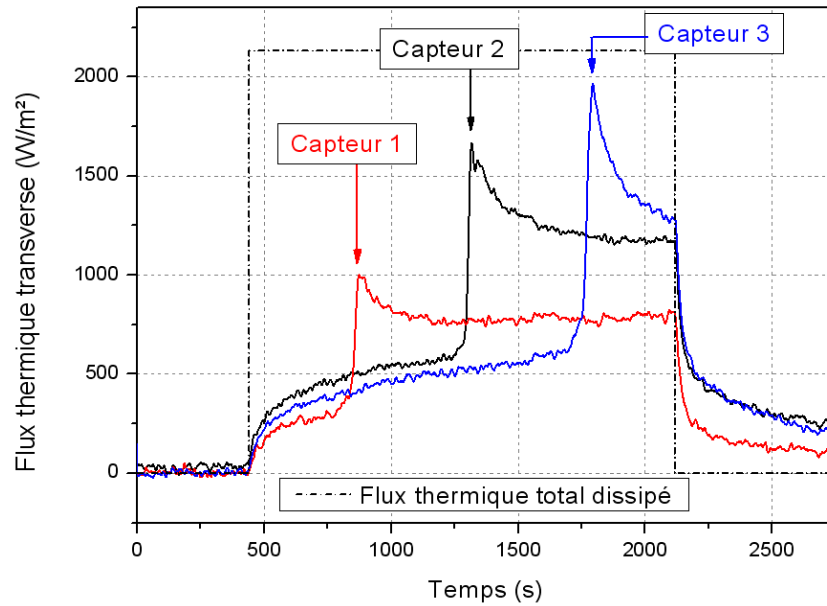


Figure 6 : Flux thermiques expérimentaux pour tous les capteurs de flux placés dans la cavité moulante.

Les résultats représentés figure 6 proviennent d'une première campagne de mesure. Cette campagne a permis de démontrer la faisabilité de cette identification. Cependant, il s'est avéré que les capteurs de flux thermique utilisés étaient défectueux et n'indiquaient donc pas le flux réel traversant le capteur. L'identification demandant une mesure absolue du flux, ces essais n'ont pas permis l'identification de la saturation. Néanmoins la comparaison de la forme des flux obtenus avec les résultats issus de la simulation sont encourageants. Une nouvelle campagne de mesure est en cours et devraient confirmer ce résultat.

6. Conclusion

Cette étude s'est attachée à décrire l'imprégnation d'un renfort fibreux dans les conditions d'un procédé de mise en forme de matériaux composites. Un banc expérimental instrumenté permettant l'injection à débit contrôlé d'un fluide modèle dans une préforme fibreuse a été utilisé. Un modèle simplifié de l'écoulement a été développé, qui permet de prendre en compte la saturation par variation des propriétés thermophysiques. L'estimation de la saturation est ensuite réalisée par comparaison des flux pariétaux numériques et expérimentaux. Une première campagne de mesure a permis de démontrer la faisabilité de l'identification. Cependant, en raison de défauts sur les capteurs utilisés, celle-ci n'a pas pu être menée à terme. Une seconde campagne est actuellement en cours et permettra, on l'espère, de confirmer les résultats encourageants obtenus lors de la première.

Références

[1] J. Bréard, A. Saouab, G. Bouquet, "Numerical simulation of void formation in LCM", Composites : Part A, Vol. 34, No. 6, pp 517-523, 2003.

- [2] C.H. Park, A. Lebel, A. Saouab, J. Bréard, W. Il Lee, “Modeling and simulation of voids and saturation in liquid composite molding processes”, *Composites : Part A*, Vol. 42, No. 6, 658-668, 2011.
- [3] M. Nordlund, V. Michaud “Dynamic saturation curve measurement for resin flow in glass fibre reinforcement”. *Composites Part A*, Vol. 43, No. 3, pp. 333-343, 2012.
- [4] E. Ruiz, F. Lebel and F. Trochu, “Experimental study of capillary flows, voids formation and void migration in LCM manufacturing”, *Proceedings of FPCM 11, Auckland 9-12th July 2012*, pp 136-143.
- [5] L. Labat, M. Grisel, J. Bréard, G. Bouquet “Original use of electrical conductivity for void detection due to injection conditions of composite materials”. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences - Series IIB – Mechanics*, Vol.329, No. 7, pp. 529-534, 2001.
- [6] S. Guérout, “Analyse expérimentale de la saturation des milieux fibreux à double échelle de pores : application à la mise en œuvre des matériaux composites par procédé RTM”, *PhDthesis*, 2012, Le Havre University, France.
- [7] M. Villière, D. Lecointe, V. Sobotka, N. Boyard, D. Delaunay, "Experimental determination and modeling of thermal conductivity tensor of carbon/epoxy composite", *Composites: Part A*, Vol. 46, pp. 60-68.