

# Contrôle des conditions de mise en forme d'une pièce composite à matrice thermodurcissable de très forte épaisseur

Rita MOUSSALLEM<sup>1\*</sup>, Jean-Luc BAILLEUL<sup>1</sup>, Vincent SOBOTKA<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Nantes Université - UMR CNRS 6607 - Laboratoire de Thermique et Energie de Nantes - Rue Christian Pauc - 44300 Nantes Cedex 3

**Résumé** - L'objectif visé par ce travail est de contrôler les conditions de mise en forme d'un matériau composite à matrice thermodurcissable de forte épaisseur, au delà de 100 mm, afin d'assurer une qualité maximale à la pièce réalisée. Un modèle numérique capable de simuler la réponse thermique d'un polymère thermodurcissable durant sa réticulation est alors établie. Un algorithme déterministe est adopté afin d'estimer l'évolution des conditions aux limites permettant de maîtriser l'avancement de la réaction durant le cycle de cuisson.

## Nomenclature

|            |   |                             |   |
|------------|---|-----------------------------|---|
| $T$        | Température, K                                  | $CTE$                       | Coefficient d'expansion thermique, $K^{-1}$ |
| $U$        | Consigne de température, K                      | $CCS$                       | Coefficient de retrait chimique             |
| $\bar{U}$  | Valeur moyenne de la consigne de température, K | <i>Symboles grecs</i>       |   |
| $e$        | Épaisseur de la pièce composite, m              | $\alpha$                    | Degré d'avancement                          |
| $c_p$      | Chaleur spécifique, J/(kg.K)                    | $\alpha_d$                  | Degré d'avancement cible                    |
| $\Delta H$ | Enthalpie de réticulation, J/kg                 | $\lambda$                   | Conductivité thermique, W/(m.K)             |
| $V$        | Volume, m <sup>3</sup>                          | <i>Indices et exposants</i> |   |
|            |   | $V$                         | Volumique                                   |

## 1. Introduction

Les matériaux composites ne cessent de prendre une place croissante au sein des pièces structurelles en raison de leur légèreté et de leurs hautes propriétés mécaniques spécifiques. La nécessité de développer des pièces de très fortes épaisseurs se fait ressentir dans de nombreux domaines, tels que les secteurs militaire, maritime et des structures civiles. L'utilisation de matériaux composites de grandes épaisseurs dépend principalement de leur mise en œuvre réussie pour obtenir des pièces de bonne qualité et à coût maîtrisé. Néanmoins, les procédés de mise en forme des matériaux composites de forte épaisseur ne sont pas encore bien maîtrisés. En effet, durant la réticulation d'une résine thermodurcissable, la thermique et la chimie sont fortement couplées par la thermodépendance de la réaction chimique et sa forte exothermie. Une contrainte est donc liée au contrôle et à l'évacuation de la chaleur dans un matériau thermiquement isolant.

Des études précédentes ont porté sur l'optimisation des cycles de cuisson des composites à matrice thermodurcissable de différentes épaisseurs. Bailleul [1] a développé une méthode d'optimisation des cycles de cuisson visant à atteindre un degré d'avancement de la réticulation prédéfini et homogène sur toute l'épaisseur d'une pièce composite. Les épaisseurs des pièces qu'il avait considérées étaient comprises entre 5 mm et 20 mm. Cette méthode a été par la suite validée expérimentalement à l'aide d'un banc d'essai permettant de programmer les cycles de chauffage et de refroidissement. Oh *et al.* [2] ont étudié la cuisson d'un composite à base de

résine époxy et de fibres de verre, d'une épaisseur de 20 mm, en utilisant un modèle tridimensionnel en éléments finis. Le cycle de cuisson ainsi optimisé comprend des phases alternées de refroidissement et de chauffage afin d'éviter de dépasser un seuil de température. D'autre part, de nombreuses études ont visé à développer des modèles numériques permettant de simuler l'évolution de la température et du degré d'avancement de la réaction de réticulation de pièces composites de fortes épaisseurs [3] [4] [5]. Guo *et al.* [6] ont modélisé numériquement la cuisson d'un composite de 20 mm d'épaisseur en autoclave sous vide et ont comparé les résultats obtenus à des mesures expérimentales.

La problématique de cette étude réside dans la maîtrise de la cinétique de dégagement de chaleur lors de l'élaboration de pièces épaisses. Le risque de formation de points chauds importants à l'intérieur du matériau est lié aux fortes exothermicités générées par la réaction de réticulation de la résine. Dans le cas où l'épaisseur des pièces est de quelques centimètres, l'exothermicité est plus élevée, entraînant un champ de température non homogène dans le matériau. Dans ce contexte, le but de cette étude est de définir des conditions aux limites permettant d'atteindre un degré d'avancement prédéterminé de la réaction de réticulation et aussi uniforme que possible dans l'épaisseur du composite. Un modèle numérique basé sur la méthode des différences finies est développé pour simuler la réponse thermique d'un composite à matrice thermodurcissable durant le cycle de cuisson. Une étude de sensibilité est également menée afin d'évaluer l'impact des conditions aux limites sur l'avancement de la réaction de réticulation. Un algorithme d'optimisation déterministe est adopté afin d'identifier les cycles de cuisson qui évitent la détérioration des pièces épaisses durant leur mise en forme. Une première application de la méthode numérique est réalisée sur une pièce composite d'une épaisseur de 10 mm.

## 2. Modèle numérique

Un modèle numérique en différences finies apte à simuler la réponse thermique d'un composite à matrice thermodurcissable est développé. L'équation de chaleur est couplée au flux de chaleur exothermique dégagé durant la réaction de réticulation. Le problème de conduction unidirectionnel est discrétisé à partir d'un schéma de Crank-Nicholson qui est semi-implicite dans le temps et numériquement stable. Les deux équations modélisant le problème thermique sont les suivantes :

$$\rho(\alpha, T)C_p(\alpha, T)\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left( \lambda(\alpha, T) \frac{\partial T}{\partial x} \right) + \rho(\alpha, T)\Delta H \frac{\partial \alpha}{\partial t} \quad \forall x \in ]0; e[ \quad \forall t > 0 \quad (1)$$

$$\frac{\partial \alpha}{\partial t} = K(T) \times G(\alpha) \quad \forall x \in [0; e] \quad \forall t > 0 \quad (2)$$

avec  $\Delta H$  l'enthalpie de réaction [J/kg],  $K(T)$  [ $s^{-1}$ ] une fonction qui suit une loi de type Arrhénius de la forme :  $K(T) = k_{réf} \times e^{[-A.(\frac{T_{réf}}{T} - 1)]}$  et  $G(\alpha)$  un polynôme de degré sept :  $G(\alpha) = \sum_{i=0}^7 a_i \cdot \alpha^i$ . La cinétique de réticulation de la résine époxy a été précédemment caractérisée dans les travaux de Bailleul [1] et est implémentée dans le modèle numérique afin de modéliser l'avancement de la transformation de la matière. Un temps d'inhibition de la réaction chimique, qui dépend de l'histoire thermique de la pièce, est également pris en compte.

Les conditions aux limites de type Dirichlet considérant les évolutions de température imposées sur les deux surfaces inférieure et supérieure de l'échantillon sont écrites sous la forme suivante :

$$T(x = 0, t) = T_1(t) \quad \forall t > 0 \quad (3)$$

$$T(x = e, t) = T_2(t) \quad \forall t > 0 \quad (4)$$

Les conditions initiales du problème thermique sont les suivantes :

$$T(x, t = 0) = T_{Initiale} \quad \forall x \in [0; e] \quad (5)$$

$$\alpha(x, t = 0) = 0 \quad \forall x \in [0; e] \quad (6)$$

Il est noté que la variation volumétrique de la résine due aux effets thermiques et aux retraits chimiques est décrite par la formule suivante :

$$\frac{\Delta V}{V_0} = CTE_V \times \Delta T + CCS_V \times \Delta \alpha \quad (7)$$

Où  $\frac{\Delta V}{V_0}$  représente la déformation volumique de la résine,  $CTE_V$  est le coefficient d'expansion thermique de la résine époxy [ $K^{-1}$ ] et  $CCS_V$  son coefficient volumétrique correspondant au retrait chimique lors de la réaction [7]. Les évolutions de la température et du degré d'avancement de la réaction sont alors obtenues à différentes positions dans l'épaisseur.

Les Figures 1 et 2 représentent un exemple des évolutions de température et du degré d'avancement de la réaction de réticulation dans le cas où le matériau composite est chauffé sous une vitesse de  $10 \text{ } ^\circ C/min$  jusqu'à une température de  $140 \text{ } ^\circ C$  et maintenu à cette température jusqu'à la fin de la réaction. Les nœuds représentent les points de calcul uniformément distribués dans l'épaisseur de la matière.

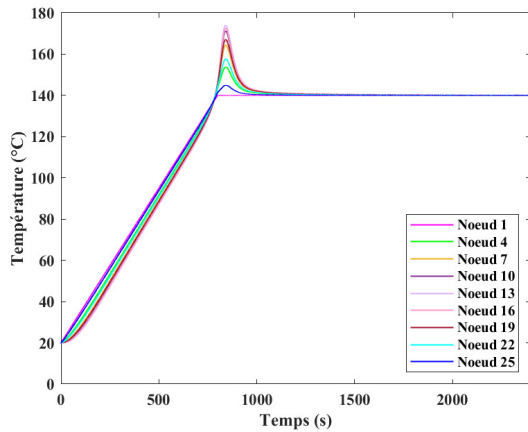


Figure 1 : Évolution de la température à différentes positions dans l'épaisseur

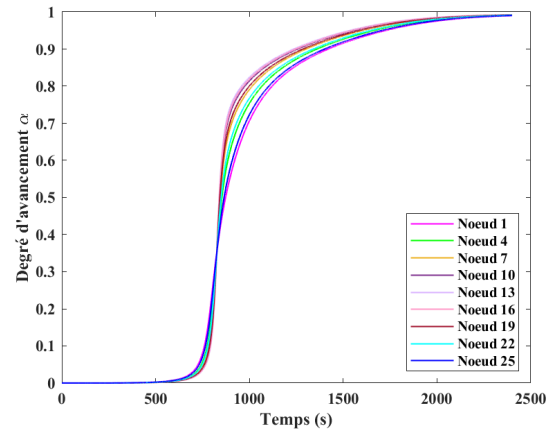


Figure 2 : Évolution du degré d'avancement de la réticulation à différentes positions dans l'épaisseur

### 3. Sensibilité de la réaction de réticulation aux conditions aux limites imposées

La réticulation des polymères thermodurcissables, définie par la formation d'un réseau tridimensionnel, est réalisée sous l'action de la chaleur selon un cycle thermique défini. Les conditions aux limites imposées ont alors un impact primordial sur l'avancement de la réaction de réticulation ainsi que sur le dégagement de la source thermique libérée. Il est ici envisagé d'observer la sensibilité de l'avancement de la réaction aux conditions aux limites pour différentes épaisseurs de la pièce de composite. Dans ce contexte, le cycle de cuisson consiste à chauffer la matière depuis la température ambiante jusqu'à une température prédéfinie, sous une vitesse

de chauffe constante. L'échantillon est ensuite maintenu à cette température pendant une durée déterminée afin que la réticulation soit complète. La sensibilité réduite de la réaction au cœur du matériau composite, aux conditions limites, est alors calculée par rapport à la vitesse de chauffe en faisant varier la température du plateau ainsi que l'épaisseur de l'échantillon. La sensibilité réduite consiste à examiner l'effet d'une faible variation des vitesses de chauffe  $\partial V$  sur l'évolution du degré d'avancement de la réaction  $\partial \alpha$ , alors que les autres paramètres ont des valeurs constantes. Cette sensibilité est alors calculée à partir de la formule suivante :

$$S^*(V, t) = \frac{\partial \alpha}{\partial V} \times V \quad (8)$$

On représente sur la Figure 3 les sensibilités réduites calculées pour des niveaux de température de 100 °C et 140 °C, des épaisseurs comprises entre 10 mm et 100 mm ainsi que des vitesses de chauffe allant de 2 °C/min à 10 °C/min.

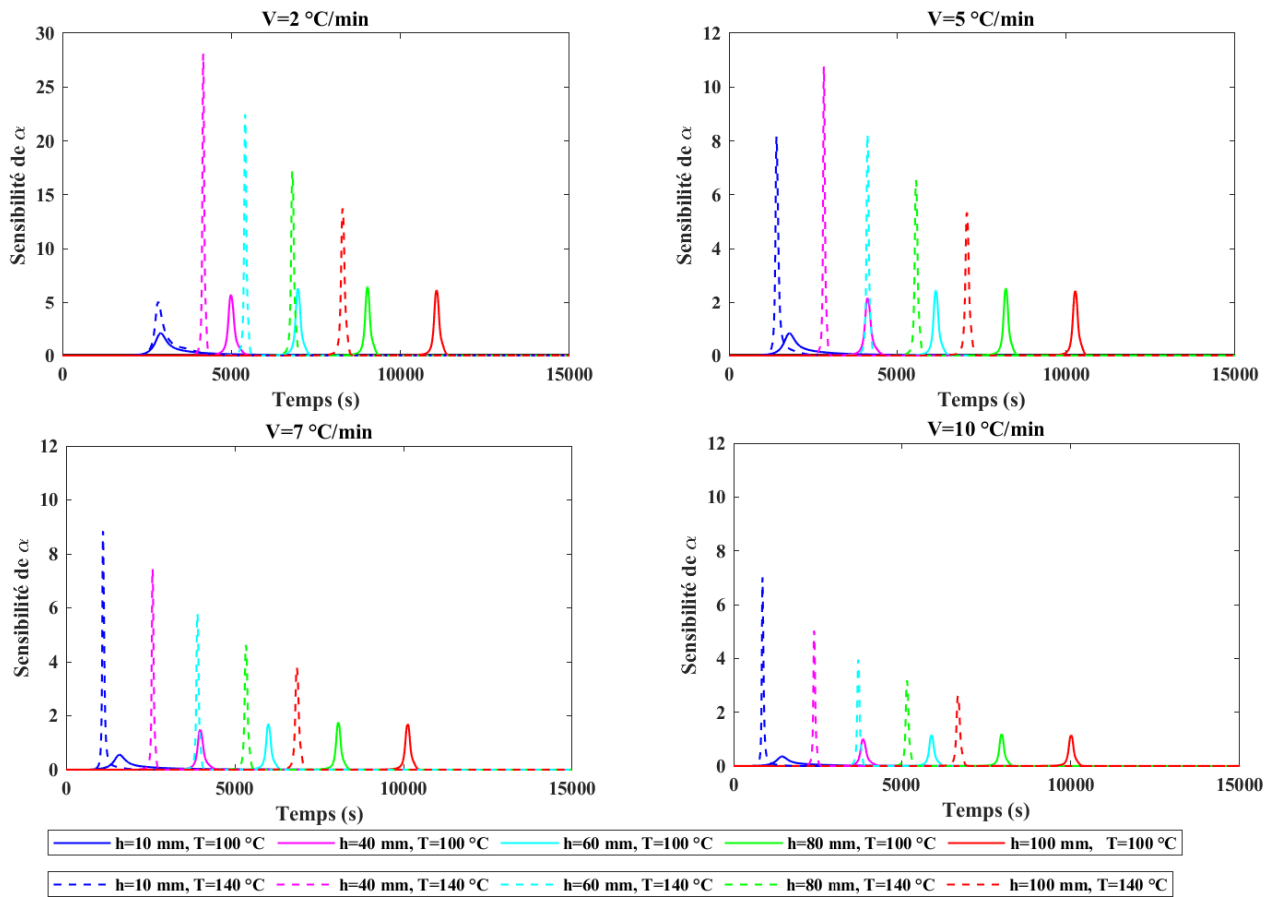


Figure 3 : Sensibilité réduite de l'avancement de la réaction de réticulation à cœur de l'échantillon par rapport à la vitesse de chauffe pour différentes épaisseurs

Il est observé que pour un niveau de température de 100 °C, la sensibilité de la réaction de réticulation à la vitesse de chauffe est peu dépendante de l'épaisseur de la matière. D'un autre côté, pour une température de 140 °C, la sensibilité de  $\alpha$  à la vitesse de chauffe diminue avec l'augmentation de l'épaisseur, particulièrement pour des épaisseurs supérieures à 40 mm.

quelle que soit la vitesse de chauffe. De plus, cette sensibilité diminue avec l'augmentation de la vitesse de chauffe. Cette constatation souligne le fait que de faibles vitesses de chauffe devront être adoptées pour contrôler efficacement la cuisson des pièces composites épaisses. Il est également noté que la sensibilité calculée pour un niveau de température de 140 °C est supérieure à celle obtenue à 100 °C.

Pour plus de clarté, les valeurs maximales de la sensibilité réduite, aux conditions limites, sont représentées sur la Figure 4 pour les différentes épaisseurs. On constate que ces points désignant la sensibilité maximale de la réaction à coeur de la pièce n'évoluent pas similairement en fonction de l'épaisseur pour les deux paliers de température. En effet, le pic de la sensibilité est significativement réduit pour des épaisseurs au delà de 40 mm pour une température de 140 °C alors qu'une légère augmentation est remarquée pour une température de 100 °C. Ces évolutions sont similaires pour les deux vitesses de chauffe imposées. Cette observation met en évidence l'impact des cycles de température appliqués sur l'aptitude à maîtriser l'avancement de la réticulation au coeur de la matière dépendamment de la sensibilité de cette dernière.

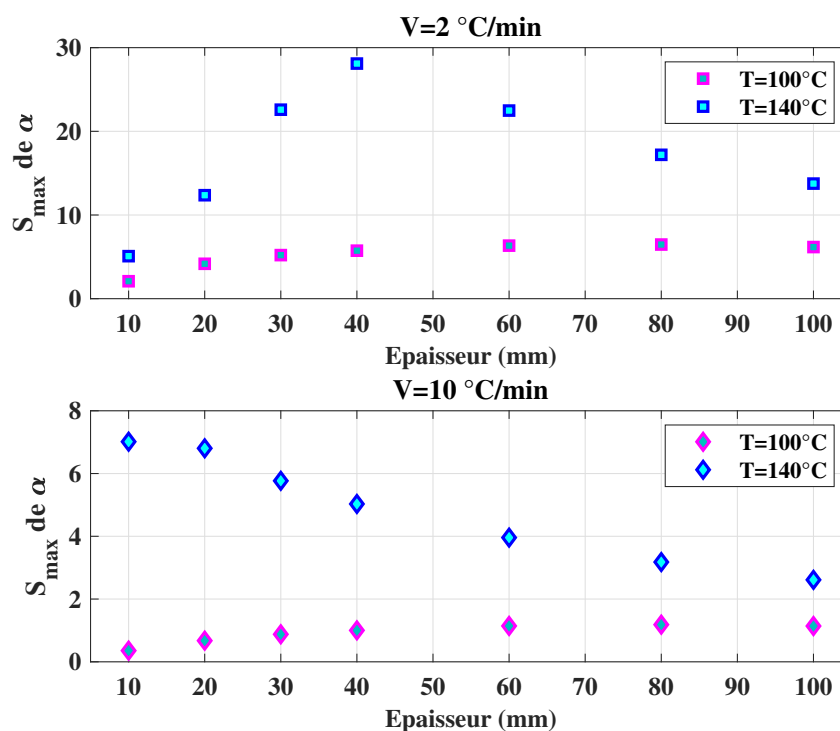


Figure 4 : Evolution des sensibilités réduites maximales de l'avancement de la réaction de réticulation, à coeur de l'échantillon, à la vitesse de chauffe en fonction de l'épaisseur de la pièce composite

#### 4. Contrôle des conditions de mise en forme

Cette section est dédiée à la mise en place de la méthode de calcul destinée au contrôle de la réaction de réticulation des composites à matrice thermdurcissable. Dans le cadre de cette étude, le composite considéré est constitué d'une résine époxy renforcée par des fibres de verre. Le pourcentage massique de fibres de verre incorporées dans la matrice est de 75%. Les propriétés thermophysiques de la matière ainsi que la cinétique de transformation de la matrice sont caractérisées expérimentalement et implémentées dans le modèle numérique.

#### 4.1. Fonction objectif

L'optimisation du problème thermique consiste à minimiser la fonction objectif représentant l'écart entre le degré d'avancement de la réaction de réticulation  $\alpha$  calculé dans toute l'épaisseur et le degré de transformation cible  $\alpha_d$ . De plus, la consigne déterminée doit être réalisable en pratique. Un facteur de pénalisation  $\gamma$  est alors introduit dans le but de stabiliser la solution. Il est noté que l'ensemble des consignes de température  $U$  constitue l'évolution des conditions aux limites imposées au bord du matériau composite durant sa cuisson. La fonction objectif est alors écrite sous la forme suivante :

$$J(U) = \frac{1}{t_f - t} \times \frac{1}{e} \sqrt{\sum_{i=t}^{i=t_f} \sum_{j=1}^{j=e} (\alpha(i, j) - \alpha_d)^2} + \gamma \times \frac{1}{n} \sqrt{\sum_{i=1}^{i=n} (U(i) - \bar{U})^2} \quad (9)$$

Où  $t$  est un instant défini du cycle de cuisson [s],  $t_f$  la fin du cycle [s],  $e$  l'épaisseur du matériau composite [m] et  $n$  le nombre de consignes de température à définir.

#### 4.2. Algorithme d'optimisation

L'algorithme d'optimisation a pour rôle d'ajuster les valeurs des consignes de température de façon à minimiser la fonction objectif. Un algorithme adéquat pour l'optimisation du problème thermique est la méthode du point intérieur [8]. Le problème qui en dérive est résolu par la méthode de Newton. Dans le cas où le problème est non convexe, la méthode du gradient conjugué est appliquée. Le Lagrangien du problème est formulé étant donné que le problème d'optimisation est soumis à des contraintes [9] [10]. En effet, les consignes de température ne peuvent pas prendre des valeurs aléatoires. Les variations des consignes sont limitées par les vitesses maximales de chauffe et de refroidissement (liées au matériel utilisé) ainsi que par les valeurs extrêmes de température. Pour notre cas, les vitesses de variation de température doivent donc être comprises entre  $-10^\circ\text{C}/\text{min}$  et  $10^\circ\text{C}/\text{min}$ , tandis que les consignes varient dans un intervalle de température allant de  $20^\circ\text{C}$  à  $200^\circ\text{C}$ .

#### 4.3. Optimisation des conditions de mise en forme d'une pièce de 10 mm d'épaisseur

Un premier calcul d'optimisation est réalisé pour une pièce de 10 mm d'épaisseur. Cette épaisseur est considérée pour la mise en place et la validation de la méthode numérique, avant d'être adaptée à des épaisseurs plus élevées. Le taux de réaction que l'on souhaite obtenir à la fin du cycle de cuisson est de 50%. La consigne initiale implémentée dans l'algorithme d'optimisation ainsi que les résultats obtenus sont représentés sur la Figure 5.

L'évolution du degré d'avancement de la réticulation à différentes positions de l'épaisseur, pour les conditions aux limites obtenues, est représentée sur la Figure 6. Un degré d'avancement de 50% avec un écart compris entre  $-10\%$  et  $+5\%$  est atteint au bout de 2600 s. Au delà de cet instant, le degré d'avancement  $\alpha$  est quasi constant et n'évolue plus. Ces résultats sont en bon accord avec ceux obtenus par Bailleul [1], validant ainsi la méthode numérique de contrôle établie.

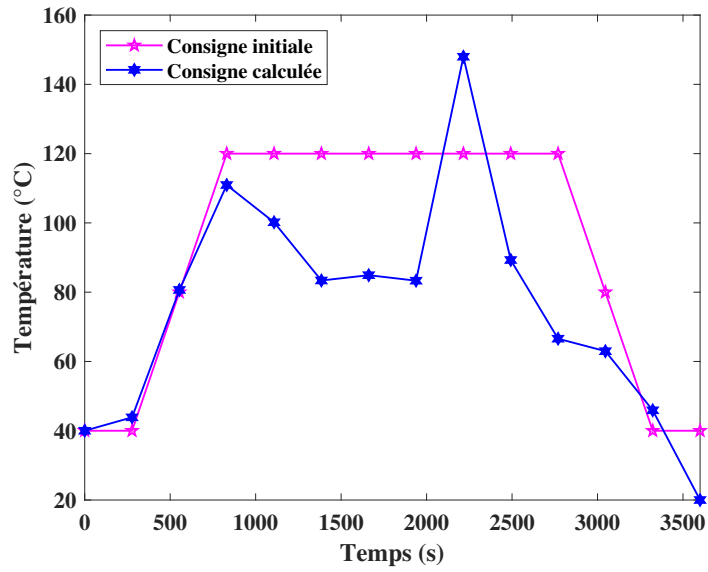


Figure 5 : Conditions aux limites pour atteindre 50% de cuisson de la pièce

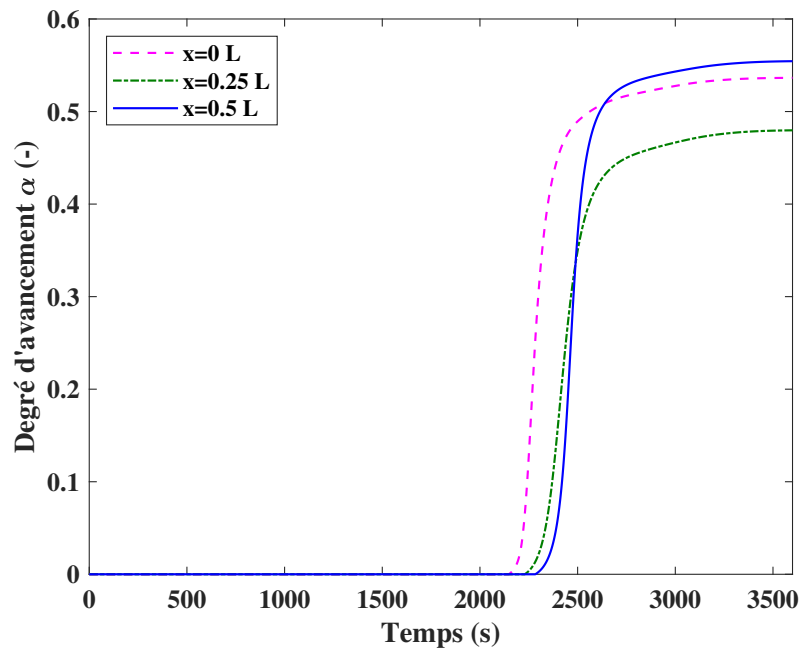


Figure 6 : Évolution de l'avancement de la réaction de réticulation au cœur de la pièce pour les conditions aux limites calculées

## 5. Conclusion

Cet article se focalise sur le contrôle des conditions aux limites durant la mise en forme des pièces composites à matrice thermodurcissable et de forte épaisseur. L'objectif principal est de

maîtriser l'avancement de la réaction de réticulation afin d'éviter la génération de contraintes résiduelles susceptibles de réduire la performance mécanique du produit. Ce contrôle assure également l'évacuation du flux thermique, réduisant ainsi les risques d'atteindre le point chaud et, par conséquent, la dégradation de la matrice. Un modèle numérique basé sur la méthode des différences finies a été développé pour simuler le comportement thermique de la matière durant un cycle de cuisson défini. Une étude de sensibilité a été réalisée et il a été observé que la sensibilité de la réticulation, au cœur de la pièce composite, aux conditions aux limites imposées diminue avec l'augmentation de l'épaisseur. Cette contrainte complexifie alors la résolution du problème thermique établi. L'algorithme du point intérieur est associé au modèle numérique afin de définir la consigne permettant d'atteindre un degré d'avancement de la réaction de réticulation prédéfini et d'obtenir un avancement homogène de la réaction dans l'épaisseur. Cette méthode numérique est testée sur une pièce composite à matrice époxy et de 10 mm d'épaisseur. L'étape suivante consiste à réaliser le même travail pour des pièces de 100 mm d'épaisseur, sachant que les gradients de température et d'avancement de la réaction sont plus élevés pour de telles épaisseurs, les vitesses de chauffe devront être limitées. Il faudra alors identifier les moyens appropriés pour homogénéiser l'avancement de la réaction dans l'épaisseur malgré les forts écarts de température engendrés durant la libération de la source thermique.

## Références

- [1] Jean-Luc Bailleul. *Optimisation du cycle de cuisson de pièces épaisses en matériau composite. Application à un préimprégné résine epoxyde/fibres de verre*. PhD thesis, Nantes, 1997.
- [2] Je Hoon Oh and Dai Gil Lee. Cure cycle for thick glass/epoxy composite laminates. *Journal of composite materials*, 36(1) :19–45, 2002.
- [3] Travis A Bogetti and John W Gillespie Jr. Two-dimensional cure simulation of thick thermosetting composites. *Journal of composite materials*, 25(3) :239–273, 1991.
- [4] TE Twardowski, SE Lin, and PH Geil. Curing in thick composite laminates : experiment and simulation. *Journal of composite materials*, 27(3) :216–250, 1993.
- [5] M Hojjati and SV Hoa. Curing simulation of thick thermosetting composites. *Composites Manufacturing*, 5(3) :159–169, 1994.
- [6] Zhan-Sheng Guo, Shanyi Du, and Boming Zhang. Temperature distribution of thick thermoset composites. *Modelling and simulation in materials science and engineering*, 12(3) :443, 2004.
- [7] Rima Sfar Zbed. *Behavior of thermoset composites during the cure : measurement of process-induced Strains, characterization and modeling of the rheological behavior*. PhD thesis, Nantes Université, 2022.
- [8] Richard H Byrd, Jean Charles Gilbert, and Jorge Nocedal. A trust region method based on interior point techniques for nonlinear programming. *Mathematical programming*, 89 :149–185, 2000.
- [9] Michel Minoux. *Programmation mathématique. Théorie et algorithmes*. Lavoisier, 2008.
- [10] Jean Legras. *Algorithmes et programmes d'optimisation non linéaire avec contraintes : application au contrôle optimal*. Masson Paris, 1980.