THÈSE DE DOCTORAT DE L'ÉCOLE CENTRALE DE LYON

membre de

l'Université de Lyon

École Doctorale 162 : Mécanique, Énergétique, Génie Civil et Acoustique
Spécialité : Mécanique

Soutenue publiquement le 3 décembre 2025, par

Quentin Maréchal

Prédiction et analyse de robustesse du phénomène de retour élastique pour des structures composites

---

Devant le jury composé de :

Laurence Curtil	Présidente du jury
Imad Tawfiq	Rapporteur
Lucien Laiarinandrasana	Rapporteur
Michelle Salvia	Examinatrice
Mohamed-Amine Chabchoub	Examinateur
Mohamed Ichchou	Directeur de thèse
Olivier Bareille	Co-encadrant
Bruno Berthel	Co-encadrant

Résumé

Depuis la crise liée au Covid-19, les constructeurs aéronautiques sont confrontés à des problématiques de vitesse de production. Leur carnet de commandes ne cessant de croître sans qu'ils n'arrivent à suivre la cadence de production d'avions. C'est dans ce contexte que le projet Ain-T-Graal a vu le jour, mettant en relation plusieurs partenaires, pour aboutir à des solutions de réduction de temps de fabrication. Le leader du projet, l'entreprise Duqueine spécialisée dans les structures composites, fournit les cadres de fuselage pour Airbus. Pour répondre au besoin de réduction de poids et réduction des émissions de CO2, ces pièces sont réalisées entièrement en composite dans les nouvelles générations d'aéronef. Lors de la production des cadres de fuselage, Duqueine est confronté à une difficulté courante dans la production de structures en composite, les pièces subissant des distorsions géométriques, appelé phénomène de « spring back » (retour élastique) lors du démoulage de celles-ci. Ces distorsions sont problématiques, car elles provoquent des non-conformités géométriques, imposant à Duqueine une étape de correction coûteuse en temps.

Ces travaux de thèses ont pour but l'étude et la prédiction de l'effet « spring back », sur des structures composites à matrice thermodurcissable. Ce phénomène est directement lié à la libération de contraintes résiduelles se formant durant la phase de cuisson de la pièce. Ces contraintes résiduelles sont de nature thermique, chimique et mécanique. Un modèle numérique multi-physique, basé sur la théorie des éléments finis a été développé. Le modèle contient différents modules, associé chacun à une physique, couplés entre eux. Cette prédiction s'accompagne d'une caractérisation complète de la résine, afin de simuler une cinétique de cuisson fidèle à la réalité. Le modèle a été validé par une expérience de validation, sur une géométrie plus simple, avant d'être appliqué au cadre de fuselage.

Une étude de sensibilité globale complète a également été réalisée afin d'identifier les paramètres d'entrée du modèle les plus influents sur la prédiction du spring back. Cette étude a permis de souligner la contribution majeure des coefficients de retrait chimique. Ces coefficients sont associés au changement volumique que subit la résine au cours de sa réticulation. Il est très important d'identifier précisément ces paramètres pour obtenir une prédiction la plus précise possible. Une méthode de caractérisation innovante a été développée pour répondre à ce besoin. Elle est basée sur la technique de mesure de champs de déplacement par corrélation d'image. Des échantillons de pré-imprégné sont soumis à un cycle de température et le suivi par les caméras permet d'en déduire les champs de déformation associés aux contraintes thermiques.

Mots clés : Retour élastique, Composite, Simulation, Analyse de sensibilité, Cinétique de réticulation, Laminé thermodurcissable

Abstract

Since the Covid-19 crisis, aircraft manufacturers have been facing production rate issues. Their order books continue to grow, but they are unable to keep up with aircraft production rates. It is in this context that the Ain-T-Graal project was born, bringing together several partners to develop solutions for reducing manufacturing time. The project leader, Duqueine, a company specializing in composite structures, supplies fuselage frames for Airbus. To meet the need for weight reduction and lower CO2 emissions, these parts are made entirely of composite materials in the new generations of aircraft. During the production of fuselage frames, Duqueine faces a common difficulty in the production of composite structures, with parts undergoing geometric distortions, known as the "spring back" phenomenon, when they are removed from the mold. These distortions are problematic because they cause geometric non-conformities, requiring Duqueine to carry out a time-consuming correction process.

The aim of this thesis work is to study and predict the springback effect on thermoset matrix composite structures. This phenomenon is directly linked to the release of residual stresses that form during the cure phase of the part. These residual stresses are thermal, chemical, and mechanical in nature. A multi-physics numerical model based on finite element theory has been developed. The model contains different modules, each associated with a physics, which are coupled together. This prediction is accompanied by a complete characterization of the resin in order to simulate realistic cure kinetics. The model was validated by a validation experiment on a simpler geometry before being applied to the fuselage frame.

A comprehensive global sensitivity study was also carried out to identify the model input parameters that have the greatest influence on the springback prediction. This study highlighted the major contribution of chemical shrinkage coefficients. These coefficients are associated with the volume change that the resin undergoes during cross-linking. It is very important to identify these parameters precisely in order to obtain the most accurate prediction possible. An innovative characterization method was developed to meet this need. It is based on the technique of measuring displacement fields by image correlation. Pre-impregnated samples are subjected to a temperature cycle and monitored by cameras to determine the deformation fields associated with thermal stresses.

Key words : Spring back, Composite, Simulation, Sensitivity analysis, Cure Kinetics, Thermosetting laminate

Remerciement

Je tiens à remercier tout particulièrement mes trois directeurs de thèse Mohamed ICHCHOU, Bruno BERTHEL et Olivier BAREILLE, ainsi que Michelle SALVIA et Moahamed-Amine CHABCHOUB pour ces trois belles années de thèse. Leur accompagnement, leur soutien ainsi que leurs précieux conseils ont été très important pour moi et m'ont permis de m'épanouir pleinement dans mon travail de recherche.

Je remercie les membres de mon jury de thèse, Laurence CURTIL, Imad TAWFIQ et Lucien LAIARINANDRASANA pour avoir examiné et rapporté consciencieusement mon travail, ainsi que pour les questions enrichissantes soulevées durant la soutenance.

J'aimerai avoir un mot pour toute les personnes du LTDS que j'ai pu côtoyé durant mon expérience doctorale, qui m'ont aidé dans mon projet et avec qui j'ai partagé d'excellents moments. Merci à tout les doctorants et postdoctorant du E6 et plus particulièrement Barbara, Thomas, Léo, Xavier, Lucien, Maxime, Ali, Daniel et Firas. Ils ont contribué à l'excellente ambiance au sein du laboratoire et ce fut un plaisir de travailler à vos côtés.

Je remercie mes amis de longue date de Haute-Savoie, ceux dont l'amitié est extrêmement importante à mes yeux et qui m'ont accompagné durant toutes ces années.

Pour finir, je tiens à remercier profondément ma famille, Cosette ma mère, Thierry mon père et Clara ma soeur, pour leur soutien indéfectible durant toutes les étapes de ma vie.

Table des matières

Introduction générale **1**

1 Etat de l'art **4**
Introduction . . . 4
1.1 Les matériaux composites . . . 4
1.1.1 Description . . . 5
1.1.2 Composites stratifiés et méthode d'élaboration . . . 7
1.1.2.a Composites stratifiés . . . 7
1.1.2.b Méthode d'élaboration . . . 8
1.1.3 Utilisation dans l'aéronautique . . . 9
1.1.4 Avantages et inconvénients . . . 10
1.2 Le cadre de fuselage . . . 11
1.2.1 Description géométrique . . . 11
1.2.2 Procédé de fabrication . . . 12
1.3 Phénomène de spring-back . . . 14
1.3.1 Description . . . 14
1.3.2 Causes de la formation des contraintes résiduelles . . . 15
1.3.2.a Anisotropie des coefficients d'expansion thermique . . . 15
1.3.2.b Retrait chimique . . . 16
1.3.2.c Interaction pièce/outil . . . 18
1.3.2.d Effet du cycle de cuisson . . . 19
1.3.2.e Gradient de température . . . 19
1.3.2.f Effet de la configuration de l'empilement . . . 20
1.4 Caractérisation du matériau . . . 20
1.4.1 Identification du CET et CRC . . . 20
1.4.2 Propriétés cinétique de la résine . . . 21
1.5 Méthode de modélisation . . . 22
1.5.1 Modélisation thermique . . . 23
1.5.2 Modélisation cinétique de la résine . . . 23
1.5.2.a Généralité . . . 23
1.5.2.b État de l'art des modèles cinétiques phénoménologiques . . . 23
1.5.3 Modélisation mécanique . . . 25
1.5.3.a Modèle élastique linéaire . . . 25
1.5.3.b Modèle viscoélastique . . . 26

1.5.3.c Modèle CHILE 27
1.6 Méthode d'analyse de sensibilité 29
1.6.1 Analyse de sensibilité locale 30
1.6.2 Analyse de sensibilité globale 30
1.6.2.a Analyse par nuage de point 30
1.6.2.b Méthode de Sobol 31
1.6.2.c Échantillonnage de la méthode de Sobol 32
1.6.2.d Méthode FAST 33
1.6.2.e Méthode de Morris 33
Conclusion 34

2 Caractérisation thermocinétique de la résine M21E 35
Introduction 35
2.1 Matériau préimprégné *M21E/IMA-12K* 36
2.2 Techniques expérimentales 39
2.2.1 Calorimétrie différentielle à balayage 39
2.2.1.a Principe 39
2.2.1.b Thermogrammes 40
2.2.2 Analyse mécanique dynamique 42
2.3 Identification du modèle cinétique 45
2.3.1 Enthalpie générée par la cuisson de la résine 46
2.3.1.a Essais DSC dynamique 46
2.3.1.b Calcul Enthalpie totale 46
2.4 Identification des paramètres du modèle Kamal et Sourour 48
2.4.1 Essais isothermes par DSC 48
2.4.2 Identification des paramètres KS 50
2.4.3 Calcul des énergies d'activation E_a 51
2.4.4 Identification du modèle Di Benedetto 52
2.5 Détermination du degré d'avancement au point de gel 54
2.5.1 Vitrification 54
2.6 Implémentation et validation numérique du modèle cinétique 56
2.6.1 Implémentation sur Comsol 57
2.6.2 Validation numérique 58
2.6.2.a Essais dynamiques 58
2.6.2.b Essais isothermes 59
2.6.2.c Évolution de la température de transition vitreuse au cours d'une cuisson 59
2.7 Identification du modèle CHILE 60
Conclusion 64

3 Simulation numérique de l'effet Spring Back 65
Introduction 65
3.1 Modèle analytique 66
3.1.1 Revue des modèles analytiques 66
3.1.2 Comparaison des modèles analytiques 68
3.1.2.a Cas étudié 69

3.1.2.b Résultats . . . 70
3.2 Modèle numérique . . . 71
3.2.1 Architecture globale du modèle . . . 71
3.2.1.a Module cinétique . . . 71
3.2.1.b Module thermique . . . 72
3.2.1.c Module mécanique . . . 73
3.3 Modélisation de l'effet Spring Back sur une forme "L Shape" . . . 75
3.3.1 Propriétés du matériau utilisé . . . 75
3.3.2 Géométrie et conditions aux limites . . . 77
3.3.3 Maillage et solveur . . . 77
3.3.4 Méthodologie pour la détermination numérique du Spring Back 78
3.3.5 Résultat . . . 79
3.3.5.a Modèle 3D sur une configuration "L Shape" . . . 79
3.3.5.b Comparaison modèle 3D / modèle coque mince . . . 81
3.3.5.c Comparaison avec les modèles analytiques . . . 82
3.4 Validation du modèle . . . 84
3.4.1 Protocole expérimental . . . 84
3.4.2 Résultat . . . 88
3.5 Modélisation des distorsions géométriques sur un cadre de fuselage . . 89
3.5.1 Géométrie . . . 89
3.5.2 Spring back de courbure . . . 90
3.5.3 Spring back de section . . . 91
Conclusion . . . 92

4 Analyse de sensibilité 94
Introduction . . . 94
4.1 Analyse de sensibilité locale appliquée au modèle numérique . . . 95
4.1.1 Impact des conditions aux limites . . . 95
4.1.1.a Cas libre par le module Comsol . . . 96
4.1.1.b Suppression mouvements corps rigides par blocage de 3 points . . . 96
4.1.1.c Cas face encastrée . . . 98
4.1.1.d Conclusion . . . 99
4.1.2 Sensibilité au maillage . . . 99
4.2 Analyse de sensibilité global . . . 100
4.2.1 Modèle analytique . . . 101
4.2.1.a Choix de la taille de l'échantillonnage . . . 102
4.2.1.b Cas unidirectionnel . . . 103
4.2.1.c Cas quasi-isotrope . . . 106
4.2.1.d Conclusion . . . 108
4.2.2 Simulation numérique . . . 109
4.2.2.a Cas unidirectionnel . . . 109
4.2.2.b Cas quasi-isotrope . . . 110
4.2.2.c Visualisation graphique . . . 112
4.2.2.d Conclusion . . . 113

4.2.3 Sensibilité de la loi cinétique 114
Conclusion 116

5 Caractérisation du CET et du CRC par corrélation d'image 118
Introduction 118
5.1 Protocole expérimental 119
5.1.1 Description théorique 119
5.1.2 Dispositif expérimental 120
5.1.3 Préparation des échantillons 121
5.2 Mesure du coefficient d'expansion thermique CET 122
5.2.1 CET pour l'état cru 123
5.2.2 CET après réticulation complète 124
5.3 Mesure du CRC 125
5.4 Application à la simulation numérique du cadre de fuselage 128
Conclusion 129

Introduction générale

Contexte et objectif

Depuis les années 1990, la proportion de matériaux composites dans les structures aéronautiques a massivement augmenté. Ces matériaux présentent des propriétés intéressantes pour l'industrie aéronautique. Leur principal atout réside dans leur légèreté, leur utilisation a permis de réduire de 20 % du poids d'un avion. Ce gain de poids a permis une réduction des émissions de CO_2 et l'augmentation du rayon d'action des appareils. Les matériaux composites présentent également une meilleure résistance à la fatigue et à la corrosion.

Depuis la crise déclenchée par la pandémie du Covid-19, les constructeurs aéronautiques sont confrontés à des problématiques de capacité industrielle. Leur carnet de commandes ne cesse de se remplir depuis la reprise, mais ils n'ont pas retrouvé leur capacité de production d'avant crise, entraînant des retards de livraisons importants. C'est dans ce contexte que le projet Ain-T-Graal a vu le jour. Le projet, soutenu par la Direction Générale de l'Aviation Civil (DGAC) et piloté par la société Duqueine, regroupe différents acteurs du secteur aéronautique. L'entreprise Duqueine fournit des cadres de fuselages pour les avions Airbus, ces pièces sont fabriquées entièrement en composite dans les nouvelles générations d'avion. Le procédé de fabrication des cadres doit évoluer pour surpasser des limitations en termes de design, cadence et niveau d'automatisation, pour répondre aux besoins futurs de l'industrie.

La partie du projet étudiée dans ce manuscrit concerne la maîtrise de la géométrie de ces cadres de fuselage. Des écarts entre la géométrie théorique et la géométrie obtenue en fin de procédé de fabrication sont observables et conduisent à des non-conformités. Pour y remédier, Duqueine procède à des étapes de correction de la géométrie, coûteuses en ressource et en temps. Ces distorsions géométriques, appelées retour élastique (ou spring back en anglais), sont générées par la libération de contraintes résiduelles se formant lors de la réticulation de la résine. Ces distorsions résultent d'une combinaison de phénomènes physiques tels que l'anisotropie des coefficients d'expansion thermique ou encore le retrait chimique associé à la réticulation de la résine.

L'objectif principal de ce travail est d'étudier les phénomènes à l'origine du retour élastique, afin de développer un modèle numérique prédictif du spring back. Une fois ce modèle établi, sa robustesse sera étudiée à travers une analyse de sensibilité,

permettant d'identifier les paramètres matériau les plus influents sur la prédiction du spring-back.

Structure du manuscrit

Le premier chapitre du manuscrit propose une étude bibliographique sur la nature des matériaux composites, les causes à l'origine du phénomène de retour élastique, les techniques expérimentales utilisées pour la caractérisation des résines thermodurcissables, les méthodes de modélisation, et sur les méthodes d'analyse de sensibilité existantes.

Le second chapitre se concentre sur la caractérisation de la résine M21E. Pour répondre aux objectifs de ces travaux, un module cinétique, représentant correctement le comportement de la résine durant sa réticulation, est essentiel à la prédiction du spring back. Le modèle thermocinétique étant composé d'une loi cinétique, calculant le degré d'avancement de la polymérisation de la résine durant sa cuisson (modèle de Kamal et Sourour), et d'une loi calculant l'évolution de la température de transition vitreuse de la résine (loi de Di Benedetto). Les méthodes de caractérisation de la résine sont précisément détaillées dans ce chapitre, ainsi que le protocole expérimental utilisé pour l'identification des lois constituantes le module cinétique.

Le troisième chapitre présente le modèle numérique reposant sur la théorie des éléments finis. Il est développé sur le logiciel commercial Comsol. Le modèle comporte trois modules distincts, représentant chacun une physique, couplés entre eux. Un module gère l'évolution de la température au sein de la structure tout au long de la simulation. Un second module modélise la cinétique de réticulation de la résine. Le troisième module s'occupe de la réponse mécanique du matériau, aux différentes sollicitations qu'il subit durant le cycle de cuisson. Une revue des différents modèles analytiques existant dans la littérature est effectuée pour servir de référence pour la validation du modèle. Une expérience de validation, sur une géométrie simplifiée (L shape), est ensuite réalisée pour valider la pertinence du modèle. Le modèle numérique est ensuite appliqué sur la géométrie des cadres de fuselages pour quantifier les variations géométriques que subissent les cadres durant leur cuisson.

Le quatrième chapitre développe la méthode d'analyse de sensibilité employée sur les modèles analytiques et le modèle numérique. Cette analyse a pour but de quantifier l'influence des paramètres matériaux, géométriques ou liés au maillage, sur la prédiction du phénomène de spring-back. Pour cela, des méthodes d'analyses de sensibilité locales et globales sont utilisées.

Le dernier chapitre de ce manuscrit se focalise sur l'élaboration d'une méthode de caractérisation innovante, basée sur la stéréo-corrélation d'image. Pour répondre au besoin de connaître précisément la valeur de certains paramètres matériaux, identifier comme critique lors de l'analyse de sensibilité, cette méthode propose de mesurer les coefficients d'expansion thermique et de retrait chimique, sur un échantillon com-

posé d'un seul pli de pré-imprégné, non réticulé. Cette méthode se démarque par sa simplicité de mise en œuvre, tout en ne nécessitant pas l'emploi de machine de caractérisation coûteuse.

Enfin, une conclusion synthétise les travaux réalisés et le cheminement suivi dans les différents chapitres, puis apporte des perspectives d'approfondissement pour de futurs travaux.

Chapitre 1

Etat de l'art

Introduction

Ce premier chapitre se concentre les concepts et permet de positionner l'étude de ce manuscrit. Il se compose en six sections. Tout d'abord, les matériaux composites sont introduits dans leur généralité. Les matériaux composites présentant une très grande diversité, un focus est proposé sur les stratifiés à matrice organique et renfort fibreux. À partir de cette étude, des paramètres matériaux sont identifiés comme étant important pour la modélisation du spring back et les méthodes de caractérisation de ces paramètres est détaillés. La cinquième section est consacrée aux méthodes de modélisation utilisées dans la littérature pour mettre en place des modèles numériques de prédiction du spring back. Pour finir, une section sur les méthodes d'analyse de sensibilité est proposée. Les méthodes de sensibilité permettent d'identifier les paramètres matériaux impactant dans les modèles et ainsi concentrer les efforts de caractérisation sur ces paramètres.

1.1 Les matériaux composites

Cette première partie est consacrée à l'introduction des matériaux composites, leurs particularités seront détaillés, notamment dans le cas de leur utilisation dans les cadres de fuselages. Les matériaux composites sont des matériaux résultant de l'union de deux ou plusieurs composants distincts pour tirer parti de leurs propriétés individuelles afin d'obtenir des caractéristiques globales qu'il ne serait pas possible d'atteindre avec un matériau conventionnel homogène. Ces composants sont généralement choisis pour leurs propriétés spécifiques telles que la résistance mécanique, la conductivité thermique, la légèreté, la durabilité ou d'autres. De manière générale, les composites sont constitués d'une matrice (phase continue) et de renforts (phases discontinues).

1.1.1 Description

Les composites peuvent être classifiés en fonction de la nature de leur matrice. Il existe trois grandes familles :

— les composites à matrice organique (CMO)
— les composites à matrice métallique (CMM)
— les composites à matrice céramique (CMC)

Les renforts peuvent également avoir plusieurs morphologies :
— fibreux : fibres courtes, longues ou continues
— particulaires : carbures, etc.
— structuraux : tissues, mats, etc.

Les CMO représentent la grande majorité des matériaux composites utilisés. La matrice est alors un polymère, un élément chimique constitué de chaînes moléculaires répétitives, appelées monomères, qui sont reliés entre eux par des liaisons covalentes. Dans la grande majorité des cas, l'organisation de ces grandes chaînes moléculaires peut être vue comme un réseau 3D temporaire (thermoplastique) ou permanent (thermodurcissable). Les thermoplastiques sont composés de chaînes polymères linéaires ou ramifiées individuelles enchevêtrées entre elles, ces enchevêtrements constituants les nœuds du réseau. Ils peuvent être chauffés et ramollis à plusieurs reprises, ce qui permet le recyclage des pièces en thermoplastiques.

Dans le cas des thermodurcissables, les chaînes polymères sont reliées entre elles par des liaisons covalentes (nœuds du réseau) résultant d'une réaction chimique (réticulation) entre composants chimiques. Ils ne peuvent pas être modifiés ni ramollis par application de chaleur après durcissement, ce qui rend les pièces en thermodurcissable non recyclables. Les propriétés thermomécaniques des polymères sont gouvernées par les forces intermoléculaires secondaires, comme les liaisons de Van der Waals et les liaisons hydrogène. En dessous de la température dite de transition vitreuse (Tg), la cohésion d'un polymère amorphe est principalement due à ces interactions. Les molécules sont alors considérées comme figées et leur mobilité segmentaire est extrêmement faible. Les polymères se trouvent alors dans un état « vitreux » et se comportent comme des solides rigides et cassants. Lorsque la température augmente et que le matériau atteint la température Tg, les liaisons secondaires se rompent progressivement sous l'effet des fluctuations thermiques, et le matériau passe dans un état « caoutchoutique ». La température de transition vitreuse dépend de l'équilibre entre le mouvement thermique et les forces intermoléculaires. La valeur de Tg dépend donc de la structure du polymère, notamment de la rigidité et de la longueur des chaînes, du taux de nœuds (enchevêtrements pour les thermoplastiques ou covalents pour les thermodurcissables) et du type de nœuds. Les thermodurcissables présentent généralement un meilleur comportement thermique, car les liaisons covalentes entravent les mouvements moléculaires à grande distance.

La matrice agit comme un liant qui maintient les renforts ensemble, transférant les

charges entre eux et les protège de l'environnement. Les renforts, tels que les fibres de carbone, de verre, ou autre, confèrent au matériau ses propriétés spécifiques, notamment la résistance à la traction, ou encore sa rigidité. Enfin, l'interface entre la matrice et les renforts joue un rôle crucial dans le transfert de charge renforts/matrice et les phénomènes d'endommagement, donc les performances du matériau.

Dans le cas de ce projet, le composite de l'étude est un composite à matrice polymère réalisé à partir d'un préimprégné à base de résine époxyde et de fibres de carbone, commercialisé par Hexcel Composites sous le nom Hexcel® *M21E/34%/UD194 /IMA-101 12K*, et spécialement développé pour le domaine aéronautique. La résine M21E est un système réactif thermodurcissable mono-composant, c'est-à-dire que la résine et le durcisseur sont pré-mélangés, à ténacité améliorée par la présence de particules thermoplastiques dans la résine. En raison du caractère mono-composant de la résine, le préimprégné a une durée de vie limitée et doit être stocké à basse température pour éviter un durcissement prématuré du système réactif.

Les fibres les plus utilisées dans le domaine de l'aéronautique sont les fibres de carbone. Leurs avantages principaux sont une grande résistance, un haut module et surtout une faible densité. Leur comportement est anisotrope et ont un diamètre de l'ordre de 5-10 µm. Il en existe de plusieurs types et peuvent être classifiées selon leurs propriétés mécaniques : à Haute Résistance (HR), à Haut Module (HM) ou à Module Intermédiaire (IM), comme présenté dans la Fig. 1.1. Comme leur nom l'indique, les fibres IM offrent un bon compromis entre résistance mécanique et module d'élasticité. Le renfort HexTow® IMA est une fibre de carbone continue haute performance à module intermédiaire à base de fibres de PAN (polyacrylonitrile), disponible en mèches de 12 000 (12K) filaments élémentaires.

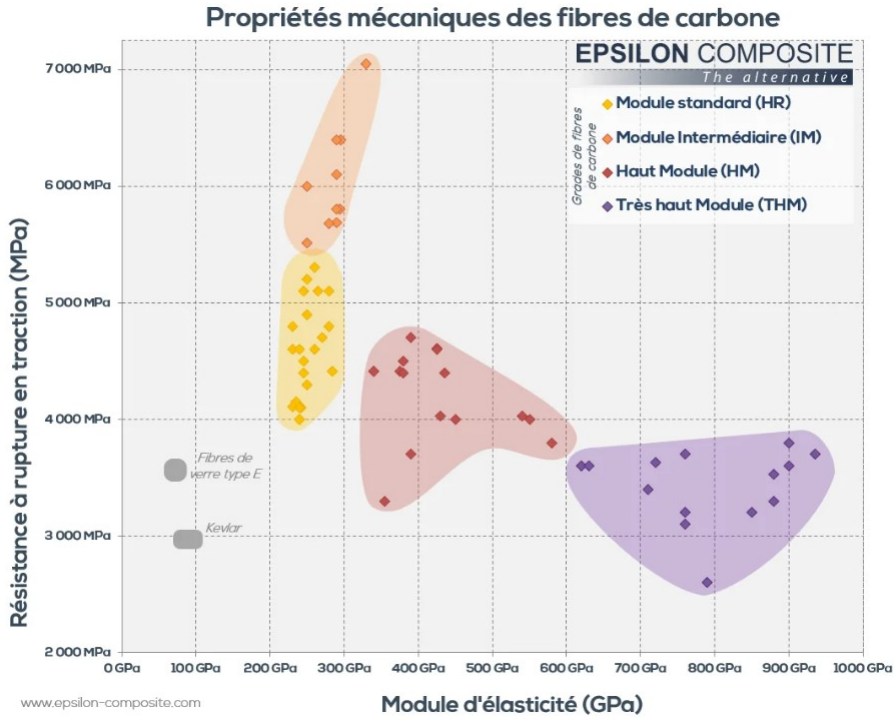


FIGURE 1.1 – Propriétés mécaniques des fibres de carbone [19]

1.1.2 Composites stratifiés et méthode d'élaboration

Les formes que peuvent prendre les CMO sont d'une très grande diversité, il ne serait pas approprié, dans ces travaux, de décrire de façon exhaustive tous les comportements des CMO existants. Dans ce manuscrit, nous allons nous focaliser sur les composites stratifiés, obtenus à partir d'empilement de plis à fibres continues unidirectionnelles (préimprégné UD) et obtenus par un procédé de drapage et réticuler en autoclave.

1.1.2.a Composites stratifiés

Un composite stratifié est le résultat de l'empilement de couches, appelées plis, qui sont collées les unes aux autres. Les propriétés finales du composite dépendent du type de préimprégné et de la séquence d'empilement. Les composites stratifiés sont largement utilisés dans l'aéronautique, notamment pour les ailes, ou pour les pièces constituant le fuselage. Dans notre étude, nous nous limiterons aux plis unidirectionnels. Les propriétés dépendront donc des angles entre les plis qui suivent les couches successives. Un schéma représentant un matériau composite stratifié est présenté dans la Fig. 1.2.
Un pli unidirectionnel est composé d'un ensemble de fibres continues dans une seule direction, entourées d'une matrice. C'est un matériau au comportement anisotrope et particulièrement isotrope transverse. Ceci se caractérise par des propriétés présentant une symétrique par rapport à l'axe des fibres (Fig. 1.3).

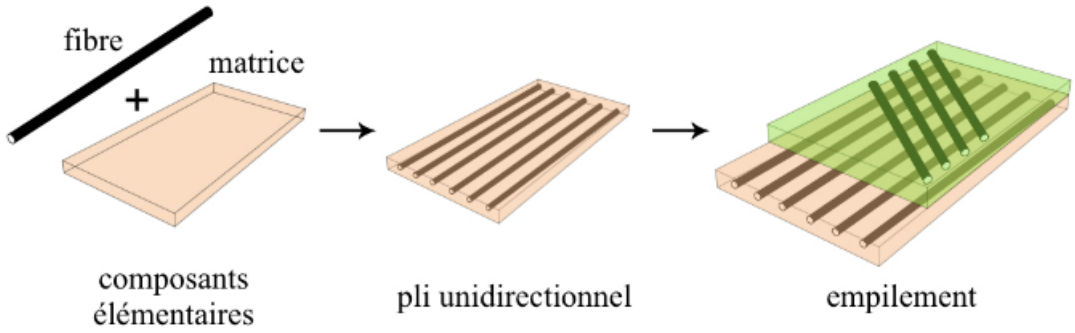


FIGURE 1.2 – Schéma d'un matériau composite stratifié [48]

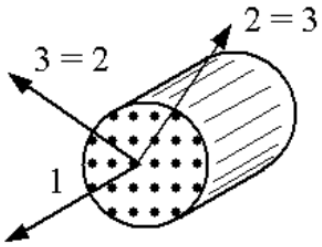


FIGURE 1.3 – Vue schématique du comportement isotrope transverse d'un matériau composite à renfort carbone [101]

Dans une pièce composite stratifiée, il existe différentes échelles permettant la description des différents mécanismes mis en jeu. Par ordre croissant en taille, il y a l'échelle : moléculaire, de la fibre, du pli, du stratifié et enfin de la pièce de structure (Fig. 1.4).

1.1.2.b Méthode d'élaboration

Le procédé utilisé et sa maîtrise influent fortement sur les propriétés des matériaux composites produits. Dans le secteur de l'aéronautique, le procédé de fabrication le plus couramment utilisé pour la fabrication des pièces complexes, est le drapage de préimprégné. Les différentes couches, qui forment la pièce, sont empilées les unes sur les autres, manuellement ou à l'aide de bras robotique, directement sur les moules pour donner la forme géométrique à la pièce. Ensuite, les empilements sont polymérisés dans des autoclaves, qui permettent le contrôle de la pression et de la température. Une vision schématique de la cuisson en autoclave est présentée dans la Fig. 1.5. Ce procédé est plutôt destiné aux faibles/moyens volumes de production, mais offre de très bonnes performances aux pièces produites.

D'autres techniques de mise en forme des composites à résine thermodurcissable existent, comme l'infusion sous vide, ou le moulage par transfert de résine.

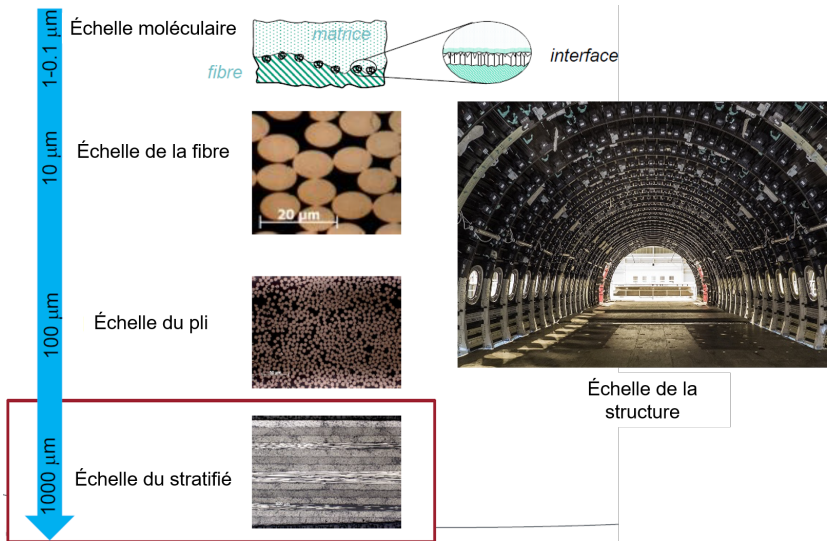


FIGURE 1.4 – Schéma représentant les différentes échelles dans les composites stratifiés

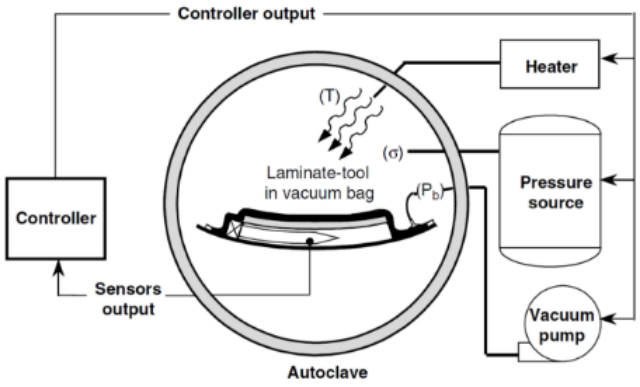


FIGURE 1.5 – Représentation schématique du fonctionnement d'un autoclave [38]

1.1.3 Utilisation dans l'aéronautique

Les composites jouent un rôle de plus en plus essentiel dans l'industrie aéronautique. En effet, l'utilisation massive des composites permet un grand gain de poids tout en conservant une résistance mécanique élevée et une durabilité satisfaisante. La réduction de poids des avions est un enjeu majeur parce qu'elle permet une forte réduction de la consommation de carburant et donc une augmentation du rayon d'action et la réduction des coûts de fonctionnement. Les parties d'avions où l'utilisation des matériaux composites est la plus élevée sont les empennages ou le fuselage, comme présentées dans la Fig. 1.6. De plus, les composites offrent une meilleure résistance à la corrosion, prolongeant ainsi la durée de vie opérationnelle des avions.

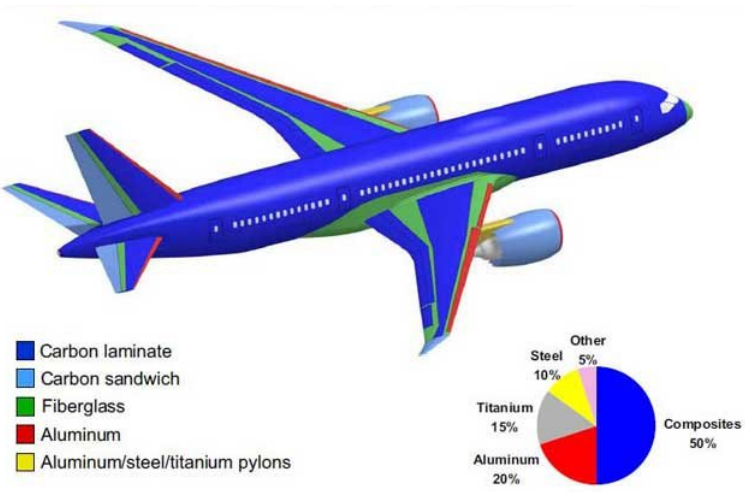


FIGURE 1.6 – Répartition des différents matériaux utilisés sur un avion [7]

1.1.4 Avantages et inconvénients

Tout d'abord, les rapports résistance/densité ou raideur/densité élevés sont les principaux avantages des composites. Ce qui favorise grandement leur utilisation dans des secteurs spécifiques comme l'aéronautique ou le sport où le gain de masse est un facteur déterminant pour la compétitivité. Les composites possèdent également une faible conductivité thermique et électrique, ce qui les rend idéaux pour des situations nécessitant une isolation. Avant la polymérisation de la matrice, les composites sont extrêmement souples, ce qui permet de leur donner des formes complexes et pouvant être plus facilement optimisé pour les problèmes rencontrés. La fabrication de formes complexe permet également de réduire le nombre de pièces et d'assemblages, participant ainsi au gain de masse et à la réduction des coûts de montage. Ils ont généralement une bonne résistance à la corrosion en comparaison avec les métaux. Enfin, ce sont des matériaux « à la carte », pour lesquels il est possible d'ajuster au mieux les raideurs et d'utiliser leur caractère anisotrope à notre avantage.

Cependant, en dépit de ces nombreux avantages, ils existent des inconvénients pouvant empêcher leur utilisation. Du fait de leurs propriétés physiques spécifiques, souvent anisotropes, les stratifiés possèdent des fragilités directionnelles pouvant mener à des défaillances en cas d'erreur de conception. Certains dommages peuvent être difficilement détectés, notamment les délaminations (provoquées lors d'impact par exemple), ce qui rend leur contrôle plus complexe. Dans le cas des applications aéronautiques, leurs propriétés isolantes peuvent être un inconvénient pour la prise en compte des endommagements par impact de foudre. Pour finir, le recyclage des matériaux composites peut s'avérer difficile, notamment pour les matrices thermodurcissables.

1.2 Le cadre de fuselage

La pièce étudiée dans ces travaux de thèse est le cadre de fuselage. Le cadre de fuselage est une pièce de la structure de l'avion, fabriqué en matériau composite dans les dernières générations d'aéronefs, notamment la gamme néo de chez Airbus (Fig. 1.7). Les informations liées à ces cadres, sont directement issues de la société Duqueine Group® (DUQUEINE Rhône-Alpes - Site de Civrieux).

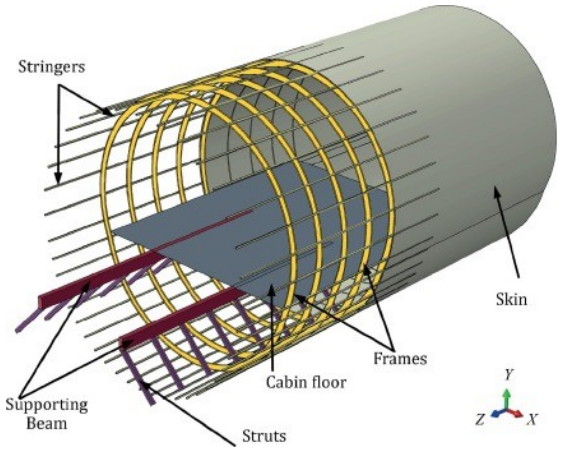


FIGURE 1.7 – Vue schématique d'un fuselage d'avion avec ses différents constituants [66]

1.2.1 Description géométrique

Le cadre de fuselage possède des sections en "Z-shape", comme le montre la Fig. 1.8, avec trois parties distinctes. La bride intérieure (inner flange) est le bord situé côté cabine. Sa largeur est variable selon la position du cadre dans le fuselage. Cette largeur (w1) est comprise entre 15mm et 45mm. La bride extérieure (outer flange) est le bord côté extérieur du fuselage. Contrairement à l'inner flange, sa largeur est constante pour tous les cadres composant l'avion. Finalement, le web est la partie reliant les deux brides (flanges). L'épaisseur, notée H, du flange n'est pas constante sur la longueur du cadre. Cette hétérogénéité d'épaisseur ajoute de la complexité dans la pièce.
La position du cadre dans le fuselage influe donc sur les dimensions géométriques de celui-ci. Le rayon de courbure, R, et l'épaisseur H diffèrent. Les cadres à l'avant de l'appareil ont un rayon de courbure plus faible mais une épaisseur accrue. Les cadres latéraux et les cadres à l'arrière possèdent une démarcation importante entre l'épaisseur du côté de l'inner flange et celle du côté outer flange. Cette variation d'épaisseur est nommée le "bump". Les empilements constituant les cadres sont différents selon la zone du cadre. Jusqu'à quatre empilements différents peuvent être utilisés sur un même cadre. Pour répondre à ces exigences structurelles, la société Duqueine a mis en plus un procédé innovant de fabrication.

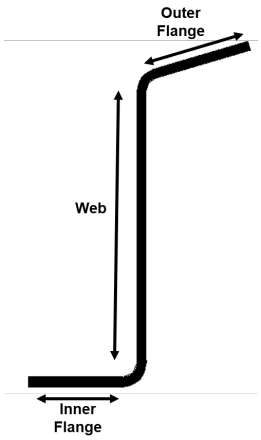


FIGURE 1.8 – Schéma représentant la géométrie de la section du cadre de fuselage

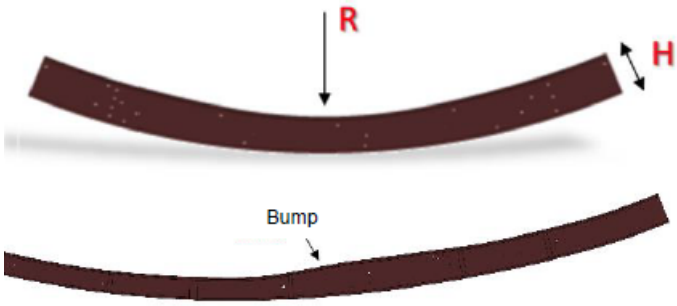


FIGURE 1.9 – Schéma représentant la géométrie du cadre de fuselage [17]

1.2.2 Procédé de fabrication

La première étape est la constitution des différents empilements. Duqueine reçoit la matière sous forme de rouleau et procède à la découpe du préimprégné selon leur besoin (Fig. 1.10), après l'avoir sorti la matière des congélateurs où elle a été stockée pour éviter des réactions prématurées. Une fois les morceaux obtenus, les opérateurs les assemblent manuellement pour former la base du cadre.
La structure de base obtenue est ensuite pliée pour former une forme de L, comme présenté dans la Fig. 1.11. Ce premier pliage forme l'inner flange. Plusieurs formages peuvent être nécessaires selon la complexité de l'empilement. Le mandrin déformable utilisé durant cette opération, sera réutilisé dans l'étape suivante.
Une fois la préforme de type L shape formée, la pièce est cintrée (Fig. 1.12). Le mandrin où la pièce est toujours attachée, est entraîné par un moule en acier en rotation à travers un dispositif chauffant. Il passe également dans des rouleaux presseurs permettant à la matière de se déformer et de coller à la surface du moule. À la fin de cette opération, le moule n'est plus collé au mandrin, mais est rattachée au moule et le cintrage a permis de lui donner son rayon de courbure.
L'étape de cintrage étant terminée, l'outer flange va être formé pour compléter la section en Z shape, comme schématisé dans la Fig. 1.13. La pièce étant collée au moule, la partie extérieure de la base peut être rabattue pour former la forme finale

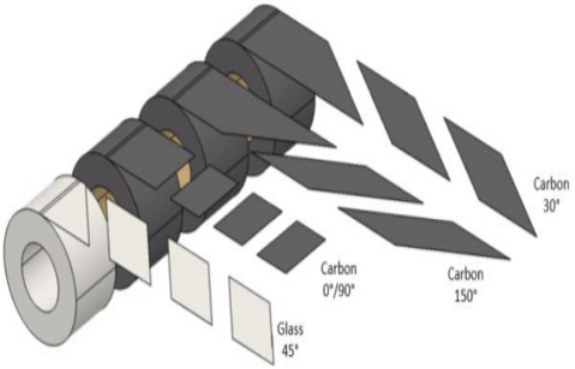


FIGURE 1.10 – Schéma représentant la découpe des pré-imprégnés issus des rouleaux de matière [17]

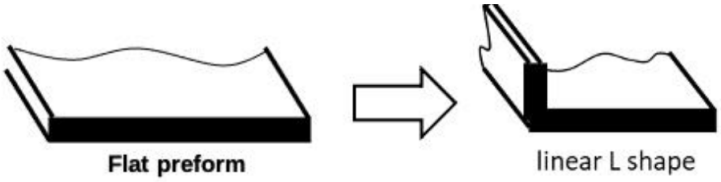


FIGURE 1.11 – Formage de l'inner flange [17]



FIGURE 1.12 – Cintrage de la pièce [17]

de la section. Pour faciliter le rabattage de l'outer flange, la pièce est chauffée à travers le moule.

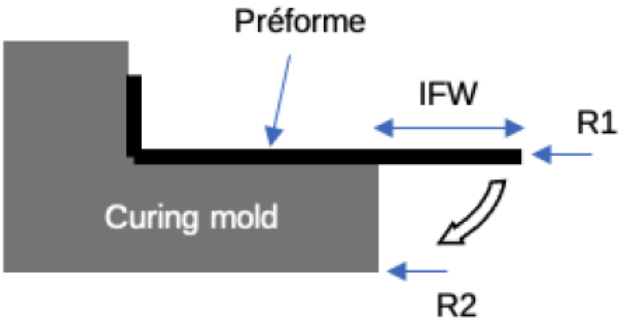


FIGURE 1.13 – Rabattage de l'outer flange [17]

Une fois la forme géométrique finale obtenue par les différentes étapes de formage, la

pièce peut être préparée pour la cuisson. Le dispositif est illustré dans la Fig. 1.14. Duqueine utilise un moule en acier et un moule en composite à renfort carbone. Celui-ci, peut être réutilisé pour plusieurs cycles de polymérisation (entre 30 et 50). Puis la pièce est mise sous vide. Les cadres sont polymérisés dans un autoclave à 180 °C et sous 8 bars de pression. L'entreprise observe que l'état la face de la pièce en contact avec le moule en acier présente une meilleure précision géométrique (état de surface, dispersion de forme) que celle en contact avec le moule à renfort carbone.

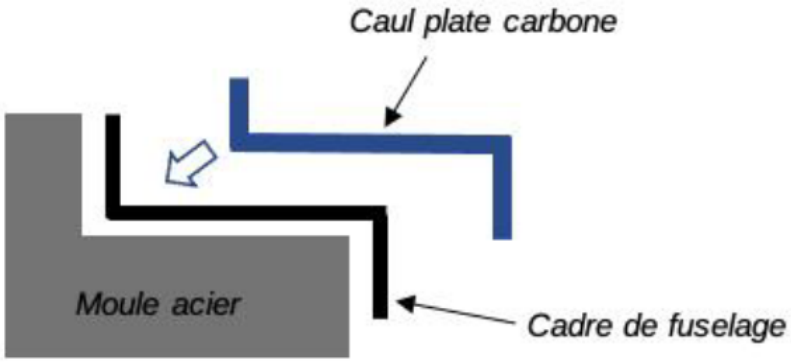


FIGURE 1.14 – Préparation de la pièce pour la cuisson [17]

La dernière étape du procédé de fabrication est l'usinage des trous d'outillages et des trous de fixation. La pièce sort de l'autoclave à 60 °C et elle y est démoulée. À cet instant, la pièce quitte les moules et les contraintes résiduelles qui se sont formées durant la cuisson, sont relâchées. Le cadre subit des distorsions géométriques, aussi bien dans la section en Z que dans la longueur du cadre.

1.3 Phénomène de spring-back

1.3.1 Description

Lors de la fabrication des pièces composites des défauts géométriques sont observés en fin de processus pouvant conduire à des écarts significatifs par rapport aux tolérances dimensionnelles admises. Dans le milieu de l'aéronautique, celles-ci sont très faibles. Ces irrégularités sont causées par phénomènes physiques complexes, apparaissant lors de la cuisson des pièces. Plus précisément, c'est la formation de contraintes résiduelles tout au long de la polymérisation de la matière qui amène à ces distorsions géométriques [2, 68, 24].

Les paramètres de fabrication menant au développement de ces contraintes résiduelles peuvent être classés en deux grandes catégories. D'un côté les paramètres intrinsèques sont liés aux caractéristiques physiques du stratifié comme son expansion thermique, la forme géométrique de la structure. De l'autre les paramètres extrinsèques qui renvoient au processus de fabrication. Le type du moule utilisé, les conditions aux limites ou encore la pression et les contraintes thermiques imposées

dans l'autoclave rentrent dans cette catégorie.

Deux types de défauts seront étudiés dans ce rapport : spring-back et le gauchissement Fig. 1.15. Le spring-back désigne la réduction de l'angle concave d'une pièce composite courbée lorsqu'elle est retirée du moule après la cuisson. Cette réduction est causée par le retour élastique (spring back), qui modifie la forme attendue. Le gauchissement concerne les déformations non désirées des pièces plates.

Actuellement chez Duqueine, des méthodes empiriques sont utilisées pour corriger les différentes déviations géométriques. Ces méthodes consistent, par exemple, à appliquer des sur-cotes de conception ou à effectuer des reprises manuelles après démoulage. Cependant, ces méthodes sont très coûteuses en temps et en main d'œuvre. Un nombre important de travaux de recherche se sont concentrés sur le développement de modèles analytiques ou numériques capables de prédire les distorsions géométriques pour pouvoir s'abstenir des étapes correctives.

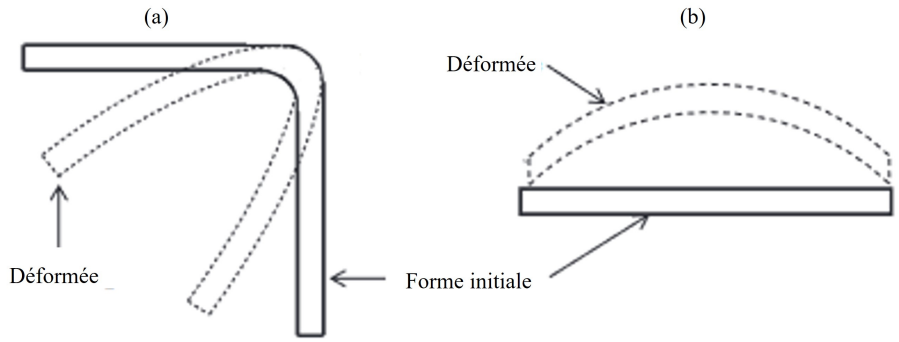


FIGURE 1.15 – Schéma représentant le spring-in (a) et le gauchissement (b) [24]

1.3.2 Causes de la formation des contraintes résiduelles

De nombreux phénomènes physiques se trouvent être à l'origine des déformations résiduelles durant la cuisson du composite pouvant ensuite mener à la formation de spring-back lors du démoulage de la pièce. Cette section propose une revue de ces phénomènes pour améliorer leur compréhension.

1.3.2.a Anisotropie des coefficients d'expansion thermique

Un matériau soumis à une augmentation ou une diminution de température voit son volume changer. Cette variation est proportionnelle à un coefficient, nommé le coefficient d'expansion thermique, noté CET, propre à chaque matériau. Comme nous l'avons vu, un préimprégné, composé d'un ensemble de fibres de carbone continues unidirectionnelles (UD) entourées de résine thermodurcissable, est un matériau au comportement isotrope transverse. Ce type de matériau aura donc deux coefficients d'expansion thermique, CET_{L} et CET_{T}, avec L la direction des fibres et T

la direction transverse. Le CET_{L} est très faible, voire négatif, tant dis que le CET_{L} est plus important. Cela est dû au fait que le coefficient de dilatation thermique des fibres et de la résine sont très différents. Le CET de la résine M21E est de l'ordre de 70×10^{-6} 1/K [44]. Alors que celui des fibres de carbone est compris entre -2 et 0.5×10^{-6} 1/K [56]. Dans le sens des fibre, la déformation est limitée par la déformation des fibres alors que dans le sens transverse elle est essentiellement dû à la déformation de la matrice.

Wisnom et al. [104] décrivent précisément ces différents mécanismes dans leur article. À l'échelle microscopique, l'anisotropie des CET entraîne des contraintes résiduelles pendant la phase de refroidissement. Ces contraintes résiduelles peuvent affecter le comportement contrainte-déformation, mais ne produisent pas de distorsion géométrique car elles agissent de manière très localisée, les distorsions géométriques tendent à disparaître sur un volume plus conséquent.

À l'échelle du stratifié, la différence de CET et l'angle entre les différents plis génère des contraintes dans le plan pouvant aboutir à des distorsions angulaires ou à du fléchissement de plaques cintrées. Pour un stratifié courbé, les contraintes des plis inférieurs agissent sur une surface plus faible que sur les plis extérieurs dus à la différence de longueur circonférentielle entre ces deux types de plis.

Finalement, à l'échelle macroscopique, le CET dans la direction de l'épaisseur est plus important car il est principalement dominé par la matrice, qui a un coefficient de dilatation thermique plus important que ceux dans le plan. Ce phénomène entraîne une variation de la courbure des stratifiés, quelle que soit la configuration de l'empilement, et contribue directement au spring back [74].

1.3.2.b Retrait chimique

Lors de la cuisson des composites, l'état physico-chimique de la résine change au cours de la réaction. Dans un premier temps, la résine se trouve sous forme visqueuse, les molécules la formant ne sont pas liées entre-elles. Avec la montée en température, les molécules commencent à se lier, c'est la réticulation. Pour finir, toutes les liaisons possibles ont été établies, le polymère se fige, on parle de vitrification. Les caractéristiques matériaux changent drastiquement durant la réaction.

Un autre mécanisme important dans la formation de contraintes internes est lié au durcissement de la résine qui provoque des changements de volume du matériau. Lors de la cuisson des composites, l'état physico-chimique de la résine change au cours de la réaction. Le diagramme TTT de la résine époxy, Fig. 1.16, présente les différentes régions thermiques apparaissant pendant le processus de durcissement d'une résine thermodurcissable. Dans un premier temps, le système réactif (résine mélangée avec un agent durcisseur) se trouve à l'état d'un liquide visqueux (état sol). Avec la montée en température, les molécules s'allongent et commencent à interagir entre elles. La croissance moléculaire se poursuit au fil du temps jusqu'à atteindre le point de gel. À ce moment le prépolymère initialement à l'état de liquide visqueux

est transformé en un gel infusible (début du réseau tridimensionnel) : c'est le début la réticulation. Lorsque le point de gel est atteint, une chaîne de polymère "infinie" se forme pour la première fois, le matériau est à l'état d'un gel, c'est-à-dire qu'il a des propriétés élastiques et ne peut plus être mis en forme. Le polymère atteint son point de gel pour un taux critique de conversion (α_{gel}). Cette valeur est fixe au point de gel et dépend du système réactionnel. Au-delà du point de gel, le réseau devient de plus en plus dense grâce à la poursuite des réactions de réticulation. Le durcissement complet correspond à un taux de conversion α égal à 1. Cette valeur idéale est souvent difficile à obtenir dans les systèmes industriels, en raison du phénomène de vitrification. La vitrification est une transition du gel (caoutchouc) vers le verre, qui se produit lorsque la température de transition vitreuse Tg du système thermodurcissable atteint la température de durcissement Tc. Le matériau présente un comportement vitreux et la réaction de durcissement est fortement ralentie, car le mécanisme de durcissement est désormais contrôlé par la diffusivité moléculaire. Contrairement à la gélification, la vitrification est réversible. Pour permettre la réaction de durcissement complète après la vitrification, il est nécessaire d'augmenter la température de durcissement au-dessus de la température de transition vitreuse infinie du système complètement réticulé Tg_∞, ce qui n'est pas toujours possible (dégradation du matériau, fusion des particules de thermoplastiques, etc.). Les propriétés de la résine évoluent de manière notable durant la réaction.

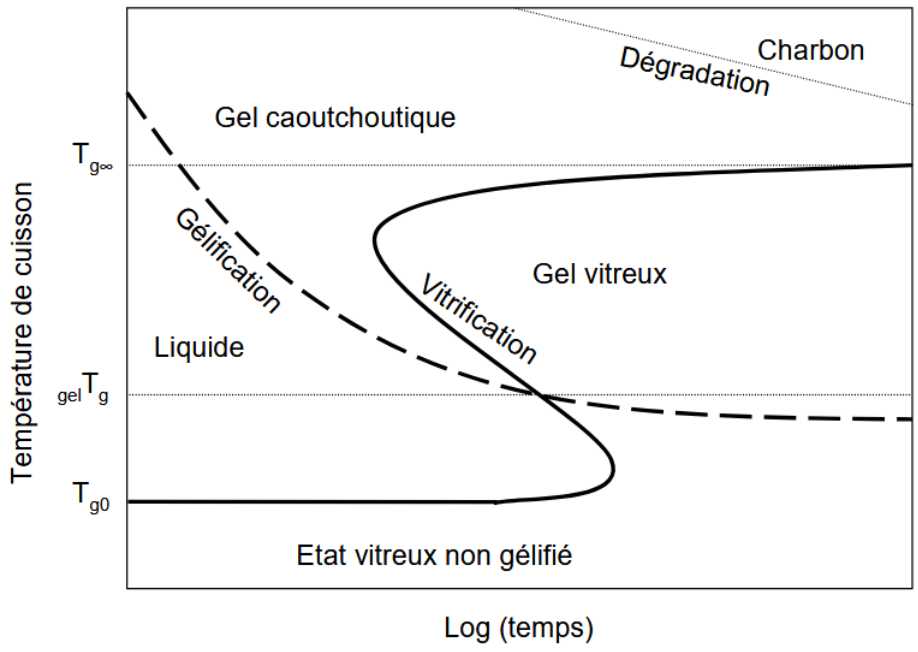


FIGURE 1.16 – Exemple de diagramme TTT pour le durcissement des thermodurcissables [18]. Tg_0 : température de transition vitreuse du mélange initial avant durcissement, gel Tg ($\alpha \approx 0$) : température à laquelle la gélification et la vitrification coïncident ($\alpha = \alpha_{gel}$), Tg_∞ : température de transition vitreuse d'un système entièrement réticulé ($\alpha = 1$)

Au cours de la polymérisation, la densité des résines époxy augmente considéra-

blement et leur volume diminue à partir du point de gel en raison de la formation du réseau covalent 3D. La vitrification entraîne une diminution de la vitesse de contraction. Les changements volumiques d'une résine époxy sont caractérisés par un coefficient, nommé le coefficient de retrait chimique (CRC). Le CRC d'une résine époxy est de l'ordre de 7% [60]. Le retrait chimique entraîne, si la déformation de la résine est entravée, comme c'est le cas des matériaux renforcés par des fibres des contraintes résiduelles à l'interface fibre/matrice [21]. Le retrait chimique entraîne donc des effets proches de ceux de la dilatation thermique pouvant conduire à une distorsion angulaire d'une pièce composite. Différents auteurs, [74, 20, 79], ont étudié ont montré l'importance du retrait chimique dans la formation de contraintes résiduelles dans le domaine des composites.

1.3.2.c Interaction pièce/outil

Pour effectuer la mise en forme des pièces composites, il est nécessaire d'utiliser des moules pour donner la forme souhaitée à la pièce. Ces moules sont souvent des pièces en acier ou composites. Des contraintes résiduelles peuvent se développer dues à un différentiel des déformations entre la pièce et le moule. En effet, spécialement pour les moules en aluminium, la différence de coefficient d'expansion thermique est importante, ce qui amène à un étirement supérieur du pli en contact avec le moule par rapport aux plis plus à l'intérieur de la pièce. Dans son article, Twigg et al. [96] décrivent plus précisément le phénomène. Lors de la fabrication de pièces composites, l'outil et la pièce sont comprimés ensemble en raison de la pression exercée par l'autoclave et soumis à une augmentation progressive de la température, plaçant le stratifié en tension. Comme ce phénomène arrive dès les premiers moments de la cuisson et localisé aux plis les plus proches de l'outil, le degré de polymérisation de la résine est proche de zéro, le module de cisaillement du pli est alors faible. Cela entraîne la formation de contraintes non-uniformes dans le stratifié qui se figent lors de la vitrification de la résine et qui sont relâchées lors du démoulage entraînant ainsi du gauchissement ou des distorsions angulaires de la pièce Fig. 1.17.

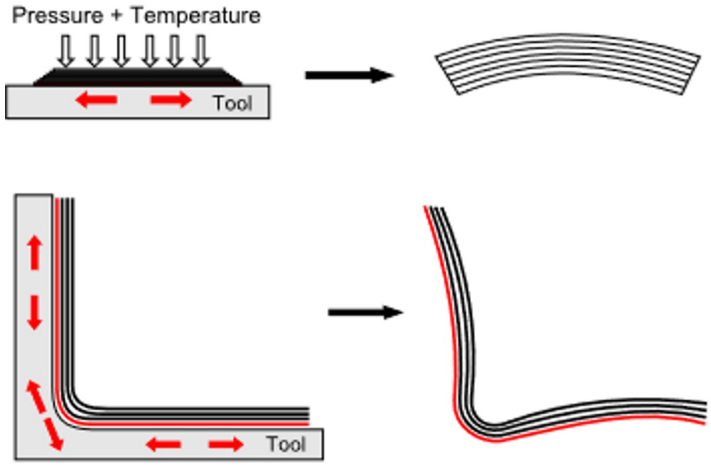


FIGURE 1.17 – Effet de l'interaction pièce outil [4]

1.3.2.d Effet du cycle de cuisson

Le cycle de cuisson utilisé pour la polymérisation des structures composites à fibres de carbone influence la formation de contraintes résiduelles. Les propriétés du matériau en fin de cuisson dépendent de nombreux paramètres : la température, la température de transition vitreuse T_g, le taux d'avancement de la polymérisation de la résine α ou encore la viscosité de celle-ci influe sur cet aspect physique. Un cycle de cuisson se compose d'une ou plusieurs phases de montée en température, suivies de palier à température constante, puis d'une phase de refroidissement conduisant soit au retour à la température ambiante, soit à la température de démoulage de la pièce. Le nombre de ces différentes composantes peut varier selon les cycles recommandés par le fabricant. Par exemple, pour notre système, Hexcel préconise deux paliers de température, un à 135 °C suivi d'un second à 180 °C. Différents auteurs se sont intéressés aux effets des paliers ou des vitesses de montée et descente de température.

Neeraj et al. [72, 73] observent que le spring back et le gauchissement des plaques sont réduits pour les pièces subissant plusieurs paliers de température Ajouter ou non, plusieurs paliers de température affecte la vitesse de chauffe du système, et cela influe directement sur la valeur de la T_g et α. Ce qui, par conséquent, modifie la nature physique de la résine. Une étude approfondie de White et Hahn [100], sur le choix de la composition du cycle de cuisson, conclue qu'une cuisson à basse température pour une durée supérieure permet de diminuer les contraintes résiduelles.

Durant le cycle de cuisson, le matériau n'est pas seulement sujette aux variations de température, mais la pression y est également contrôlée. L'historique de pression que subit le matériau influe sur la fraction volumique du laminé [95]. Or, les modules de Young d'un pli unidirectionnel dépendent directement de la valeur de la fraction volumique. Modifier la pression a des conséquences directes sur la rigidité du matériau.

1.3.2.e Gradient de température

Un transfert thermique transitoire peut causer un gradient de température, se formant dans l'épaisseur de la pièce. Les pièces de faibles épaisseurs ne sont pas sujettes à ce type de gradient, mais pour les pièces plus épaisses, cet effet n'est pas négligeable. Notamment, car il entraîne des différences de degré de réticulation, impliquant, par exemple, des différences de propriétés mécaniques [4]. Concernant le cas étudié dans ces travaux, la cuisson des cadres de fuselage nécessite l'emploi de moules issus de différents matériaux. Un moule est fait à base d'acier, tandis que le contre moule est en carbone. La chaleur ne se conduit pas de la même façon dans ces matériaux et cela entraîne des températures différentes. Ces différences de température impliquent des différences locales du degré d'avancement, influant donc sur les déformations thermiques et chimiques.

1.3.2.f Effet de la configuration de l'empilement

La configuration d'empilement utilisée pour la fabrication de structures est toujours un paramètre déterminant dans les performances mécaniques, thermiques et chimiques. Le comportement anisotrope des matériaux composites implique des comportements différents d'un pli à l'autre et génère des déformations liées aux contraintes planes se formant au sein des couches. Nasir et al. [71] ont étudié l'effet du choix de l'empilement sur la formation de contraintes résiduelles, sur des plaques composites polymérisées sur des moules en acier. Leurs travaux portent sur un système proche que celui étudié dans cette thèse. Les résultats de cette étude ont montré que les empilements unidirectionnels réduisaient le phénomène de gauchissement. Les empilements quasi-isotrope affichaient également des valeurs de gauchissement plus faibles.

Concernant les pièces en forme de L ou de U, la configuration de l'empilement joue également un rôle important sur spring back. Bellini et al. [5] ont montré que l'impact du choix de l'empilement était plus impactant sur l'amplitude du spring back que l'épaisseur ou le rayon de la pièce. La configuration unidirectionnelle $[0]_n$ engendrent davantage de distorsions géométriques que celle en $[90]_n$. Dans leur étude, les configurations en plis croisés $[0/90]_n$ et les configurations quasi-isotropes tendent à accentuer le phénomène de spring back. Ces observations sont confirmées dans le papier de Kappel et al. [46], bien que les auteurs soulignent dans leur conclusion que toutes les configurations étudiées sont sujettes à la dispersion, ce qui traduit la complexité à étudier ce phénomène. Les éprouvettes étant drapées à la main, des imprécisions liées à leur fabrication peuvent perturber les résultats. Les hétérogénéités au sein du pré-imprégné ou même un écart dans la position de l'outil dans l'autoclave peuvent entraîner ce type de dispersion d'une pièce à l'autre.

1.4 Caractérisation du matériau

Dans la section précédente, les différents mécanismes responsables de la génération de contraintes résiduelles durant la polymérisation des matériaux composites, ont été décrits précisément. Pour modéliser ces comportements multiphysiques complexes, les modèles prédictifs, qu'ils soient analytiques ou numériques, ont besoin de paramètres d'entrées qui sont obtenus à partir de la caractérisation du matériau. Cette section propose une revue des différentes techniques de mesure expérimentales utilisées pour l'identification des paramètres matériaux, associés aux mécanismes physiques du développement du spring back.

1.4.1 Identification du CET et CRC

L'identification des coefficients d'expansion thermique peut être réalisée à différentes échelles : indépendamment sur la résine ou les fibres , sur un matériau pré-imprégné, sur une structure épaisse.

Pour la mesure du CET des fibres, des techniques de microscopie électronique sont régulièrement utilisés. Kulkarni et Ochoa [56] réalisent la caractérisation du CET pour des fibres de carbone issues de fournisseurs différents, en utilisant une technique par microscopie électronique en transmission (MET). Durant la mesure MET, un faisceau d'électrons est "transmis" à travers un échantillon très mince. Une image est ensuite obtenue à partir des effets d'interaction entre les électrons et l'échantillon. Cette technique permet aux auteurs de suivre les déformations des fibres sous contrainte thermique, et d'en déduire le CET longitudinal et le CET transverse correspondant. Des mesures lasers peuvent également être utilisées dans la littérature. Pradere et al. [81] ont au point une méthode expérimentale, où les diffractions d'un laser sont visualisées à l'aide d'un oscilloscope numérique. Les CET sont déduits à partir de ces diffractions. Pour la résine, des techniques par dilatométrie sont répandues dans la littérature pour la détermination de son CET et CRC [107, 80, 89]

À l'échelle des plis, les méthodes thermo-mécaniques sont souvent utilisées. Plus précisément, l'analyse thermo-mécanique (Thermo mechanical analyliser) TMA est utilisée pour étudier les variations de dimensions d'un échantillon soumis à des contraintes thermiques et mécaniques. Ils peuvent être associés à des essais par calorimétrie (DSC) pour combiner les variations de paramètres mécaniques à la cinétique de cuisson. Kappel et al. [44, 45] appliquent cette méthode à un préimprégné et quantifient divers champs de déformation, tels que le retrait chimique, la dilatation thermique et les déformations de compaction, en ajustant les données expérimentales sur des modèles analytiques.

Pour des échantillons de plus grande taille, notamment pour permettre la caractérisation dans l'épaisseur, des techniques optiques, comme la corrélation d'image (DIC), peuvent être employées. Au sein du LTDS, Flament et al. [26], ont développé une technique de corrélation d'image pour caractériser le comportement thermique de pièce en composite. Cette technique a pu également être utilisée sur des polymères, sans renfort, pour déterminer le CRC [32, 53]. Finalement, Zbed et al. [111] ont développé un banc d'essais pour permettre la mesure des déformations d'un échantillon épais, et ainsi déterminer le CET et CRC dans les trois directions du plan.

1.4.2 Propriétés cinétique de la résine

Les propriétés du matériau sont liées à la réticulation de la résine, plusieurs techniques de mesure permettant leur caractérisation existent dans la littérature. L'analyse enthalpique différentielle, plus connue par son acronyme DSC (Differential Scanning Calorimetry) est un moyen complet et robuste pour détecter les phénomènes ayant lieu durant la polymérisation de la résine. Cette technique repose sur la mesure de l'énergie nécessaire au maintien d'une différence de température (proche de 0), entre une référence et un échantillon, au cours d'un cycle thermique. Dans le cas des résines thermodurcissables, la DSC est utilisée pour déterminer la

T_g d'un échantillon aucunement, partiellement ou complètement réticulé, de calculer l'avancement de la réticulation en étudiant l'enthalpie générer par la réticulation d'une résine thermodurcissable. [98, 84, 65]. Des mesures spectroscopiques Raman peuvent être également utilisées pour cacluler le degré d'avancement de la réticulation. La spectroscopie Raman permet de détecter les liaisons chimiques présentes dans un échantillon et leurs changements au cours de la réaction. Les pics dans le spectre correspondant à un certain type de liaisons chimiques, ce qui permet une identification simple. L'intensité relative des pics Raman est également directement proportionnelle à la concentration relative des composants et permet de remonter au degré d'avancement [29].

Pour le suivie de l'évolution des propriétés mécaniques de la résine au cours de sa réticulation, l'analyse mécanique dynamique (DMA) est régulièrement employé dans les différents travaux de recherche. Cette technique permet de mesurer les phénomènes de relaxation du polymère en étudiant la réponse de la résine à une excitation mécanique sinusoïdale, en fonction du temps. En plus de la variation de ses modules mécaniques (module de Young E_r et module de cisaillement G_r), cette méthode permet d'identifier des phénomènes importants que subit la résine comme la gélification ou la vitrification [13, 57, 94].

Nous avons vu dans ce paragraphe que de nombreuses techniques de mesure peuvent être utilisées pour caractériser le matériau. Au vu des moyens de mesure disponibles au sein du laboratoire, les techniques de mesure sélectionnées pour ces travaux de recherche, sont :

— Calorimétrie différentielle à balayage **DSC**
— Analyse mécanique dynamique **DMA**
— Stéréo corrélation d'image **DIC**

Ces techniques seront détaillées et employées dans le chapitre suivant, qui concerne la caractérisation thermo-chimico-mécanique de la résine M21E.

1.5 Méthode de modélisation

L'objectif de cette thèse étant la prédiction du spring back résiduel observé sur les cadres de fuselage en fin de procédé de fabrication. Pour cela, la modélisation des contraintes résiduelles se formant durant la cuisson est essentielle. Nous l'avons précédemment, ces contraintes sont de nature physique différente. Elles peuvent être d'origine thermique, chimique ou mécanique. La modélisation de ces physiques est donc une étape essentielle. Pour chaque physique, des méthodes de modélisations existent. Cette section est réservée à la description de ces méthodes.

1.5.1 Modélisation thermique

Dans le domaine de la modélisation thermique des matériaux, l'approche la plus couramment adoptée s'appuie sur l'équation de la chaleur, introduite par Fourier, couplée à un terme représentant la chaleur dégagée par la réaction exothermique de polymérisation de la résine thermodurcissable.

$$\rho_c C p_c \frac{\partial T}{\partial t} = \mathrm{div}(\lambda_c \mathrm{grad}(T)) + \rho_r \Delta H_{tot} V_r \frac{\mathrm{d}\alpha}{\mathrm{d}t} \tag{1.1}$$

Avec ρ_c et ρ_r les masses volumiques respectivement du composite et de la résine, V_r est la fraction volumique de la résine, C_p représente la capacité calorifique du composite et λ_c est la thermique du composite. Cette équation décrit l'évolution de la température à tout instant et à n'importe quel point du système. Le lien entre la réponse thermique et la cinétique de cuisson de la résine est assuré par la température T et le degré d'avancement α.

1.5.2 Modélisation cinétique de la résine

1.5.2.a Généralité

La modélisation de la cinétique de cuisson d'une résine thermodurcissable permet de décrire l'évolution chimique de celle-ci au cours de la simulation numérique. La modélisation peut être réalisée à partir de deux approches différentes : une modélisation phénoménologique ou mécanistique [69]. Les modèles phénoménologiques décrivent l'évolution des réactions de façon globale, en négligeant les mécanismes entre les différents constituants de la résine. Les modèles mécanistiques s'appuient sur une description détaillée de chacune des réactions chimiques se produisant durant la polymérisation de la résine. Ils sont donc bien plus précis, mais également très coûteux en quantité de paramètres matériau à identifier et nécessite une connaissance complète de la composition de la résine utilisée, ce qui n'est pas toujours possible au vu des différents secrets industriels.

1.5.2.b État de l'art des modèles cinétiques phénoménologiques

Dans le cadre de ces travaux de thèse, l'approche retenue s'est portée sur un modèle phénoménologique qui permet de transcrire le comportement global du matériau à partir de lois empiriques. De nombreux modèles cinétiques existent dans la littérature, proposant des niveaux de complexité différents.

Le modèle d'ordre n est le modèle analytique le plus simple, car il n'émet aucune hypothèse concernant le caractère auto-catalytique de la réaction étudiée. Il est présenté dans Eq. 1.2.

$$\frac{\mathrm{d}\alpha}{\mathrm{d}t} = K(1-\alpha)^n \tag{1.2}$$

K est le coefficient de réticulation, α le degré de réticulation et n une constante représentante l'ordre de la réaction. K est représenté par une loi d'Arrhenius du type :

$$K = A \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \tag{1.3}$$

Avec A, E_a, R et T qui sont respectivement la constante d'Arrhenius, l'énergie d'activation du système, la constante des gaz parfait et la température. Le problème principal rencontré avec ce modèle est qu'il prédit une vitesse de réticulation maximale pour un degré de réticulation nul, ce qui n'est pas le cas pour un système auto-catalytique comme étudié dans ces travaux [50].

Kamal et Sourour [42] ont proposé une amélioration du modèle d'ordre n. Le modèle de Kamal et Sourour, noté modèle KS est régulièrement utilisé pour modéliser la cinétique de polymérisation des résines thermodurcissables car, contrairement au modèle d'ordre n, il intègre la nature auto-catalytique de la réaction. Sa forme mathématique relativement simple permet également l'identification des paramètres et une intégration numérique simplifiée dans le cadre de simulations numériques, ce qui en fait un choix approprié pour cette étude. Le modèle KS sous forme modifiée est présenté dans l'équation Eq. 1.4.

$$\frac{\mathrm{d}\alpha}{\mathrm{d}t} = (K_1 + K_2\alpha^m)(\alpha_{max} - \alpha)^n \tag{1.4}$$

K_1 et K_2 sont deux fonctions du types Arrhenius avec deux énergies d'activation E_{a1} et E_{a2} associées. α_{max} représente le degré de réticulation maximal atteint. Les paramètres n et m sont des constantes.

Pour aller plus loin, le modèle de Bailleul se concentre davantage sur le degré de réticulation et de la température [3]. Le modèle incorpore donc une partie dépendante de la température et une partie dépendante du degré de réticulation. Le modèle est présenté dans Eq. 1.5.

$$\frac{\mathrm{d}\alpha}{\mathrm{d}t} = K(T) \times G(\alpha) \tag{1.5}$$

Le terme $K(T)$ est également basé sur une loi de type Arrhenius mais différente des modèles précédents.

$$K(T) = k_{ref} \exp\left[-A\left(\frac{T_{ref}}{T} - 1\right)\right] \tag{1.6}$$

Le terme associé au degré de réticulation, quant à lui, est une fonction polynômiale.

$$G(\alpha) = \sum_{i=0}^{n} b_i \alpha^i \tag{1.7}$$

Dans le cadre de ces travaux, le choix s'est porté sur le modèle développé par Kamal et Sourour, car il est simple à identifier, décrit convenablement la nature autocatalytique de la résine M21E et son implémentation numérique est aisée.

1.5.3 Modélisation mécanique

Les modèles constitutifs mécaniques permettent la représentation du comportement mécanique d'un matériau soumis à diverses sollicitations. Comme les modèles cinétique de réaction, le niveau de complexité de ces modèles varie selon la précision recherchée. Cette section expose trois modèles constitutifs : le modèle élastique linéaire, le modèle CHILE et le modèle viscoélastique.

1.5.3.a Modèle élastique linéaire

Le modèle élastique linéaire repose sur la loi de Hooke, qui permet de lier les contraintes, la rigidité du matériau et les déformations selon l'expression suivante :

$$\varepsilon = [S]\sigma \tag{1.8}$$

Avec

$$\varepsilon = \begin{Bmatrix} \varepsilon_1 \\ \varepsilon_2 \\ \varepsilon_3 \\ \gamma_{12} \\ \gamma_{13} \\ \gamma_{23} \end{Bmatrix} \qquad \sigma = \begin{Bmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \\ \sigma_3 \\ \tau_{12} \\ \tau_{13} \\ \tau_{23} \end{Bmatrix} \tag{1.9}$$

[S] est la matrice de compliance, de taille 6x6. La matrice de compliance d'un matériau orthotrope est définie par les propriétés du matériau [6] :

$$[S] = \begin{bmatrix} 1/E_{11} & -\nu_{12}/E_{11} & -\nu_{13}/E_{11} & 0 & 0 & 0 \\ & 1/E_{22} & -\nu_{23}/E_{22} & 0 & 0 & 0 \\ & & 1/E_{33} & 0 & 0 & 0 \\ & \text{Symétrie} & & 1/G_{12} & 0 & 0 \\ & & & & 1/G_{13} & 0 \\ & & & & & 1/G_{23} \end{bmatrix} \tag{1.10}$$

Avec E_{ii} les modules de Young, G_{ij} les modules de cisaillement et ν_{ij} les coefficients de Poisson.

L'utilisation du modèle élastique linéaire pour la prédiction du phénomène de spring back, se concentre principalement sur la phase de refroidissement de la matière, lorsque la résine a atteint son degré d'avancement maximal. Ce modèle suppose donc des propriétés du matériau constantes, indépendamment de l'état physique de la résine (liquide visqueux, caoutchoutique, vitreux). Cette hypothèse, bien que permettant une réduction du nombre de paramètres à identifier pour implémenter le modèle, demeure très restrictive et peut engendrer des écarts significatifs dans la prédiction du spring back. En particulier, en omettant la transformation de la résine aux alentours du point de gel, lorsque celle-ci passe d'un liquide visqueux à un gel.

1.5.3.b Modèle viscoélastique

Un matériau composite, composé de fibre de carbone et d'une résine thermodurcissable, présente des caractéristiques élastiques et visqueuses, qui dépendent de la température et du degré d'avancement. Pour modéliser cette complexité, le modèle viscoélastique est souvent employé. Contrairement au modèle élastique linéaire, préalablement décrit, le modèle viscoélastique tient compte des variations des propriétés mécaniques durant la cuisson du matériau. La loi constitutive d'un matériau anisotrope viscoélastique linéaire est définie par l'Eq. 1.11.

$$\sigma_{ij}(t) = \int_{-\infty}^{t} C_{ijkl}(\alpha, T, t-\tau)\frac{\partial \varepsilon_{kl}}{\partial \tau}\mathrm{d}\tau \tag{1.11}$$

Avec σ_{ij} et ε_{kl}, le tenseur des contraintes et des déformations et C_{ijkl} est la matrice de rigidité du matériau. Comme vu précédemment, les propriétés mécaniques de la résine ne sont pas invariantes au cours de la simulation, elles dépendent du degré d'avancement de la polymérisation, de la température et du temps.

Le comportement du matériau est régulièrement modélisé par un modèle de Maxwell simplifié [52], équivalent au modèle de Zener, présenté dans la Fig 1.18.
Le module de Young, E, est défini par la relation :

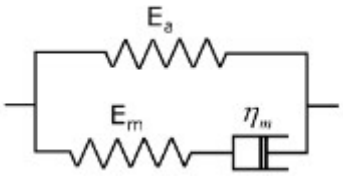


FIGURE 1.18 – Modèle de Maxwell généralisé simplifié [52]

$$E(t) = E_a + E_m \exp\left(\frac{-E_m(t)}{\nu_m}\right) \tag{1.12}$$

où E_a est assimilé à la rigidité du ressort en parallèle de l'élément de Maxwell , E_m et ν_m sont la rigidité et la viscosité de l'élément de Maxwell. Pour simplifier le problème, seulement deux états peuvent être considérés : :

— caoutchoutique $\rightarrow T \geq T_g$
— vitreux $\rightarrow T < T_g$

Pour l'état caoutchoutique, c'est-à-dire au-delà du T_g, la viscosité tend vers 0 et donc le module à l'état caoutchoutique E_c est égal à E_a. Pour l'état vitreux, c'est-à-dire lorsque le matériau est en dessous du Tg, il est supposé qu'il n'y a pas de relaxation et donc que viscosité tends vers l'infini. Le module à l'état vitreux E_v vaut donc $E_v = E_a + E_m$.

1.5.3.c Modèle CHILE

Le modèle CHILE (Cure Hardening Instantaneously Linear Elastic), est un modèle présentant un niveau de complexité intermédiaire entre le modèle élastique linéaire et le modèle viscoélastique. Le modèle CHILE permet de prendre en compte l'évolution progressive des propriétés mécaniques de la résine durant sa cuisson. La première version de cette méthode a été développée par Bogetti et Gillespie [8].
Dans la phase liquide de la résine, c'est-à-dire que le degré d'avancement est inférieur au degré d'avancement correspondant à la gélification, α_{gel}, les modules sont supposés constant. La valeur des modules augmente ensuite linéairement jusqu'à la vitrification du matériau.

Dans ses travaux de thèse, Johnston [41] propose un enrichissement du modèle, en ajoutant une dépendance thermique des modules de la résine. Le modèle s'écrit dès lors :

$$E = \begin{cases} E_\mathrm{v} & T^* < T^*_{C1} \\ E_\mathrm{v} + \frac{T^* - T^*_{C1}}{T^*_{C2} - T^*_{C1}}(E_\mathrm{l} - E_\mathrm{v}) & T^*_{C1} \leq T^* < T^*_{C2} \\ E_\mathrm{l} & T^* > T^*_{C2} \end{cases} \tag{1.13}$$

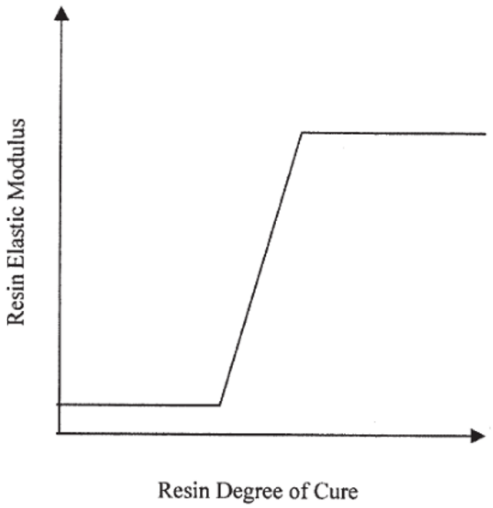


FIGURE 1.19 – Schéma du modèle CHILE [8]

Ici, les indices l et v, font référence à l'état liquide et vitreux. T^* désigne la différence entre la température de la résine à un instant t et la valeur de la température de transition vitreuse à ce même instant. $T^* = T - T_g$. T^*_{C1} et T^*_{C2} sont des constantes représentant les valeurs critiques du début et de la fin de la transition vitreuse [40].

L'évolution des propriétés mécaniques de la résine au cours de sa polymérisation ne sont pas linéaire et une modèle CHILE modifié permet une meilleure prise en compte de l'évolution des modules au cours de la cuisson. Dans les travaux de thèse de Khoun [49], l'auteur adapte le modèle CHILE, pour un système de résine époxy, en subdivisant en plusieurs zones. Chaque zone n'est plus simplement décrite comme une évolution linéaire des propriétés mécaniques dépendante de la variable $T^* = T - T_g$. Le modèle CHILE modifié, utilisé par Khoun, est illustré dans la Fig. 1.20 et présenté dans l'expression suivante :

$$E = \begin{cases} E_1 & T^* < T^*_{C1} \\ E_2 + \frac{T^* - T^*_{C2}}{T^*_{C1} - T^*_{C2}}(E_1 - E_2) & T^*_{C1} \leq T^* < T^*_{C2} \\ E_3 + \frac{T^* - T^*_{C3}}{T^*_{C2} - T^*_{C3}}(E_2 - E_3) & T^*_{C2} \leq T^* < T^*_{C3} \\ A_M \exp(-K_M T^*) & T^*_{C3} \leq T^* < T^*_{C4} \\ E_4 & T^* > T^*_{C4} \end{cases} \tag{1.14}$$

E_1 et E_4 correspondent, respectivement, au module de Young à l'état vitrieux et l'état liquide visqueux. E_2 et E_3 sont des valeurs de module intermédiaires. T^*_{C1}, T^*_{C2}, T^*_{C3}, T^*_{C4} sont des constantes représentant les changements de zone. A_M et K_M sont associés à la fonction exponentielle décrivant le comportement mécanique de la résine entre la zone T^*_{C3} et T^*_{C4}.

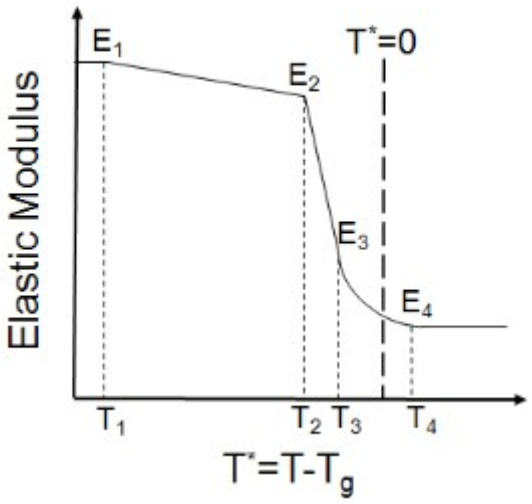


FIGURE 1.20 – Représentation du modèle CHILE modifié de Khoun [49]

1.6 Méthode d'analyse de sensibilité

L'analyse de sensibilité regroupe l'ensemble des méthodes permettant l'évaluation de l'impact des incertitudes liées aux paramètres d'entrée d'un modèle sur la sortie du modèle. L'analyse de sensibilité est un outil permettant la compréhension du comportement d'un système complexe, l'identification les variables influentes et orientant les efforts de caractérisation du matériau. Peu d'études d'analyse de sensibilité sur des structures composites existent dans la littérature. L'originalité de ces travaux de thèse réside dans l'emploi de ces méthodes pour étudier le modèle numérique, identifier les paramètres influents et proposer des pistes pour l'amélioration des modèles prédictifs du spring back, qu'ils soient numérique ou analytiques.

Plusieurs approches, plus au moins complexe, peuvent être utilisées selon le degré de complexité du modèle. Pour la suite de cette section, le modèle est considéré comme une application entre des paramètres d'entrée, regroupés sous un vecteur noté x, et la sortie, notée Y, tel que :

$$Y = f(\mathrm{x}) = f(x_1, x_2, x_3, ..., x_d) \tag{1.15}$$

Dans le cadre de ces travaux de thèse, les entrées de la simulation regroupent les paramètres matériaux nécessaires à la simulation des contraintes résiduelles, comme le module de Young, E, les coefficients d'expansion thermique, CET, etc. La sortie regroupe la valeur du spring back.

1.6.1 Analyse de sensibilité locale

L'analyse de sensibilité locale permet de quantifier l'influence des paramètres d'entrée x_i d'un modèle sur sa sortie Y, en considérant seulement des petites perturbations autour d'un point nominal de l'espace des paramètres. Le principal avantage de cette approche est d'être simple à mettre en oeuvre et d'avoir une première estimation des paramètres influents d'une simulation.

La méthode la plus couramment utilisée dans l'analyse de sensibilité locale est la méthode *one-at-a-time* (OAT) [27, 75, 28]. Cette méthode consiste à modifier une seule variable à la fois, tout en gardant les autres fixes, et d'étudier l'impact de cette modification sur Y. En notant, x^0 la configuration initiale des paramètres d'entrée et un cas de sensibilité x^+. Le vecteur des variations des paramètres d'entrée correspondant, s'écrit : $\Delta^+\mathrm{x} = \mathrm{x}^+ - \mathrm{x}^0 = (\Delta^+x_1, \Delta^+x_2, ..., \Delta^+x_d)$ Le modèle est ensuite calculé en variant une entrée à la fois. La sensibilité est alors définie par les quantités [9] :

$$\Delta_i^+ Y = f(x_i + \Delta x_i^+, \mathrm{x}_{\sim i}^0) - f(\mathrm{x}^0) \tag{1.16}$$

Avec $(x_i + \Delta x_i^+, \mathrm{x}_{\sim i}^0)$ est le point dans x obtenu en déplaçant uniquement x_i vers le cas de sensibilité. D'un point de vue général, $\Delta_i^+ Y$ sont des changements finis dans Y provoqués par des changements individuels dans les entrées du modèle.

1.6.2 Analyse de sensibilité globale

La méthode d'analyse de sensibilité globale (GSA) basée sur la décomposition de variance est une méthode très répondue. Dans ce type d'analyse, les paramètres d'entrée sont classés selon leur contribution à la variance de la sortie du modèle

1.6.2.a Analyse par nuage de point

L'analyse de sensibilité par étude de graphiques en nuage de point, est une étape préliminaire pour les méthodes globales. Elle permet de comprendre rapidement le lien entre une variable d'entrée et la sortie d'un modèle. Des nuages de points en trois dimensions peuvent également être étudiés, permettant de relier trois variables entre elles. Kleijnen et Helton [51] dans leurs travaux, décrivent une série de procédures permettant d'identifier des modèles à partir de graphique en nuage de points. Ces procédures reposent sur des tentatives de détection de modèles de plus en plus complexes.

Dans cette section, seulement la procédure d'identification par coefficients de corrélation de relation linéaire, permettant de mesurer la force d'interaction entre une variable d'entrée x_j et la sortie Y est détaillée, pour illustrer la méthode d'analyse par nuage de points. Les autres procédures sont laissées à la discrétion du lecteur.

Le coefficient de corrélation, $c(x_{ij}, y)$ est défini par l'expression suivante [33] :

$$c(x_{ij}, y) = \frac{\sum_{i=1}^{n}(x_{ij} - \bar{x_j})(y_i - \bar{y})}{[\sum_{i=1}^{n}(x_{ij} - \bar{x_j})^2]^{1/2}\,[\sum_{i=1}^{n}(y_i - \bar{y})^2]^{1/2}} \tag{1.17}$$

Avec n, la taille de l'échantillon. $\bar{x_{ij}}$ et $\bar{y}$ sont définis :

$$\bar{x_j} = \frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n} x_{ij} \quad \text{et} \quad \bar{y} = \frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n} y_i \tag{1.18}$$

La valeur du coefficient de corrélation est comprise entre -1 et 1. Les valeurs positives indiquent que les variables x_j et y suive une tendance similaire. À contrario, si la valeur du coefficient est négative. Les gradations de la valeur absolue de $c(x_{ij}, y)$ entre 0 et 1 correspondent à une tendance allant d'une absence de relation linéaire entre x_j et y à une relation linéaire parfaite. Particulièrement, ce coefficient de corrélation est relié à la régression linéaire standardisée, car sa valeur absolue correspond à la racine carrée de la valeur corresponde au R^2. Pour illustrer cette méthode, la Fig. 1.21 montre l'impact des variations des coefficients CET et CRC sur le spring back $\Delta\theta$.

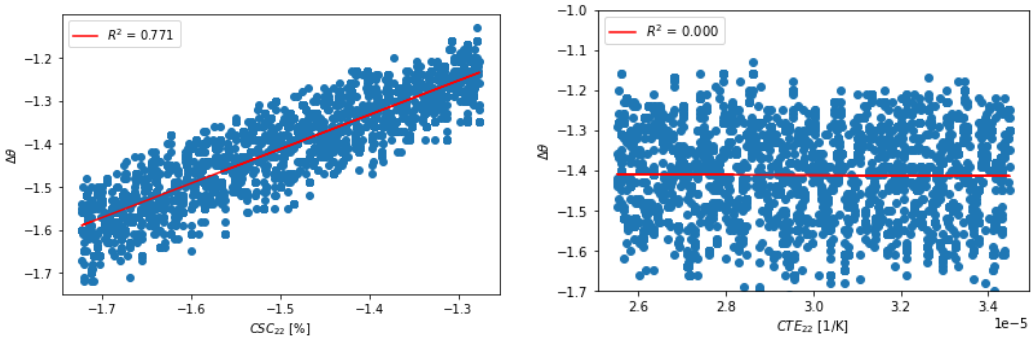


FIGURE 1.21 – Illustration des coefficients pour deux paramètres : (a) $c(CRC, \Delta\theta) = 0.88$ et (b) $c(CET, \Delta\theta) = 0$

1.6.2.b Méthode de Sobol

La décomposition de la variance selon la méthode de Sobol est définie comme ceci. La variance totale de la sortie d'un modèle peut être représentée comme la somme des effets individuels des entrées x_i, notée V_i, ainsi que l'effet des interactions entre les paramètres d'entrée [92, 91].

$$Var\ Y = V = \sum_{i=1}^{n} V_i + \sum_{i=1}^{n} \sum_{j>i}^{n} V_{ij} + ... + V_{1,2,...,d} \tag{1.19}$$

L'indice de premier ordre de Sobol est défini comme les effets directs de la variance d'un paramètre x_i sur la variance de sortie V. L'indice de premier ordre se définit :

$$S_i = \frac{V_i}{V} = \frac{E_{\mathrm{x}_{\sim i}}(Y|x_i)}{V} \tag{1.20}$$

Ici, $\mathrm{x}_{\sim i}$ définit l'ensemble de toutes les variables d'entrée amputé de la variable x_i [9] et le numérateur de S_i correspond à la réduction moyenne attendue de la variance quand x_i est fixé [12]. La somme des indices de premier ordre ne peut dépasser 1. La contribution totale d'un indice, c'est-à-dire en incluant ses effets directs et l'ensemble de ses interactions avec d'autres paramètres, est renseignée par l'indice total de sensibilité :

$$S_{T_i} = 1 - \frac{Var_{\mathrm{x}_{\sim i}}(E_{x_i}(Y|\mathrm{x}_{\sim i})}{V} \tag{1.21}$$

L'indice total de sensibilité peut être interprété comme étant le reste de la variance quand tous les termes, sauf x_i sont fixés. [37] La somme des indices totaux de sensibilité est égale au supérieur à 1. Si la somme est égale à 1, cela signifie que la fonction est additive. Seuls les indices d'ordre un contribuent à la variance de sortie et il n'existe aucune interaction entre les différents paramètres d'entrée. Les paramètres étudiés dans une analyse de Sobol ne doivent pas être corrélés entre eux et être indépendants. Sinon, une méthodologie précise doit être utilisée pour éviter des résultats biaisés [83]. La méthode de Sobol nécessite un échantillonnage important pour obtenir des résultats précis.

1.6.2.c Échantillonnage de la méthode de Sobol

Procéder à une analyse de sensibilité globale nécessite un échantillonnage important. Cet échantillonnage est souvent basé sur la méthode de Monte Carlo [67]. Le choix de la taille de l'échantillonnage est important car cela peut avoir des effets contraignant sur la vitesse de calcul de la GSA ou bien la précision des résultats. Le nombre de simulation, n, dépendent du nombre de paramètre d'entrée x_i, noté d, et du nombre d'échantillon de Monte Carlo, noté N. Il est recommandé que N soit une puissance de 2 [39]. La relation qui relie n, d et n est la suivante :

$$n = N(2d + 2) \tag{1.22}$$

1.6.2.d Méthode FAST

La méthode FAST, développée par Cukier et al. [11], est une méthode permettant de réduit les coûts de calcul d'une analyse de sensibilité. La première version de la méthode FAST ne permet que d'évaluer les indices de premier ordre, puis elle a été modifiée par Saltelli et al. [87]. Cette modification a permis d'inclure les effets des indices totaux. La méthode FAST se repose sur la décomposition en série de Fourier la fonction f(x). Comme les séries d'expansion de Fourier peuvent être décomposées en décomposition du type Analysis Of Variance (ANOVA). Les composantes du modèle de variance peuvent être modelées en terme de coefficient de Fourier. Comme pour la méthode de Sobol, la méthode FAST nécessite des coefficients indépendants et non corrélés, au risque de proposer des résultats biaisés.

1.6.2.e Méthode de Morris

La méthode de Morris [70] est une technique de sensibilité globale qui permet d'identifier rapidement les paramètres les plus influents dans un modèle. Cette méthode repose sur le principe de "one factor at a time", c'est-à-dire, qu'un seul paramètre à la fois est modifié. L'impact d'un paramètre x_i sur la variation de la fonction Y se traduit par la différence finie entre deux jeux de paramètres identique, excepté la valeur du paramètre x_i. Pour un nombre de paramètres d, un nombre de simulation d+1 est nécessaire pour évaluer l'effet des variations de chaque x_i, tel que $\frac{\Delta Y}{\Delta x_1}, ..., \frac{\Delta Y}{\Delta x_d}$. Pour obtenir une valeur d'interaction moyenne, l'opération est répétée un nombre de n fois. L'échantillonnage suit donc la forme suivante :

$$n = N(d + 1) \tag{1.23}$$

Avec n, le nombre de simulation effectué, N la taille de l'échantillonnage et d, le nombre de paramètres étudiés. Deux indicateurs sont générés par la méthode de Morris : la contribution moyenne, μ, mesure l'influence globale de la variabilité de x_i sur Y. L'écart-type, σ, indique la non-linéarité ou les interactions avec d'autres paramètres. Une valeur élevée suggère une dépendance contextuelle. L'avantage principal de la méthode de Morris, est qu'elle nécessite un coût de calcul inférieur à la méthode de Sobol. Cependant, elle ne permet d'avoir qu'une simple estimation des effets de couplage entre paramètres, aucune quantification précise n'est possible.

Conclusion

Ce premier chapitre nous a permis de mettre en contexte le sujet de ces travaux de thèse. Tout d'abord, les matériaux composites ont été décrits de manière générale avant qu'un focus ne soit réalisé sur les matériaux composites stratifiés, composés de fibres de carbone continues enrobées d'une matrice époxy thermodurcissable. Ces résines ont été introduites, leurs propriétés intrinsèques, comme la réticulation, la température de transition vitreuse, etc., ont été détaillées.

La pièce étudiée dans ces travaux a, ensuite, été présentée. Le cadre de fuselage est une pièce complexe, réalisé entièrement en composite, mis en forme par un procédé de drapage et polymérisé dans des autoclaves à température et pression contrôlées.

Puis, le sujet principal de la recherche de cette thèse, a été introduit. Le phénomène de spring back, regroupe l'ensemble des distorsions géométriques observables quand les cadres sont sortis de leurs moules. Ces distorsions sont causées par le relâchement des contraintes résiduelles qui se sont préalablement formées durant la réticulation de la résine. La prédiction du phénomène de spring back revient donc à modéliser le développement des contraintes résiduelles.

Ces contraintes résiduelles sont de nature physique diverse, et leur modélisation s'appuie, dans un premier temps, sur une caractérisation du matériau. Diverses techniques ont été présentées et nous avons indiqué celles qui ont été retenues. Les méthodes de modélisation ont, également, été présentées.

Pour finir, les méthodes d'analyses de sensibilités, qui seront employées dans les chapitres suivant, ont été décrites. L'analyse de sensibilité, appliquée à des structures composites complexes, constitue l'originalité de ce travail de recherche. Ces méthodes nous permettant d'identifier les paramètres les plus influents sur le développement du spring back, et donc d'en déduire sur quels paramètres matériaux, les ressources expérimentales doivent être employées.

Le chapitre suivant sera consacré à la caractérisation du matériau, dans le but d'identifier les différents modèles décrivant le comportement de la résine durant sa réticulation.

Chapitre 2

Caractérisation thermocinétique de la résine M21E

Introduction

L'étude du comportement thermocinétique des matrices thermodurcissables constitue une étape cruciale dans la simulation de procédé de fabrication des matériaux composites. En particulier, la connaissance des mécanismes de réticulation permet une meilleure prédiction de l'évolution des propriétés physico-chimiques au cours de la cuisson.

Ce chapitre est consacré à la caractérisation thermocinétique de la résine M21E, du préimprégné M21E/34%/UD194/IMA-12K, utilisé par les entreprises partenaires de ce projet pour la fabrication des cadres de fuselage. Ce système combine une résine époxy haute performance à ténacité améliorée et des fibres de carbone, à module intermédiaire, le tout étant fabriqué par l'entreprise Hexcel.

Ce chapitre contient la description du matériau préimprégné ainsi qu'à ses principales caractéristiques. Ensuite, nous arborerons les différents modèles de modélisation de la cinétique de cuisson qui existent dans la littérature. Une fois que le modèle est choisi, le protocole permettant l'identification de ce modèle sera présenté. Une attention particulière est portée sur les différentes transitions physiques que subit la résine durant un cycle de cuisson. Pour finir, la dernière partie du chapitre sera axée sur l'implémentation du modèle dans un logiciel d'éléments finis de simulation numérique (Comsol Multiphysics), suivie d'une validation numérique des modèles utilisés.

L'ensemble de ces travaux vise à fournir une compréhension approfondie du comportement thermocinétique du système M21E, ainsi que de développer un modèle cinétique intégré à un environnement de simulation, en vue de prédire l'effet spring-back dans des structures composites.

2.1 Matériau préimprégné *M21E/IMA-12K*

Le préimprégné utilisé et étudié dans ce travail de recherche est fabriqué par l'entreprise Hexcel Composites® France. Son nom commercial est HEXCEL® M21E/34% /UD194/IMA-101 12K. Ce semi-produit, d'épaisseur moyenne 134 µm avant cuisson, est composé de deux constituants principaux : une matrice époxy M21E (34 % en poids) et d'un renfort de type fibre de carbone. Le renfort HexTow® IMA est une fibre de carbone continue haute performance à module intermédiaire à base de fibres de PAN (polyacrylonitrile), disponible en mèches de 12 000 (12K) filaments élémentaires [35]. Ce matériau est très souvent utilisé dans l'industrie aéronautique. La résine M21E est, selon les informations disponibles, une résine époxy difonctionnelle en combinaison avec une résine époxy trifonctionnelle et un durcisseur [97]. Ce système est dit à ténacité améliorée. Les réseaux époxy à haut taux de réticulation présentent de bonne rigidité et un bon comportement thermique à haute température (jusqu'à 180 °C). Cependant ils présentent l'inconvénient d'être fragiles et donc ne pas avoir un bon comportement aux chocs [102]. Pour résister à la propagation des fissures et ainsi avoir un meilleur comportement au choc, une technique courante consiste à ajouter une deuxième phase, soit en élastomère soit en thermoplastique, sous forme de particules dispersées dans le réseau thermodurcissable [112].

Dans le cas de l'introduction d'un élastomère, le comportement au choc est sensiblement amélioré, mais la rigidité est diminuée en raison de la présence de l'élastomère. C'est la raison pour laquelle la phase hétérogène en élastomère est à l'heure actuelle remplacée par des particules en thermoplastique. Dans ce cas, le matériau combine la tenue mécanique du réseau thermodurcissable et la ténacité du thermoplastique.

Il existe deux principales stratégies pour intégrer des particules de thermoplastique dans un système thermodurcissable. La première consiste à solubiliser le thermoplastique initialement miscible dans le mélange réactif. Au cours de la cuisson, la miscibilité entre le thermoplastique et le système thermodurcissable diminue avec l'augmentation du poids moléculaire du thermodurcissable jusqu'à la séparation de phase pour un degré de conversion critique avec l'apparition d'une morphologie biphasique [63]. La seconde méthode est utilisée dans les cas de films de résine ou pour des préimprégnés. Elle consiste à utiliser des particules de TP préconstituées et insolubles de l'ordre de quelques dizaines de microns qui sont dispersées par poudrage des deux côtés du film ou du préimprégné lors de la fabrication de ceux-ci [31]. Cette méthode permet de mieux de contrôler la taille et la concentration des particules et d'obtenir une couche distincte de particules thermoplastiques entre les plis après mise en œuvre (Fig. 2.1). La présence aux interplis de nodules thermoplastiques s'avère apporter des améliorations tant en termes de résistance aux chocs que de ténacité interlaminaire des composites stratifiés. Elles peuvent également améliorer la capacité d'amortissement des vibrations du composite et la résistance à la fatigue [99].

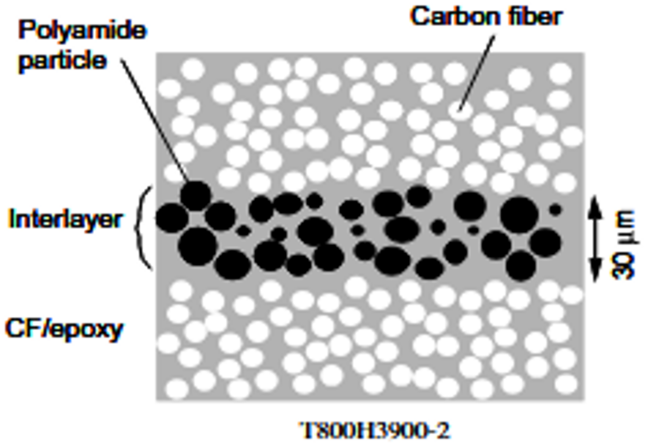


FIGURE 2.1 – Schéma de l'organisation des couches de thermoplastique au sein du préimprégné [36]

Le système IMA/M21E de l'étude fait partie de cette classe de composites à matrice thermodurcissable renforcés par couche intermédiaire. L'observation microscopique après polissage d'une coupe réalisée dans l'épaisseur d'une plaque stratifiée composée de plis d'orientations différentes, après durcissement, est proposée dans la Fig. 2.2. Cette figure, met en évidence l'organisation du stratifié étudié et révèle les zones distinctes de résine avec des particules de TP entre les couches constituées de renfort et de résine. Aucune donnée précise n'est donnée par le fabricant concernant le type et la proportion des particules de thermoplastique insolubles au sein de la résine M21E. Cependant, des informations sont disponibles dans la littérature [1, 76, 97]. Les thermoplastiques insolubles sont constitués d'un mélange de polyamides amorphes et semi-cristallins probablement du PA6 et un copolymère de 50 % PA6 et 50% PA 12. Ces particules représentent 10 à 20 % du poids total de la matrice. La taille moyenne des particules est d'environ 20 µm. La résine M21E inclut aussi un autre thermoplastique, le polyether sulphone (PES) qui est soluble dans la résine avant cuisson (environ 15% du poids total de la matrice).

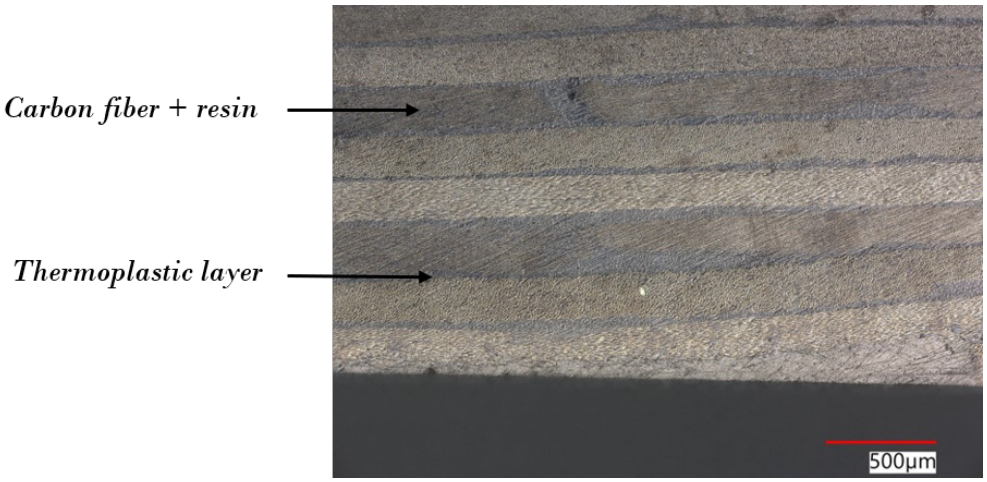


FIGURE 2.2 – Observation microscopique du matériau

Le cycle thermique recommandé par le fabricant pour le durcissement du préimprégné est illustré dans la Fig. 2.3. Il commence par une montée en température de 20 °C à 135 °C, à une vitesse comprise entre 0.5 et 2 °C/min. La température est ensuite maintenue à 135 °C pendant 60 minutes. Une seconde montée en température porte le système à 180 °C, à une vitesse similaire que pour la première montée. La pièce durcit pendant 120 minutes puis elle est refroidie jusqu'à la température ambiante.

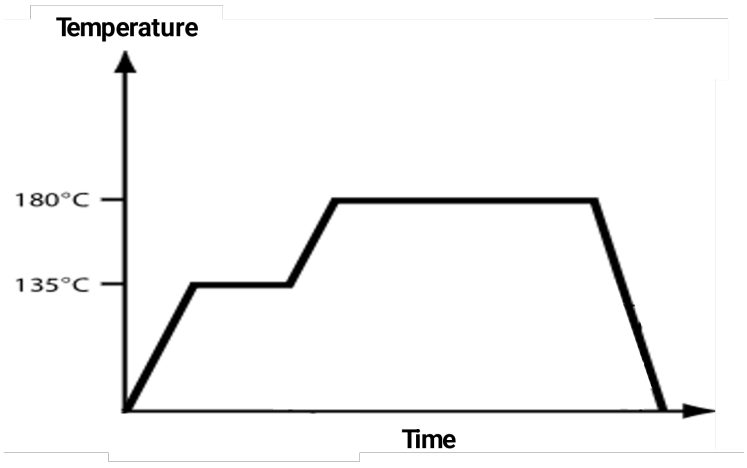


FIGURE 2.3 – Cycle thermique recommandé par le fournisseur, pour le durcissement de la résine M21E [34]

2.2 Techniques expérimentales

Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, beaucoup de méthodes de mesure existent pour caractériser des matériaux composites à matrice thermodurcissable. Cette section décrit les techniques expérimentales retenues dans le cadre de cette thèse.

2.2.1 Calorimétrie différentielle à balayage

La DSC permet d'identifier les transitions physiques (transitions du premier ordre comme la fusion, cristallisation), transition vitreuse Tg (pseudo-transition de second ordre, etc.) ainsi que le suivi de réactions chimiques (polymérisation, dégradation). En revanche, la gélification n'affectant pas la vitesse de durcissement elle n'est donc pas détectable par DSC.

2.2.1.a Principe

Cette méthode consiste à mesurer les différences de flux de chaleur provenant du matériau étudié placé dans un creuset et une référence, en général un creuset vide, en fonction de la température ou du temps. Lorsque l'échantillon absorbe ou libère de la chaleur en raison d'effets thermiques tels que des réactions chimiques, la fusion (phénomènes exothermiques) et la cristallisation (phénomène endothermique) un pic apparaît sur les thermogrammes DSC donnant le flux de chaleur en fonction de la température ou du temps. La transition vitreuse, qui a lieu sans libération ou absorption de chaleur latente est associée à une marche sur le thermogramme. Les mesures réalisées par méthode DSC, sont réalisées sous flux continu d'un gaz inerte, tel que l'azote ou l'argon. L'utilisation d'un environnement inerte permet d'éviter toute interaction chimique entre l'échantillon et l'atmosphère du four. Ainsi, les données thermiques enregistrées correspondent uniquement aux transformations intrinsèques du matériau, sans contribution de réactions parasites liées à l'environnement d'étude.
Lorsque le matériau est soumis à une sollicitation thermique, la quantité d'énergie nécessaire pour faire augmenter sa température d'un degré est définie par sa capacité calorifique à pression constante (C_p). Celle-ci relie le flux de chaleur, q, à l'évolution de la température T, par l'Eq. 2.1.

$$Cp = \frac{\mathrm{dq}}{\mathrm{d}T} \tag{2.1}$$

$$\Delta Cp = Cp_{\,échantillon} - Cp_{\,référence} \tag{2.2}$$

La capacité calorifique est reliée à l'enthalpie par Eq. 2.3. Cette différence d'enthalpie entraîne une différence de température entre les deux échantillons qui est mesurée par la machine et qui permet de construire une courbe. Un schéma explicatif est

présenté dans la Fig. 2.4.

$$H(t) = \int_{T_0}^{T} Cp\mathrm{d}T \tag{2.3}$$

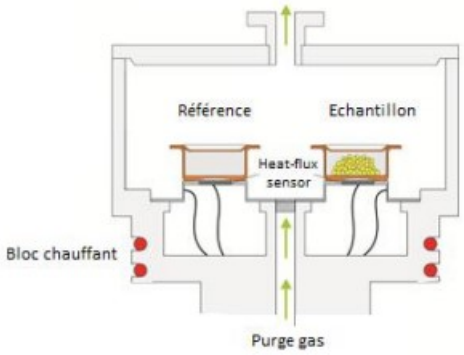


FIGURE 2.4 – Schéma de la DSC utilisée (Star 1 - Mettler-Toledo®) [22]

2.2.1.b Thermogrammes

L'évolution du flux de chaleur normalisée à la masse de l'échantillon analysé est tracée en fonction du temps (essai isotherme) ou de la température (essai dynamique). Un exemple de thermogramme obtenu sur un préimprégné à matrice epoxy à ténacité améliorée soumis à une rampe de température (vitesse de chauffe de 10 °C/min) est présentée dans la Fig. 2.5.
Ce diagramme montre la forme typique d'une transition vitreuse (T_{g0} du préimprégné) en zone 1, un large pic exothermique (dégagement de chaleur par le matériau) pouvant être associé à la polymérisation (réticulation) de la résine, en zone 2, et un pic endothermique (absorption de chaleur par le matériau) lié à la fusion des particules de thermoplastique, en zone 3.
Plusieurs autres informations concernant la résine peuvent être identifiées à partir de ce type de diagramme. Tout d'abord, l'enthalpie totale de la réaction peut être déterminée par l'expression suivante :

$$H_{total} = \int_{t_0}^{t_f} Q dt \tag{2.4}$$

Avec t_0 et t_f respectivement le temps de départ et de fin de la manipulation et Q. À partir de l'enthalpie total, le degré d'avancement de la polymérisation d'une résine thermodurcissable, noté α, peut être calculé en intégrant le pic exothermique (zone 2), définit par l'Eq. 2.5 :

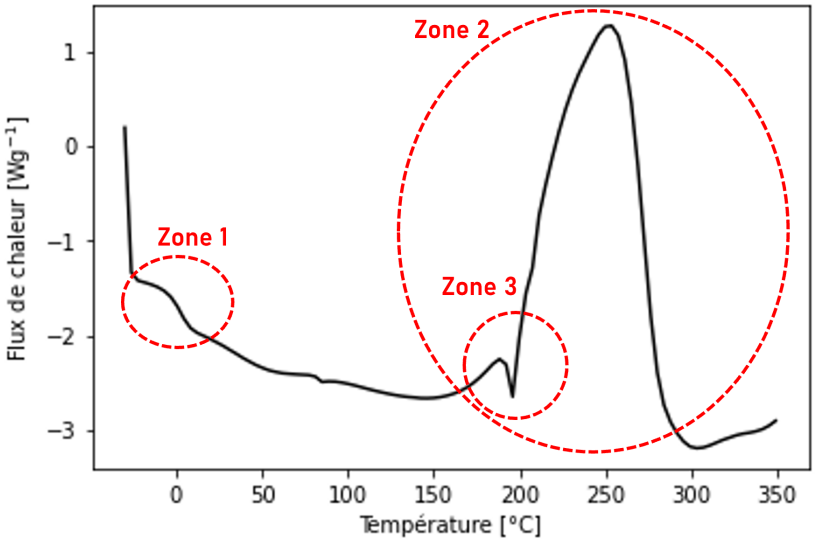


FIGURE 2.5 – Exemple d'une courbe obtenue par DSC sur un préimprégné résine epoxy/fibre de carbone

$$\alpha(t) = \frac{1}{H_{total}} \int_{t_i}^{t} H(t)dt \tag{2.5}$$

La Fig. 2.6, montre le degré d'avancement de la polymérisation en fonction de la température lors d'un essai dynamique réalisé sur un système époxy. La courbe affichée montre que la résine atteint une polymérisation complète ($\alpha = 100$ %) aux environs des 300 °C.

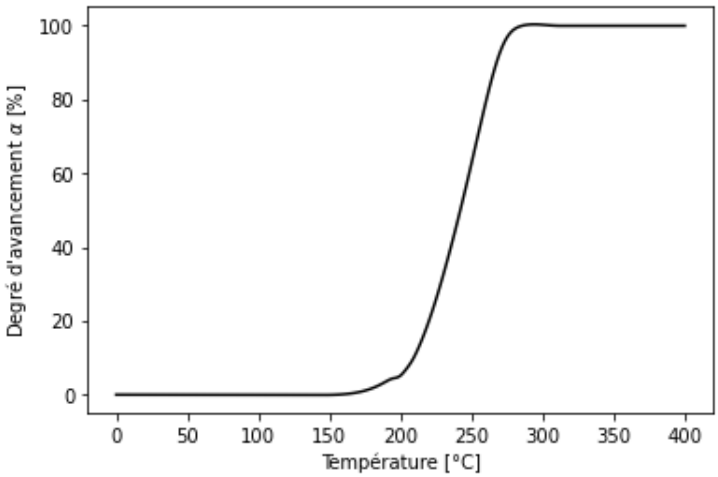


FIGURE 2.6 – Exemple d'une courbe du degré d'avancement de la polymérisation de la résine en fonction de la température

La technique de mesure par DSC offre la possibilité d'appliquer des cycles de tem-

pérature complexes aux échantillons étudiés. Par exemple, effectuer un test de post-cuisson, après un retour à une température ambiante, peut s'avérer intéressant. Les essais de post-cuisson permettent de connaître le degré d'avancement obtenu lors du premier essai. Ils permettent également de suivre l'évolution de la température de transition vitreuse.

2.2.2 Analyse mécanique dynamique

L'analyse mécanique dynamique (Dynamic Mechanical Analysis) DMA est une technique rapide et précise utilisée pour la caractérisation thermomécanique des matériaux, en particulier ceux à base polymère, à l'état solide ou liquide en fonction de la fréquence et de la température [23].

Durant un test DMA, un échantillon de matériau, fixé par des mors de traction ou de cisaillement est placé dans une étuve (Fig. 2.7). L'échantillon est soumis à une force (F) ou un déplacement (x) sinusoïdal et l'appareil mesure la réponse à cette excitation (x ou F). En raison des caractéristiques viscoélastiques des polymères, le déplacement est en retard par rapport à la force d'un angle de phase noté δ (Fig. 2.8).

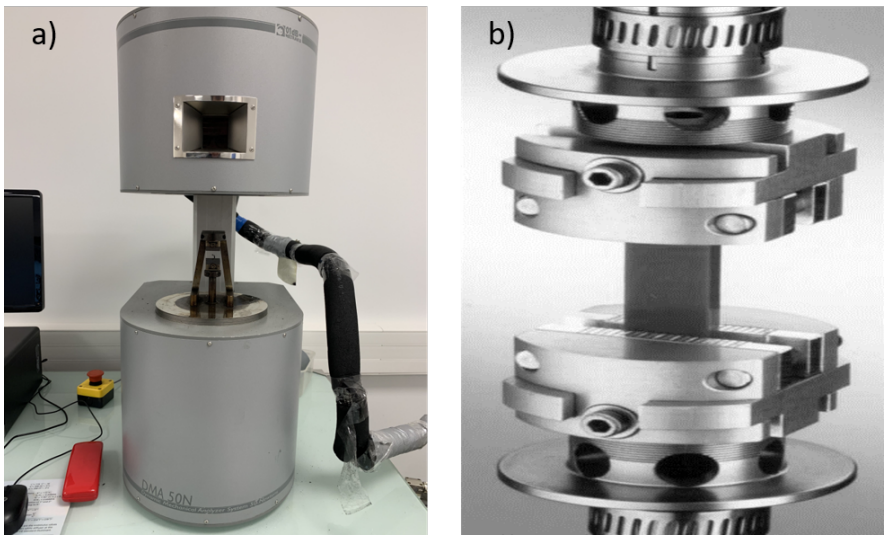


FIGURE 2.7 – a) dispositif expérimental de la DMA ; b) mors de traction

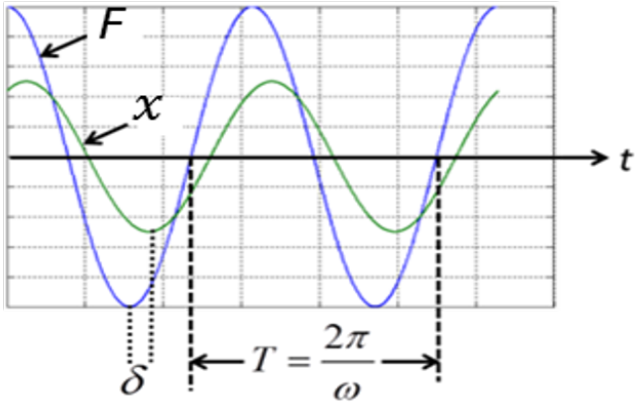


FIGURE 2.8 – Déphasage entre l'excitation et la réponse lors d'un test DMA

À partir des mesures de force, déplacement et déphasage, la rigidité complexe peut être déduite :

$$K^* = \frac{F}{x} = \frac{F_0}{x_0}\exp(i\delta) = \frac{F_0}{x_0}(cos(\delta)+jsin(\delta)) = K'+jK" = K'(1+j\tan(\delta)) \quad (2.6)$$

Avec :

$$\tan\delta = \frac{K"}{K'} \quad (2.7)$$

Où K' est la raideur de conservation et K" la raideur de perte. K' caractérise la partie de la réponse élastique du matériau en phase avec l'excitation et K"caractérise la réponse visqueuse en quadrature de phase avec l'excitation. En tenant compte de la géométrie de l'échantillon, le module d'élasticité en traction complexe (E*), ou le module de cisaillement complexe (G*), selon le mode de déformation, peut être déterminé. Plusieurs paramètres de la machine peuvent être ajustés, pour étudier les caractéristiques voulues comme :

- La fréquence de balayage
- Rampe ou cycle de température
- Force ou déplacement imposé
- Différent type de mors de serrage (traction, cisaillement, etc.)
- Dimension et orientation de l'échantillon test

Cette méthode est particulièrement adaptée à l'analyse des processus de relaxation (relaxation principale associée à la transition vitreuse, relaxations secondaires [47] des matériaux polymères. La DMA peut également fournir des informations pour

surveiller la progression du durcissement des thermodurcissables, lorsque le matériau passe d'un état liquide visqueux (sol) à un état solide réticulé infusible (réseau 3D) [77]. Divers critères sont utilisés pour déterminer le point de gel à partir d'essais DMA. Comme indiqué dans le Chapitre 1, la gélification d'une résine est le passage d'un liquide visqueux (sol) à un gel (caoutchouc) qui se produit à un point de conversion donné (α_{ref}) où le poids moléculaire moyen en masse devient infini. Le début de la gélification est donc indépendant de l'échelle de temps d'observation (indépendant de la fréquence) et, à cet instant, la composante élastique de la résine dépasse la composante visqueuse.

Le point gel peut donc être approximativement déterminé par le croisement des modules G' réel et G" imaginaire lors d'un essai DMA dynamique à fréquence fixe (en général 1Hz) en mode cisaillement. Cela ne s'applique pas à tous les systèmes et dispositifs thermodurcissables. Pour certains d'entre eux, si ce croisement existe, il peut dépendre de la fréquence [103]. L'instant de gélification peut également être détecté lorsque le facteur de perte $\tan\delta$ devient momentanément indépendant de la fréquence. Ceci se traduit par un croisement des courbes tan δ en fonction du temps obtenues à différentes fréquences [108]. Dans le cas de la mesure d'un système composite (mèche imprégnée de résine ou préimprégné), les méthodes précédentes ne sont pas toujours applicables). Différents auteurs [18, 30] ont montré que pour les systèmes composites le point de gel est souvent associé à un pic de tan δ, indépendant de la fréquence qui coexiste avec le premier changement de pente du module réel, G' ou E' suivant le mode de sollicitation. Ce pic peut s'expliquer en considérant l'évolution des caractéristiques mécaniques de la résine et la constance des propriétés du renfort.

Le DMA est aussi la technique la plus classique pour déterminer le phénomène de vitrification lors de cuisson des thermodurcissables. Lorsque la température de durcissement est égale à la T_g du thermodurcissable, la vitrification se produit. La vitrification est associée à un pic de $\tan\delta$ dépendant de la fréquence. La vitrification correspond au moment où le temps de relaxation atteint la période d'observation ($\omega\tau = 1$) où τ est le temps de relaxation et ω la fréquence. Par conséquent, plus la fréquence d'essai est élevée, plus le pic de $\tan\delta$ est décalé vers un temps plus court. La vitrification ne se produit pas lorsque la cuisson a lieu à des températures supérieures à T_{g_∞}.

Un exemple de courbe obtenue par un essai DMA sur un préimprégné époxy à ténacité améliorée/fibres de carbone est présenté dans la Fig. 2.9. Cette figure présente un test réalisé en dynamique (1 °C/min), avec des mors de cisaillement, pour trois fréquences d'excitation, 1, 3 et 10 Hz. La première partie de l'essai correspond à la fin de la transition vitreuse de la résine du préimprégné. Deux pics sont clairement observables sur les courbes de déphasage. Le premier correspond à la gélification du matériau. À cet instant, la résine passe d'un état liquide, à un état gélifié, ce qui entraîne une augmentation du module de cisaillement. Le second pic correspond à la vitrification marquant la transition vers un état vitreux. Un épaulement est

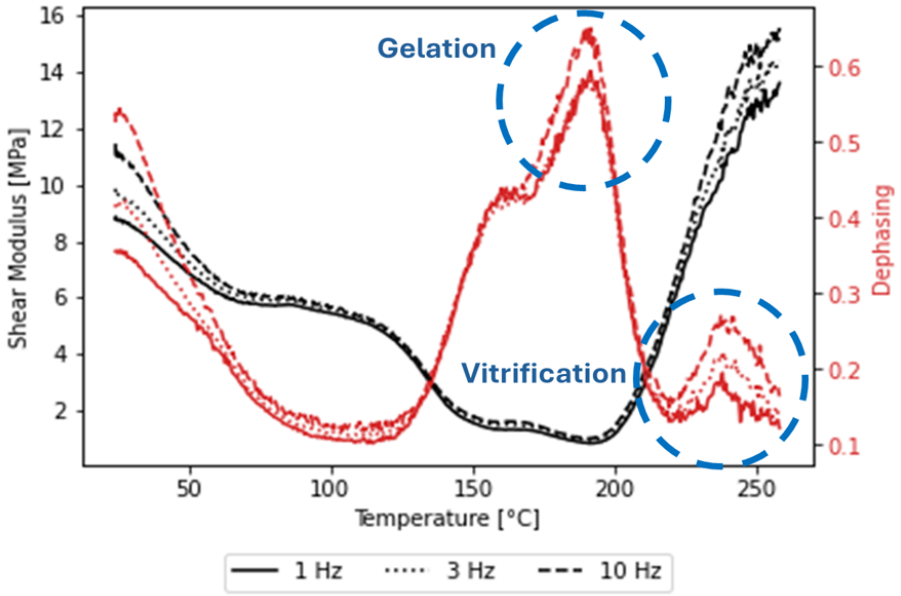


FIGURE 2.9 – Exemple d'une courbe obtenue après un test DMA (1°C/min)

visible sur la courbe d'amortissement, au niveau du premier pic. Il est associé à une chute de G' de très faible amplitude. Ces manifestations pourraient être liées à la séparation de phase entre un thermoplastique initialement miscible dans la résine à l'état cru et la résine thermodurcissable, le thermoplastique n'étant plus miscible à partir d'un certain de degré de conversion de la résine [106].

2.3 Identification du modèle cinétique

Les résines thermodurcissables ont des propriétés qui sont liées au degré d'avancement de leur polymérisation et de l'état physique dans lequel elles sont trouvent. L'objectif de ce modèle cinétique est de pouvoir calculer à tout instant de la cuisson de la matière, le degré d'avancement correspondant, ainsi que la température de transition vitreuse qui est fonction de ce degré d'avancement. Pour cela, le choix s'est porté sur le modèle cinétique développé par Kamal et Sourour [42], noté modèle KS. Pour rappel, ce modèle cinétique se présente sous la forme suivante :

$$\frac{\mathrm{d}\alpha}{\mathrm{d}t} = (K_1 + K_2\alpha^m)(\alpha_{max} - \alpha)^n \tag{2.8}$$

Avec K_1 et K_2 sont deux fonctions du type Arrhenius avec deux énergies d'activation E_{a1} et E_{a2}, et deux constantes A_1 et A_2 associées. α_{max} représente le degré de réticulation maximal atteint. Les paramètres n et m sont des constantes. Une fonction d'Arrhenius est représentée par une loi d'Arrhenius du type :

$$K_i = A_i \exp\left(-\frac{E_{ai}}{RT}\right) \tag{2.9}$$

Dans ce paragraphe, le protocole expérimental permettant l'identification de l'ensemble des paramètres du modèle KS est présentée.

2.3.1 Enthalpie générée par la cuisson de la résine

La première étape dans notre démarche d'identification du modèle KS est de déterminer l'enthalpie totale, ΔH_{tot}, générée par la cuisson de la résine M21E. Pour cela, des essais dynamiques sont réalisés par DSC. Le logiciel DSC utilisé est le STAR^e 1 de Mettler-Toledo.

2.3.1.a Essais DSC dynamique

La caractérisation se fait à l'aide d'essais dynamiques obtenus à partir de différentes vitesses de chauffe. Les échantillons sont d'abord refroidis à -30°C, avant d'être chauffés jusqu'à 400°C à différentes vitesses : 10, 20 et 50°C/min. Fig. 2.10 montre les résultats DSC obtenus pour ce type d'essais.

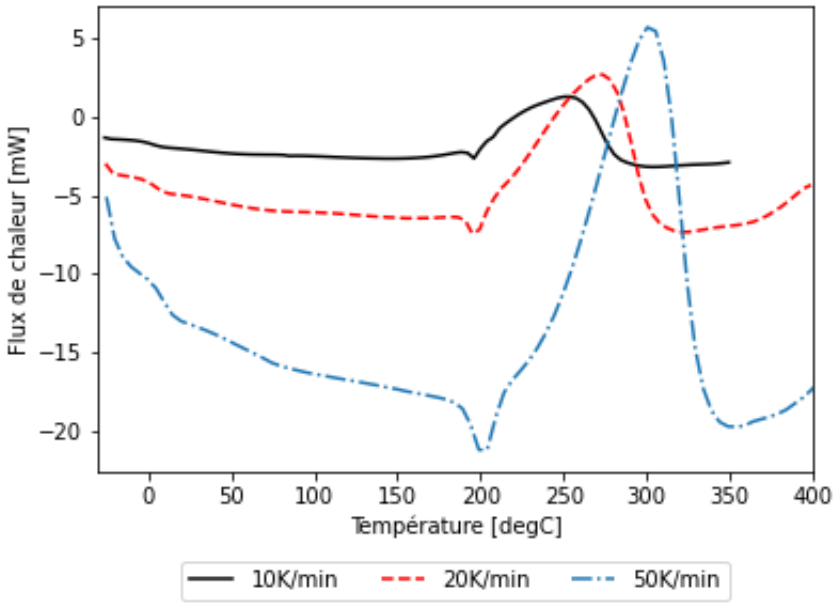


FIGURE 2.10 – Mesure DSC du flux de chaleur en fonction de la température pour des vitesses de chauffe de : 10, 20 et 50°C/min

2.3.1.b Calcul Enthalpie totale

La détermination de l'enthalpie totale se fait par intégration du pic exothermique présent sur les mesures DSC. La température associée au pic du flux de chaleur montre un décalage lorsque la vitesse de chauffe augmente. Ce comportement est observé par d'autres auteurs dans de nombreux types de matériaux thermodurcissables [93] et est associé à des effets cinétiques. Un pic endothermique est visible à la même température sur les trois mesures et qui correspond à la température de

fusion des particules de thermoplastique. Cette fusion a lieu aux alentours de 195°C, qui correspond au copolymère PA6/PA12. Une estimation de la perte d'enthalpie due à cette fusion est estimée et ajoutée au calcul de l'enthalpie totale.

L'enthalpie obtenue par intégration du flux de chaleur est normalisée par rapport à la masse de l'échantillon. Les échantillons utilisés pour la caractérisation DSC sont directement issus de la matière pré-imprégné fournie par l'entreprise partenaire et contiennent des fibres et de la résine. Le résultat obtenu doit être ramené à la masse de résine seule en multipliant par le ratio de masse de la résine, noté τ_r, pour obtenir une valeur d'enthalpie totale représentant la quantité de résine présente dans les échantillons. Le ratio de masse de la résine est défini par l'équation suivante :

$$\tau_r = V_r \frac{\rho_r}{\rho_c} \tag{2.10}$$

Avec V_r, la fraction volumique de la résine dans le matériau, ρ_r et ρ_c sont respectivement les masses volumiques de la résine et du composite. Les données de ces paramètres sont issues du fournisseur du matériau, [35] et sont récapitulées dans la Tab. 2.1.

$\mathbf{V}_r$ (%)	ρ_m (kg/m^3)	ρ_f (kg/m^3)
41	1.28	1.79

TABLE 2.1 – Données de la fraction volumique et des densités des constituants [35]

Les valeurs d'intégration corrigées obtenues pour différentes vitesses de chauffe sont présentées dans la Tab. 2.2.

Vitesse de chauffe (°C/min)	$\mathbf{\Delta H_{total}}$ **(J/g)**
1	419
5	442
10	406
20	418
50	441

TABLE 2.2 – Enthalpie totale de cuisson obtenue par des essais dynamiques pour des vitesses de chauffe de : 1, 5, 10, 20 et 50°C/min

La valeur moyenne de 425 J.g^{-1} pour ΔH_{total} est utilisée pour la suite de ces travaux. Maintenant que l'enthalpie totale de la réaction a été déterminée expérimentalement, les paramètres du modèle KS peuvent être identifiés.

2.4 Identification des paramètres du modèle Kamal et Sourour

La relation qui lie le degré d'avancement de la polymérisation à l'enthalpie générée par la cuisson du polymère est donnée dans l'Eq. 2.11.

$$\alpha(t) = \frac{H(t)}{\Delta H_{total}} \tag{2.11}$$

Où $\alpha(t)$ est le degré d'avancement à un instant t donné et $H(t)$ est la quantité d'enthalpie générée pour ce même instant. Pour la suite de la caractérisation du modèle KS, il va être important de déterminer l'avancement de la polymérisation maximale, α_{max}, ainsi que de représenter la vitesse de polymérisation pour un test isotherme.

2.4.1 Essais isothermes par DSC

Des essais isothermes sont effectués pour déterminer le degré d'avancement maximal atteint et la vitesse de polymérisation lors de ces essais est également étudiée. Les températures pour ces essais sont choisies par rapport à la température de cuisson préconisée par Hexcel, qui est de 180°C. Les températures sélectionnées sont : 160°C, 170°C, 180°C, 190°C et 200°C. Pour obtenir le degré d'avancement, une chauffe de l'échantillon, jusqu'au palier souhaité, est effectuée. Cette montée en température est réalisée avec une vitesse de chauffe importante (50 °C/min). L'isotherme est maintenue suffisamment longtemps jusqu'à qu'aucune variation de flux ne soit observée. Ensuite, l'échantillon est ramené à température ambiante, puis chauffé de nouveau jusqu'à 350°C. Lors de cette seconde montée en température, un pic exothermique est de nouveau observable. Il correspond à l'énergie résiduelle liée à la fraction de résine qui n'était pas encore polymérisée. Le degré d'avancement maximum obtenu à la fin de l'isotherme est donc calculé de la façon suivante :

$$\alpha_{max} = 1 - \frac{\Delta H_{résiduelle}}{\Delta H_{total}} \tag{2.12}$$

Les résultats du degré d'avancement en fonction du temps obtenus pour chaque isotherme sont présentés dans Fig. 2.11 et les degrés d'avancement maximums atteint lors de ces isothermes sont récapitulés dans la Tab. 2.3.
La Fig. 2.12 représente l'évolution de la vitesse de polymérisation $\frac{d\alpha}{dt}$ pour les différentes isothermes en fonction du degré d'avancement.
La vitesse maximale de réticulation est très rapidement atteinte, ce qui est caractéristique d'une réaction auto-catalytique [93]. Cette grandeur constitue la base de

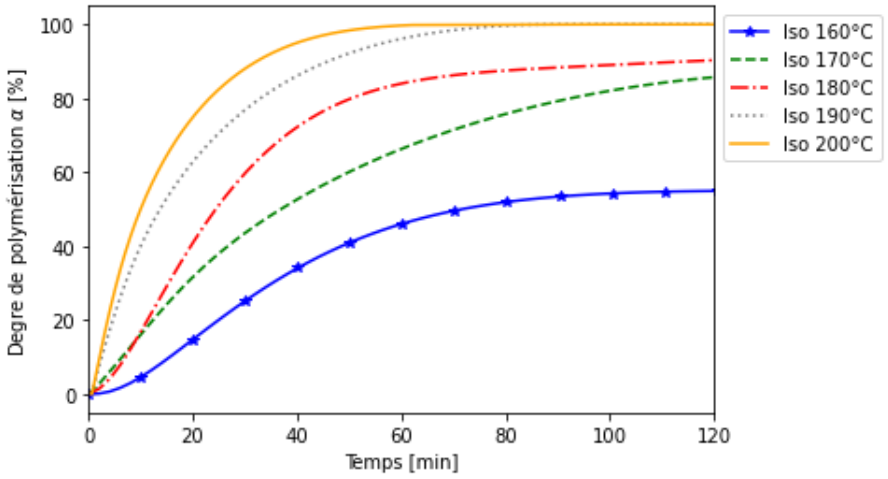


FIGURE 2.11 – Degré de polymérisation maximum obtenu pour des essais isothermes à : 160, 170, 180, 190 et 200°C

Température d'isotherme (°C)	α_{max} (%)
160	57
170	88
180	92
190	100
200	100

TABLE 2.3 – Degrés d'avancement maximums obtenus pour des isothermes : 160, 170, 180, 190, 200°C

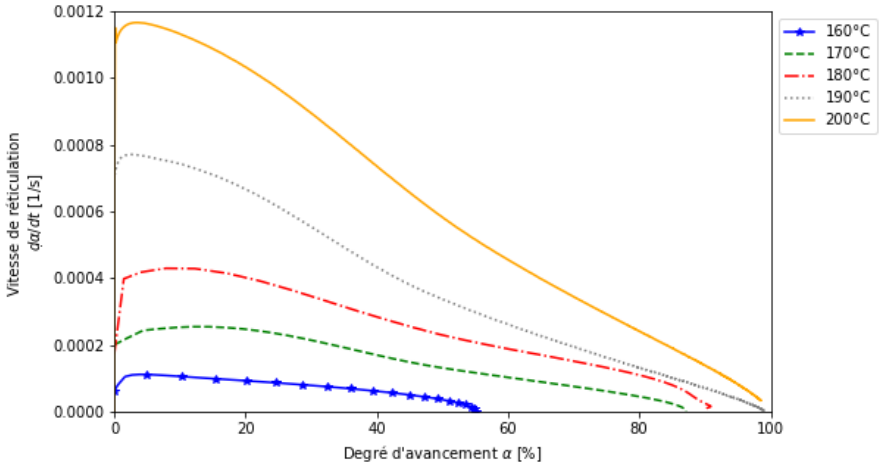


FIGURE 2.12 – Vitesse de réticulation en fonction du degré de polymérisation obtenue pour des essais isothermes à : 160, 170, 180, 190 et 200°C

l'identification des paramètres du modèle KS. En effet l'identification se fait directement par interpolation de ces courbes.

2.4.2 Identification des paramètres KS

Pour réaliser l'identification des paramètres du modèle KS, le module "curve_fit" incorporé dans le module Python, SciPy, est utilisé. La minimisation non linéaire des moindres carrés, réalisée par ce module, repose sur l'algorithme de Levenberg-Marquardt [59, 64], couramment utilisé pour l'optimisation de modèles paramétriques. L'utilisation de cet algorithme est justifié car il est adapté à des fonctions non linéaires comme dans notre cas. De plus il est reconnu pour son efficacité et sa robustesse dans ce type de problème. Les résultats de cette identification sont présentés dans Fig. 2.13.

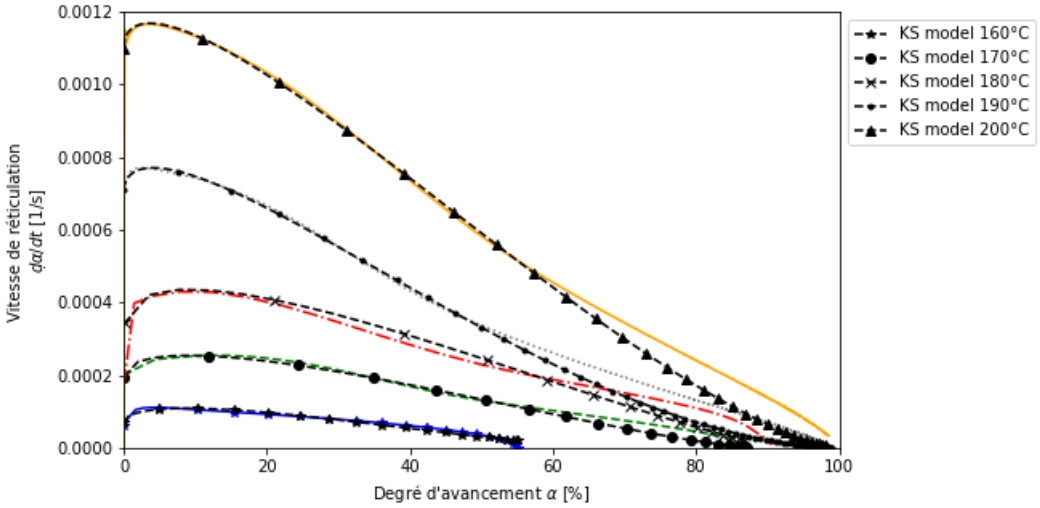


FIGURE 2.13 – Identification des paramètres du modèle KS sur les différentes isothermes

L'identification proposée est satisfaisante et nous conforte dans le choix d'utiliser le modèle développé par Kamal et Sourour dans notre simulation de la cinétique. Cependant, cette identification a été orientée de manière à optimiser la précision dans les premières phases de la cinétique, ce qui peut conduire à une précision moindre entre le modèle et les données expérimentales en fin de courbe. Les valeurs identifiées par l'algorithme sont récapitulées dans la Tab. 2.4.

Isotherme (°C)	**K1** ($10^{-4}s^{-1}$)	**K2** ($10^{-4}s^{-1}$)	**m**	**n**
160	1.079	2.499	0.6348	1.397
170	2.306	3.499	0.455	1.342
180	3.335	4.895	0.352	1.249
190	7.038	6.355	0.505	1.800
200	11.001	7.166	0.511	1.441

TABLE 2.4 – Paramètres du modèle KS identifiés sur des isothermes à : 160, 170, 180, 190, 200°C

Comme le cycle thermique utilisé pour durcir la résine (Fig. 2.3) n'est pas simplement constitué d'une isotherme, pour pouvoir utiliser ce modèle, il reste donc à estimer les deux énergies d'activation liées aux fonctions d'Arrhenius, K_1 et K_2 et leur constante respective, A_1 et A_2.

2.4.3 Calcul des énergies d'activation E_a

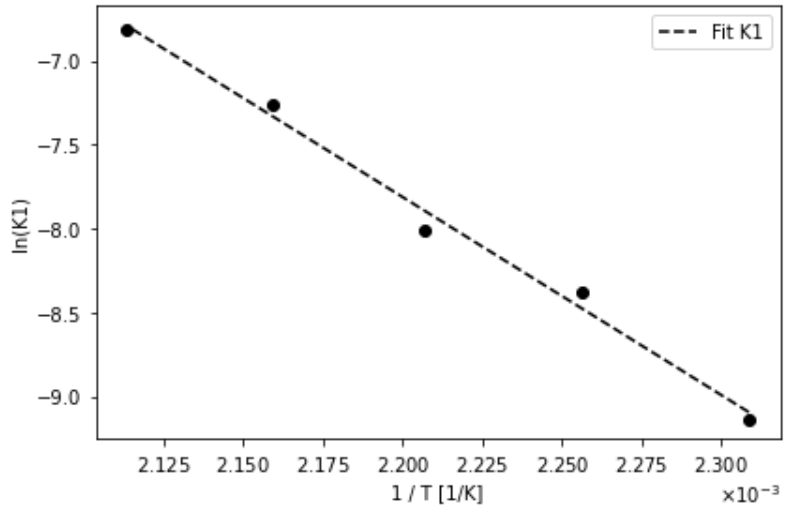
Les énergies d'activations sont calculées en réorganisant Eq. 2.9 sous forme d'une équation linéaire. Pour cela, l'équation est passée sous forme logarithmique :

$$\ln(K_i) = \ln(A_i) - \frac{E_{ai}}{RT} \tag{2.13}$$

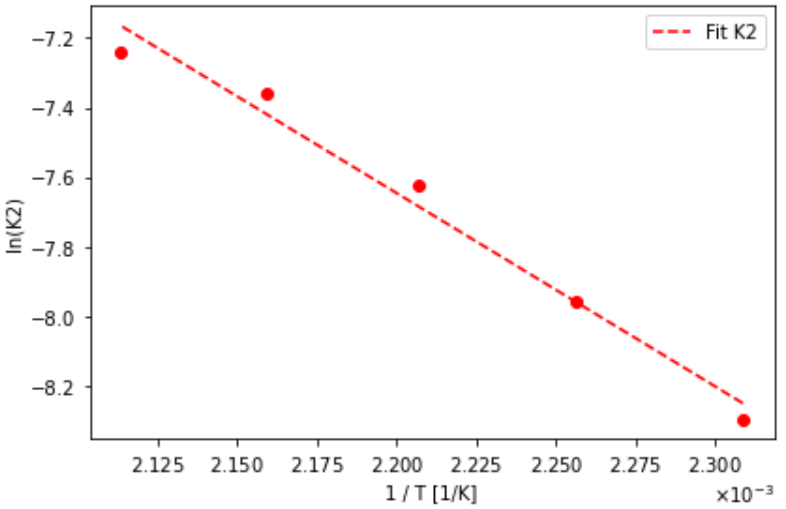
L'identification de A_i et de E_{ai} est réalisée par régression linéaire sur le jeu de donnée $\ln(K_i) = f(1/T)$ présenté dans Fig. 2.14. Le coefficient directeur de la droite de régression équivaut à $-E_a/R$ et l'ordonnée à l'origine correspond à $\ln(A)$. Les valeurs identifiées sont regroupées dans la Tab. 2.5.

$\mathbf{A}_1$ (1/s)	$\mathbf{A}_2$ (1/s)	$\mathbf{E}_{a1}$ (kJ)	$\mathbf{E}_{a2}$ (kJ)
78.079 $\times 10^6$	98.817	98.196	46.237

TABLE 2.5 – Calcul des énergies d'activation et des constantes d'Arrhenius pour le modèle KS



(a) Identification de la fonction d'Arrhenius K_1



(b) Identification de la fonction d'Arrhenius K_2

FIGURE 2.14 – Calcul des énergies d'activation et des constantes d'Arrhenius

2.4.4 Identification du modèle Di Benedetto

Comme vu précédemment, la température de transition vitreuse, T_g, est directement dépendante du degré d'avancement. T_g varie de T_{g_0}, température de transition vitreuse à l'état initial ($\alpha = 0$ %) à T_{g_∞} si la réticulation est complète ($\alpha = 100$ %). C'est donc une variable clé car elle permet de connaître l'état matière de la résine et des propriétés matériaux qui doivent être utilisés pour reproduire le comportement dans la simulation numérique. Le modèle Di Benedetto [14], modifié par Pascault et Williams [78], propose une relation empirique entre T_g et α. Le modèle est présenté dans l'Eq. 2.14.

$$T_g = T_{g0} + \frac{\lambda\alpha(T_{g_\infty} - T_{g_0})}{1 - (1-\lambda)\alpha} \tag{2.14}$$

Avec λ, un paramètre significatif des mécanismes de réactions. Les paramètres du modèle de Di Benedetto sont caractérisés et identifiés à l'aide d'une combinaison de tests DSC isothermes et dynamiques. L'échantillon a d'abord subi un test isotherme à différentes températures pour atteindre un degré de réticulation correspondant. L'échantillon a ensuite été refroidi jusqu'à température ambiante, avant de subir un test dynamique rapide (50°C/min) jusqu'à 300 °C. Sur ces tests, la température de transition vitreuse est mesurée et elle est associée à un degré de réticulation. Une fois le graphique représentant la variation de la température de transition vitreuse en fonction du degré d'avancement construit, il est présenté dans la Fig. 2.15, le même module d'optimisation des paramètres curve_fit de Python est utilisé pour identifier λ. Les valeurs des paramètres sont présentées dans la Tab. 2.6.

$\mathbf{T}_{g0}$(°C)	$\mathbf{T}_{g_\infty}$(°C)	$\boldsymbol{\lambda}$
-3	217	0.495

TABLE 2.6 – Paramètres de la loi Di Benedetto modifiée par Pascault et Williams

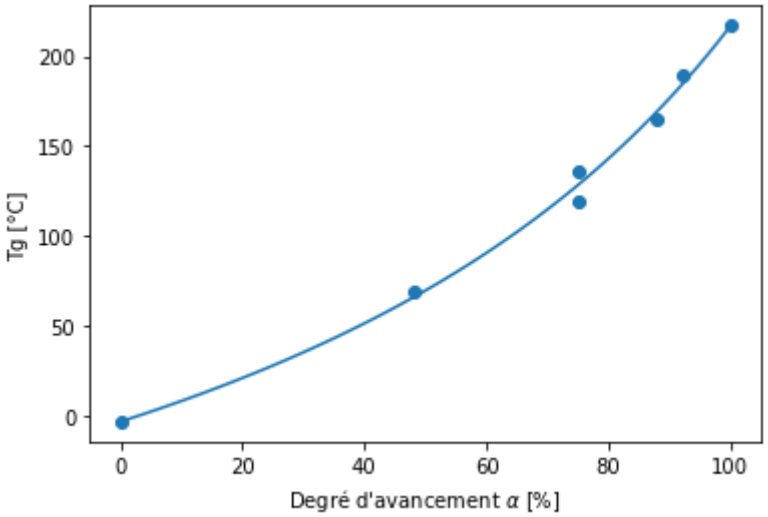


FIGURE 2.15 – Variation de la température de transition vitreuse T_g en fonction du degré d'avancement α

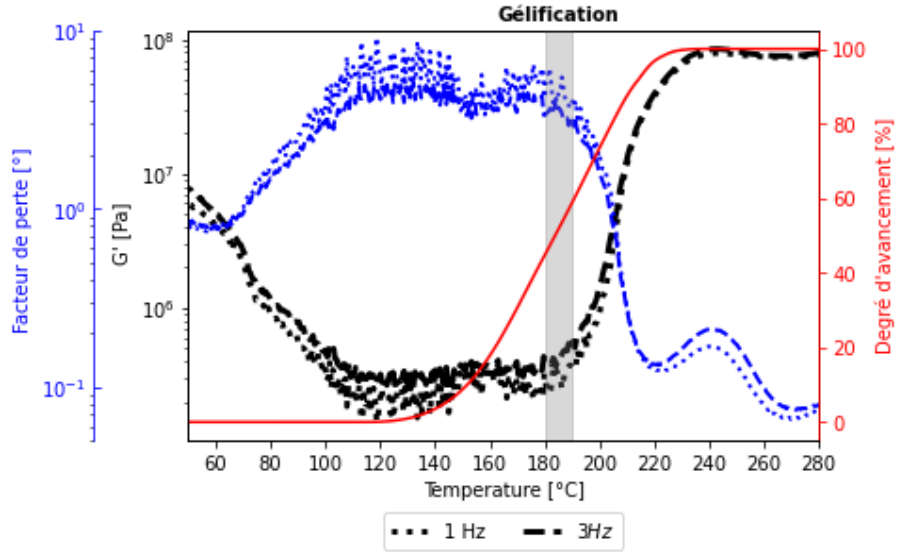
2.5 Détermination du degré d'avancement au point de gel

Dans la section précédente, le modèle cinétique de Kamal et Sourour, correspondant à notre système, a été identifié. Ce modèle permet de modéliser la polymérisation de la résine et, in fine, d'obtenir le degré d'avancement de la polymérisation, α, à chaque instant d'un cycle de cuisson. Cette section est consacrée à la détermination de la valeur du degré d'avancement au point de gel, α_{gel}. Comme décrit précédemment, la gélification correspond au changement d'état matière de la résine, celle-ci passant d'un liquide visqueux à un gel. À partir de ce point, c'est le début de la formation du réseau tridimensionnel et les propriétés élastiques du polymère se développent. Pour rappel, le point de gel correspond à un taux de réticulation unique pour un système donné, c'est-à-dire, que la valeur de α_{gel} ne dépend pas du type de cycle de cuisson (vitesse de chauffe, température des palier, etc.).

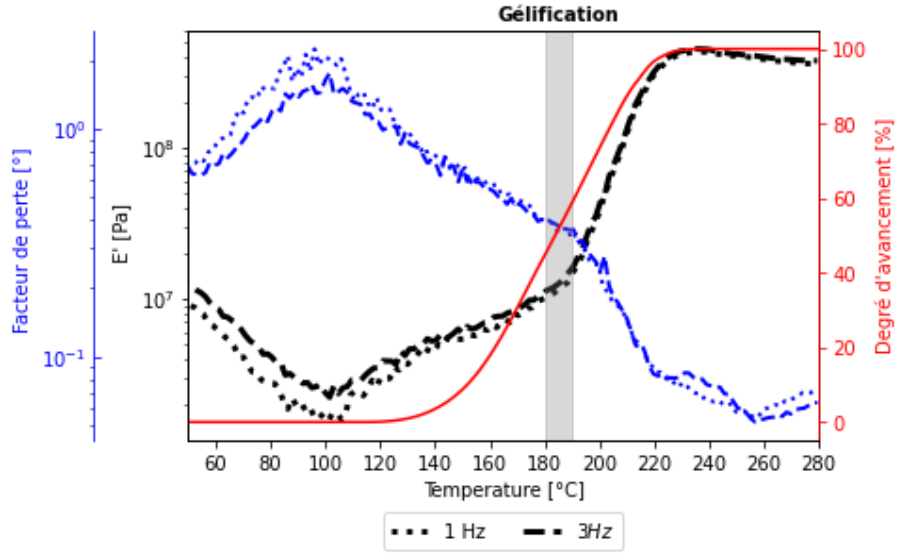
La détermination α_{gel} est réalisée en combinant des mesures DSC et DMA, sur un essai dynamique, à vitesse de chauffe identique. Les mesures DSC permettent de tracer l'évolution du degré d'avancement en fonction du temps ou de la température, tandis que les mesures DMA permettent de visualiser la variation des modules d'élasticité complexes (E^*, G^*, selon le mode de chargement) du matériau et la variation du facteur de perte, $\tan\delta$. Les résultats dee mesures DSC et DMA menées sur le préimprégné entre 0 °C, et 300 °C, à une vitesse de chauffe de 1 °C/min sont présentés dans la Fig. 2.16. Les essais DMA ont été réalisés en cisaillement et en traction-compression perpendiculairement aux fibres à la fréquence d'excitation de 1 Hz.
Le module réel E' ou G', obtenu pour une fréquence d'excitation de 1 Hz et 3 Hz, est représenté par la courbe noire. La courbe bleue représente l'évolution du facteur de perte et la courbe rouge, le degré d'avancement de la polymérisation obtenu à partir de la mesure du flux thermique obtenu en DSC. Le pic observé sur la courbe du facteur de perte, de manière nette pour l'essai mené en cisaillement (Fig. 2.16a) et moins distinct (épaulement) pour la sollicitation en traction/compression (Fig. 2.16b), entre 180 °C et 190 °C, et qui correspond à un changement de pente significatif du module réel, correspond au point de gel. Le taux de réticulation au point de gel se situe entre 50 % et 55 %. En conséquent, une valeur moyenne de $\alpha_{gel} = 52$ % sera considérée pour la suite de cette étude.

2.5.1 Vitrification

La vitrification marque le changement d'état matière où la résine époxy passe d'un état caoutchoutique vers un état vitreux. Au cours de la cuisson, cette transition a lieu lorsque la température du système atteint la valeur de la température de transition vitreuse du matériau en cours de réticulation. La vitrification et ne se produit donc pas si la température de cuisson est supérieure à la transition vitreuse infinie T_{g_∞} du système complètement réticulé. Au moment de la vitrification, la réaction de durcissement est fortement ralentie, car le mécanisme de durcissement est



(a) Essai réalisé avec les mors de cisaillement



(b) Essai réalisé avec les mors de traction/compression

FIGURE 2.16 – Détermination de α_{gel}, à partir d'essais DSC et DMA, pour des fréquences de 1 Hz et 3 Hz, sur un rampe de température à 1 °C/min

alors contrôlé par la diffusivité moléculaire. Pour obtenir le durcissement complet après la vitrification, il peut être nécessaire d'augmenter la température de durcissement au-dessus de la température de T_{g_∞}. En effet, contrairement à la gélification, la vitrification est réversible et le passage au-dessus de T_{g_∞}, permet la dévitrification et le passage de l'état vitreux à l'état caoutchoutique.

Comme rappelé dans la section 2.2.2, le DMA est la technique la plus classique pour déterminer le phénomène de vitrification. Ce phénomène de vitrification est associée à un pic de tan δ dépendant de la fréquence (2.7). Les résultats d'un test DMA en

cisaillement, réalisé sur 3 fréquences, 1, 3 et 10 Hz et soumis à un cycle thermique proche de celui recommandé par le fabricant, sont présentés dans Fig. 2.17.

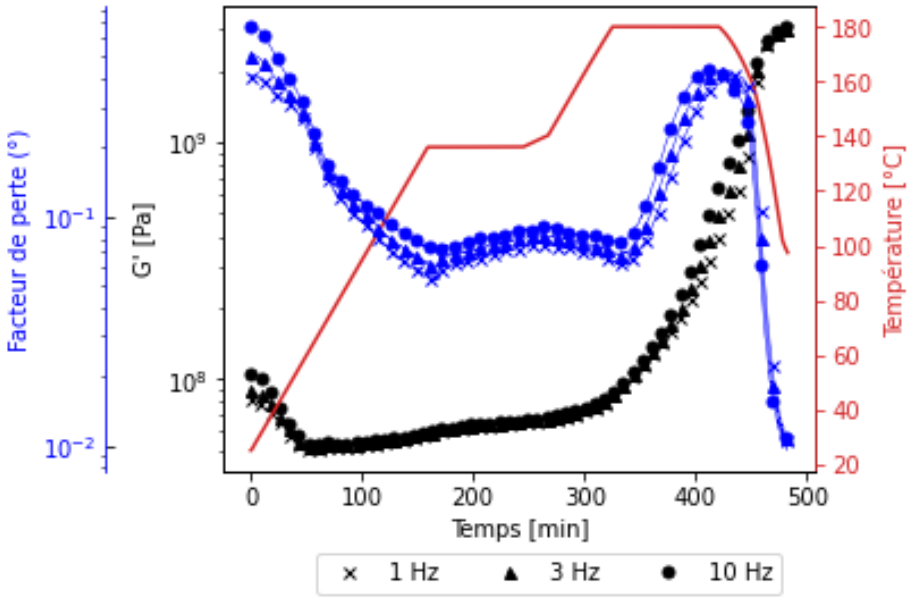


FIGURE 2.17 – Essai DMA en cisaillement obtenu pour un cycle thermique représentatif des conditions industrielles de durcissement, pour des fréquences de 1, 3 et 10 Hz.

Les courbes noires représentent le module de cisaillement G', les courbes bleues sont les facteurs de perte, $\tan\delta$ et la courbe rouge en pointillé est le cycle thermique imposé durant cet essai. Les pics de grande amplitude et dépendants de la fréquence observés sur les courbes $\tan\delta$, correspondent à la vitrification. Le maximum des pics correspond au moment où le temps de relaxation atteint la période d'observation ($\omega\tau = 1$) où τ est le temps de relaxation et ω la fréquence (2πf). Par conséquent, plus la fréquence d'essai est élevée, plus le pic de $\tan\delta$ est décalé vers un temps plus court. La vitrification a lieu vers la fin du palier, aux alentours de 380 min pour 10 Hz et aux alentours de 400 min pour 1 Hz.

2.6 Implémentation et validation numérique du modèle cinétique

Dans les sections précédentes, le choix et l'identification d'un modèle cinétique ont été réalisés. Ce modèle constitue un module important du modèle numérique multiphysique. Cette section présente l'approche retenue pour retranscrire numériquement, le modèle cinétique identifié à partir des données expérimentales. L'objectif est de développer un outil de simulation fiable capable de reproduire les cinétiques mesurées. Après avoir décrit la méthodologie d'implémentation, une validation est

conduite en comparant les résultats simulés aux données expérimentales. La confrontation entre le modèle et les mesures permet d'évaluer la robustesse des paramètres identifiés, de quantifier les écarts résiduels et, le cas échéant, de proposer des pistes d'amélioration pour affiner la description du comportement chimique du système.

2.6.1 Implémentation sur Comsol

Le logiciel multiphysique Comsol ne dispose pas de module pré-implémenté pour gérer la cinétique de cuisson d'une résine thermodurcissable. Ce travail doit être fait via le module Boundary Ordinary Differential Equation (BODE). Ce module permet de définir des équations différentielles ordinaires qui seront ensuite résolues par le logiciel. Les équations BODE sont sous de la forme suivante :

$$e_a \frac{\partial^2 y}{\partial t^2} + d_a \frac{\partial y}{\partial t} = f \tag{2.15}$$

Avec e_a et d_a sont des coefficients mécaniques et f le terme source. Eq. 2.15 contiennent des coefficients mécaniques, car le module est préprogrammé pour des applications mécaniques. Pour l'adapter à notre cas, les valeurs de ces coefficients sont fixées à 1. Dans le cas étudié, la variable est le degré d'avancement, $y = \alpha$, et seule la partie $d_a \frac{\partial \alpha}{\partial t} = f$ est considérée. Le terme source prend la forme du modèle KS :

$$f = (K_1 + K_2 \alpha^m)(\alpha_{max} - \alpha)^n \tag{2.16}$$

Ceci donne donc :

$$\frac{\mathrm{d}\alpha}{\mathrm{d}t} = (K_1 + K_2 \alpha^m)(\alpha_{max} - \alpha)^n \tag{2.17}$$

Pour le modèle Di Benedetto (Eq. 2.14) est implémentée en tant que fonction analytique dans le sous-menu Définitions. L'argument est T_g et l'unité est le Kelvin.

La géométrie utilisée pour la validation numérique est un segment en 1D, d'une longueur de 0.1 m. Le maillage est composé de 100 éléments de type "edge", ce qui permet d'avoir des simulations très rapides. En condition aux limites, une température correspondante aux différents essais thermiques simulés (isotherme, dynamique, cycle fabriquant) est imposé. Le solveur temporel implicite Backward Differentiation Formula (BDF) de Comsol est utilisé. Le solveur BDF est régulièrement utilisé en simulation numérique en raison de sa bonne stabilité numérique, notamment pour des problèmes non-linéaires. Cependant, si un ordre trop faible est choisi, des effets d'amortissement numérique important peuvent être introduits, notamment pour des problèmes avec des variations rapides.

2.6.2 Validation numérique

La validation numérique est réalisée dans un premier temps sur les essais dynamiques, puis sur les essais isothermes. L'évolution de la température de transition vitreuse au, T_g, au cours d'un cycle de cuisson type sera également présentée.

2.6.2.a Essais dynamiques

Le modèle numérique est comparé aux essais dynamiques. Les résultats expérimentaux ont été obtenus sur des rampes de température de -3 °C à 350 °C. Plusieurs vitesses de chauffe sont présentées, 0.5, 1, 5 et 10 °C/min.

Les résultats de la validation sur les tests dynamiques sont présentés dans Fig. 2.18 qui montre l'évolution du taux de réticulation obtenue expérimentalement et numériquement sous Comsol. Ces résultats montrent une très bonne corrélation entre le modèle KS et les essais expérimentaux. La forme des courbes numériques correspond à celle de l'expérimentale, ce qui montre que le modèle choisi représente le comportement non linéaire de la réticulation. Le décalage progressif des courbes vers les hautes températures, observé pour des vitesses de chauffe plus importante, est également correctement reproduit. Cette première observation confirme que les paramètres identifiés pour les différents modèles sont pertinents. Pour confirmer cela, la simulation numérique va être comparée aux essais isothermes.

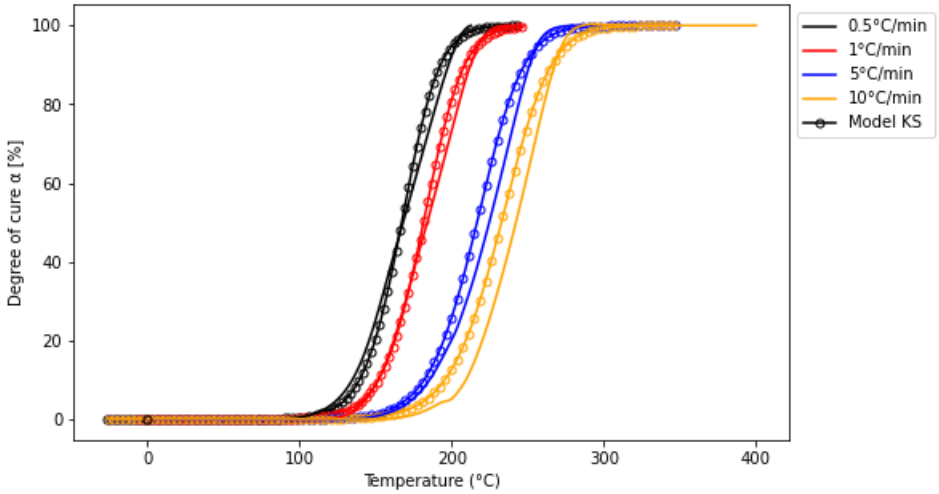


FIGURE 2.18 – Comparaison entre le modèle numérique et les essais expérimentaux dynamique

2.6.2.b Essais isothermes

Pour confirmer les observations de la section précédente, le modèle KS est implémenté sur des essais de type isotherme. La méthodologie qui nous a permis d'obtenir les essais expérimentaux a été présentée dans la Section 2.4.1. Les résultats sont présentés dans la Fig. 2.19.

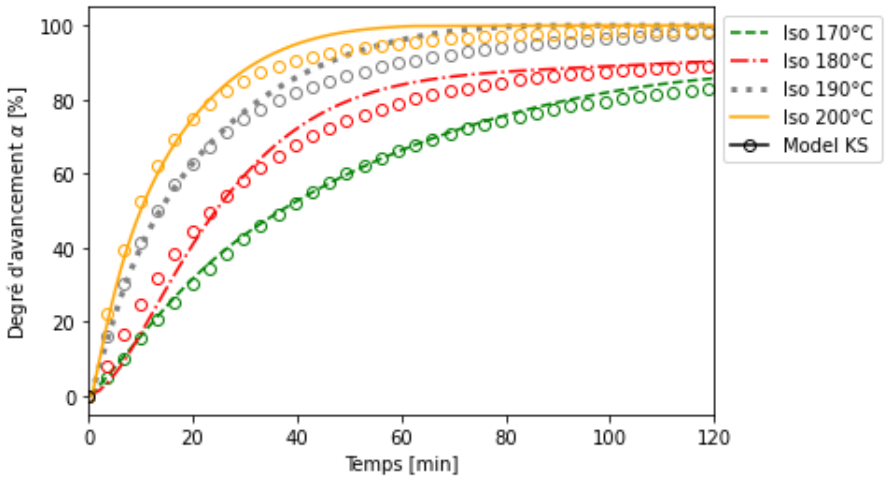


FIGURE 2.19 – Comparaison entre le modèle numérique et les essais expérimentaux isothermes

Comme pour les essais dynamiques, le modèle KS implémenté dans Comsol arrive à retranscrire la forme des courbes expérimentales pour toutes les températures. Le degré d'avancement maximal calculé par le modèle est très proche de ceux caractérisés expérimentalement. La forme des courbes prédites par le modèle est très proche de celle obtenue expérimentalement. Ces éléments permettent de confirmer que les paramètres identifiés sont cohérents avec la réalité physique.

Ces deux validations numériques confirment que le modèle de Kamal-Sourour permet de modéliser avec précision la cinétique de polymérisation du système étudié sur différentes conditions thermiques. Il constitue donc un outil fiable pour la suite de ces travaux.

2.6.2.c Évolution de la température de transition vitreuse au cours d'une cuisson

Pour terminer cette partie réservée à l'implémentation et validation du module cinétique, le cycle utilisé par Duqueine pour cuire les cadres de fuselage est intégré dans la simulation ainsi que le modèle Di Benedetto. La Fig. 2.20 montre l'évolution de la température de transition vitreuse, T_g, calculée numériquement, par le modèle Di Benedetto, en fonction du temps. La courbe noire en pointillé représente la température de consigne, basée sur le cycle thermique utilisé par Duqueine, qui sert de condition aux limites à la simulation. La température de consigne croise la courbe

de la T_g peu avant la fin du second plateau. Ce qui montre que la vitrification du matériau se produit avant la phase de refroidissement.

Les observations sur la vitrification de la résine, présentées dans la Section 2.5.1 montraient que la vitrification avait lieu à la fin du second palier isotherme du cycle de cuisson, aux alentours de 380 min. Ce résultat corrobore donc les observations expérimentales et nous permet de conclure sur la validité des paramètres de la loi Di Benedetto préalablement identifiés.

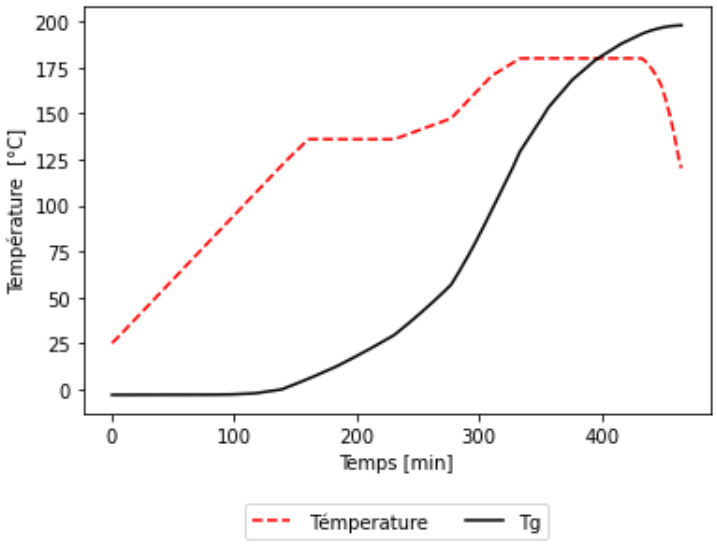


FIGURE 2.20 – Évolution de la température de transition vitreuse, T_g, calculée numériquement en fonction du temps

2.7 Identification du modèle CHILE

L'objectif du modèle CHILE (Cure Hardening Instantaneous Linear Elastic) est d'obtenir un modèle capable de représenter la variation des paramètres mécaniques de la résine M21E. La réticulation de la résine entraîne des variations importantes de son module de Young et de son module de cisaillement. Pendant la réticulation de la résine, des liaisons covalentes se forment, ce qui implique une augmentation de la rigidité de la résine. Les propriétés mécaniques du pré-imprégnés sont liées à celles de la résine, il est donc très important de prendre en compte ces évolutions de module.

Des hypothèses sont formulées pour l'identification du modèle CHILE. Tout d'abord, la résine est considérée comme un matériau isotrope et son coefficient de Poisson, ν_r, est supposé constant durant l'intégralité de la cuisson. De ce fait, le module de Young, E_r, et le module de cisaillement, G_r, de la résine peuvent être reliés par l'équation suivante :

$$E_r = 2(1+\nu_r)G_r \tag{2.18}$$

Le modèle CHILE choisi dans ces travaux est la version modifiée par Khoun [49]. L'expression, pour le module de cisaillement, est rappelée dans l'équation suivante :

$$G = \begin{cases} G_1 & T^* < T^*_{C1} \\ G_2 + \frac{T^*-T^*_{C2}}{T^*_{C1}-T^*_{C2}} \times (G_1 - G_2) & T^*_{C1} \leq T^* < T^*_{C2} \\ G_3 + \frac{T^*-T^*_{C3}}{T^*_{C2}-T^*_{C3}} \times (G_2 - G_3) & T^*_{C2} \leq T^* < T^*_{C3} \\ A_M \exp(-K_M T^*) & T^*_{C3} \leq T^* < T^*_{C4} \\ G_4 & T^* > T^*_{C4} \end{cases} \tag{2.19}$$

Avec, T^*, la différence entre la température et la température de transition vitreuse instantanée $T^* = T - T_g$, et T^*_{C1}, T^*_{C2}, T^*_{C3}, T^*_{C4} sont des constantes indiquant les changements de zone.

L'identification du modèle CHILE modifié est basée sur un essai DMA en cisaillement. Cet essai permet de mesurer la variation du module G'_{12} d'un échantillon, constitué de six couches de pré-imprégné orientées dans la même direction, soumis à un cycle dynamique proche de celui utilisé par Duqueine pour la réticulation du matériau. Celle-ci a déjà été présentée dans la Fig. 2.17. L'évolution du module de cisaillement G'_{12}, mesurée expérimentalement et calculée par le modèle CHILE, est présentée dans la Fig. 2.21 et la valeur des constituantes du modèle CHILE modifié sont présentée dans la Tab. 2.7.

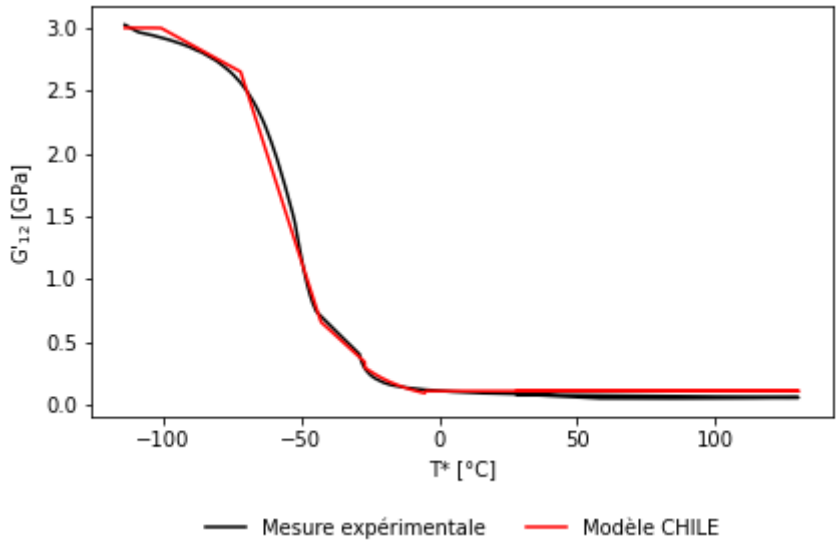


FIGURE 2.21 – Évolution du module G'_{12}, mesurée expérimentalement et calculée par le modèle CHILE

Paramètre	**Valeur**
G_0	3 GPa
G_1	2.65 GPa
G_2	0.66 GPa
G_3	0.34 GPa
G_4	0.11 GPa
T^*_{C0}	-101 °C
T^*_{C1}	-72 °C
T^*_{C2}	-42 °C
T^*_{C3}	-27 °C
T^*_{C4}	-5 °C
A_M	69.5 $\times 10^6$
K_M	0.0537

TABLE 2.7 – Paramètres du modèle CHILE modifié identifiés par essai DMA

Le calcul du module associé seulement à la résine est réalisé à partir de l'équation d'homogénéisation suivante :

$$G_{12} = \frac{G_r}{1 - V_f(1 - \frac{G_r}{G_{12f}})} \tag{2.20}$$

Avec G_{12} est le module de cisaillement du pré-imprégné, G_r, celui de la résine, G_{12f} est le module associé aux fibres et V_f est la fraction volumique des fibres. Le module G_r peut être isoler de depuis l'Eq. 2.20 :

$$G_r = \frac{G_{12}(1+V_f)}{1+V_f\frac{G_{12}}{G_{12f}}} \tag{2.21}$$

L'Eq. 2.21 donne une valeur de module pour l'état liquide : $G_r^{\mathrm{l}} = 175$ MPa et pour l'état vitreux : $G_r^{\mathrm{v}} = 1.249$ GPa. Le calcul du module d'Young de la résine, donné par l'Eq. 2.18, pour l'état liquide est : $E_r^{\mathrm{l}} = 297$ MPa et pour l'état vitreux : $E_r^{\mathrm{l}} = 3.372$ GPa.

L'évolution des modules de Young et de cisaillement de la résine, calculés par le modèle CHILE modifié, en fonction de la température, est présentée dans la Fig. 2.22.

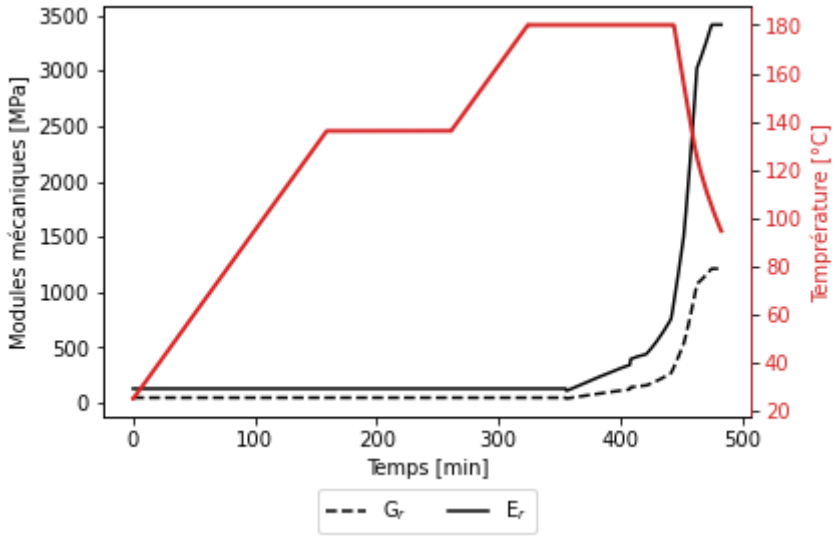


FIGURE 2.22 – Évolution du module G_r et E_r, en fonction de la température

La figure montre que la montée des modules se réalise en fin de cuisson, au moment du second plateau de température à 180 °C, au moment où le point de gel est atteint. Avant cela, la résine est très peu rigide, ce qui indique que peu de contrainte se forment avant la gélification de la résine.

Conclusion

Ce chapitre s'est focalisé sur l'étude approfondie de la cinétique de cuisson de la résine époxy M21E. L'état de l'art a montré l'importance de la modélisation de la cinétique de cuisson de la résine, qui permet de prédire, à chaque instant du cycle thermique, le degré d'avancement de la réaction chimique, noté α, ainsi que la température de transition vitreuse, T_g. Ces deux grandeurs sont essentielles pour la compréhension des phénomènes physiques se produisant durant le procédé de fabrication et pour la prédiction des contraintes résiduelles se formant au sein des pièces composites.

Parmi les nombreux modèles disponibles dans la littérature, le modèle cinétique de Kamal et Sourour, calculant l'avancement de la polymérisation, couplé au modèle Di Benedetto pour l'évolution de la T_g en fonction de α, ont été retenus pour leur pertinence vis-à-vis des comportements thermo-chimiques observés sur la résine M21E. Après la justification du choix des modèles, un protocole expérimental a été mis en oeuvre pour identifier les différents paramètres de ces modèles.

La première étape a été de déterminer l'enthalpie totale, ΔH_{total} généré par la cuisson de la résine, à l'aide de mesure calorifique (DSC). L'enthalpie que produit la polymérisation de la résine permet de calculer le degré d'avancement α. Les courbes de vitesse de réaction $\frac{\mathrm{d}\alpha}{\mathrm{d}t}$ obtenues expérimentalement ont servi de base à l'identification des paramètres du modèle de Kamal et Sourour à l'aide du module $curve_fit$ de Python.

Les modèles identifiés ont ensuite été implémentés dans le logiciel de simulation, Comsol, qui sera utilisé pour la prédiction du spring-back dans la suite de ces travaux. Une validation de l'implémentation a été réalisée en comparant les prédictions du modèle aux courbes expérimentales issues des tests isothermes et dynamique. Les résultats obtenus ont montré une bonne concordance entre les données simulées et expérimentales, confirmant ainsi la validité du modèle de Kamal et Sourour, retenu pour les étapes ultérieures de cette étude.

L'intégration du modèle cinétique validé permet, dans le chapitre suivant, d'aborder la modélisation multiphysique du phénomène de spring-back.

Chapitre 3

Simulation numérique de l'effet Spring Back

Introduction

Dans le chapitre précédent, nous avons détaillé la méthodologie qui nous à permis d'élaborer un module de gestion de la polymérisation de la résine durant la cuisson des pièces composites. Ce module va pouvoir être intégré dans la simulation numérique. Celle-ci sera présentée dans ce chapitre. Avant d'aborder la modélisation par éléments finis, il convient de rappeler que cette approche n'est pas la seule permettant de prédire les distorsions géométriques résultantes du procédé de fabrication des composites. En effet, des modèles analytiques ont été développés dans la littérature permettant d'obtenir des prédictions du spring back avec un besoin réduit en données de caractérisation matériau. Une revue de ces modèles sera effectuée et ils seront implémentés sur un cas d'étude simple.

L'architecture du modèle numérique, développé dans ces travaux de thèse, sera ensuite détaillée. Ce modèle repose sur trois modules représentant chacun une physique spécifique. Ces modules sont couplés les uns aux autres, par des variables calculées à chaque incrémentation. Deux modes d'implémentation sont explorés : une première basée sur une géométrie 3D et une basée sur un empilement de coques minces. Ces deux approches seront comparées entre elles ainsi qu'aux modèles analytiques, en s'appuyant sur une géométrie de type "L-shape".

Une expérience de validation est conduite pour attester la cohérence et la validation de la modélisation. Des échantillons de plusieurs formes et avec des empilements différents ont été fabriqués par l'entreprise partenaire du projet : Duqueine. Ces échantillons ont été polymérisés dans des autoclaves, directement chez Duqueine. Les mesures des échantillons ont été réalisées au laboratoire, à l'aide d'un palpeur tridimensionnel. Les distorsions géométriques mesurées sur les échantillons expérimentaux seront ensuite comparées à celles prédites par la simulation numérique.

Pour finir, une fois le modèle numérique validé par l'expérience de validation, il pourra être appliqué à une géométrie plus complexe : le cadre de fuselage. Le cadre de fuselage représente un défi complexe pour la simulation numérique car la section du cadre est en forme de Z et l'épaisseur n'est pas constante dans la longueur de celui-ci. De plus, le cadre est divisé en plusieurs zones et chaque zone est drapée avec des orientations différentes.

3.1 Modèle analytique

L'approche analytique est souvent la première méthode pour prédire les distorsions géométriques se formant durant la cuisson d'une structure composite. Le principal avantage de cette méthode est qu'elle permet d'estimer rapidement le spring back, tout en nécessitant moins de paramètres matériaux donc moins de caractérisation préalable de la matière. Dans le cas de cette étude, les modèles analytiques, issus de la littérature, fourniront des résultats qui pourront être comparés à la simulation numérique. Les modèles analytiques présentés dans cette section, sont adaptés pour des pièces courbées, présentant un angle initial, noté θ.

3.1.1 Revue des modèles analytiques

Nelson et Cairns [74] sont les premiers à proposer un modèle simple pour évaluer le spring back d'origine thermo-élastique découlant de l'anisotropie du coefficient de dilatation thermique (CET).

$$\frac{\Delta\theta}{\theta} = \frac{(CTE_{11} - CTE_{22})\Delta T}{1 + CTE_{22}\Delta T} \tag{3.1}$$

$\Delta\theta$ représente la distorsion angulaire par rapport à l'angle initial θ, CET_{11} et CET_{22} sont respectivement les coefficients d'expansion thermique dans le sens des fibres et dans le sens transverse aux fibres, ΔT est la variation de la température. En supposant que $CET_{22}\Delta T << 1$, l'Eq. 3.1 peut être simplifiée :

$$\frac{\Delta\theta}{\theta} = (CET_{11} - CET_{33})\Delta T \tag{3.2}$$

Pour la suite de cette étude, ce modèle sera référé comme modèle 1. Ce premier modèle est très simple et néglige les aspects physico-chimiques, notamment liés à la polymérisation de la résine. Pour pallier ce fait, Radford et Rennick [82] propose de complexifier le modèle en ajoutant les effets de la compaction chimique, qui ont lieu durant la cuisson de la résine. Ces effets sont associés aux coefficients de rétrécissement chimique (CRC). Le modèle de Radford et Rennick est présenté dans

l'équation suivante :

$$\frac{\Delta\theta}{\theta} = (CTE_{11} - CTE_{22})\Delta T + (CRC_{11} - CRC_{22}) \tag{3.3}$$

CRC_{11} et CRC_{22} sont respectivement les composants du CRC dans le sens des fibres et dans le sens transverse aux fibres. Ce modèle sera référé comme le modèle 2. Ces deux premiers modèles permettent de réaliser, de façon simple, une première prédiction de la valeur de spring back , cependant ils négligent beaucoup de paramètres et d'effets physique importants. L'influence liée à la pièce est ignorée. La rigidité de la matière n'est pas prise en compte, tout comme l'état physique de la résine à un instant t.

Afin d'intégrer les mécanismes physiques évoqués précédemment, Wisnom et al. [105] proposent d'enrichir le modèle en prenant en compte les états physiques de la résine ainsi que de la rigidité du matériau. Initialement la résine est comparable à un fluide visqueux, ses changements volumiques n'ont pas d'influence sur le développement du spring back. Ce n'est qu'à partir du début de la gélification, correspondant au passage à l'état caoutchoutique de la résine, que les déformations issues du rétrécissement chimique ainsi que les effets liés à la rigidité du matériau, qui augmente alors fortement, impactent le développement du spring back. L'Eq. 3.3 considère un matériau élastique rigide. Cette hypothèse est suffisante pour retranscrire le spring back issu du refroidissement de la structure en fin de cycle thermique, lorsque la résine est vitrifiée. Pour prendre en compte les distorsions pendant l'état caoutchoutique, Wisnom et al. propose d'ajouter un terme basé sur la théorie du "shear-lag" :

$$\Delta\theta = -(\varepsilon_{22}^{\text{non}} + \nu_{23}\varepsilon_{33}^{\text{non}}) \left[\theta - \frac{(e^{aR\theta} - e^{-aR\theta})}{Ra(e^{aR\theta} + e^{-aR\theta})}\right] \tag{3.4}$$

Où $\varepsilon_{22}^{\text{non}}$ et $\varepsilon_{33}^{\text{non}}$ sont les déformations non mécaniques, issues des effets thermochimiques, dans le sens transverse aux fibres et dans l'épaisseur de la pièce. Ces déformations non mécaniques sont associées à l'état caoutchoutique de la matière. ν_{23} est le coefficient de Poisson, et R renvoie au rayon de courbure de la pièce. a met en relation le module de Young dans le plan, le module de cisaillement interlaminaire ainsi que l'épaisseur, cette relation est présentée dans l'équation suivante :

$$a = \sqrt{\frac{10G_{12}}{E_{11}t^2}} \tag{3.5}$$

En injectant l'Eq. 3.4 dans l'Eq. 3.3 et en précisant que les composants du CET et CRC sont ceux pour l'état vitrifié de la résine, nous obtenons le modèle analytique suivant :

$$\begin{aligned}\Delta\theta = &-(\varepsilon_{22}^{\text{non}} + \nu_{23}\varepsilon_{33}^{\text{non}})\left[\theta - \frac{(e^{aR\theta} - e^{-aR\theta})}{Ra(e^{aR\theta} + e^{-aR\theta})}\right] \\ &+\theta\left[(CET_{11}^{\text{v}} - CET_{22}^{\text{v}})\Delta T + (CRC_{11}^{\text{v}} - CRC_{22}^{\text{v}})\right]\end{aligned} \tag{3.6}$$

Le modèle de Wisnom et al. sera dénommé modèle 3 dans la suite de cette étude. Finalement, Ding et al. [15] ajoute un dernier niveau de complexité au modèle analytique. La longueur de la pièce, L, est prise en compte et le terme analytique servant à retranscrire les effets physiques dans la partie courbée de la pièce est modifié. La nouvelle formulation s'écrit :

$$\begin{aligned}\Delta\theta = &-(\varepsilon_{22}^{\text{non}} + \nu_{23}\varepsilon_{33}^{\text{non}})\left[\theta + \frac{C(1 + e^{2aL})}{Ra\big(C - 1 - e^{2aL}(C + 1)\big)}\right] \\ &+\theta[(CTE_{11}^{\text{g}} - CTE_{22}^{\text{g}})\Delta T + (CSC_{11}^{\text{v}} - CSC_{22}^{\text{v}})]\end{aligned} \tag{3.7}$$

Avec :

$$C = \frac{e^{aR\theta} - e^{-aR\theta}}{e^{aR\theta} + e^{-aR\theta}} \tag{3.8}$$

À ce jour, la version du modèle par Ding et al., est la plus complexe qu'il est possible de trouver dans la littérature. Il sera nommé modèle 4 dans la suite de l'étude. Ces quatre versions du modèle analytique vont servir de base de comparaison pour notre modèle numérique, ainsi que pour les études de sensibilité qui seront présentées dans le Chapitre 4.

3.1.2 Comparaison des modèles analytiques

Nous avons vu dans la Section 3.1.1 que plusieurs versions d'un modèle analytique, permettant la prédiction du phénomène de spring back, avaient été développées dans la littérature. La première version, modèle 1, se concentrait uniquement sur les effets thermo-élastique avant que d'autres auteurs viennent ajouter les effets chimico-élastique, les effets liés à la géométrie et à la rigidité du matériau. Dans cette section, une rapide comparaison entre ces versions sera effectuée sur un cas simple. L'implémentation de ces modèles est effectuée sur Python.

3.1.2.a Cas étudié

La géométrie étudiée dans cette section est une géométrie dite "L-Shape", présentée dans la Fig. 3.1. La pièce est composée de deux branches reliées par un coude. La longueur des branches, L, est de 70 mm. Le rayon, R de ce coude est de 10 mm. L'épaisseur totale est fixée à 3mm. L'angle entre les deux branches du L est de 90°. L'empilement utilisé pour cette pièce est composé de couches unidirectionnelles toutes orientées dans le sens du L. Les fibres sont orientées dans la direction X. Concernant les conditions aux limites, aucune précision n'est faite dans les modèles analytiques, l'hypothèse d'un corps libre est donc admise. Les propriétés matériaux utilisées seront présentées dans la Section 3.3.1.

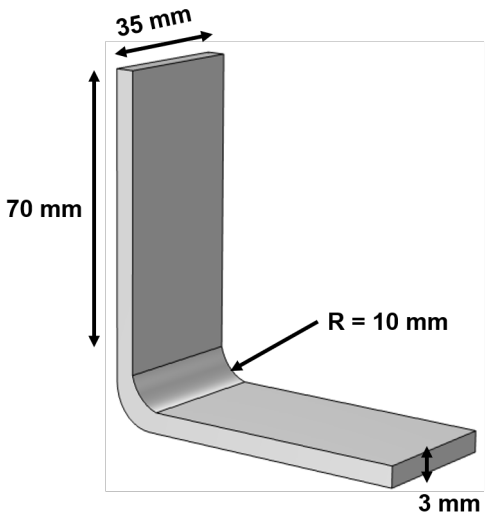


FIGURE 3.1 – Illustration de la géométrie "L Shape" utilisée pour la comparaison des modèles analytiques

Le cycle de température utilisé pour cette étude, est celui recommandé par le fabricant [34]. Il commence par une montée en température de 20 à 135 °C. La température est ensuite maintenue à 135 °C pendant 60 minutes. Une seconde montée en température porte le système à 180 °C. La pièce durcit pendant 120 minutes puis elle est refroidie jusqu'à la température initiale. Le cycle a été représenté dans la Fig. 2.3. Comme vu précédemment, les modèles analytiques considèrent une variation de température, ΔT. Cette variation correspond à la phase de descente du cycle de cuisson, c'est à dire, à l'écart entre la température de palier et la température initiale. Dans notre cas $\Delta T = 160$ °C.

3.1.2.b Résultats

Les résultats de la comparaison des différents modèles analytiques, appliqués à la configuration préalablement présentée, sont présentés dans la Fig. 3.2. Ils représentent l'écart $\Delta\theta$ par rapport au 90° initiaux. Les quatre modèles conduisent à des prédictions significativement différentes du phénomène de spring back. L'écart relative entre la prédiction la plus faible, issue du modèle n°1, et la valeur prédite la plus haute, celle du modèle n°2, est de 72 %. Ces écarts sont explicables par le degré de complexité propre à chaque modèle. Les modèles les plus complexes prennent en considération un plus grand nombre de mécanismes physiques, dont certains peuvent accentuer ou au contraire atténuer la valeur du spring back.

Le modèle n°1 montre que s'intéresser seulement à l'effet de l'anisotropie des coefficients de dilatation thermique entraîne une prédiction très faible du spring back. À contrario, le modèle n°2 ajoute, à cette anisotropie thermo-mécanique, l'effet de l'anisotropie des changements volumiques de la résine au cours de sa polymérisation, modéliser par les coefficients de retrait chimique. Cela conduit à une prédiction de la valeur du spring back plus importante. Les modèles les plus complexes, modèle 3 et modèle 4, prédisent des valeurs de spring back intermédiaires. La prise en compte de la rigidité du matériau ainsi que de sa géométrie permettent d'atténuer le spring back.

Les résultats obtenus dans cette section sont cohérents avec les observations réalisées par Ding et al. [15]. Dans leur travail, les auteurs remarquent que les valeurs de spring back prédites par les modèles analytiques suivent la même tendance que nos résultats. Cette concordance nous permet de valider notre méthode d'implémentation des modèles analytiques et ils pourront servir de comparaison pour notre modèle numérique.

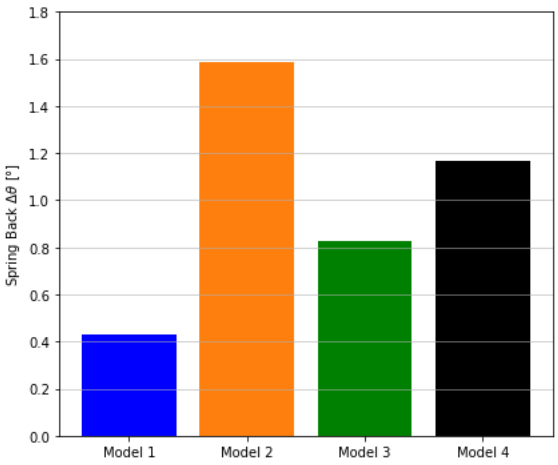


FIGURE 3.2 – Comparaison de la valeur de spring back prédite par les modèles analytiques sur une configuration "L Shape"

3.2 Modèle numérique

La modélisation du phénomène de spring-back est réalisée à l'aide d'un outil numérique développé sous le logiciel Comsol Multiphysics®. Comsol est un logiciel de modélisation basé sur la théorie des éléments finis. Avec son approche basée sur les équations partielles, Comsol permet de traiter des problèmes multi-physiques dans des domaines variés.

3.2.1 Architecture globale du modèle

Le phénomène de spring back est un phénomène multiphysique complexe. Des effets thermo-chimiques, se déroulant durant la cuisson du composite, génère des contraintes résiduelles qui sont relâchées au moment du démoulage de la pièce. La simulation d'un tel phénomène requiert une caractérisation fine du matériau ainsi que d'un modèle numérique permettent la simulation des différentes interactions entre les physiques impliquées lors de la polymérisation de la résine. Dans cette section, le modèle numérique développé durant ces travaux de thèse est présenté en détail. L'architecture de l'outil numérique est schématisée dans la Fig. 3.3, le modèle étant composé de trois modules physiques couplés les uns aux autres. Les entrées du modèle sont la géométrie de la pièce étudiée, les propriétés matériaux et le cycle de cuisson utilisé. Les propriétés matériaux utilisées pour cette simulation sont soit issus de la caractérisation de la matière réalisée au LTDS et présentée dans le Chapitre 2, soit issus de recherches bibliographiques. La sortie du modèle est la prédiction de la valeur du spring back.

3.2.1.a Module cinétique

Comme détaillé dans le Chapitre 2, le module cinétique se concentre sur la modélisation de la réaction chimique de la résine thermodurcissable. Sa fonction principale est de déterminer le degré d'avancement de la polymérisation α, ainsi que de calculer la valeur de la température de transition vitreuse, T_g, à chaque instant t de la simulation. Le modèle cinétique utilisé est celui développer par Kamal et Sourour [42] et son expression est rappelée dans l'Eq. 3.9.

$$\frac{\mathrm{d}\alpha}{\mathrm{d}t} = (K_1 + K_2\alpha^m)(1-\alpha)^n \tag{3.9}$$

L'évolution de la température de transition vitreuse est modélisée par le modèle de Di Benedetto, rappelé dans l'Eq. 3.10.

$$T_g = T_{g0} + \frac{\lambda\alpha(T_{g\infty} - T_{g0})}{1-(1-\lambda)\alpha} \tag{3.10}$$

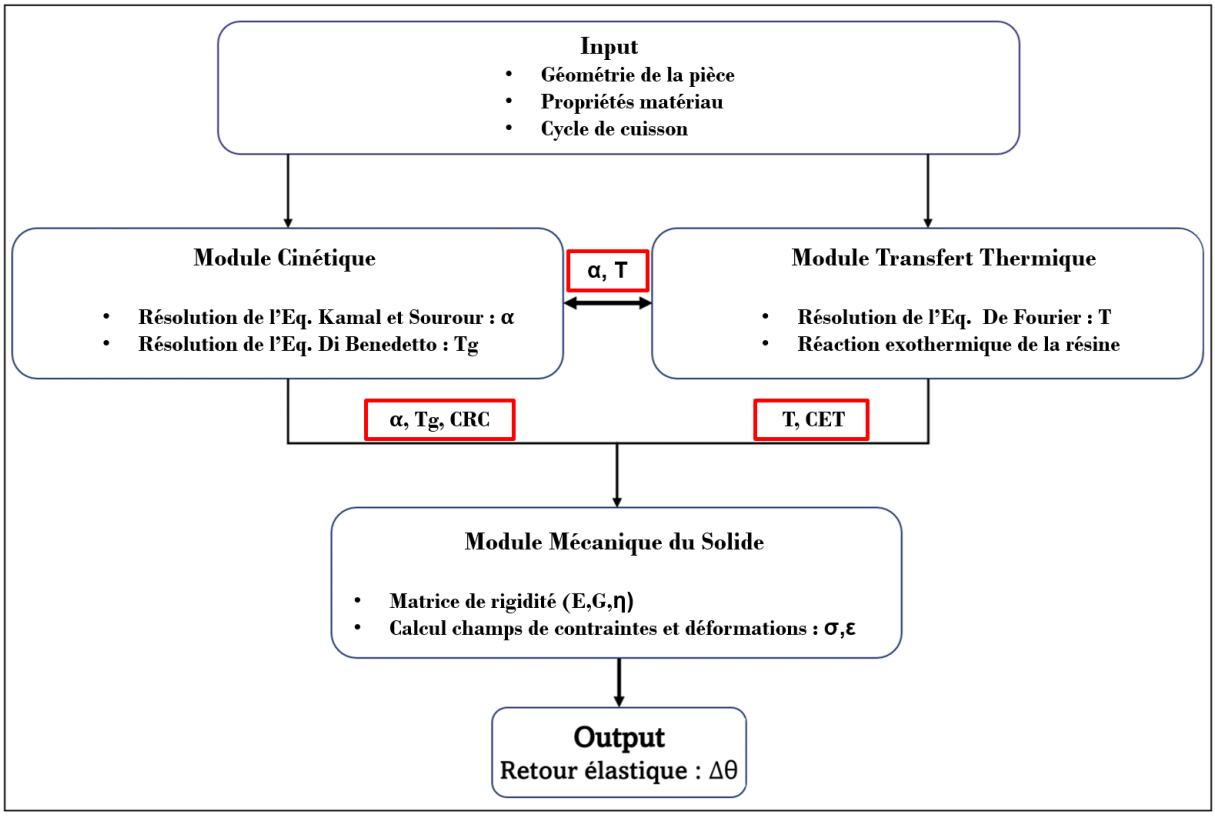


FIGURE 3.3 – Architecture du modèle numérique multiphysique

3.2.1.b Module thermique

Le module thermique est défini par l'équation de la chaleur introduite par Fourier et présentée dans l'Eq. 3.11. À cette équation, il faut ajouter le terme source modélisant le caractère exothermique de la polymérisation de la résine M21E.

$$\rho_c C p_c \frac{\partial T}{\partial t} = \mathrm{div}(\lambda_c \mathrm{grad}(T)) + \rho_r \Delta H_{tot} V_r \frac{\mathrm{d}\alpha}{\mathrm{d}t} \tag{3.11}$$

ρ_c et ρ_r sont les masses volumiques respectivement du composite et de la résine, V_r est la fraction volumique de la résine, C_p représente la capacité calorifique du composite et λ_c est la conductivité thermique du composite. Cette équation donne la température à tout instant et à n'importe quel point du système. La température T et le degré d'avancement α assurent le couplage entre le module thermique et le module cinétique.

3.2.1.c Module mécanique

Pour finir la description du modèle, le choix pour le module mécanique s'est basé sur la loi constitutive d'un matériau anisotrope élastique linéaire, définie dans l'Eq. 3.12.

$$\sigma_{ij} = C_{ijkl}(\alpha, T)\, \varepsilon_{kl} \tag{3.12}$$

Avec σ_{ij} et ε_{kl}, le tenseur des contraintes et des déformations et $C_{ijkl}(\alpha, T)$ est la matrice de rigidité du matériau. Comme vu précédemment, les propriétés mécaniques de la résine ne sont pas invariantes au cours de la simulation, elles dépendent de la phase dans laquelle se trouve la résine (visqueuse, gélifiée, vitreuse). Il faut donc inclure une dépendance des composants de la matrice C_{ijkl} vis à vis du degré d'avancement de la polymérisation, α, et de la température, T. Ces dépendances sont assurées par le modèle CHILE modifié par Khoun et al. [49]. Trois hypothèses sont admises :

— Le matériau est considéré isotrope transverse.
— Les coefficients de Poisson sont constants durant la polymérisation.
— Les paramètres mécaniques des fibres de carbone restent constants durant la cuisson de la pièce.

La première hypothèse permet de réduire le nombre de composants de la matrice de rigidité :

$$C_{ijkl} = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ & C_{22} & C_{23} & 0 & 0 & 0 \\ & & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ & \textit{Symétrique} & & C_{44} & 0 & 0 \\ & & & & C_{55} & 0 \\ & & & & & C_{66} \end{bmatrix} \tag{3.13}$$

Avec $C_{22} = C_{33}$ et $C_{55} = C_{66}$, pour un matériau isotrope transverse.

Le modèle CHILE s'applique uniquement sur les paramètres mécaniques de la résine, E_r et G_r. La résine étant considérée comme un matériau isotrope, le modèle CHILE s'écrit alors pour $E_r(\alpha, T)$:

$$E_r(\alpha,T) = \begin{cases} E_1 & T^* < T^*_{C1} \\ E_2 + \frac{T^*-T^*_{C2}}{T^*_{C1}-T^*_{C2}} \times (E_1 - E_2) & T^*_{C1} \leq T^* < T^*_{C2} \\ E_3 + \frac{T^*-T^*_{C3}}{T^*_{C2}-T^*_{C3}} \times (E_2 - E_3) & T^*_{C2} \leq T^* < T^*_{C3} \\ A_E \exp(-K_E T^*) & T^*_{C3} \leq T^* < T^*_{C4} \\ E_4 & T^* > T^*_{C4} \end{cases} \tag{3.14}$$

Et pour $G_r(\alpha,T)$:

$$G_r(\alpha,T) = \begin{cases} G_1 & T^* < T^*_{C1} \\ G_2 + \frac{T^*-T^*_{C2}}{T^*_{C1}-T^*_{C2}} \times (G_1 - G_2) & T^*_{C1} \leq T^* < T^*_{C2} \\ G_3 + \frac{T^*-T^*_{C3}}{T^*_{C2}-T^*_{C3}} \times (G_2 - G_3) & T^*_{C2} \leq T^* < T^*_{C3} \\ A_G \exp(-K_G T^*) & T^*_{C3} \leq T^* < T^*_{C4} \\ G_4 & T^* > T^*_{C4} \end{cases} \tag{3.15}$$

Les différents paramètres de ces modèles CHILE ont été identifiés dans la Section. 2.7.

Concernant les déformations, le système est soumis à deux types de déformation : les déformations d'origine thermique, liées à l'expansion thermique, et les déformations d'origine chimique, liées au retrait chimique de la résine. Elles sont alors notées :

$$\varepsilon_{kl} = \varepsilon_{kl}^{thermique} + \varepsilon_{kl}^{chimique} \tag{3.16}$$

$$\varepsilon^{thermique} = \int_0^t CET(T,\alpha)\frac{\partial T}{\partial t}\mathrm{d}t \quad et \quad \varepsilon^{chimique} = \int_0^t CRC(T,\alpha)\frac{\partial \alpha}{\partial t}\mathrm{d}t \tag{3.17}$$

CET et CRC sont respectivement les coefficients d'expansion thermique et de retrait chimique. Comme pour la matrice de rigidité, ces valeurs ne sont pas fixes et dépendent de la phase, de la température ainsi que du degré d'avancement α.

Trois états physiques sont considérés pour le module mécanique, l'état liquide visqueux, l'état caoutchoutique et l'état vitreux. L'état physique où se trouve le matériau dépend de la gélification et de la vitrification de la résine. La caractérisation à l'aide de la DMA a permis d'identifier le temps et la température de gélification et de vitrification. À partir des essais DMA couplés à des essais DSC, présentés dans la Section 2.5, le degré d'avancement au point de gel, α_{gel} a été défini dans une gamme de valeur, celle-ci se situe entre : $\alpha \in [0.5, 0.55]$.

3.3 Modélisation de l'effet Spring Back sur une forme "L Shape"

Cette section présente la modélisation de l'effet spring back sur une forme géométrique simplifiée dite en "L Shape". Pour réaliser ces travaux, deux techniques de modélisation différents ont été utilisés. La première technique est la réalisation d'une géométrie numérique en solide 3D à laquelle les propriétés matériaux homogénéisées sont appliquées. Cette première méthode est plus simple d'utilisation et est moins coûteuse en temps de calcul mais elle s'adapte moins bien à l'utilisation industrielle car elle nécessite de recalculer l'homogénéisation des propriétés à chaque fois que l'empilement ou l'épaisseur sont modifiés. Le second modèle adopte, à l'aide du module composite de Comsol, une approche différente en utilisant un empilement de coques minces. Cette méthode consiste à modéliser chaque couche du stratifié comme une entité distincte, ce qui permet de mieux représenter la structure multicouche et permet de observer les effets spécifiques de chaque couche. Chaque couche est traitée comme une fine plaque avec ses propres propriétés mécaniques. Elle donne également la possibilité de créer des stratifiés hybrides composés de couches de matériau différent, ce qui permettrait d'inclure les couches de thermoplastique décrite précédemment. Ce modèle s'adapte mieux à l'utilisation industrielle, car les différentes orientations et épaisseurs sont facilement modifiables.

3.3.1 Propriétés du matériau utilisé

Le matériau utilisé dans le cadre de cette étude est un préimprégné composé de fibre de carbone HexTow® IMA 12K et d'une résine epoxy HexPly® M21E. Les propriétés macroscopiques du matériau utilisées doivent être connues et serviront d'input au modèle numérique. Les propriétés de la résine M21E dépendent de l'état (liquide visqueux, caoutchoutique ou vitreux) dans laquelle elle se trouve, ils évoluent donc durant le procédé de fabrication de la pièce. La résine est considérée comme un matériau isotrope. Les propriétés mécaniques des fibres de carbone et de la résine vitrifiée sont regroupées dans la Tab 3.1 et la Tab 3.2.

Propriété fibre de carbone IMA-12K	Symbole	Valeur	Unité
Module Young direction longitudinal des fibres	E_{11}^f	275	GPa
Module Young direction transversal des fibres	E_{22}^f,E_{33}^f	20	GPa
Module de cisaillement direction longitudinal	G_{12}^f	114	GPa
Module de cisaillement direction transversal	G_{13}^f , G_{23}^f	8.33	GPa
Coefficient de Poisson longi - transverse	ν_{12}, ν_{13}	0.2	1
Coefficient de Poisson transverse - transverse	ν_{23}	0.35	1
Fraction volumique fibre	V_f	59.2	%
Densité fibre	ρ_f	1.79	g/cm^3
Épaisseur du pli cuit	th	0.184	mm

TABLE 3.1 – Récapitulatif des propriétés des fibres IMA 12K fournies par HexTow®

Propriété résine M21E	Symbole	Valeur	Unité
Module Young vitrifié	E_r	3	GPa
Module de cisaillement vitrifié	Gr	1.11	GPa
Coefficient de Poisson	ν_r	0.35	1
Densité résine	ρ_r	1.28	g/cm^3

TABLE 3.2 – Récapitulatif des propriétés de la résine M21E vitrifiée fournies par HexPly®

Concernant les coefficients d'expansion thermique CET, plusieurs études confirment qu'il n'est pas constant durant le processus de polymérisation de la résine thermodurcissable [109, 55]. Une loi des mélanges est utilisée pour tenir compte de l'état de polymérisation de la résine (Eq 3.18).

$$CET(\alpha) = CET_{cru}(1-\alpha) + CET_{cuit}(\alpha) \tag{3.18}$$

À ce stade de l'étude, la valeur des coefficients sélectionnés pour notre simulation, est issue de la littérature . Les travaux de thèse de Sfar Zbed [110] se sont concentrés sur la caractérisation des CET et CRC. À l'aide d'une méthode expérimentale, elle a pu mesurer les déformations chimiques et thermiques, lors de cuisson d'échantillons de nature proche de la matière que nous utilisons. À partir de ces déformations, elle a pu remonter aux valeurs des différents coefficients CET et CRC. Ces valeurs sont récapitulées dans la Tab 3.3. Le coefficient d'expansion thermique dans le sens des fibres, CET_{11}, et le coefficient de retrait chimique dans cette même direction, CRC_{11}, sont supposés nuls.

Paramètre	Valeur	Unité
CET_{11}^{cru}	0	$10^{-}6\ K^{-1}$
CET_{22}^{cru}	105	$10^{-}6\ K^{-1}$
CET_{33}^{cru}	182	$10^{-}6\ K^{-1}$
CET_{11}^{cuit}	0	$10^{-}6\ K^{-1}$
CET_{22}^{cuit}	39	$10^{-}6\ K^{-1}$
CET_{33}^{cuit}	55	$10^{-}6\ K^{-1}$
CRC_{11}	0	%
CRC_{22}	-1.4	%
CRC_{33}	-2.07	%

TABLE 3.3 – Valeurs des coefficients CET et CRC sélectionnées [110]

3.3.2 Géométrie et conditions aux limites

Pour commencer l'évaluation du spring back à l'aide du modèle numérique, une première simulation sur la même géométrie que détaillée dans la Section 3.1.2.a et présentée dans la Fig. 3.1. Les branches du L mesurent 70 cm chacune, l'épaisseur est de 3 cm et la largeur est de 35 cm. Les simulations sont réalisées sur trois valeurs d'angle initial : 30°, 45° et 90°.

Pour concorder avec les conditions aux limites utilisées pour les modèles analytiques, nous cherchons à modéliser un corps libre. Comsol incorpore une option, nommée "Rigid Motion Suppression", qui permet d'imposer aucune condition aux limites mécaniques et simuler un corps libre dans l'espace. Pour cela, le logiciel impose de faibles contraintes fictives pour empêcher les translations et les rotations du corps rigide. Les contraintes sont sélectionnées de manière à ce qu'il n'y ait pas de force de réaction si les charges externes sont auto-équilibrées. En fonction de la géométrie du matériau, la contrainte sera appliquée à un, deux ou trois points, selon les besoins. Ces points sont automatiquement choisis par le logiciel [10].

En plus des conditions aux limites mécaniques, il faut ajouter les conditions aux limites thermiques, qui représentent la chauffe de la pièce dans l'autoclave. Ces dernières sont sous la forme d'une température imposée aux faces en contact avec les deux moules utilisés durant la cuisson de la pièce. Le profil de température des conditions aux limites thermiques suivent le cycle de cuisson, préalablement présenté dans Fig. 2.3.

3.3.3 Maillage et solveur

Le maillage utilisé pour cette section est présenté dans la Fig. 3.4. Il est constitué de 1020 éléments de type hexaèdre. Le coude est la partie la plus finement maillée car c'est la partie la plus critique. Les propriétés matériaux sont définis selon un repère associé à chaque point du maillage et ces repères suivent la forme géométrique. Dans le coude, le repère change d'orientation à chaque point de maillage pour suivre la courbure de la pièce. Un maillage plus fin implique d'avantage d'orientation de repère et donc une meilleure représentation physique. Le solveur temporel implicite Backward Differentiation Formula (BDF) de Comsol est utilisé pour la résolution numérique.

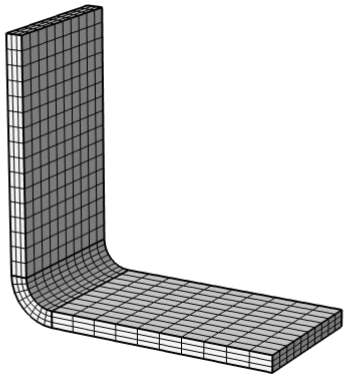


FIGURE 3.4 – Maillage utilisé pour la pièce L Shape

3.3.4 Méthodologie pour la détermination numérique du Spring Back

Pour suivre numériquement le développement du spring back, des points numériques sont définis sur la structure, comme montré sur la Fig 3.5. À partir de ces points, deux vecteurs sont constitués, $\overrightarrow{AB}$ et $\overrightarrow{CD}$. La formulation trigonométrique de l'Éq 3.19 est utilisée pour déterminer l'angle entre ces deux vecteurs. Au numérateur, le produit scalaire entre les deux vecteurs et au dénominateur se trouve le produit des normes des vecteurs. Le rapport entre ces deux entités nous permet de retrouver le cosinus de l'angle et donc θ. Le calcul de cet angle peut se faire à la fin de chaque itération pour permettre le suivie du développement du spring back durant la totalité de la simulation de cuisson.

$$cos\theta = \frac{\overrightarrow{AB} \cdot \overrightarrow{CD}}{||\overrightarrow{AB}|| \cdot ||\overrightarrow{CD}||} \tag{3.19}$$

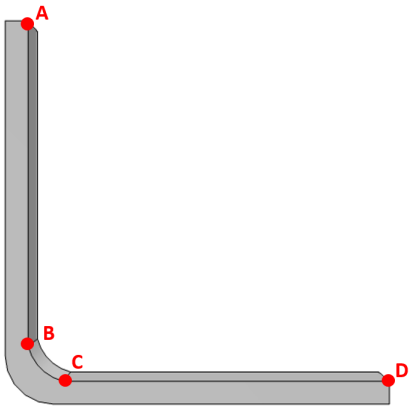


FIGURE 3.5 – Points utilisés pour déterminer le spring back

3.3.5 Résultat

Dans cette section résultats, plusieurs comparaisons seront effectuées. Tout d'abord, les résultats du modèle 3D sur la pièce de type "L-Shape" seront présentés. Ils nous permettront de valider le couplage entre les physiques en observant la variation de l'angle entre les deux branches du L pendant le cycle de cuisson. Ensuite, un modèle alternatif, utilisant un module composite, développé par Comsol, permettant de définir le matériau couche par couche sera comparé au modèle 3D. Pour finir, les résultats des modèles numériques seront confrontés aux modèles analytiques, précédemment définis. Cette comparaison permettra d'avoir une première idée de la cohérence des résultats obtenus.

3.3.5.a Modèle 3D sur une configuration "L Shape"

La déformée de la pièce issue de la simulation numérique est présentée dans la Fig 3.6. Les déplacements de l'arrête supérieure et de l'arête inférieure du L, en fin de simulation, confirment que l'effet spring back a diminué l'angle entre les branches.

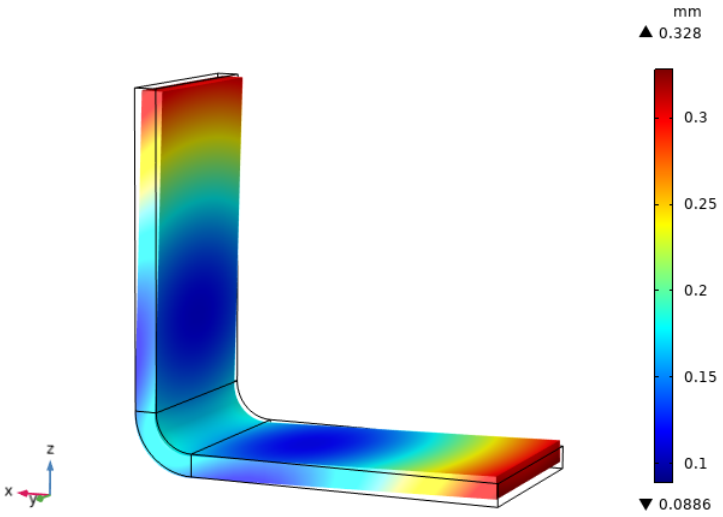


FIGURE 3.6 – Déformée de la pièce en fin de cuisson

Le modèle cinétique, développé dans Chapitre 2, prédit une cuisson maximale de la résine à 95% comme indiqué dans la Fig. 3.7.

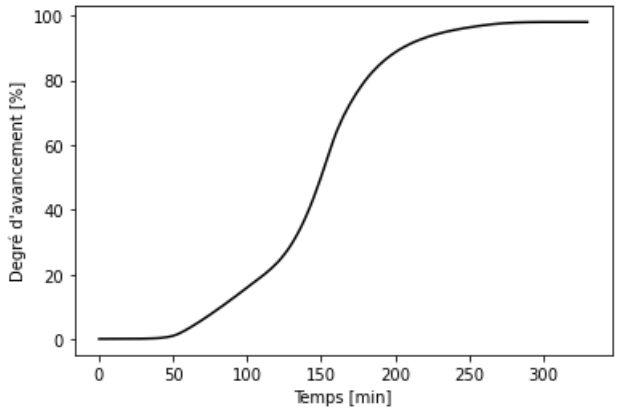


FIGURE 3.7 – Évolution du taux de polymérisation α en fonction du temps

Concernant la température, elle est quasiment homogène au sein de la pièce, comme présenté dans la Fig 3.8. La pièce est trop fine pour que la chaleur produite par la réaction exothermique de la résine puise provoquer un gradient de température dans de la structure.

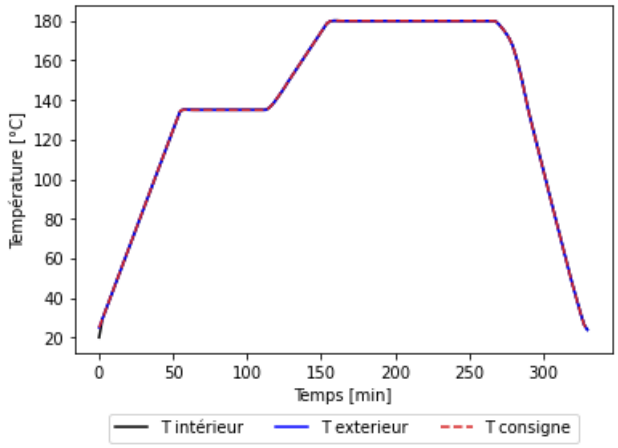


FIGURE 3.8 – Comparaison de la température à différent endroit de la pièce

L'évolution de l'angle θ durant la simulation est présentée dans la Fig. 3.5. La valeur de l'angle θ est initialement de 90°. Dans un premier temps, durant la première montée en température du cycle thermique, la valeur du spring back, $\Delta\theta$, augmente pour atteindre 1.23°. Cette augmentation est liée à l'expansion thermique du matériau. Ensuite, la valeur de l'angle varie peu jusqu'à ce que $\alpha = \alpha_{gel}$. À ce stade précis, la résine, qui était jusqu'alors dans un état quasi-liquide, commence à se transformer progressivement en un gel. Cette gélification marque le début du développement de la rigidité de la résine. C'est précisément pendant cette phase de transition que nous pouvons observer l'apparition du phénomène de rétrécissement chimique. Ce rétrécissement commence alors à exercer une influence importante sur la valeur de l'angle θ, entraînant une diminution de celui-ci et par conséquent, le commencement de l'effet spring back. Le rétrécissement chimique agit dans un premier temps seul car le système se trouve au palier de température de 180°C. L'impact du rétrécissement chimique sur le spring back s'arrête au moment ou $\alpha_{max}(\approx 95\%)$ est atteint. Dès lors, la température imposée dans l'autoclave descend jusqu'à température ambiante. La valeur de θ continue de diminuer piloter, cette fois-ci, par la compaction thermique qui survient en réponse à la baisse de la température pour finalement atteindre sa valeur définitive de $-1.02°$. La différence entre $\theta_{initial}$ et θ_{final} est donc de $-1.02°$, ce qui représente la distorsion géométrique finale de la pièce.

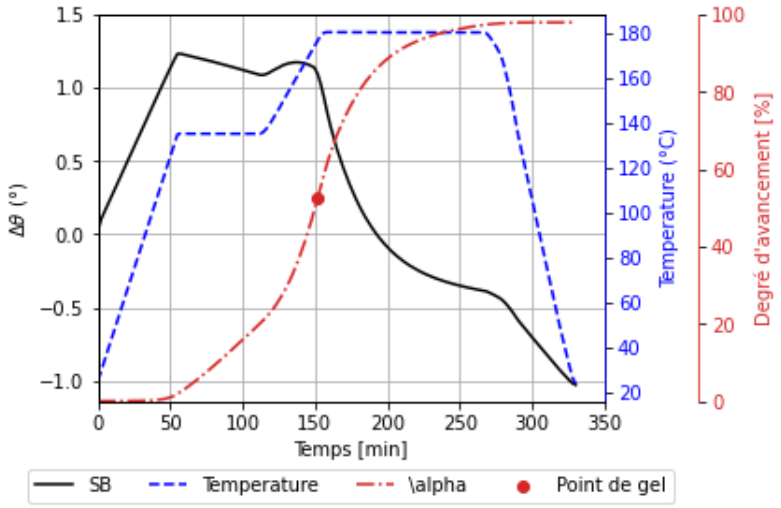


FIGURE 3.9 – Évolution de l'ange θ au cours de la simulation

3.3.5.b Comparaison modèle 3D / modèle coque mince

L'évolution de l'ange θ au cours de la simulation, calculé à l'aide de l'Eq 3.19, est présentée dans la Fig 3.9. Pour rappel, deux types de modèles ont été implémentés : un en utilisant une géométrie 3D à partir de laquelle les propriétés matériaux sont appliquées et le second utilisant un empilement de coque mince représentant les couches du stratifié. Une comparaison entre ces deux modèles est d'abord réalisée et les résultats sont présentés dans la Fig 3.10. Les deux modèles prédisent un développement du spring back de façon très similaire. Seule une légère différence est

observable au moment de la seconde montée en température, où la dilatation thermique s'efface au profit de la compaction chimique. Cette similitude des résultats finaux, en dépit des méthodologies distinctes, suggère que les deux modèles sont robustes pour prédire le comportement mécanique du composite.

À l'inverse, en ce qui concerne le temps de calcul, le modèle coque mince se révèle être nettement plus coûteux que le modèle solide 3D. Cette disparité s'explique principalement par la différence significative dans le nombre de degrés de liberté que chaque modèle doit gérer pour converger. Le modèle coque mince nécessite l'incorporation d'environ 2 700 éléments de maillage pour représenter les différentes couches du matériau. En comparaison, le modèle solide 3D, qui adopte une approche plus volumique, se contente de seulement 650 éléments de maillage pour la même simulation. Cette différence est due à la nature même du modèle de coque mince, qui définit un maillage distinct pour chaque couche individuelle du stratifié. En effet, chaque couche du modèle coque mince est modélisée comme une coque distincte, ce qui implique une subdivision fine et précise pour capturer la réponse mécanique de la dite couche et des potentielles interactions entre-elles. Cette approche, bien que plus détaillée et potentiellement plus précise pour certaines analyses, entraîne une augmentation considérable du nombre d'éléments à simuler et, par conséquent, du nombre de degrés de liberté à résoudre. La différence de résultat faible entre les deux techniques de modélisations nous permet de choisir entre les deux modèles suivant le problème étudier.

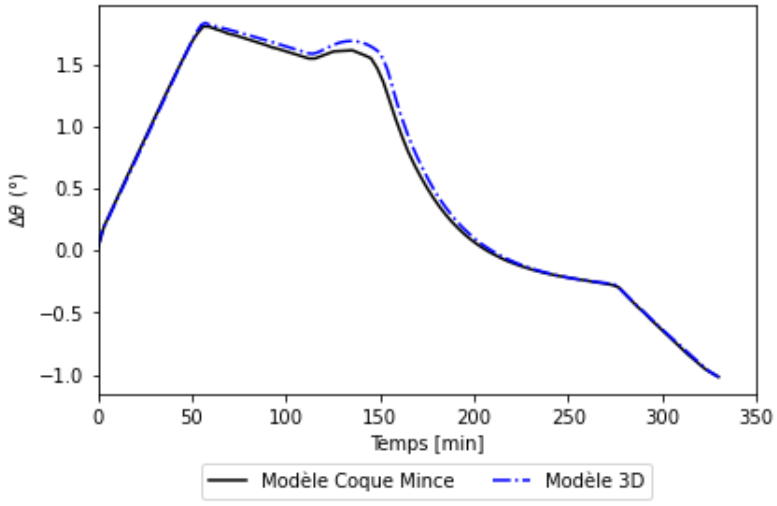


FIGURE 3.10 – Comparaison de l'évolution de l'ange θ sur un pièce "L Shape" unidirectionnelle pour les deux types de modèle utilisés

3.3.5.c Comparaison avec les modèles analytiques

Il a été démontré dans la section précédente que le modèle numérique présente un comportement cohérent. Le couplage entre les différentes physiques est correctement implémenté, comme en témoigne l'évolution réaliste des déformations observées au

cours du cycle thermique.

Pour valider les prédictions du modèle numérique, elles sont comparées aux prédictions obtenues par les différents modèles analytiques issus de la littérature. Cette comparaison est réalisée pour trois angles initiaux différents : 30°, 45° et 90°. Les résultats sont présentés dans la Fig. 3.11.

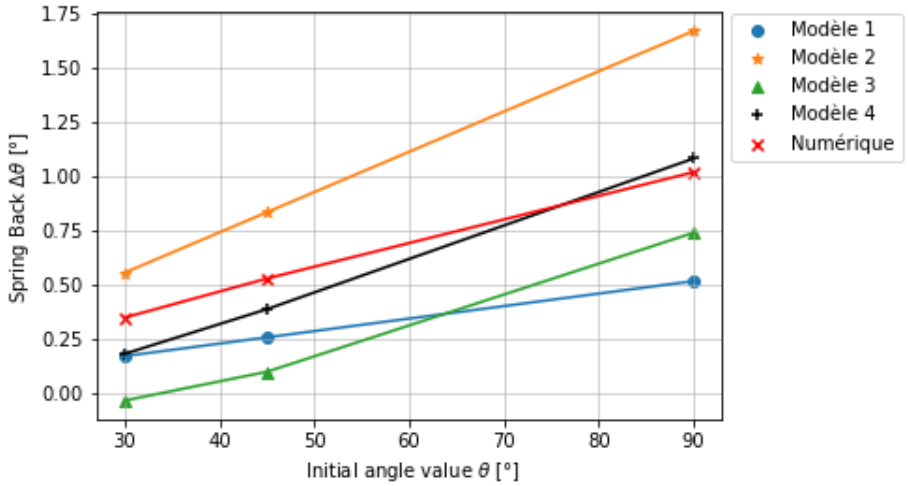


FIGURE 3.11 – Comparaison des prédictions de spring back réalisées par les différents modèles analytique et numérique

Les prédictions du modèle numérique, représentées par la courbe rouge et les marqueurs en croix, sont proches des prédictions du modèle n°4 pour les trois différents angles initiaux. Ce rapprochement avec le modèle analytique le plus complexe est encourageant, et constitue une première validation qualitative de la pertinence de notre approche numérique.

Les résultats présentés dans cette section ont permis d'aboutir à des premières validation quant à la cohérence de la simulation numérique développée dans cette thèse. La figure montrant l'évolution du spring back au cours de la simulation (Fig.3.9) a montré que les couplages, faisant le lien entre les différents modules, fonctionnent correctement.
Les deux approches présentées, le modèle 3D et le modèle coques minces, ont des prédictions du spring back similaire. Comme chaque technique de modélisation est adaptée à une utilisation précise, ces deux outils nous permettent de couvrir efficacement des configurations d'entrées différentes. Le modèle 3D est plus adapté à des géométries complexes mais pour des configurations d'empilement simple et le modèle coque mince, est plus adapté à des géométries plus simplistes mais permet de complexifier l'organisation des différentes couches du composite. Pour finir, la confrontation entre les modèles numériques et analytiques a permis de montrer que les modèles numériques prédisent des valeurs de spring back similaire au modèle analytique dans sa forme la plus complexe (modèle n°4) et permet de valider la cohérence des résultats obtenus. Cependant, cette étude n'est pas suffisante pour

conclure sur la robustesse de notre modèle. Une validation expérimentale est nécessaire pour statuer de la consistance du modèle numérique.

3.4 Validation du modèle

Dans la section précédente, une étude numérique a permis de montrer que les prédictions du spring back, réalisées par le modèle numérique développé dans cette thèse, sont cohérentes. Cependant, une validation expérimentale reste primordiale pour valider la consistance de ce modèle numérique. Dans cette section, le protocole expérimental de la validation du modèle est présenté ainsi que les résultats de la mise en confrontation entre les travaux expérimentaux et la simulation numérique.

3.4.1 Protocole expérimental

Une expérience de validation est mise en place pour confirmer la précision et la robustesse du modèle numérique. Pour cela, deux moules en aluminium sont fabriqués au sein du laboratoire. Ces moules présentent un angle, noté γ, de 30° et de 90°. La géométrie des moules est schématisée dans la Fig. 3.12.

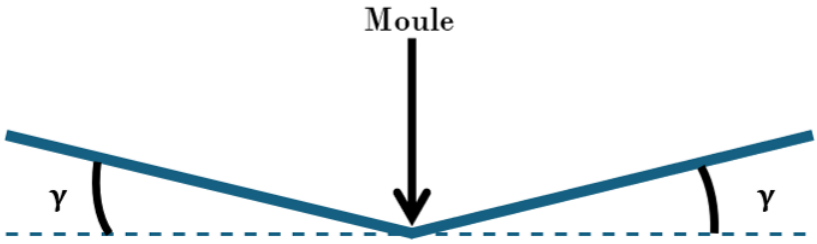


FIGURE 3.12 – Représentation schématique de la géométrie des moules

L'épaisseur des moules est de 5 cm. Les moules ont été mis en forme, à partir d'une plaque d'aluminium, par une méthode de pliage. Cette méthode n'étant pas extrêmement précise, la géométrie des moules a été contrôlée au palpeur tridimensionnel. Le palpeur tridimensionnel permet la reconstruction numérique de la géométrie du moule à partir des points qu'il enregistre. Le logiciel utilisé pour cette reconstruction numérique possède un outil de mesure d'angle intégré. Cet outil est utilisé pour déterminer précisément l'angle des moules. La valeur de l'angle du moule sélectionnée, qui sera également la valeur d'angle initial des échantillons composites, est la moyenne de ces trois mesures. En effectuant cette vérification géométrique, il est apparu que la valeur de l'angle γ n'est pas homogène dans la totalité de la longueur de la plaque. Trois échantillons sont cuits en même temps sur chaque plaque, ils sont espacés dans la longueur de celle-ci. Comme nous nous intéressons à des phénomènes d'ampleur très faible et dans l'objectif d'avoir des mesures les plus précises possibles, nous avons effectué des mesures sur chaque zone d'accueil des échantillons. Ces mesures sont présentées dans la Tab. 3.4 et la Tab. 3.5. Ces tables valident l'observation de l'hétérogénéité géométrique des moules. L'erreur relative est de 1.36 % entre le γ de la zone 1 et de la zone 2 pour le moule 30° et l'erreur relative est de 0.76 % entre

le γ de la zone 1 et de la zone 2 pour le moule 90°.

Zone	1	2	3
Mesure n°1	29.877	30.328	30.118
Mesure n°2	29.971	30.296	30.160
Mesure n°3	29.844	30.305	30.162
Moyenne	**29.897**	**30.309**	**30.147**
Écart type	0.066	0.017	0.025

TABLE 3.4 – Mesures des angles γ pour les 3 zones d'accueil du moule 30°

Zone	1	2	3
Mesure n°1	90.099	89.374	89.861
Mesure n°2	90.209	89.497	89.838
Mesure n°3	90.101	89.489	89.823
Moyenne	**90.136**	**89.453**	**89.841**
Écart type	0.063	0.069	0.020

TABLE 3.5 – Mesures des angles γ pour les 3 zones d'accueil du moule 90°

Concernant les échantillons composites, trois types d'empilement ont été retenus : une configuration unidirectionnelle, une configuration comportant des orientations à 0°, 90° et 30°, dénommé configuration A, et une configuration comportante des orientations de 0° et 60°, dénommé configuration B. Les orientations complexes, que représentent les configurations A et B sont représentatives de l'utilisation industrielle dans le secteur aéronautique, mais pour des raisons de confidentialité, elles ne peuvent pas être détaillées avec précision dans ces travaux de thèse. Ces configurations sont comparées à plus large échelle dans le projet Ain-T-Graal. Chaque échantillon est composé de 16 plis, pour une épaisseur totale de 2.944 mm. Ce nombre de couches a été choisi car il est représentatif des configurations utilisées par Duqueine. Le rayon de courbure en contact avec le moule est de 10 mm. Pour une meilleure représentativité des cadres de fuselage, les échantillons ne sont pas symétriques, une branche est plus longue que l'autre. Un schéma représentant la géométrie des pièces déposées sur les moules est présenté dans la Fig. 3.13. Une photographie des équerres est également présentée. Duqueine s'est chargé de la fabrication des équerres, elles ont été mises en forme par les mêmes techniques qu'utilisées dans le procédé de fabrication des cadres de fuselage.

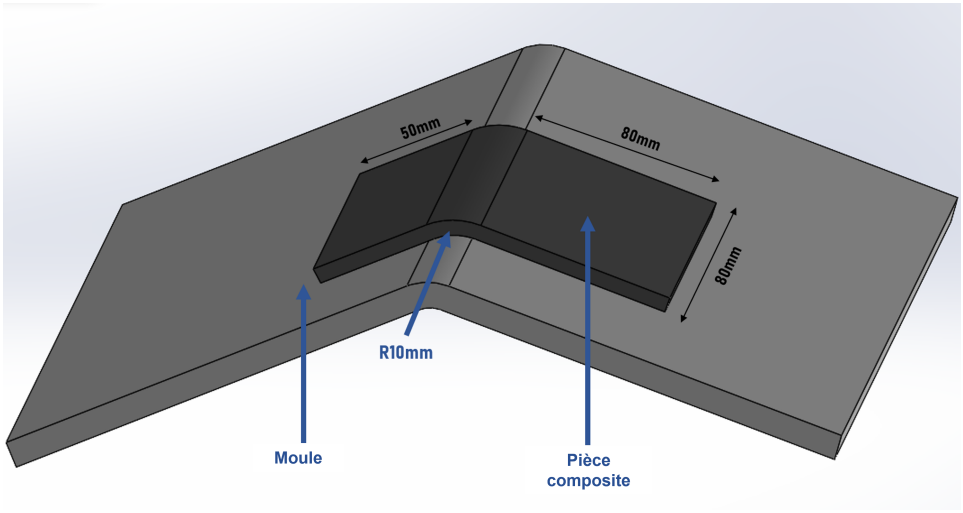
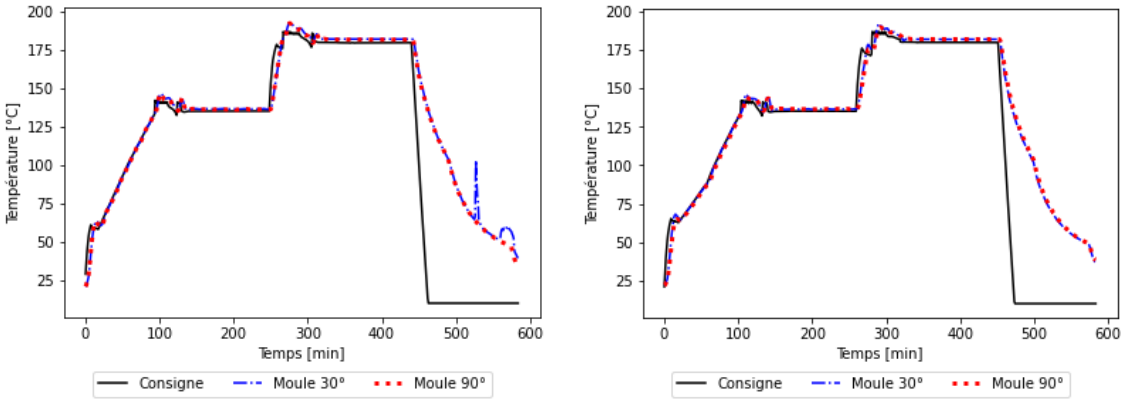


FIGURE 3.13 – Représentation schématique de la géométrie d'un échantillon composites sur le moule

Comme mentionné dans le paragraphe précédent, trois échantillons sont cuits simultanément sur un moule. Duqueine a positionné des thermocouples pour suivre précisément l'évolution de la température de consigne, du moule 30° et du moule 90° et nous a partagé ces données. Deux cuissons ont été réalisées dans les autoclaves de chez Duqueine et les données issues du suivi de ces deux cycles thermiques sont présentées dans la Fig. 3.14.



(a) Comparaison des températures de consigne, du moule 30° et du moule 90° pour le cycle de cuisson n°1

(b) Comparaison des températures de consigne, du moule 30° et du moule 90° pour le cycle de cuisson n°2

FIGURE 3.14 – Comparaison des températures de consigne, du moule 30° et du moule 90° pour les deux cycles de cuisson

La Fig. 3.14a représente l'évolution des températures de consigne, du moule 30° et du moule 90° enregistrées par les thermocouples associés pour le cycle n°1. Nous remarquons que la température de consigne et les températures associées aux moules

sont très proches jusqu'à la phase de refroidissement. Les autoclaves n'ayant pas de moyen de refroidissement contrôlé, il est normal que la température de consigne diffère des températures des moules dans cette phase du cycle. Observation identique pour le cycle n°2 présenté dans la Fig. 3.14b.

La mesure des éprouvettes est réalisée également au palpeur tridimensionnel. Une photographie des échantillons en train d'être mesurés est présentée dans la Fig. 3.15. N'ayant pas eu accès aux échantillons non polymérisés, l'hypothèse, que l'angle initial des échantillons est le même que l'angle des moules, est retenue.

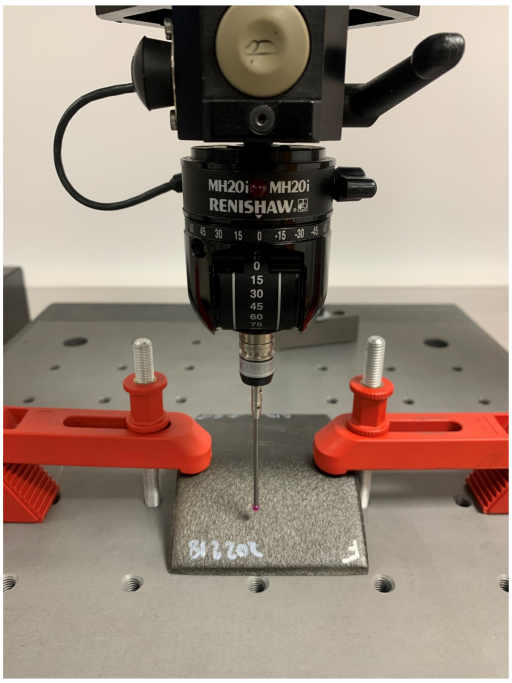


FIGURE 3.15 – Représentation schématique de la géométrie d'un échantillon composites sur le moule

La géométrie des échantillons est modélisée directement sur le logiciel Comsol, à l'aide de l'outil de conception interne du logiciel. La méthode vectorielle présentée dans la Section 3.3.4, est utilisée pour déterminer le spring back numérique. La modélisation numérique par coque mince est utilisée car elle est plus simple d'utilisation notamment pour représenter l'empilement complexe.

3.4.2 Résultat

Dans cette section, les résultats de la comparaison entre le spring back des échantillons expérimentaux et la simulation numérique sont discutés.

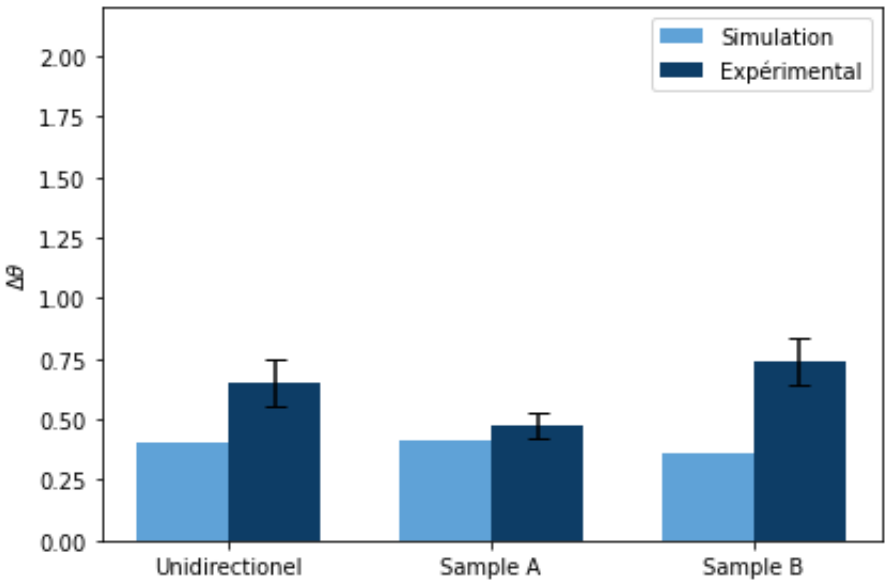


FIGURE 3.16 – Comparaison du spring back mesuré et du spring back prédit par la simulation pour le moule 30°

La Fig. 3.16 montre la comparaison entre les valeurs de spring back mesurées au palpeur tridimensionnel et des valeurs de spring back prédites par la simulation sur le moule 30°. Les incertitudes de mesure sont ajoutées au graphique pour les valeurs expérimentales. Elles correspondent à la somme des écart-types des mesures sur les moules et sur les échantillons. Les résultats montrent que la simulation est cohérente avec l'expérimental, les prédictions du modèle numérique étant proches des valeurs mesurées au palpeur tridimensionnel. Cependant, l'influence de l'empilement semble être moins impactant sur la simulation qu'observer expérimentalement. L'écart entre les trois configurations est plus important pour les valeurs mesurées que pour les valeurs prédites. Le modèle sous-estime le spring back pour les trois configurations.

La Fig. 3.17 montre la comparaison entre les valeurs de spring back mesurées au palpeur tridimensionnel et les valeurs de spring back prédites par la simulation sur le moule 90°. Les marges d'erreur sont plus importantes que pour le moule 30°. En prenant bien en compte les erreurs de mesure, la simulation prédit une nouvelle fois, de façon satisfaisante, les distorsions géométriques expérimentales. Pour le sample A et le sample B, le modèle numérique sous-estime le spring back, ce qui confirme la tendance observée dans la Fig. 3.16. Seuls les résultats sur l'échantillon unidirectionnel, où une surestimation du spring back par la simulation numérique est observable, suivent une tendance inverse. Cela peut être dû à l'intégrité de l'échantillon. Il est possible qu'il ait été endommagé durant le transport, ce qui expliquerait également pourquoi les différentes mesures qui ont été réalisées génèrent une erreur importante.

Bien que des améliorations du modèle numérique soient possibles, ces résultats permettent de confirmer la cohérence et la robustesse du modèle numérique développé dans ces travaux de thèse. Le modèle numérique peut maintenant être implémenté sur une géométrie plus complexe, que représente le cadre de fuselage.

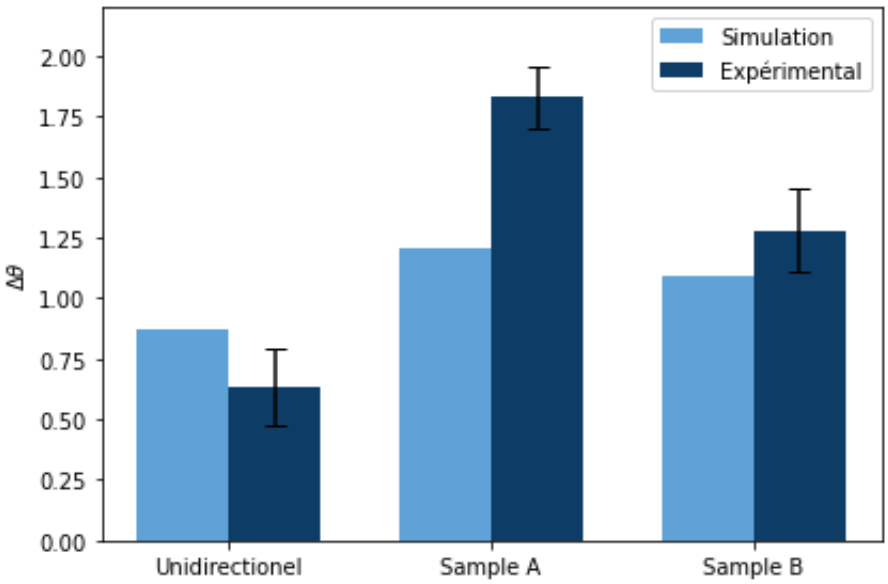


FIGURE 3.17 – Comparaison du spring back mesuré et du spring back prédit par la simulation pour le moule 90°

3.5 Modélisation des distorsions géométriques sur un cadre de fuselage

Dans cette section, le modèle numérique est implémenté sur la géométrie du cadre de fuselage. Les deux formes de distorsions géométriques étudiées sont le spring back de courbure, qui s'intéresse à la réduction du rayon de courbure du cadre, et le spring back de section, qui s'intéresse aux variations angulaires des branches de la section en forme de Z.

3.5.1 Géométrie

La modélisation CAO de la pièce a été effectuée par Duqueine. La géométrie a ensuite été importée sur Comsol et elle est présentée dans la Fig. 3.18. L'épaisseur de la pièce n'est pas homogène dans la longueur du cadre, ces variations d'épaisseur sont réparties en trois zones : Une zone d'épaisseur maximale, une zone d'épaisseur minimale et une zone de transition. L'épaisseur maximale est de 132 mm et l'épaisseur minimale est de 104 mm. La distance entre les deux extrémités est de 2 643 mm.

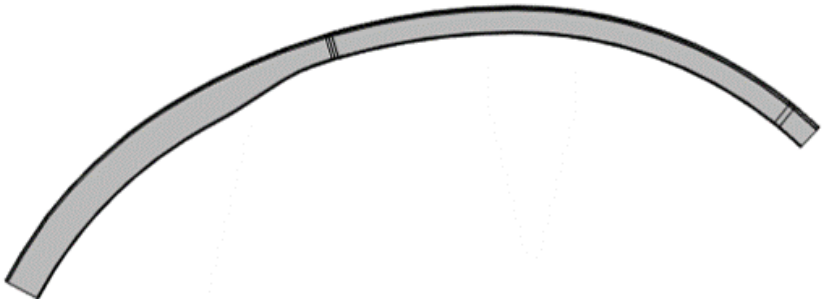


FIGURE 3.18 – Géométrie du cadre de fuselage

La section du cadre est en forme de Z. Deux branches de longueur 28 mm, sont séparées par une partie centrale (web), d'une longueur de 68 mm. Les angles que forment les branches avec le web ne sont pas identiques. L'angle supérieur, nommée angle A, est de 103°. L'angle inférieur, nommé angle B, est de 90°.

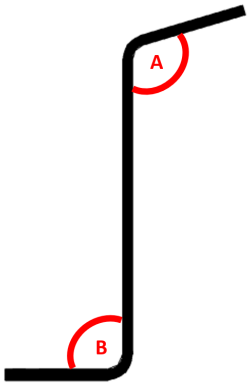


FIGURE 3.19 – Géométrie de la section du cadre de fuselage

3.5.2 Spring back de courbure

Dans cette section, l'évolution de la courbure est étudiée. Duqueine observe que le rayon de courbure des cadres diminue légèrement après la cuisson, ce qui traduit une fermeture du cadre. Si ces distorsions sont trop importantes, l'assemblage du cadre au reste du fuselage devient impossible.

Pour étudier ce phénomène, le modèle numérique est appliqué au cadre. Le calcul se déroule en deux étapes. Dans un premier temps, la première étape est un calcul dynamique où le cadre est encastré dans ses moules. Cette étape simule la phase de cuisson, où le cadre est maintenu par les moules. La seconde étape, une étape statique, concerne le démoulage et l'observation du spring back. Les conditions aux limites sont choisies pour supprimer les mouvements de corps rigide. La déformée du cadre est présenté dans la Fig. 3.20.

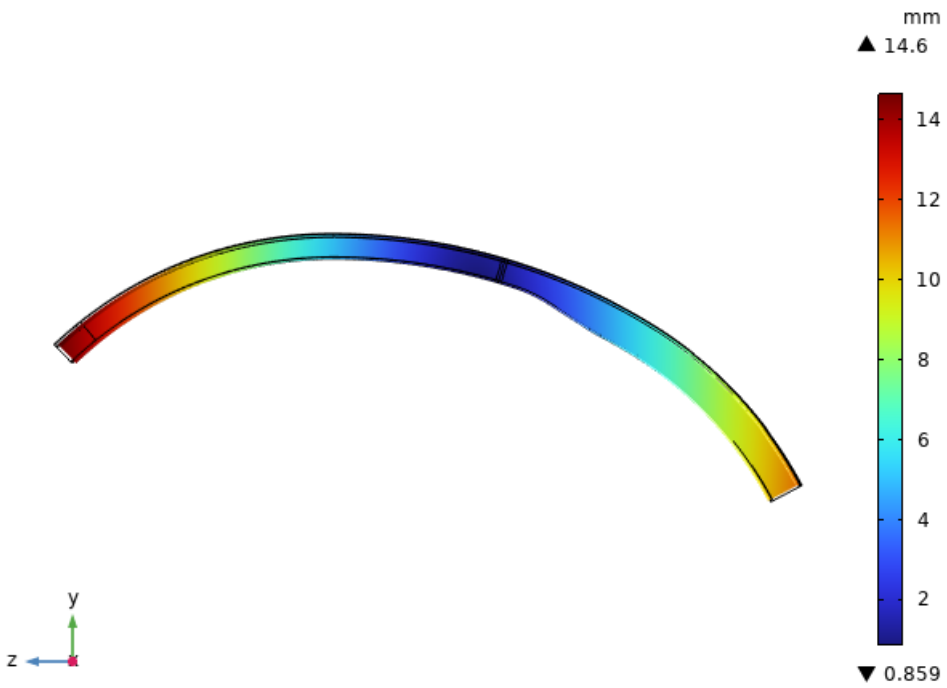


FIGURE 3.20 – Déformée du cadre de fuselage obtenue après le calcul de la seconde étape

La Fig. 3.20 montre les déplacements que subit le cadre après la simulation de la seconde étape. Le bord le moins épais subit d'avantage de déplacement, environ 1.5cm tandis que le bord le plus épais se déplace d'environ 1 cm. L'écart entre les deux extrémités, qui était initialement de 2643 mm, est de 2617 mm en fin de simulation, soit une réduction de 26 mm. Concernant le rayon de courbure, il était initialement de 1740 mm et sa nouvelle valeur prédite par le modèle numérique est de 1716 mm, soit une diminution de 24 mm. La prédiction de spring back formulée par la simulation numérique est cohérente avec les observations effectuées par Duqueine. En effet, une fermeture du cadre de quelques dizaines de millimètres après démoulage est prédite par la simulation numérique.

3.5.3 Spring back de section

Concernant le spring back de section, celui-ci est plus difficile à mettre en évidence. Les déplacements des branches de la section en Z sont faibles en comparaison des déplacements globaux du cadre. La stratégie de calcul de spring back, détaillée dans la Section. 3.3.4, est utilisé pour estimer la variation angulaire de l'angle A et B. La nouvelle valeur de l'angle A, qui était initialement de 103°, est de 102.92.° en fin de simulation, soit une réduction angulaire de 0.08°. Pour l'angle B, dont la valeur initiale est de 90°, voit sa valeur s'abaisser à 89.76°, soit une diminution angulaire de 0.24°. La simulation est une nouvelle fois cohérente avec les constatations de

Duqueine. Une faible réduction angulaire de la section est prédite pour la simulation numérique, dans des proportions qui ont été validées par les mesures de Duqueine sur des cadres réels.

Pour visualiser l'effet de spring back sur la section du cadre, une nouvelle simulation est proposée. Cette fois-ci, le web est fixé pour ne pas invisibiliter les déplacements des branches de la section en Z. La déformée obtenue, avec facteur d'échelle de 3, est présentée dans la Fig. 3.21.

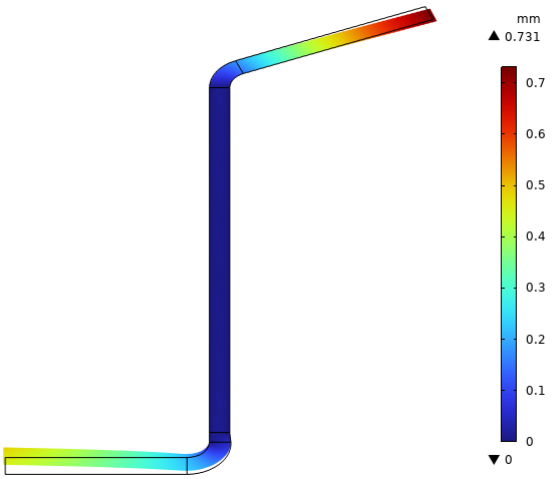


FIGURE 3.21 – Déformée de la section obtenue après encastrement du web et avec un facteur d'échelle appliqué

Une nouvelle fois, les variations angulaires sont très faibles et à peine visibles, bien qu'elles soient accentuées par l'encastrement de la partie web. Pour cette configuration, l'angle A présente une réduction angulaire de -0.37°, tandis que l'angle B subit une réduction angulaire de -0.99°.

Conclusion

Ce chapitre a été consacré à l'implémentation du modèle numérique. La méthodologie mise en œuvre pour élaborer une simulation capable de prendre en compte les différentes physiques du procédé de fabrication a été présentée en détail. La simulation contient trois modules, couplés entre eux. Le premier se concentre sur la distribution de la température dans la pièce, à chaque instant de la simulation. Le second simule la cinétique de cuisson de la résine en déterminant son degré de réticulation et la valeur de la température de transition vitreuse, à chaque incrément de temps. Le dernier est responsable de la gestion des conditions aux limites ainsi que de la réponse mécanique.

Dans un premier temps, la simulation numérique a été confrontée à des modèles analytiques issus de la littérature. Cette comparaison a montré que le modèle prédit

des valeurs de spring back similaire au modèle analytique le plus développé.

Pour approfondir la validation du modèle numérique, une campagne de tests expérimentaux a été menée sur une configuration simplifiée, à savoir une pièce en forme de L. La comparaison expérimentale/numérique à montrer que le modèle numérique est cohérent et robuste, car il prédit des valeurs de spring back proche que celles qui ont pu être mesurées expérimentalement.

Finalement, le modèle numérique a pu être implémenté sur la géométrie complète du cadre de fuselage. Les résultats ont montré que le spring back de section et de courbure sont observables, et que les distorsions prédites sont cohérentes avec celles constatées par Duqueine.

La méthode employée pour simuler le spring back a été validée dans les travaux présentés ci-dessus. Cependant, pour un fonctionnement optimal, cette méthode a besoin d'une caractérisation complète et coûteuse en temps et en ressource. Il existe des moyens permettant de connaître les paramètres les plus influents sur une simulation, afin de concentrer les campagnes de caractérisation sur les paramètres matériaux les plus prépondérant. L'analyse de sensibilité est l'un de ces moyens. Le prochain chapitre sera axé sur l'analyse de sensibilité appliquée aux différents modèles abordés dans cette thèse.

Chapitre 4

Analyse de sensibilité

Introduction

L'analyse de sensibilité est une étape importante dans la compréhension du comportement d'un modèle numérique par rapport à ses paramètres d'entrée. Elle permet de quantifier les contributions des variables en fonction de leur influence sur les sorties du modèle. Les techniques de sensibilité globale permettent, quant à elles, d'identifier les potentielles interactions existantes entre les variables. Les campagnes expérimentales étant coûteuses en temps et en ressource, les résultats d'une analyse de sensibilité permettent de guider les efforts expérimentaux en se concentrant sur les paramètres impactant. Les entrées considérées pour l'analyse de sensibilité sont celles du modèle numérique et des modèles analytiques : les paramètres matériaux issus des modèles mécanique, chimique et thermique, les conditions aux limites ou encore la taille du maillage seront étudiés dans ce chapitre. La sortie considérée est la prédiction du spring-back. Un schéma du fonctionnement de l'analyse de sensibilité est présenté dans la Fig. 4.1.

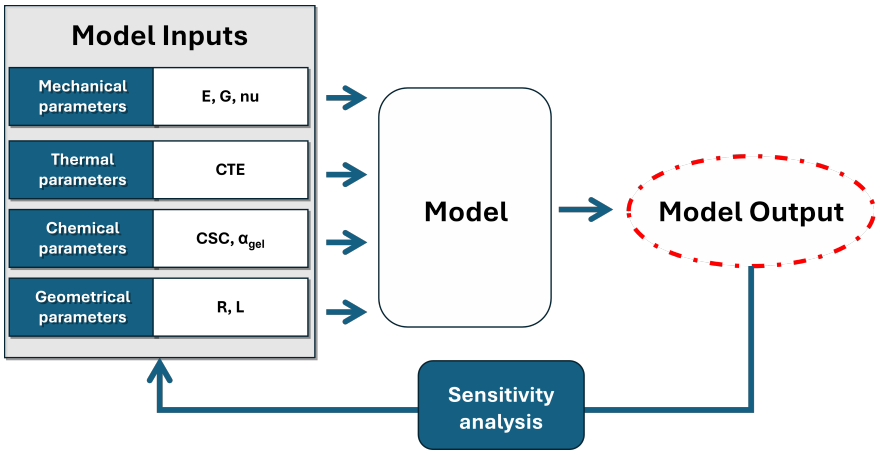


FIGURE 4.1 – Illustration du fonctionnement de l'analyse de sensibilité

4.1 Analyse de sensibilité locale appliquée au modèle numérique

L'analyse de sensibilité locale constitue une méthode simple et rapide à mettre en place. Cette méthode est fondée sur l'étude de la réponse du modèle à de petites variations autour d'un point de référence, dans le cas de cette étude, les paramètres matériaux issus de caractérisation ou de la littérature. Elle permet ainsi d'évaluer la sensibilité ponctuelle du modèle, en mettant en évidence les directions dans lesquelles la sortie est la plus ou moins sensible. Cependant, cette technique ne permet pas de retranscrire les couplages entre les paramètres, ainsi que les potentiels effets non linéaires, elle se limite aux effets autour du "point" choisi. Cette méthode est employée dans le cadre de ces travaux à titre exploratoire, afin d'obtenir une première estimation des variables influençant la simulation numérique. Elle permettra également d'évaluer la sensibilité du modèle à certains paramètres difficiles à étudier dans des méthodes globales, comme les conditions aux limites ou le maillage.

4.1.1 Impact des conditions aux limites

Pour commencer l'évaluation de la sensibilité du modèle, l'impact des conditions aux limites est étudié. Dans une simulation numérique, le choix des conditions aux limites est crucial, notamment, pour empêcher de potentielles divergences dans la résolution des solveurs numériques. Un problème avec trop de libertés entraîne un système mal conditionné, tandis, que trop de contraintes amènent à des rigidités artificielles et les résultats s'éloignent de la réalité. De manière générale, les conditions aux limites exercent une forte influence sur les champs de contrainte et de déplacement.

Concernant notre cas d'étude, la simulation des distorsions géométrique se fait en deux étapes. La première étape simule la polymérisation de la résine et la pièce est encastrée dans ses moules, tous les déplacements sont bloqués durant l'intégralité de la première étape. La seconde étape retranscrit le démoulage de la pièce. La pièce est sortie des moules à 60 °C et laissée libre pour son refroidissement jusqu'à la température ambiante. Lorsque Duqueine mesure les écarts géométriques des pièces finalisées par rapport aux moules, les pièces peuvent être plus au moins contraintes. Il est très difficile pour une simulation par éléments finis de retranscrire un cas totalement libre, car cela implique des problèmes de convergences des solveurs. Cette section a donc pour but d'évaluer la sensibilité du modèle aux différentes conditions aux limites qui pourraient être utilisées pour modéliser le phénomène de spring back.

Pour cela, plusieurs configurations de conditions aux limites, appliquées dans l'étape concernant la simulation du démoulage, seront comparées. La géométrie utilisée est décrite dans la Section 3.3.2 et la configuration unidirectionnelle est étudiée.

4.1.1.a Cas libre par le module Comsol

La première configuration testée et celle qui avait été retenue pour la simulation de l'expérience de validation des cornières. Elle repose sur l'utilisation du module Comsol, permettant de représenter un corps libre, tout en limitant les problèmes de convergence. Les conditions aux limites sont celles utilisées dans la Section 3.3.2. La déformée obtenue est présentée dans la Fig. 4.2. Le spring back obtenu pour cette configuration est : $\Delta\theta = -1.02°$.

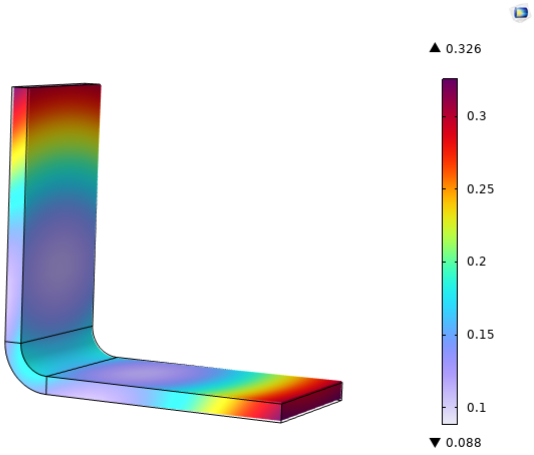


FIGURE 4.2 – Déformée obtenue pour des conditions aux limites libres

4.1.1.b Suppression mouvements corps rigides par blocage de 3 points

Les conditions imposées dans cette section, ont pour objectif de bloquer les mouvements de corps rigide, sans utiliser la fonction de Comsol, pour se rapprocher d'un corps libre. Pour cela, des conditions sont imposées à trois points, comme le montre la Fig. 4.3 et la Tab. 4.1 suivant :

CL n°1	$u_x = 0$		
CL n°2	$u_x = 0$	$u_y = 0$	
CL n°3	$u_x = 0$	$u_y = 0$	$u_z = 0$

TABLE 4.1 – Récapitulatif des conditions aux limites utilisées pour empêcher les mouvements de corps rigide

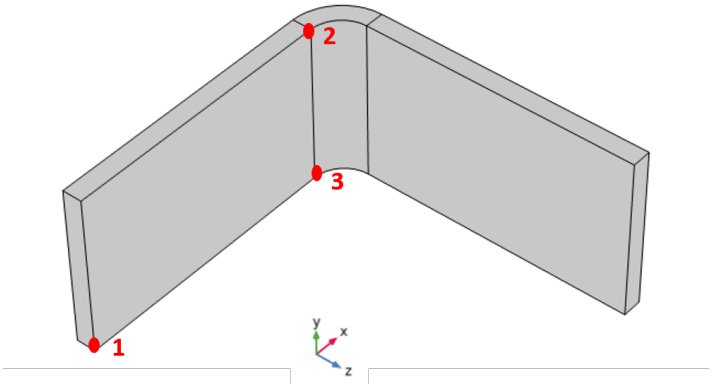


FIGURE 4.3 – Vue schématique des conditions aux limites imposées pour empêcher les mouvements de corps rigide

Pour cette configuration, la valeur du spring back calculée par le modèle est : $\Delta\theta = 1.09°$. Ce qui représente une augmentation de 2 % du résultat. La déformée correspondante est représentée dans la Fig. 4.4. Comme les conditions aux limites ont été appliquées à une branche du L, les déplacements sont concentrés sur l'autre branche. Contrairement à la déformée, issue du cas précédent (Fig. 4.2), où les deux branches étaient soumises à des déplacements.

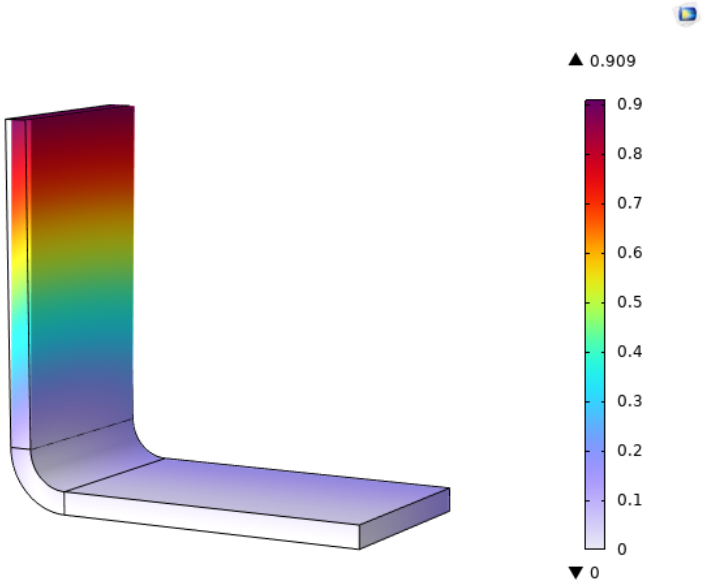


FIGURE 4.4 – Déformée obtenue pour des conditions de suppression de mouvement corps rigide

4.1.1.c Cas face encastrée

Pour ce dernier cas d'étude, une configuration avec une face encastrée est appliquée. La face inférieure du L est encastrée comme le montre la Fig. 4.5.

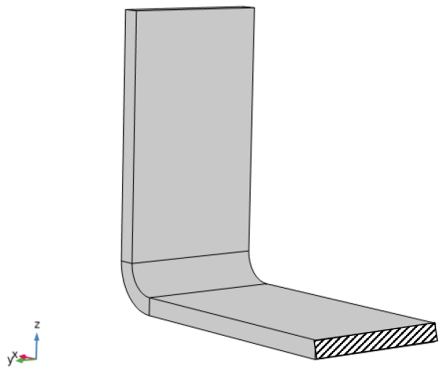


FIGURE 4.5 – Schéma des conditions aux limites pour une face encastrée

Cette configuration induit une valeur de spring back de : $\Delta\theta = 0.99°$. Ce qui représente une diminution du spring back de 2.93%. La déformée obtenue pour ces conditions, est présentée dans la Fig. 4.6. L'amplitude des déplacements obtenue pour ce cas de figure, implique des déplacements de l'arrête supérieure moins importante, 0.835 mm pour le cas encastré et 0.909 mm pour le cas précédent.

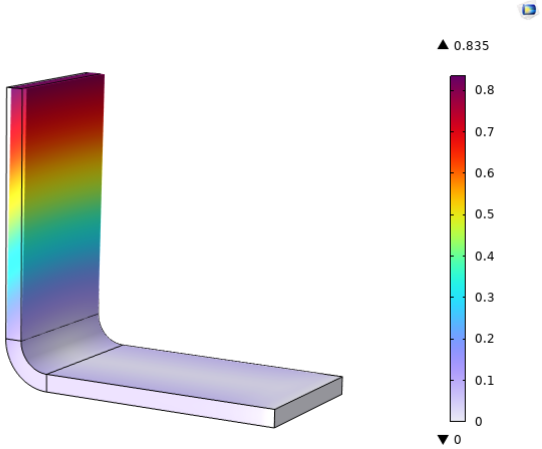


FIGURE 4.6 – Déformée obtenue pour des conditions aux limites pour une face encastrée

4.1.1.d Conclusion

Dans cette section, plusieurs configurations de conditions aux limites ont été comparées. Elles ont pour but de représenter un cas de figure, où la pièce finalisée serait mesurée dans un cas de figure considéré comme libre. Pour cela, le module cas libre de Comsol, une suppression des mouvements de corps rigide en bloquant trois points, et une face encastrée ont été utilisés. Les résultats ont montré que le modèle est modérément sensible aux conditions aux limites appliquées. La solution Comsol avec la facette encastrée a montré la plus grande différence par rapport à la prédiction du spring back de la configuration utilisée dans le Chapitre 3.

4.1.2 Sensibilité au maillage

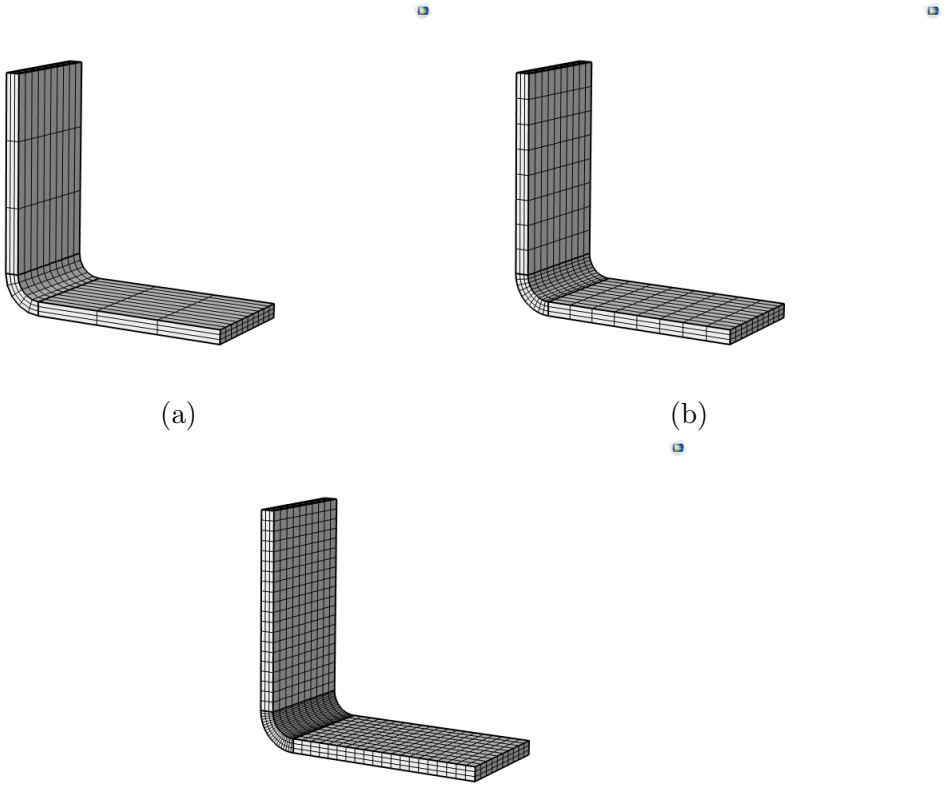
Dans cette section, c'est la sensibilité du modèle par rapport à la qualité du maillage qui est étudiée. Le choix du maillage est une étape clé dans les simulations par la méthode des éléments finis. Le maillage définit la manière dont la géométrie est discrétisée en un ensemble fini d'éléments, sur lesquels les équations physiques considérées sont résolues numériquement. Le nombre d'éléments que constitue un maillage, influe directement sur la qualité et la fiabilité des résultats. Plusieurs types d'éléments de maillage existent (triangulaire, quadrilatère, hexaèdres, etc.), et leur répartition dans les zones critiques, comme le coude du L étudié, a un impact sur la convergence et la robustesse de la simulation. Un maillage trop grossier risque de conduire à une approximation insuffisante des champs de contraintes, de déplacements, tandis qu'un maillage trop fin entraîne un coût de calcul excessif et parfois non pertinent. Le défi réside donc dans la recherche d'un compromis entre précision et coût en temps de calcul.

Trois configurations de maillage sont étudiées. Le maillage le plus grossier est composé de 528 éléments (4.7a). Le maillage intermédiaire est composé de 1 267 éléments (4.7b). Le maillage le fin est, quant à lui, composé de 2 674 éléments (4.7c). Les résultats sont présentés dans le tableau suivant :

Type de maillage	grossier	intermédiaire	fin
Valeur $\Delta\theta$ (°)	0.999	0.994	0.993
Écart au plus fin (%)	0.6	0.1	0.1
Temps de calcul (s)	73	134	303

TABLE 4.2 – Résultat de l'influence du maillage sur le spring back

En observant les résultats obtenus, le modèle est peu sensible à la qualité du maillage. Une convergence en maillage semble être obtenue aux alentours de 2 500 éléments. À partir de cette taille-ci, les résultats sont très proches les uns des autres ($\approx 0.1\%$). Le coût en temps de calcul augmente fortement avec un nombre d'élément plus important. Le maillage intermédiaire est de taille suffisante pour la simulation de la polymérisation des équerres.



(a) (b)

(c)

4.2 Analyse de sensibilité global

L'analyse de sensibilité globale (Global Sensitivity Analysis - GSA) est une méthode d'analyse de sensibilité plus complète que l'analyse de sensibilité locale. Elle constitue un outil essentiel pour orienter les efforts de caractérisation, de simplification de modèle, ou encore d'optimisation.

L'analyse de sensibilité globale est largement employée dans la littérature pour diverses applications, notamment dans l'évaluation des propriétés mécaniques des matériaux, l'homogénéisation de ces propriétés à l'échelle macroscopique, ainsi que dans l'identification et la formulation de lois de comportement adaptées [62, 43, 86]. Les études de sensibilité sur le phénomène de springback sur des matériaux composites sont rares dans la littérature. Dong et al. [16] proposent une étude de sensibilité sur un modèle mathématique incluant les paramètres suivants : module d'Young, coefficients de Poisson, fraction volumique et coefficients de dilatation thermique. Liang et al. [61] ont utilisé une méthode GSA, la méthode de Morris, pour quantifier l'influence des paramètres thermiques dans une modélisation par éléments finis. L'étude présentée dans cette thèse propose une évaluation de la sensibilité des modèles analytiques et du modèle numérique, via différentes méthodes de sensibilité globale. Cette étude prend en compte un grand nombre de paramètres matériau, issus des différentes modules physiques (mécanique, chimique et thermique).

Les méthodes de sensibilité globales utilisées dans ces travaux de thèse ont été présentées dans la Section 1.6.2. Parmi elles, uniquement les méthodes FAST et Sobol seront utilisées dans les sections suivantes.

4.2.1 Modèle analytique

La méthode FAST et la méthode de Sobol sont implémentées sur les modèles analytiques présentés dans la Section 3.1. Pour rappel, le modèle n°1, développé par Nelson et Cairns [74] ne prend en compte que l'anisotropie des coefficients de dilatation thermique, se concentrant uniquement sur la réponse thermoélastique du matériau. Le modèle de Radford et al. [82], modèle n°2 incorpore le retrait chimique, prenant ainsi en compte les contraintes d'origine thermique et chimique. Le modèle 3, conçu par Wisnom et al. [105], ajoute l'influence de la rigidité de la structure et des effets géométriques qui introduisent des contraintes structurelles affectant l'amplitude du spring back. Finalement, le modèle 4, développé par Ding et al. [15], inclut toutes les contributions précédentes et affine encore l'analyse en reconsidérant la façon dont ces effets se développent dans les régions courbes de la pièce. La Tab. 4.3 récapitule les différents paramètres utilisés par les modèles analytiques cités précédemment.

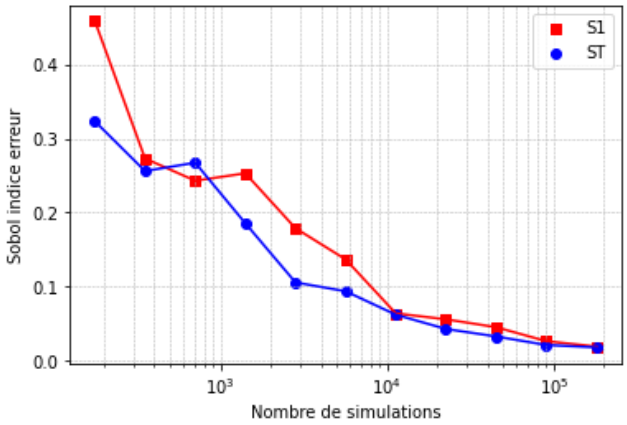
Modèle analytique	Paramètres étudiés
1	CET_{11} ; CET_{22}
2	CET_{11} ; CET_{22} ; CRC_{11} ; CRC_{22}
3	CET_{11} ; CET_{22} ; CET_{33} ; CRC_{11} ; CRC_{22} ; CRC_{33} ; E_{11}, G_{12} ; ν_{23} ; t
4	CET_{11} ; CET_{22} ; CET_{33} ; CRC_{11} ; CRC_{22} ; CRC_{33} ; E_{11}, G_{12} ; ν_{23} ; t

TABLE 4.3 – Paramètres matériau des modèles analytiques

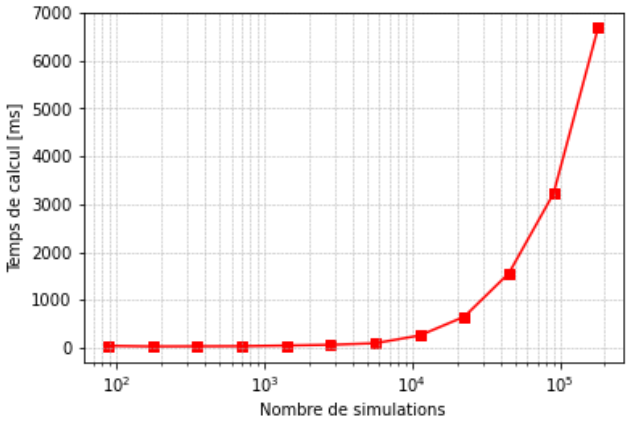
Deux configurations d'empilement sont étudiées : un empilement unidirectionnel et un empilement quasi-isotrope. Compte tenu des hypothèses préalablement formulées pour une configuration unidirectionnelle, c'est à dire de considérer que les coefficients d'expansion thermique, CET_{11}, et de retrait chimique, CRC_{11}, dans la direction des fibres sont très faibles, les résultats de l'analyse de sensibilité sur la configuration unidirectionnelle pourraient être incomplets. C'est pourquoi un cas d'étude quasi-isotrope est ajouté, afin d'obtenir une équivalence entre les coefficients de dilatation thermique et les coefficients de retrait chimique, aussi bien dans la direction des fibres que dans la direction transverse, $CET_{11} = CET_{22}$ et $CRC_{11} = CRC_{22}$. Les propriétés matériaux utilisés dans cette section sont celles présentées dans la Section 3.3. Une variation de $\pm 15\%$ est appliquée aux paramètres pour créer les bornes d'études nécessaires à l'analyse de sensibilité.

4.2.1.a Choix de la taille de l'échantillonnage

Dans cette section, les erreurs et temps nécessaire pour l'obtention des indices de Sobol, par le module SAlib, sont comparés pour un nombre de simulation différent. L'objectif est de déterminer le nombre de simulations optimal à utiliser pour l'analyse de sensibilité qui sera, par la suite, appliqué aux modèles analytiques. Pour rappel, la taille de l'échantillonnage est obtenue en suivant la relation suivante : nombre simulation $= N(2d + 2)$. Avec N, une puissance de 2 et d le nombre de paramètres étudiés. Cette étude est effectuée sur l'erreur des indices de Sobol calculés pour les paramètres du modèle n°4.



(a) Erreur en fonction du nombre de simulations



(b) Temps de calcul en fonction du nombre de simulations

FIGURE 4.8 – Impact du nombre de simulations sur l'erreur et le temps de calcul

La Fig. 4.8 montre l'erreur calculée par le module Python SALib pour les indices de Sobol S_1 et S_T et le temps de calcul nécessaire pour obtenir les indices S_1. Ces erreurs sont très importantes pour un nombre de simulations inférieur à 1000, ce qui indique que la valeur des indices n'est pas fiable pour un nombre de simulations faible. L'erreur devient acceptable, < 0.08, à partir de 10 000 simulations. À partir de ce nombre de simulations, l'erreur de l'indice S_1 et S_T convergent également. Dans

le même temps, le temps de simulation est invariant jusqu'à 10 000 simulations et augmente de façon exponentielle pour un nombre de simulations plus conséquent. Les modèles n'ayant pas le même nombre de paramètres d'entrée, d, N doit être différent pour chaque modèle, pour assurer un nombre de simulations suffisant. Le choix du paramètre N pour chacun des modèles est présenté dans la Tab. 4.4.

Modèle analytique	N	Nombre simulation
1	2^{11}	12 288
2	2^{10}	10 240
3 et 4	2^{9}	11 264

TABLE 4.4 – Taille de l'échantillonnage pour les différents modèles analytiques

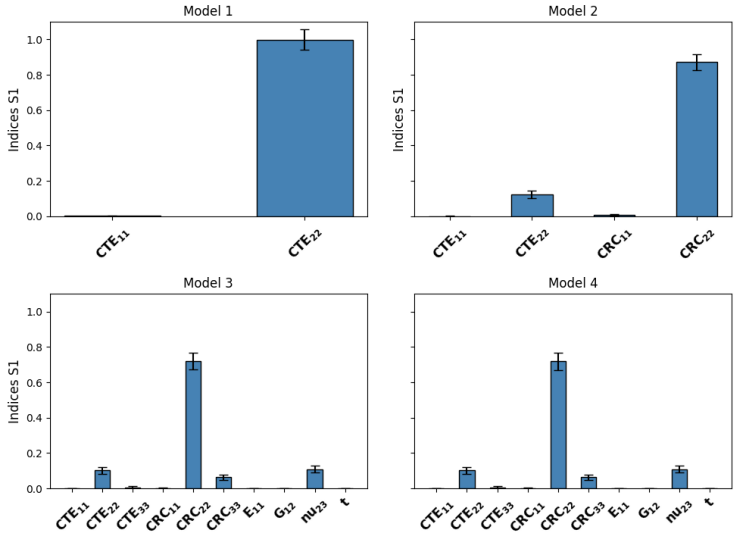
4.2.1.b Cas unidirectionnel

L'analyse de Sobol est appliqué aux modèles analytiques sur la configuration unidirectionnelle et les résultats sont présentés dans la Fig. 4.9.
La Fig. 4.9a présente les indices de sensibilité de premier ordre, S_1, qui reflètent la contribution directe de chaque paramètre sur la variance de la sortie, sans tenir compte des interactions entre les paramètres. La Fig. 4.9b montre les indices de sensibilité totaux, S_T, qui incluent les effets directs et les interactions potentielles. Effectuer la somme des indices S_1 de chaque paramètre est intéressant pour déterminer si les variables d'entrée du modèle étudié possèdent des interactions entre elles. Si la somme : $\sum S_{1i} < 1$, alors cela suggère que des interactions entre les variables existent. La somme des indices S_1 et S_T, pour chaque modèle, est présentée dans la Tab. 4.5. Les deux sommes étant très proches pour les quatre modèles, les interactions entre les paramètres sont très faibles.

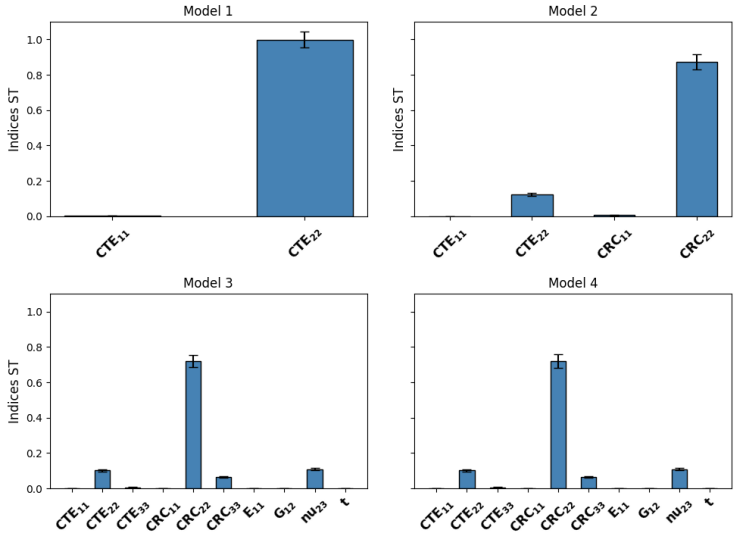
Modèle	$\sum S_{1i}$	$\sum S_{Ti}$
1	1	1
2	1	1
3	0.99	1
4	0.99	1

TABLE 4.5 – Sommes des indices S_1 et S_T pour la configuration unidirectionnelle

Le temps de calcul pour obtenir les résultats est de 5.40 secondes. Le modèle n°1 possède une sensibilité seulement au paramètre CET_{22}. Le modèle n°2 n'est sensible qu'aux coefficients dans la direction transverse aux fibres, CRC_{22} étant le plus influant. Pour les modèles n°3 et n°4, les coefficients de retrait chimique, et plus spécialement CRC_{22} sont les paramètres qui ont l'impact le plus significatif sur la variance de la sortie. Concernant les coefficients de dilatation thermique, seul le coefficient dans la direction transverse, CET_{22}, est légèrement impactant. En ce qui concerne les paramètres liés à la rigidité du matériau, c'est le coefficient de Poisson, ν_{12}, qui impacte le plus la sensibilité.



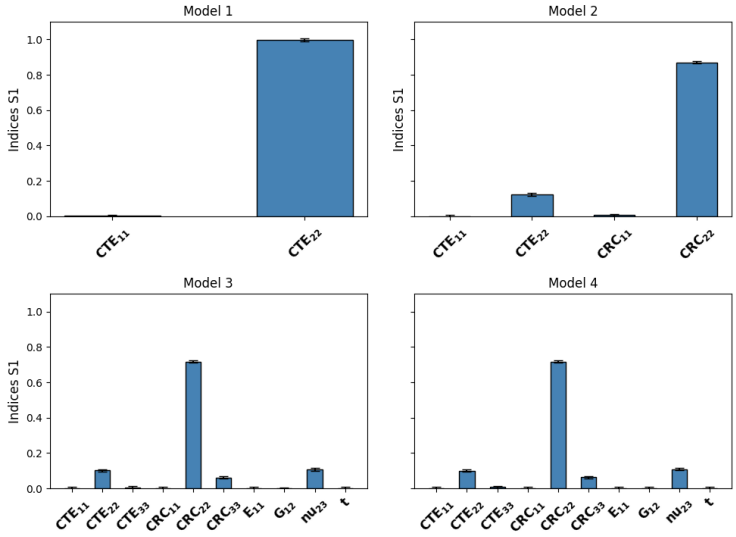
(a) S_1 indices



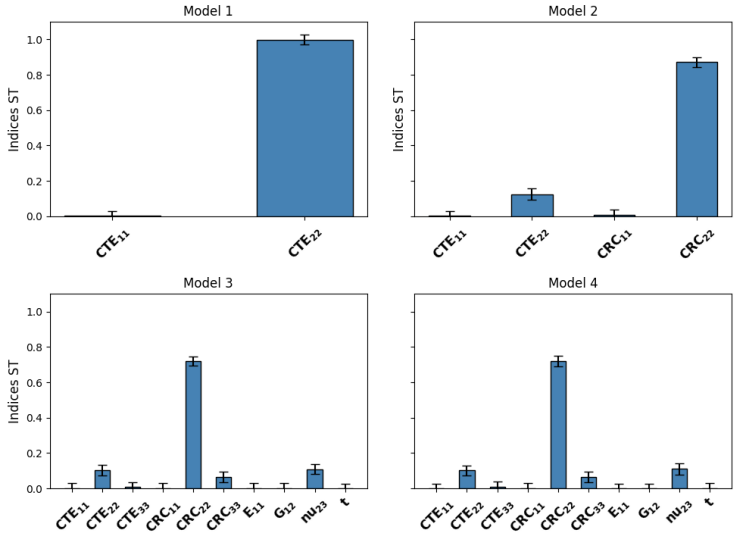
(b) S_T indices

FIGURE 4.9 – Analyse de sensibilité de Sobol réalisée sur les modèles analytiques pour la configuration unidirectionnelle

La méthode FAST est maintenant implémentée pour une configuration unidirectionnelle similaire aux résultats précédents. L'échantillonnage est le même que pour l'étude de Sobol, $N = 10^{11}$. Les résultats de l'étude FAST sont présentés dans la Fig. 4.10.
L'interprétation des résultats amène aux mêmes conclusions que la méthode de Sobol. La valeur des indices de premier ordre et totaux sont identiques. Le paramètre le plus largement influent reste le coefficient de retrait chimique CRC_{22}. Les résul-



(a) S_1 indices



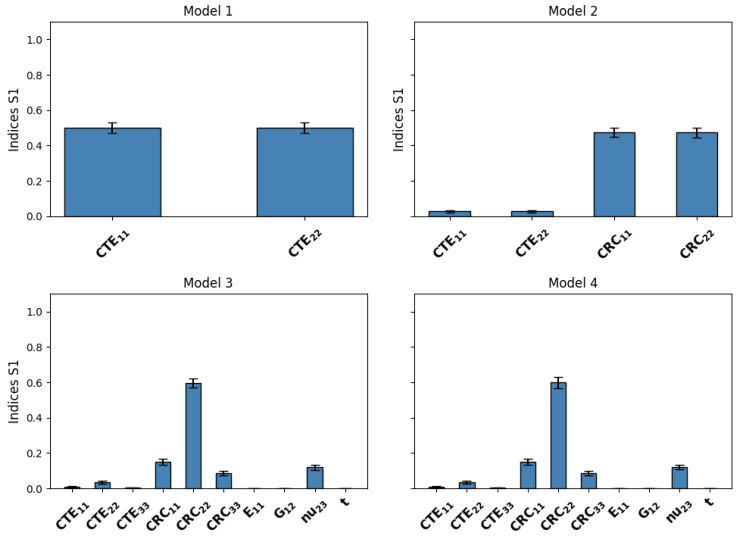
(b) S_T indices

FIGURE 4.10 – Analyse de sensibilité FAST réalisée sur les modèles analytiques pour la configuration unidirectionnelle

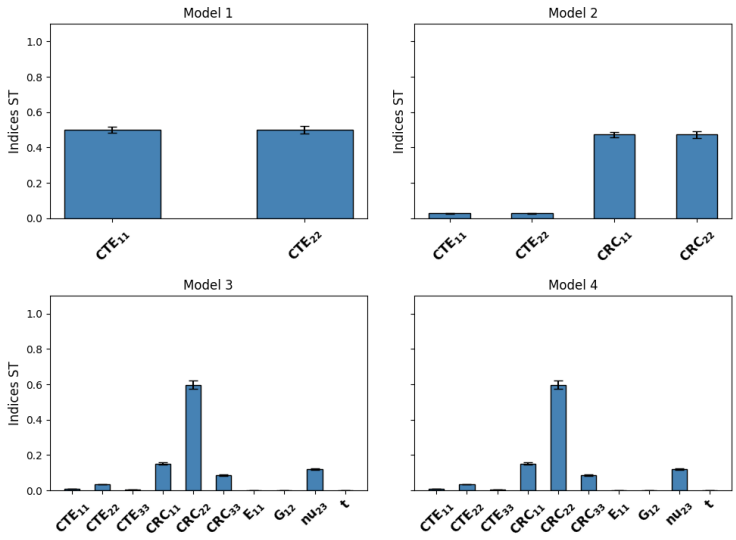
tats sont plus précis, pour un échantillonnage équivalent. Concernant le temps de calcul, l'analyse via la méthode FAST s'est réalisée en 0.4 seconde, ce qui est nettement plus rapide que la méthode de Sobol. Comme mentionnée précédemment, la configuration unidirectionnelle implique des valeurs de coefficients thermique et de retrait chimique, négligeable dans la direction des fibres. Cette hypothèse peut impliquer une sous-estimation de l'influence de ces paramètres. Pour le vérifier, la même étude va être conduite sur un cas quasi-isotrope.

4.2.1.c Cas quasi-isotrope

Une configuration quasi-isotrope est utilisée dans cette section. Cette configuration implique une équivalence des coefficients de dilatation thermique et de retrait chimique, dans les directions des fibres et transverse aux fibres. Une réduction du module de Young, E_{11} est appliquée également. Les résultats de la méthode de Sobol implémentée sur la configuration quasi-isotrope sont montrés dans la Fig. 4.11.



(a) S_1 indices



(b) S_T indices

FIGURE 4.11 – Analyse de sensibilité de Sobol réalisée sur les modèles analytiques pour la configuration quasi-isotrope

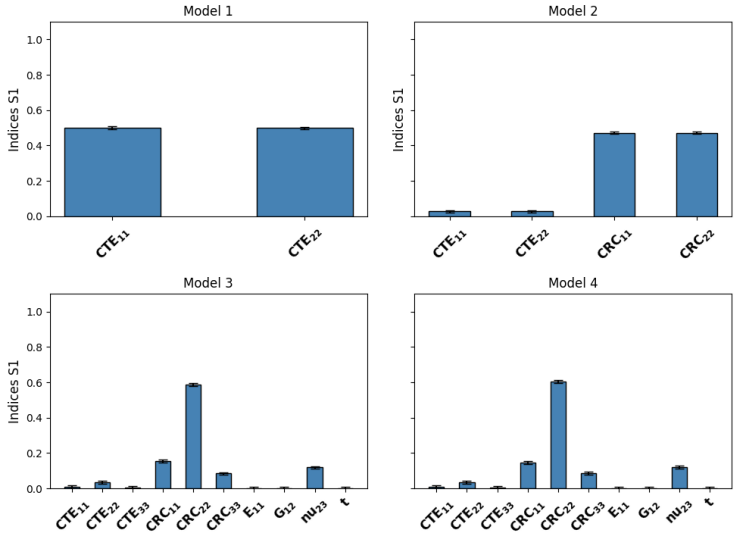
Le temps nécessaire pour obtenir les résultats est de 3.35 secondes. Les sommes des indices S_1 et S_T sont présentées dans la Tab. 4.6. Les sommes de S_1 et S_T restent similaires, ce qui confirme que les modèles ne présentent aucun couplage entre leurs paramètres d'entrée.

Modèle	$\sum S_{1i}$	$\sum S_{Ti}$
1	1	1
2	1	1
3	0.99	1
4	0.99	1

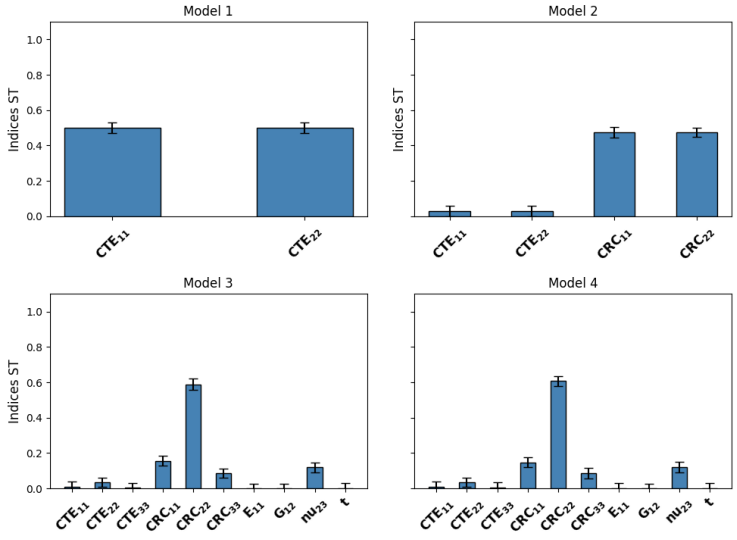
TABLE 4.6 – Sommes des indices S_1 et S_T pour la quasi-isotrope

Avec cette nouvelle configuration, le modèle n°1 est sensible de manière équivalente à ses deux paramètres d'entrée. Le modèle n°2 reste plus sensible aux valeurs des coefficients de retrait chimique, mais avec une équivalence entre les coefficients dans la direction des fibres et transverse aux fibres. L'influence des coefficients de dilatation thermique diminuent comparée au cas unidirectionnel. Pour les modèles n°3 et n°4, les résultats des deux configurations sont proches. L'influence du coefficient, CSC_{22}, est prédominante, bien que légèrement atténuée. L'influence des coefficients CET_{11} et CSC_{11} est légèrement plus importante. Aucun changement n'est observé sur l'influence des paramètres mécaniques.

La méthode FAST est implémentée sur cette configuration et les résultats sont présentés dans la Fig. 4.12. Les résultats obtenus par la méthode FAST sont très proches de ceux obtenus précédemment avec la méthode de Sobol. La méthode FAST permet de réduire les marges d'erreur et d'obtenir un temps de calcul beaucoup plus rapide, environ 0.58 seconde. Les résultats mettent en avant l'influence des mêmes paramètres d'entrée que ceux qui avaient été identifiés par Sobol sur chaque modèle.



(a) S_1 indices



(b) S_T indices

FIGURE 4.12 – Analyse de sensibilité de FAST réalisée sur les modèles analytiques pour la configuration quasi-isotrope

4.2.1.d Conclusion

L'analyse des résultats issus des différentes études de sensibilité menées a montré que les indices S_1 (effets principaux) et S_T (effets totaux) sont très proches pour tous les modèles analytiques. Aucune interaction n'existe entre les paramètres d'entrée, chaque variable agit de façon indépendante sur la sortie du modèle. Cette absence d'interaction a permis de justifier l'implémentation la méthode FAST, celle-ci ne

permettant pas l'identification de ces potentielles interactions. La méthode FAST a permis de réduire les temps de calcul et les intervalles de confiance, tout en ayant des résultats très proches de ceux obtenus précédemment avec la méthode de Sobol. Concernant les modèles analytiques, 2, 3, et 4, c'est le coefficient de retrait chimique, dans les diverses directions, qui est le paramètre d'entrée ayant la contribution la plus importante sur la sortie du modèle.

4.2.2 Simulation numérique

Dans cette section, l'analyse de sensibilité est appliquée sur le modèle numérique. Contrairement aux modèles analytiques, étudiés dans la section précédente, seule la méthode de Sobol est retenue ici. Bien que le modèle numérique comporte un plus grand nombre de paramètres d'entrée, ce qui augmente significativement le coût de calcul de l'analyse, sa complexité justifie le recours à une méthode exhaustive. Deux configurations sont étudiées, une configuration unidirectionnelle et une configuration quasi-isotrope. Le modèle 3D est utilisé dans cette étude, car c'est la méthode de modélisation qui présente le temps de calcul le plus faible, bien moindre que pour la modélisation par empilement de coques minces. Les seize paramètres du modèle numérique, qui seront étudiés dans cette section, sont récapitulés dans la Tab. 4.7. Nous y retrouvons les composantes associées au module mécanique, cinétique et thermique.

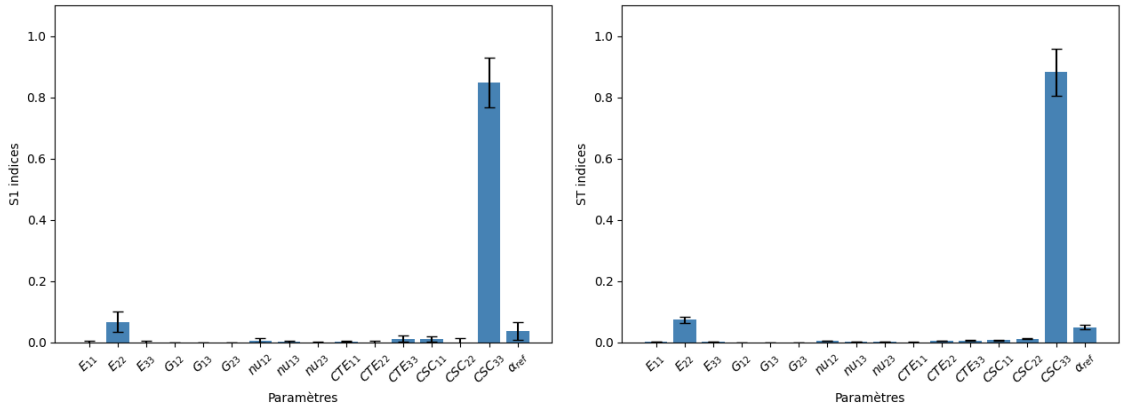
Module associé	Paramètres étudiés
Mécanique	E_{11} ; E_{22} ; E_{33} ; G_{12} ; G_{13} ; G_{23} ; ν_{12} ; ν_{13} ; ν_{23}
Cinétique	CRC_{11} ; CRC_{22} ; CRC_{33} ; α_{gel}
Thermique	CET_{11} ; CET_{22} ; CET_{33}

TABLE 4.7 – Paramètres matériau étudiés dans l'analyse de sensibilité

Pour l'échantillonnage, le paramètre N est fixé à N=2^8, pour un total de 8704 simulation. Cette valeur est inférieure aux 10.000 simulations préconisées précédemment. Ce choix est réalisé dans une démarche de réduction du temps de calcul nécessaire à la réalisation de l'analyse. Le temps de calcul de la simulation numérique est de l'ordre de la trentaine de secondes, fixer N = 2^9, pour dépasser les 10.000 simulations, implique un temps de calcul de l'ordre de 145 heures. Alors que fixer : N = 2^8, induit un temps de calcul de l'ordre de 72 heures, ce qui est plus raisonnable pour l'étude.

4.2.2.a Cas unidirectionnel

La méthode de Sobol est appliquée au modèle 3D de la simulation numérique, pour une configuration unidirectionnelle. Chaque paramètre subit une variation de $\pm 15\%$, sauf pour le degré de polymérisation au point de gel. L'intervalle de α_{gel} est définit par : $\alpha_{gel} \in [0.50, 0.55]$, conformément à la gamme de valeur déterminée dans la Section 2.5. Les résultats de l'analyse de sensibilité sont présentés dans la Fig. 4.13 pour la configuration unidirectionnelle.



(a) S_1 indices (b) S_T indices

FIGURE 4.13 – Analyse de sensibilité Sobol des paramètres d'entrée du modèle numérique pour la configuration unidirectionnelle

La Fig. 4.13a montre les résultats de l'analyse de Sobol pour les contributions directes S_1. Cette analyse classe la contribution du coefficient de retrait chimique dans la direction de l'épaisseur, CRC_{33}, comme étant la plus significative sur la variance de sortie du modèle. Environ 90 % de la variance de la sortie est associée à ce paramètre. Le paramètre mécanique E_{22} se classe en second et l'avancement de la réaction au point de gel, α_{ref} en troisième position. Les autres paramètres exercent une influence négligeable sur le modèle numérique.

La Fig. 4.13b montre les résultats de l'analyse de Sobol incorporant les effets directs et les interactions entre les paramètres (S_T). Ces résultats sont proches de ceux obtenus pour les indices S_1. Le paramètre CRC_{33} conserve la contribution la plus élevée, suivi du module de Young dans la direction transverse E_{22} et α_{ref}. De légères différences apparaissent entre S_1 et S_T pour les coefficients de dilatation thermique et de retrait chimique, indiquant des interactions mineures.

La somme des indices S_1 et S_T est présentée dans la Tab. 4.8. La somme des indices S_1 est proche de 1, ce qui indique que les effets directs sont prédominants. Les contributions principales sont linéaires et le modèle numérique est quasi-additif car il existe peu d'interaction entre ses paramètres d'entrée.

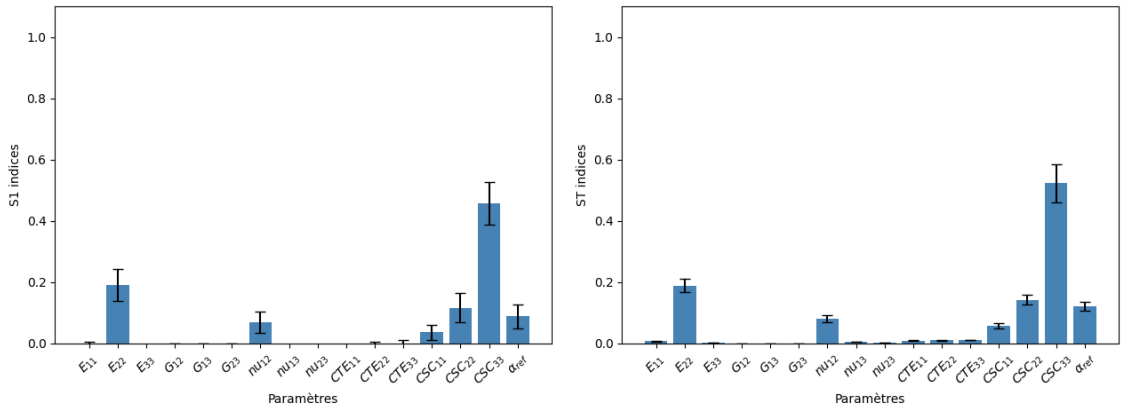
$\sum S_{1i}$	$\sum S_{Ti}$
0.9760	1.0398

TABLE 4.8 – Sommes des indices S_1 et S_T pour la configuration unidirectionnelle

4.2.2.b Cas quasi-isotrope

L'analyse de sensibilité est maintenant appliquée à la configuration quasi-isotrope. Le but de cette étude est de vérifier si les paramètres influents sur la variance de sor-

tie du modèle numérique sont les mêmes que pour la configuration unidirectionnelle. La configuration quasi-isotrope implique une équivalence des modules de Young, des coefficients de dilatation thermique et de retrait chimique, dans les directions des fibres et transverse aux fibres. La même variation de ±15% est appliquée aux paramètres. Concernant l'échantillonnage, le paramètre N est toujours fixé à N=2^8, pour un total de 8704 simulations.



(a) S_1 indices (b) S_T indices

FIGURE 4.14 – Analyse de sensibilité Sobol des paramètres d'entrée du modèle numérique pour la configuration quasi-isotrope

Les résultats de l'analyse de Sobol pour la configuration quasi-isotrope sont détaillés dans la Fig. 4.14. La Fig. 4.14a montre les résultats de l'analyse de Sobol pour les contributions directs (S_1). Cette analyse classe également la contribution du coefficient de retrait chimique dans la direction de l'épaisseur, CRC_{33}, comme étant la plus influente sur la variance de sortie, mais son importance a diminué. Environ 90 % de la variance de la sortie était associée à ce paramètre pour la configuration unidirectionnelle, elle n'est plus que de 50 % pour la configuration quasi-isotrope. Le paramètre mécanique E_{22} se classe en second avec environ 20% de contribution. Contrairement aux résultats sur la configuration unidirectionnelle, la contribution des paramètres ν_{12}, CRC_{11} et CRC_{22} n'est plus négligeable.

La Fig. 4.14b montre les résultats de l'analyse de Sobol incorporant les effets directs et les interactions entre les paramètres (S_T). Ces résultats sont proches de ceux obtenus pour les indices S_1. Le paramètre CRC_{33} conserve la contribution la plus élevée, suivi du coefficient de Young dans la direction transverse E_{22} et des autres coefficients de retrait chimique CRC_{11} et CRC_{22}. De légères différences apparaissent entre S_1 et S_T pour les trois coefficients de dilatation thermique, indiquant des interactions mineures.

La somme des indices S_1 et S_T est présentée dans la Tab. 4.9. La somme des indices S_1 est plus éloigné de 1 que pour la configuration unidirectionnelle, ce qui indique que les effets directs sont moins prédominants pour la configuration quasi-isotrope.

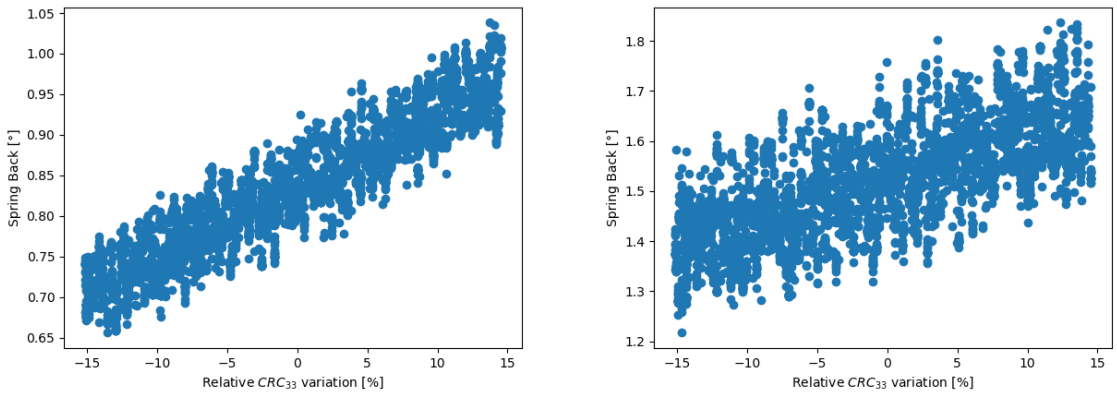
Cette configuration implique plus d'interaction entre les paramètres d'entrée, ce qui complexifie le fonctionnement du modèle numérique.

$\sum S_{1i}$	$\sum S_{Ti}$
0.8681	1.1522

TABLE 4.9 – Sommes des indices S_1 et S_T pour la configuration quasi-isotrope

4.2.2.c Visualisation graphique

Pour avoir une vision plus claire de ce que signifie concrètement les résultats de l'analyse de Sobol effectuée sur les paramètres d'entrée de la simulation numérique, des graphiques, en format nuage de point, représentant les variations de la valeur du spring back en fonction des variations relatives du paramètre CRC_{33} et CET_{33} pour les deux configurations, sont présentés dans les Fig. 4.15 et Fig. 4.16.

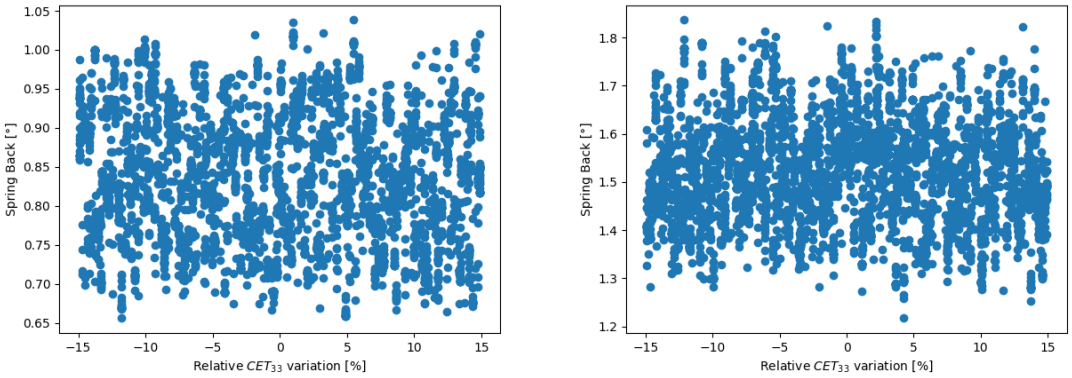


(a) Cas unidirectionnel (b) Cas quasi-isotrope

FIGURE 4.15 – Variation du spring back en fonction des variations relatives du paramètre CRC_{33}

Les points représentés sur les graphiques correspondent à une prédiction de spring back pour un ensemble différent de paramètres de matériau. Un ensemble peut présenter des variations sur plusieurs paramètres de matériau en même temps, ce qui explique pourquoi, pour les mêmes valeurs de CSC_{22} et CTE_{22}, des valeurs de spring back différentes sont observées.

Les résultats des Fig. 4.15a et Fig. 4.15b montrent clairement une relation linéaire entre les variations de spring back et les variations du coefficient CRC_{33}. Cette relation est plus marquée pour le cas unidirectionnel, ce qui est cohérent avec les résultats de l'analyse de Sobol, qui présentait une contribution plus importante pour cette configuration.



(a) Cas unidirectionnel (b) Cas quasi-isotrope

FIGURE 4.16 – Variation du spring back en fonction des variations relatives du paramètre CET_{33}

Inversement, les résultats des Fig. 4.16a et Fig. 4.16b montrent clairement un manque de relation entre les variations de spring back et les variations du coefficient CET_{33}. Ces figures illustrent les résultats de l'analyse de Sobol, qui présentait une contribution négligeable pour ce paramètre.

4.2.2.d Conclusion

Pour conclure, la méthode de sensibilité globale de Sobol a été appliquée au modèle numérique, en considérant deux configurations différentes, une configuration unidirectionnelle et une configuration quasi-isotrope. Les résultats ont mis en évidence que le coefficient de retrait chimique dans la direction de l'épaisseur, CRC_{33}, est le paramètre ayant la plus forte influence sur la prédiction du spring back, quelle que soit la configuration étudiée. Le module de Young, E_{22}, ainsi que le taux de réticulation au point de gel, α_{ref}, présentent également une contribution significative. À l'instar des modèles analytiques, le comportement du modèle numérique, pour la configuration unidirectionnelle, demeure globalement linéaire. Peu d'interaction existe entre les paramètres d'entrée, ceux-ci ayant une contribution indépendante sur la sortie du modèle. Néanmoins, l'utilisation d'un empilement plus complexe pour la réalisation d'une pièce composite induit des interactions entre les paramètres d'entrée, phénomène mis en évidence par l'analyse de sensibilité de la configuration quasi-isotrope. Dès lors, le modèle ne peut plus être considéré comme étant seulement additif. Cette campagne d'analyse a permis d'identifier les paramètres d'entrée ayant la plus forte influence sur le phénomène de spring-back. Leur caractérisation doit donc être priorisée afin d'améliorer la précision des prédictions.

4.2.3 Sensibilité de la loi cinétique

Une étude de sensibilité sur le module cinétique est réalisée dans cette section. Les sections précédentes ont montré l'importance du module cinétique dans la prédiction du spring back. Les coefficients de retrait chimique et le degré d'avancement de la polymérisation au point de gel, ont les valeurs d'indices de Sobol les plus élevés. Ces paramètres sont directement liés au module cinétique. Pour rappel, les déformations induites par les coefficients de retrait chimique suivent la relation suivante :

$$\varepsilon_{chimique} = CRC_{ii}(\alpha - \alpha_{gel}) \tag{4.1}$$

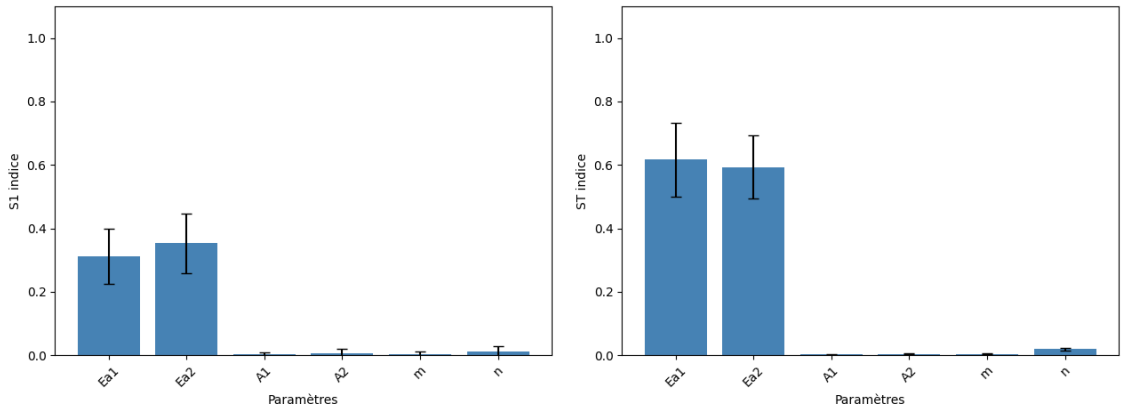
Le calcul du paramètre α est donc prédominant dans la prédiction du spring back. La loi cinétique utilisée est celle développée par Kamal et Sourour [42].

$$\frac{\mathrm{d}\alpha}{\mathrm{d}t} = (K_1 + K_2\alpha^m)(\alpha_{max} - \alpha)^n \tag{4.2}$$

Avec :

$$K_i = A_i \exp\left(-\frac{E_{ai}}{RT}\right) \tag{4.3}$$

Les paramètres de la loi sont : les deux énergies d'activation E_{ai}, les deux constantes d'Arrhénius A_i, m et n. Ces paramètres avaient été caractérisés expérimentalement dans le Chapitre 2. La méthode de Sobol est utilisée sur le modèle numérique, et les six variables étudiées sont celles mentionnées précédemment. La taille de l'échantillonnage est obtenue en fixant N = 2^9, ce qui donne un total 7168 simulations. Les indices de Sobol, S_1 et S_T, obtenus par cette analyse sont présentés dans la Fig. 4.17.



(a) S_1 indices (b) S_T indices

FIGURE 4.17 – Analyse de sensibilité Sobol sur le module cinétique

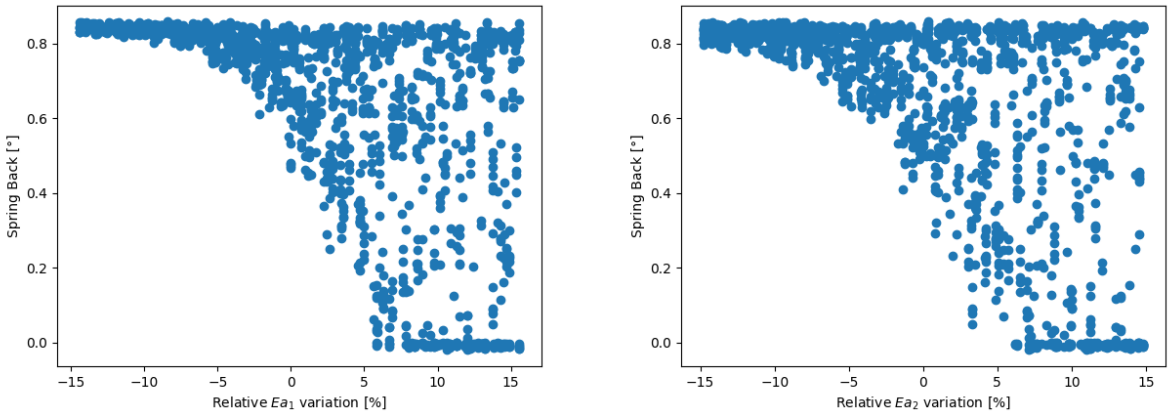
Les sommes des indices de premier ordre S_1 et les indices totaux S_T sont présentées dans la Tab. 4.10, et indiquent que les paramètres interagissent entre eux.

$\sum S_{1i}$	$\sum S_{Ti}$
0.6912	1.2412

TABLE 4.10 – Sommes des indices S_1 et S_T pour le module cinétique

Ces résultats montrent que la principale sensibilité du modèle vient des contributions individuelles des deux énergies d'activation (E_{a1} et E_{a2}). Ces paramètres majeurs contrôlent largement la sortie, et bien qu'ils soient impliqués dans des interactions, celles-ci n'introduisent pas de nouveaux paramètres importants en dehors de ceux déjà identifiés. Le paramètre n est le troisième paramètre classé comme étant le plus influant, mais la valeur des indices S_1 et S_T reste très faible en comparaison de la valeur des indices associée aux énergies d'activation. Les autres paramètres sont évalués comme ayant une influence négligeable sur la sortie du modèle.
L'intervalle de confiance estimé pour les indices liés aux énergies d'activation est relativement conséquent. Il s'élève à ± 0.15 et ± 0.18 respectivement pour les indices S_1 de Ea_1 et Ea_2 et à $\pm$ 0.24 et $\pm$ 0.21 pour les indices S_T de Ea_1 et Ea_2. Ces intervalles de confiance suggèrent que le nombre de simulation est trop faible pour obtenir des résultats précis. Cependant, au vu de la prédominance des indices liés aux énergies d'activation, la valeur importante des intervalles de confiance n'affecte pas l'interprétation des résultats.

Le choix de réaliser l'étude de sensibilité du modèle cinétique indépendamment des autres variables est justifié par la volonté de réduire les coûts de calcul. Pour avoir une idée de l'impact des variations des énergies d'activation, Ea_1 et Ea_2 sur la prédiction du spring back et avoir une comparaison avec les figures de la Section 4.2.2.c, la valeur du spring back calculé par le modèle numérique en fonction des valeurs de Ea_1 et Ea_2 utilisés, sont présentés dans la Fig. 4.18.



(a) Impact des variations de Ea_1 (b) Impact des variations de Ea_2

FIGURE 4.18 – Impact des variations des énergies d'activation sur la prédiction du spring back

Ces résultats montrent que la surestimation des énergies d'activation peut avoir un impact critique sur la valeur du spring back. En augmentant de 5% à 10% les valeur de Ea_1 et Ea_2, l'amplitude du spring back peut varier fortement, de 0.8° à 0°, suggérant une sensibilité accrue dans cette plage de variation. Les résultats confirment également la forte non-linéarité des variations des paramètres d'entrée sur la sortie, ce qui est cohérent avec l'analyse des indices de Sobol. À l'inverse, les variations de la prédiction du spring back est faible quand la valeur des énergies d'activation est sous-estimée. Entre -15% et -5%, ces variations sont de l'ordre de $\pm 0.05°$.

Cette étude démontre que les énergies d'activation constituent les paramètres les plus influents du module de cinétique de cuisson pour la prédiction du spring back. Les énergies d'activation du modèle Kamal et Sourour sont déterminées par identification numérique sur des essais isothermes. L'analyse de sensibilité globale suggère de se concentrer sur ce type d'essai pour identifier une loi cinétique robuste pour la prédiction des distorsions géométriques sur des pièces composites.

Conclusion

Ce chapitre s'est concentré sur l'analyse de sensibilité des paramètres d'entre du modèle numérique et des modèles analytiques. Deux types d'analyse de sensibilité ont été utilisés dans ce chapitre. Tout d'abord, une analyse locale, se concentrant sur l'influence des conditions aux limites et de la qualité du maillage, a été proposée. Cette étude a montré que le choix de la méthode utilisée pour supprimer les mouvements de corps rigide, afin de représenter au mieux une configuration libre, a un impact limité sur la prédiction du spring-back. Concernant le maillage, une convergence est observée rapidement, aux alentours de 2 500 éléments. Tout raffinement, à partir de ce nombre, n'est pas optimal, car cela s'accompagne d'une augmentation importante du temps de calcul.

Pour obtenir des résultats de sensibilité sur les paramètres matériau utilisés dans les modèles analytiques et le modèle numérique, plus précis et complets, des méthodes d'analyse globale ont été utilisées. Tout d'abord, la méthode de Sobol a été implémentée sur les modèles analytiques, sur une configuration unidirectionnelle et quasi-isotrope. Cette analyse a montré que les coefficients de retrait chimique ont les indices de sensibilités les plus élevés, et que les paramètres d'entrée n'avaient pas d'interaction entre eux. Cette observation à valider l'implémentation de la méthode FAST, permettant une diminution du temps de calcul, pour des résultats équivalent.

La méthode de Sobol a été employée, également, sur la simulation numérique. Deux configurations d'empilement ont été étudiées : une configuration unidirectionnelle et quasi-isotrope. Des nombreux paramètres matériau ont été étudiés et les résultats ont souligné l'importance des coefficients de retrait chimique, notamment celui dans la direction de l'épaisseur, pour les deux types d'empilement. La valeur du degré d'avancement au point de gel, a une contribution importante sur la sensibilité. Le modèle numérique présente un niveau de complexité supérieur aux modèles analy-

tiques, car un niveau de couplage plus important, est observable entre les différents paramètres d'entrée, notamment sur la configuration quasi-isotrope.

Finalement, la sensibilité de la loi cinétique, le modèle de Kamal et Sourour, a été étudiée. Le modèle KS permet de calculer, au cours de la simulation, la valeur du degré d'avancement de la réaction, lequel s'est révélé être un paramètre influant dans la sensibilité globale du modèle. Les résultats ont mis en évidence que les énergies d'activation, E_{a1} et E_{a2}, sont les paramètres du modèle KS les plus influents.

Ces analyses de sensibilité ont clairement souligné la contribution majeure des coefficients de retrait chimique dans les diverses directions, CRC. Jusqu'à présent, la valeur associée à ces paramètres a été choisie dans la littérature. Il apparaît donc pertinent de chercher à les caractériser expérimentalement, afin d'améliorer la précision des résultats de prédiction, en utilisant des valeurs issues de ce travail de recherche. Dans cette perspective, le prochain chapitre sera consacré au développement d'une méthode innovante permettant la caractérisation des paramètres de retrait chimique, directement à partir d'échantillons de préimprégné.

Chapitre 5

Caractérisation du CET et du CRC par corrélation d'image

Introduction

Les analyses de sensibilités, effectuées sur les modèles analytiques et le modèle numérique, ont souligné l'importance majeure des coefficients de retrait chimique de la résine pour la prédiction du phénomène de spring back. Les coefficients de retrait chimique représentent les déformations causées par les changements volumiques de la résine au cours de sa polymérisation, ils sont donc uniquement associés au comportement de la résine. Une caractérisation fine de ces paramètres est essentielle pour que la simulation numérique soit la plus précise possible.

La caractérisation de ces coefficients n'est pas une tâche aisée car elle est confrontée à des difficultés provenant de la nature des matériaux composites. Pour la réaliser, il est nécessaire de séparer le comportement des fibres et de la résine, les fibres n'étant pas sujet aux déformations chimiques. De plus, les déformations chimiques sont en compétitions avec les déformations thermiques durant un cycle de durcissement, il faut donc découpler ces phénomènes pour obtenir des mesures cohérentes. Pour la caractérisation expérimentale, plusieurs techniques existent et elles ont été décrites dans le Chapitre 1. Ces méthodes amènent à des résultats précis, mais nécessite un grand nombre d'essais à réaliser avec des équipements coûteux ou complexes à prendre en main.

L'objectif de ce chapitre, est de proposer une méthode de caractérisation simple, faisant appel à des techniques expérimentales moins complexe. Cette méthode doit pouvoir être utilisée sur des matériaux crus de type préimprégné. Pour cela, les coefficients de retrait chimique (CRC) et d'expansion thermique (CET) vont être mesurés par une méthode de corrélation d'images, appliquée à des échantillons préimprégnés. La méthode de mesure a été conçue pour ces travaux de thèse, en se reposant sur une méthode de corrélation d'images préalablement développée au sein du laboratoire. Le protocole expérimental sera, dans un premier temps, détaillé. Ensuite, les coefficients d'expansion thermique, sur un matériau cru et un maté-

riau finalisé, seront mesurés. Pour finir, la méthode sera appliquée pour mesurer les coefficients de retrait chimique associés à la résine M21E.

5.1 Protocole expérimental

Le protocole expérimental propose de mesurer les coefficients d'expansion thermique et de retrait chimique par la méthode basée sur la corrélation d'images. Il est basé sur une technique expérimentale développée au sein du laboratoire par Flament et al. [25].

5.1.1 Description théorique

La corrélation d'images numérique (Digital Image Correlation) DIC est une méthode non-destructive qui permet de suivre les déplacements que subit un matériau soumis à des contraintes mécaniques ou thermiques. La méthode DIC repose sur l'analyse d'une texture aléatoire appliquée à la surface de l'échantillon. Pour obtenir une surface à motif aléatoire, les échantillons étudiés sont d'abord peints intégralement en blanc ou en noir. Les motifs aléatoires, appelés mouchetis, d'une couleur contrastante au fond, sont ensuite obtenus par diverses techniques. Ces mouchetis sont généralement obtenus par projection de gouttelettes de peinture obtenues par déviation du spray. Une région d'intérêt (ROI) est ensuite définie sur l'échantillon afin de délimiter la zone à analyser. Cette région est elle-même découpée en sous-régions (subsets) formant un maillage. Pour une précision optimale, la taille d'une sous-région doit être du même ordre de grandeur que la taille du plus gros mouchetis. Ces sous-régions forment un quadrillage sur l'échantillon et l'algorithme les trace durant l'expérience. Chaque sous-région de la pièce déformée est comparée à la sous-région de référence ce qui permet d'en déduire les champs de déplacement.

La comparaison des sous-régions déformées avec celles de référence permet d'obtenir les champs de déplacement. À partir de ces champs, le logiciel calcule les champs de déformation. En couplant ces résultats avec les conditions imposées (température, force), il est possible de remonter à certains paramètres matériau comme son coefficient d'expansion thermique ou le coefficient de retrait chimique. Un schéma récapitulatif est présenté dans la Fig. 5.1.

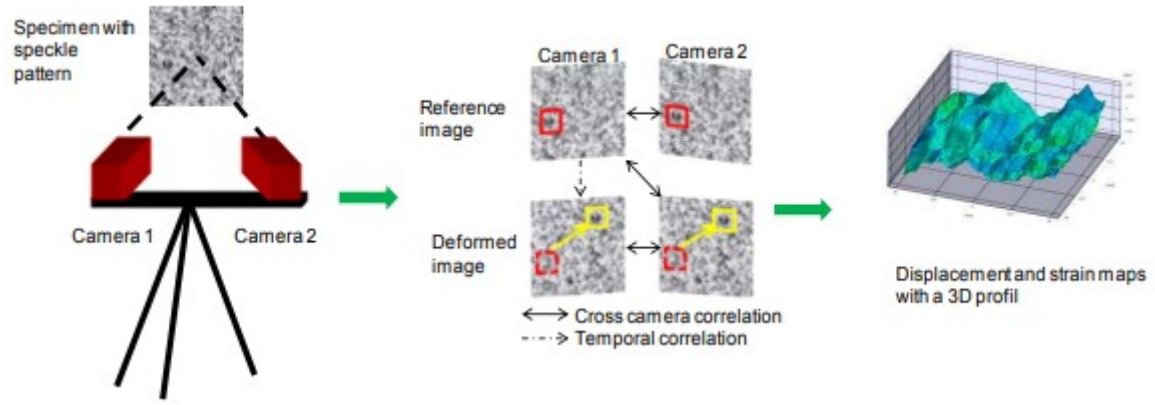


FIGURE 5.1 – Schéma de fonctionnement de la méthode DIC 3D [25]

5.1.2 Dispositif expérimental

Les échantillons sont polymérisés dans une étuve équipée d'une vitre sur le sommet pour permettre aux caméras de prendre les images de l'échantillon se déformant sans contrainte mécanique, car seulement posé sur une plaque dans l'étuve. L'étuve, à la différence d'un autoclave, ne permet pas le contrôle de la pression, seulement la température est contrôlée. Le dispositif de contrôle de la température de l'étuve permet l'implémentation de cycle thermique complexe. Un thermocouple est ajouté à l'intérieur de l'étuve pour mesurer la température de l'échantillon.

Deux caméras monochromatiques avec une résolution de 2048 × 2048 pixels (AVT Pike F-421B) sont utilisées pour prendre les images durant les essais. L'utilisation de deux caméras permet de déterminer un champ de déplacement suivant les trois directions, par stéréoscopie. Les caméras capturent les images par le dessus de l'étuve. Il y a un angle de d'environ 30 ° entre les deux caméras, qui est précisément mesuré lors de l'étape de calibration du système de stéréo-corrélation avant chaque essai. Un ventilateur est également utilisé pour souffler l'air chaud entre la vitre et les caméras, pour ne pas perturber les mesures. Un total de dix images sont prisent à température constante pour chaque mesure, afin de réduire l'effet du bruit temporel. Un algorithme Matlab est ensuite utilisé pour faire une moyenne de ces images. Les caméras sont directement connectées à l'ordinateur pour transmettre les images à analyser par le logiciel VIC 3D de Correlated Solutions®. Une photo du dispositif expérimental est présentée dans la Fig. 5.2.
Une région d'intérêt (ROI) est définie sur les images. Elle est, elle-même, divisée en sous-régions, appelées subset. Ces subsets forment un maillage sur l'image. Un maillage fin améliore la résolution spatiale des mesures, mais s'il est trop raffiné, il augmente le bruit et réduit la fiabilité des résultats. Le calcul des déformations correspondant à la contrainte thermique, est réalisé en suivant le déplacement des subsets durant l'expérience.

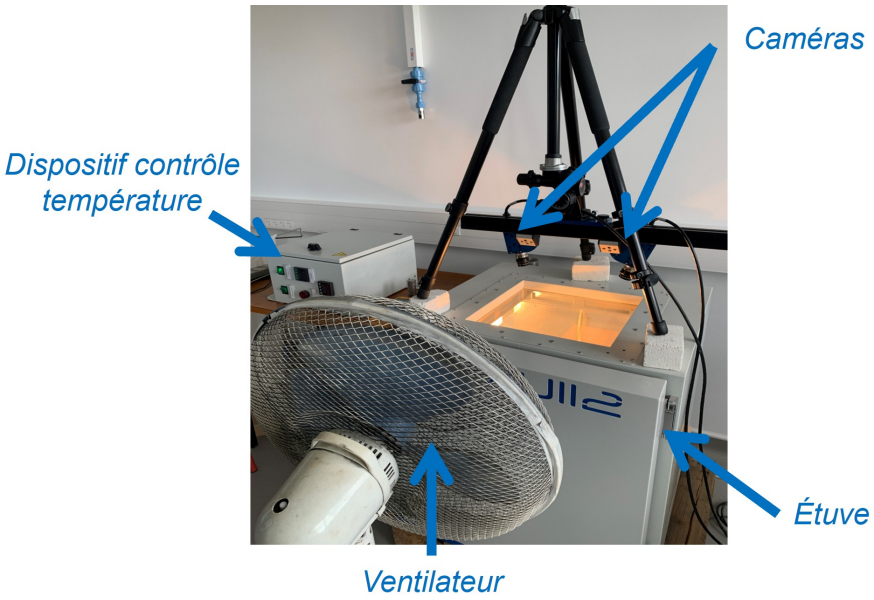


FIGURE 5.2 – Photographie du dispositif expérimental DIC

5.1.3 Préparation des échantillons

Les échantillons sont constitués d'une seule couche de préimprégné, placés sur une plaque d'acier recouverte par un film de téflon, pour empêcher l'échantillon de coller à la plaque d'acier. La préparation des échantillons, dans les mesures par corrélation d'images, est une étape clé. L'objectif est la création d'un motif aléatoire pour que la corrélation soit possible. Pour cela, les échantillons sont peints en blanc et des mouchetis aléatoires sont obtenus par projection de peinture noire. Un subset doit être de dimension similaire au plus gros mouchetis présent sur la surface, pour garantir une précision optimale. Une photographie d'un échantillon de préimprégné recouvert d'un motif aléatoire est présenté dans la Fig. 5.3.



FIGURE 5.3 – Photographie d'un échantillon recouvert d'un motif aléatoire

5.2 Mesure du coefficient d'expansion thermique CET

Les mesures des coefficients d'expansion thermique sont réalisées sur des échantillons à l'état cru et sur des échantillons finalisés (après cuisson). Le CET, dans la direction i, sont définis par l'expression suivante :

$$CET_{ii} = \frac{\varepsilon_{th}}{\Delta T} \tag{5.1}$$

Avec ε_{th} le terme associé aux déformations thermiques et ΔT représente la variation de température appliquée à l'échantillon. Pour mesurer ces coefficients, la température est augmentée pas à pas (en escalier), la durée des pas devant être assez longue pour atteindre l'homogénéisation de la température dans le composite et permettre l'acquisitions de plusieurs images. Les essais sur un préimprégné à l'état cru sont réalisés dans une gamme de température de 25 °C à 90 °C, pour être certain de ne pas initier la réaction de la résine. Pour les échantillons finalisés, les essais sont réalisés après un cycle de cuisson complet. Une méthode d'homogénéisation du CET pour un échantillon unidirectionnel, proposée par Schapery et al. [88], est présentée dans l'équation suivante pour la direction longitudinale aux fibres :

$$CET_{11} = \frac{CET_{11f} E_{1f} V_f + CET_r E_r f_r}{[E_{11f} V_f + E_r V_r]} \tag{5.2}$$

Avec CET_{11f} et CET_r respectivement les coefficients d'expansion thermique associés aux fibres dans le sens longitudinal et à la résine. E_{11f} est le module de Young des fibres dans le sens longitudinal et V_f et V_r sont les fractions volumiques des fibres et de la résine. Dans les autres directions, le CET est défini par :

$$CET_{22} = CET_{33} = (CET_{22f} + \nu_{12f} CET_{11f}) V_f + (1 + \nu_r) CET_r V_r - \nu_{12} CET_{11} \tag{5.3}$$

L'index 22 concerne la direction transverse aux fibres et l'index 33, la direction dans l'épaisseur. ν_{ij} est le coefficient de Poisson.

5.2.1 CET pour l'état cru

La mesure du CET pour l'état non réticulé de la résine est présentée dans cette section. L'échantillon étudié est préalablement conservé dans un congélateur, à basse température. Il est ensuite placé dans l'étuve et soumis à une augmentation progressive de la température. Le test s'arrête une fois que la température atteint 90 °C. La mesure est réalisée sur un jeu de 7 images moyennes, capturées tous les 10 °C. L'évolution des déformations dans le sens des fibres, ε_{11} et dans le sens transverse aux fibres, ε_{22}, est présentée dans la Fig. 5.4.

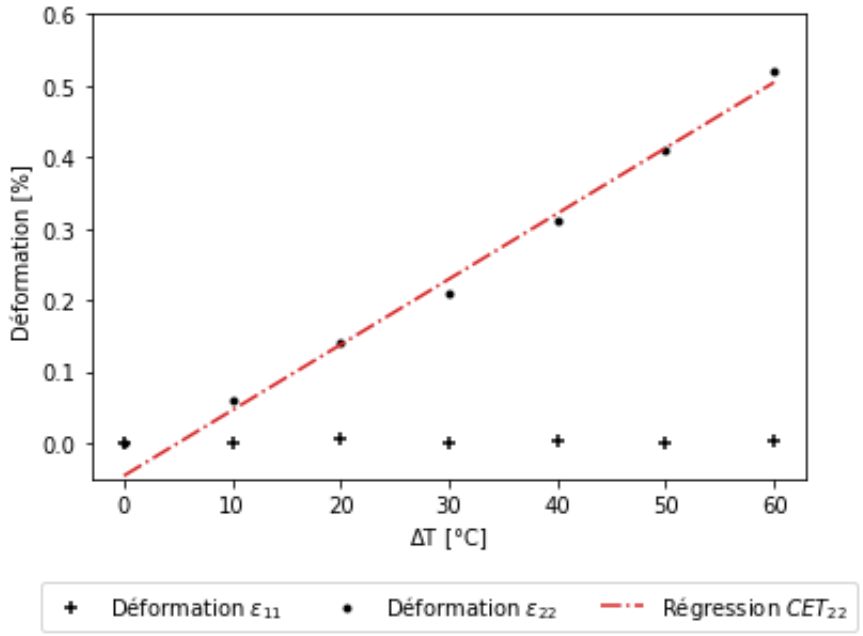


FIGURE 5.4 – Déformation dans le sens longitudinal (croix) et transverse (point) en fonction de la variation de la température pour un échantillon non réticulé

Les déformations dans la direction des fibres sont nettement plus faibles que celle observées dans la direction transverse (environ 100 fois inférieures). Ce résultat s'explique par le fait que le CET dans le sens longitudinal des fibres est principalement dominé par celui des fibres de carbone, dont la valeur est très faible, voire négatif. Aucune tendance n'est observable pour les déformations longitudinales (ε_{11}), tandis que, dans la direction transverse, les déformations, ε_{22}, augmentent linéairement avec l'augmentation de la température. Le CET, correspondant à la matière à l'état cru, dans la direction des fibres, CET_{11}^{cru}, est donc considéré comme nul. L'identification du CET dans la direction transverse, pour un matériau non réticulé, CET_{22}^{cru}, est réalisée par régression linéaire. La régression linéaire est représentée par la courbe rouge sur la Fig. 5.4. La pente de la droite donne la valeur du coefficient : $CET_{22}^{cru} = 91.171 \times 10^{-6}$ 1/°C, pour un coefficient de corrélation : $R^2 = 0.997$.

5.2.2 CET après réticulation complète

La méthode de mesure du coefficient d'expansion thermique dans le sens des fibres et dans le sens transverse aux fibres, pour un échantillon finalisé, est présentée dans cette section. L'échantillon subit une première rampe de température, allant de la température ambiante jusqu'à 250 °C pour assurer une réticulation complète de l'échantillon. Celui-ci est ensuite refroidi jusqu'à température ambiante, en environnement non contrôlé. Une seconde rampe de chauffage en escalier, allant de la température ambiante jusqu'à 200 °C, est ensuite appliquée pour la mesure du CET. Les déformations subies par l'échantillon finalisé en fonction de la variation de la température sont présentées dans la Fig. 5.5.

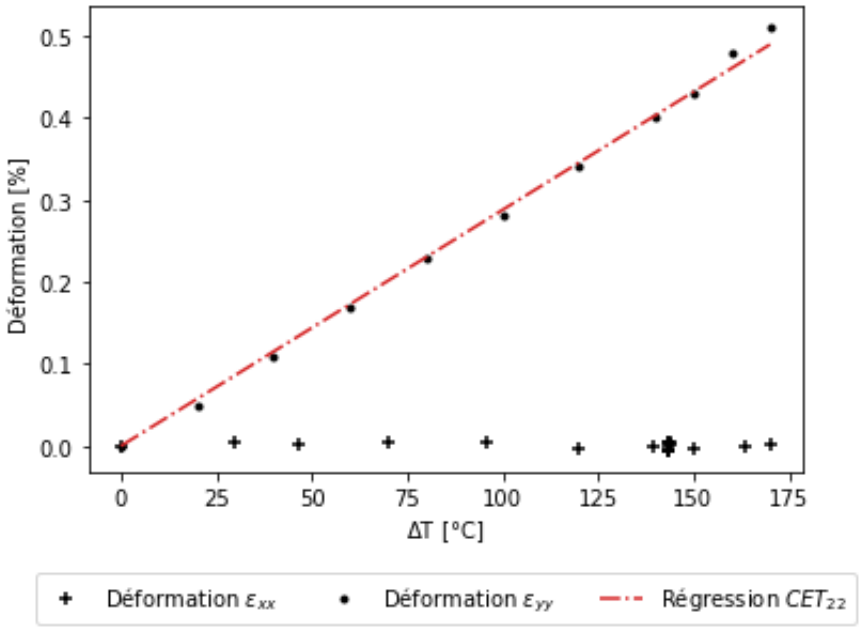


FIGURE 5.5 – Déformation dans le sens longitudinal (croix) et transverse (point) en fonction de la variation de la température pour un échantillon totalement réticulé

De façon identique à l'essai réalisé sur un matériau cru, les résultats montrent que les déformations thermiques dans le sens des fibres sont négligeables par rapport à celles dans le sens transversal. Le CET correspondant, CET_{11}^{cuit}, est également considéré comme nul. Les déformations thermiques dans le sens transverse sont proportionnelles à l'élévation de la température. Une régression linéaire est, de nouveau, effectuée pour l'identification du CET dans cette direction, CET_{22}^{cuit}. La régression linéaire obtenue correspond à la courbe rouge sur la Fig. 5.5, détermine une pente de : $CET_{22}^{cuit} = 28.785 \times 10^{-6}$ 1/°C, pour un coefficient de corrélation : $R^2 = 0.998$. Le CET d'un matériau cuit est donc inférieur à celui d'un matériau non réticulé. Cette observation est cohérente avec les résultats rapportés dans la littérature [90, 58, 85]. La diminution du CET avec l'avancement de la réticulation s'explique par la perte progressive de la mobilité des chaînes de polymère constituant la résine. Pour un matériau cru, la résine peut être assimilée à un liquide visqueux, composé de chaînes

courtes qui disposent d'une forte mobilité. La formation du réseau tridimensionnel de masse moléculaire quasi-infinie, associée à la réticulation de la résine, entraîne une diminution de la mobilité moléculaire qui se traduit par la réduction du CET.

Finalement, les valeurs du CET correspondant à un matériau à l'état cru et à l'état cuit, dans les deux directions du plan, sont récapitulées dans la Tab. 5.1.

$\mathbf{CET}_{11}^{cru}\mathbf{(1/°C)}$	$\mathbf{CET}_{22}^{cru}$ **(1/°C)**	$\mathbf{CET}_{11}^{cuit}\mathbf{(1/°C)}$	$\mathbf{CET}_{22}^{cuit}$ **(1/°C)**
0	91.171×10^{-6}	0	28.785×10^{-6}

TABLE 5.1 – Récapitulatif du CET mesuré sur des échantillons non réticulés et finalisés

5.3 Mesure du CRC

Cette section est réservée à la détermination du coefficient de retrait chimique. Ce coefficient retranscrit les déformations liées aux changements volumiques que subit la résine durant sa réticulation. Le CRC, dans une direction i, est défini par l'expression suivante :

$$CRC_{ii} = \frac{\varepsilon_{ch}}{\Delta\alpha} \tag{5.4}$$

Où ε_{ch} est le terme associé aux déformations chimiques et $\Delta\alpha$ représente la variation du degré de réticulation. La méthode d'homogénéisation est adaptée des Eq. 5.2 et Eq. 5.3, en fixant le coefficient de retrait chimique associé aux fibres, comme étant nul, $CRC_{iif} = 0$. Les expressions du CRC, dans les diverses directions, sont détaillées dans les équations suivantes [54] :

$$CRC_{11} = \frac{CRC_r E_r f_r}{[E_{11f} V_f + E_r V_r]} \tag{5.5}$$

Et :

$$CRC_{22} = CRC_{33} = (1 + \nu_r) CRC_r V_r - \nu_{12} CRC_{11} \tag{5.6}$$

Pour la caractérisation du CRC, les échantillons sont maintenant soumis à des essais isothermes, dans le but d'isoler les effets de la rétractation chimique des effets liés à

l'expansion thermique. Le choix de la température pour l'isotherme est un paramètre important. Une température trop basse ne permettrait pas d'atteindre la gélification de la résine, dans un temps raisonnable, tandis que pour une température isotherme trop haute, la réticulation aurait lieu trop rapidement et les effets associés seraient difficilement visibles. Après plusieurs tests, une température d'isotherme à 170 °C a été choisie pour ces essais. La montée à 170 °C doit se faire le plus rapidement possible pour que le degré d'avancement de la polymérisation soit le plus faible possible au début de l'essai.

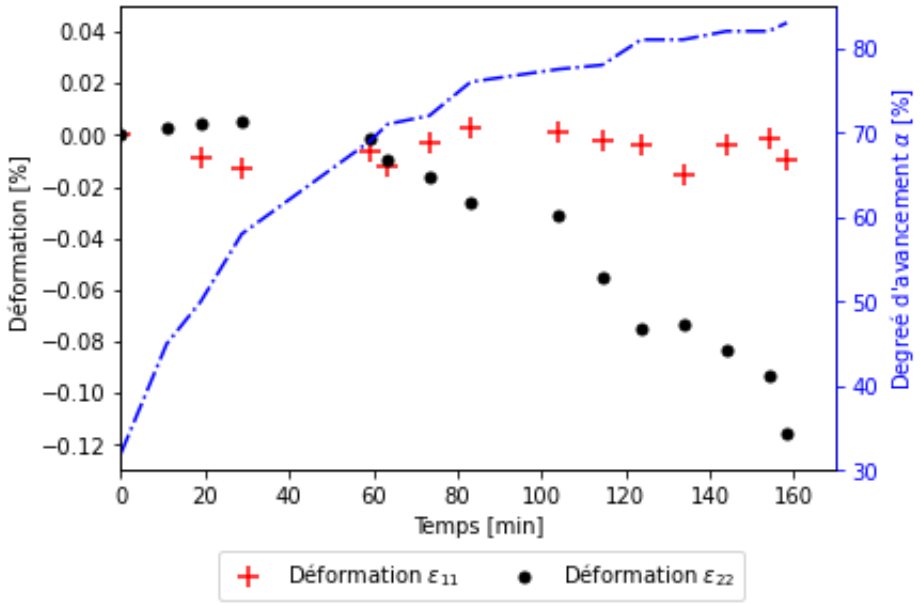


FIGURE 5.6 – Déformations dans le sens des fibres (croix) et dans le sens transverse (point) en fonction du temps pour un essai isotherme à 170 °C

L'évolution des déformations en fonction du temps est présentée dans la Fig. 5.6. Un point de mesure est calculé à partir d'un set d'image enregistré toutes les cinq minutes. Le degré d'avancement atteint au début de l'isotherme est d'environ 30 %. L'évolution des déformations dans le sens des fibres, ε_{11}, ne suit aucune tendance, les fibres empêchant la compaction chimique dans cette direction. Le coefficient de retrait chimique associé à cette direction, CRC_{11}, est donc assumé proche de 0.

Concernant les déformations dans le sens transverse, ε_{22}, deux phases sont distinguables dans les résultats présentés. La première phase se déroule entre le début de l'essai et la gélification ($\approx$ 40 min). Dans cette gamme de temps, la rétractation chimique étant très faible, aucune contraction de l'échantillon n'est observable. Une légère expansion est même visible, certainement due à de légères variations de température au sein de l'étuve.

La seconde phase se déroule de la gélification jusqu'à la fin de l'essai. La conversion de la résine est suffisamment avancée pour que le retrait chimique commence à influencer l'essai. L'échantillon commence à se contracter, ce qui entraîne une di-

minution des déformations. Cette contraction continue jusqu'à la fin de l'essai, ce qui montre que dans les conditions de l'essai (temps, température) la vitrification n'a pas lieu. Cette diminutions des déformations est directement liée au coefficient de retrait chimique. Pour déterminer celui-ci, les déformations de la phase n°2 sont représentées en fonction du degré d'avancement dans la Fig. 5.7.

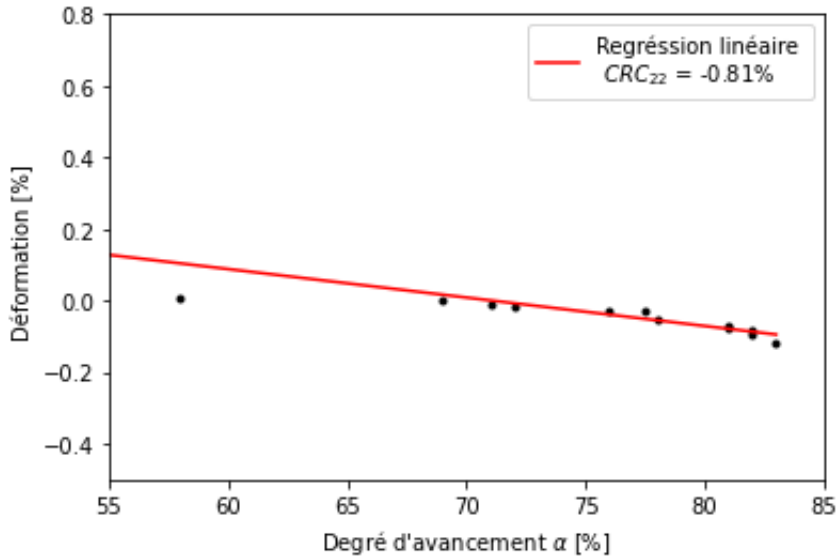


FIGURE 5.7 – Déformations dans le sens transverse aux fibres en fonction du degré d'avancement α

L'analyse graphique montre que la relation entre le degré d'avancement et les déformations suit une tendance linéaire. L'identification du CRC_{22} peut être réalisée, de la même façon que le CET_{22}, par régression linéaire, représentée par la courbe rouge sur la Fig. 5.7. La valeur du CRC_{22} retenue est de -0.81 % obtenue pour un coefficient de détermination R^2 de 0.89. Les résultats sont récapitulés dans la Tab. 5.2.

$\mathbf{CRC_{11}}$(%)	$\mathbf{CRC_{22}}$ (%)
0	-0.81

TABLE 5.2 – Récapitulatif du CET mesuré sur un test isotherme de 170 °C

Avec la mesure du CRC_{22} et en reformulant l'Eq. 5.6, le coefficient de retrait chimique de la résine M21E, CRC_r, peut être calculé :

$$CRC_r = \frac{CRC_{22}}{V_r(1+\nu_r)} = \frac{-0.81}{0.41 \times (1+0.35)} = -1.46\% \tag{5.7}$$

5.4 Application à la simulation numérique du cadre de fuselage

Des nouvelles simulations sur le cadre de fuselage sont réalisées avec les nouvelles valeurs du CET et du CRC mesurées dans ce chapitre. Pour rappel, le rayon de courbure du cadre, avec les valeurs issues de la littérature, subissait une diminution de 24 mm et la distance entre les deux extrémités diminuait de 26mm. La déformée du cadre, obtenus avec les nouvelles valeurs du CET et du CRC, est présentée dans la Fig. 5.8.

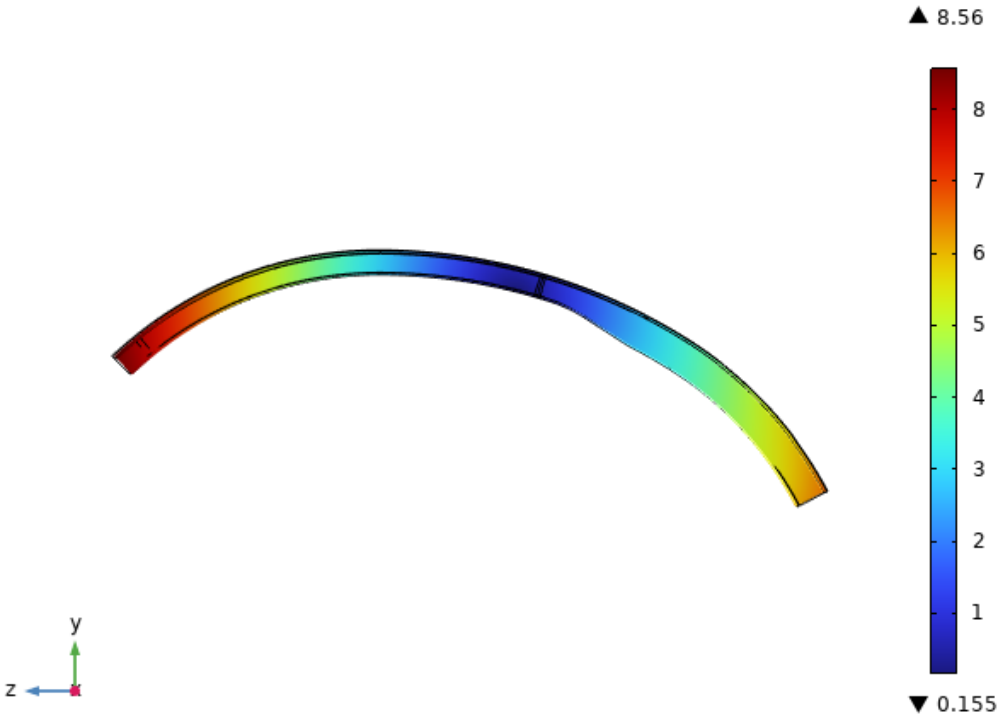


FIGURE 5.8 – Déformée du cadre obtenue avec les nouvelles valeurs du CET et CRC

Le rayon de courbure, initialement de 1744 mm, est de 1727 mm en fin de calcul, soit une réduction de 17 mm. La distance entre les deux extrémités passe de 2643 mm à 2627 mm, soit une diminution de 16 mm. Comme nous avons pu le démontrer lors des analyses de sensibilité réalisées dans le Chapitre 4, la modification des coefficients d'expansion thermique et de retrait chimique a eu un fort impact sur le retour élastique que subit le cadre en fin de procédé. Cette réduction est de l'ordre de 30 % en comparaison avec les résultats obtenus à partir des données de la littérature et qui ont été présentés dans la Section 3.5.

Conclusion

L'analyse de sensibilité, présentée dans le chapitre précédent, a montré que les coefficients d'expansion thermique (CET) et de retrait chimique (CRC) jouent un rôle crucial dans le phénomène de spring back. Une nouvelle méthode de mesure de ces coefficients a été développée dans ce chapitre, afin de répondre aux besoins identifiés dans l'étude de sensibilité. L'objectif principal de cette démarche est de proposer une technique de mesure facilement applicable à un matériau préimprégné, et sans nécessiter l'emploi d'équipements de caractérisation complexes et coûteux. Cette méthode repose sur la technique d'analyse par stéréo-corrélation d'images (DIC). Des images des échantillons sont capturées durant les essais, et les champs de déplacement sont calculés par un logiciel via le suivi des motifs aléatoires (mouchetis) préalablement appliqués à la surface de l'échantillon.

Dans un premier temps, cette méthode a été employée pour mesurer le CET pour deux états du matériau : non réticulé (cru) et entièrement réticulé (cuit). Les déformations thermiques longitudinales se sont révélées être très faibles, en raison de la dominance du CET associé aux fibres, celui-ci étant quasiment nul voir négatif, et aucune tendance n'a pu être observée. Les déformations thermiques transversales évoluent de façon linéaire avec l'augmentation de la température, permettant l'identification du CET dans cette direction, par régression linéaire (associée à la pente de la courbe). Les régressions obtenues pour les deux états présentent un coefficient de détermination R^2 très proche de 1, attestant de la précision de la mesure. Les résultats ont également montré que le CET, associé à un matériau cuit, est plus faible que celui associé à un matériau cru. Ce phénomène est explicable par la formation d'un réseau covalent, réduisant la capacité du matériau à se dilater sous l'effet de la température.

Le coefficient de retrait chimique (CRC) a finalement pu être déterminé grâce à la méthode expérimentale mise en œuvre. Pour réaliser cette mesure, un cycle isotherme a été appliqué permettant d'isoler les effets liés au retrait chimique de ceux induits par l'expansion thermique du matériau. La contraction du matériau débute quand le point de gel est atteint, avant cela, les déformations sont proches de 0. À partir de ce point, la mesure du retrait chimique devient réalisable. Le coefficient de retrait chimique associé à la résine a ainsi pu être quantifié, sa valeur étant estimée à environ -1.5%.

De nouvelles simulations sur le cadre de fuselage ont ensuite été réalisées avec les nouvelles valeurs des coefficients, mesurées par la méthode de corrélation d'images. Ces nouveaux résultats ont montré une réduction du rayon de courbure moins importante, ce qui implique que l'effet spring back est réduit avec ces nouveaux coefficients.

Les résultats présentés ont permis de valider la méthode expérimentale développée durant ces travaux de thèse. Cependant, celle-ci n'a été utilisée que pour mesurer les déformations dans le plan, ce qui constitue une restriction importante pour la prédiction du phénomène de spring back. En perspective, il serait pertinent d'employer cette méthode sur des échantillons disposant d'une plus grande épaisseur pour permettre la mesure des coefficients CET et CRC dans la direction hors plan (à travers l'épaisseur). Par ailleurs, une piste d'amélioration, consisterait à étudier l'influence du matériau constitutif de la surface d'appui des échantillons. En effet, les interactions mécaniques (frottement, adhérence, etc.) entre l'échantillon et son support pourraient affecter les déformations mesurées. Une étude de l'influence de cet effet permettrait d'optimiser les conditions expérimentales et d'améliorer la reproductibilité des résultats.

Table des figures

1.1 Propriétés mécaniques des fibres de carbone [19] 7
1.2 Schéma d'un matériau composite stratifié [48] 8
1.3 Vue schématique du comportement isotrope transverse d'un matériau composite à renfort carbone [101] 8
1.4 Schéma représentant les différentes échelles dans les composites stratifiés 9
1.5 Représentation schématique du fonctionnement d'un autoclave [38] . 9
1.6 Répartition des différents matériaux utilisés sur un avion [7] 10
1.7 Vue schématique d'un fuselage d'avion avec ses différents constituants [66] 11
1.8 Schéma représentant la géométrie de la section du cadre de fuselage . 12
1.9 Schéma représentant la géométrie du cadre de fuselage [17] 12
1.10 Schéma représentant la découpe des pré-imprégnés issus des rouleaux de matière [17] 13
1.11 Formage de l'inner flange [17] 13
1.12 Cintrage de la pièce [17] 13
1.13 Rabattage de l'outer flange [17] 13
1.14 Préparation de la pièce pour la cuisson [17] 14
1.15 Schéma représentant le spring-in (a) et le gauchissement (b) [24] . . . 15
1.16 Exemple de diagramme TTT pour le durcissement des thermodurcissables [18]. Tg_0 : température de transition vitreuse du mélange initial avant durcissement, gel Tg ($\alpha \approx 0$) : température à laquelle la gélification et la vitrification coïncident ($\alpha = \alpha_{gel}$), Tg_∞ : température de transition vitreuse d'un système entièrement réticulé ($\alpha = 1$) 17
1.17 Effet de l'interaction pièce outil [4] 18
1.18 Modèle de Maxwell généralisé simplifié [52] 27
1.19 Schéma du modèle CHILE [8] 28
1.20 Représentation du modèle CHILE modifié de Khoun [49] 29
1.21 Illustration des coefficients pour deux paramètres : (a) $c(CRC, \Delta\theta) = 0.88$ et (b) $c(CET, \Delta\theta) = 0$ 31

2.1 Schéma de l'organisation des couches de thermoplastique au sein du préimprégné [36] 37
2.2 Observation microscopique du matériau 38
2.3 Cycle thermique recommandé par le fournisseur, pour le durcissement de la résine M21E [34] 38

2.4 Schéma de la DSC utilisée (Star 1 - Mettler-Toledo®) [22] 40
2.5 Exemple d'une courbe obtenue par DSC sur un préimprégné résine epoxy/fibre de carbone 41
2.6 Exemple d'une courbe du degré d'avancement de la polymérisation de la résine en fonction de la température 41
2.7 a) dispositif expérimental de la DMA ; b) mors de traction 42
2.8 Déphasage entre l'excitation et la réponse lors d'un test DMA 43
2.9 Exemple d'une courbe obtenue après un test DMA (1°C/min) 45
2.10 Mesure DSC du flux de chaleur en fonction de la température pour des vitesses de chauffe de : 10, 20 et 50°C/min 46
2.11 Degré de polymérisation maximum obtenu pour des essais isothermes à : 160, 170, 180, 190 et 200°C 49
2.12 Vitesse de réticulation en fonction du degré de polymérisation obtenue pour des essais isothermes à : 160, 170, 180, 190 et 200°C 49
2.13 Identification des paramètres du modèle KS sur les différentes isothermes 50
2.14 Calcul des énergies d'activation et des constantes d'Arrhenius 52
2.15 Variation de la température de transition vitreuse T_g en fonction du degré d'avancement α 53
2.16 Détermination de α_{gel}, à partir d'essais DSC et DMA, pour des fréquences de 1 Hz et 3 Hz, sur un rampe de température à 1 °C/min 55
2.17 Essai DMA en cisaillement obtenu pour un cycle thermique représentatif des conditions industrielles de durcissement, pour des fréquences de 1, 3 et 10 Hz. 56
2.18 Comparaison entre le modèle numérique et les essais expérimentaux dynamique 58
2.19 Comparaison entre le modèle numérique et les essais expérimentaux isothermes 59
2.20 Évolution de la température de transition vitreuse, T_g, calculée numériquement en fonction du temps 60
2.21 Évolution du module G'_{12}, mesurée expérimentalement et calculée par le modèle CHILE 62
2.22 Évolution du module G_r et E_r, en fonction de la température 63

3.1 Illustration de la géométrie "L Shape" utilisée pour la comparaison des modèles analytiques 69
3.2 Comparaison de la valeur de spring back prédite par les modèles analytiques sur une configuration "L Shape" 70
3.3 Architecture du modèle numérique multiphysique 72
3.4 Maillage utilisé pour la pièce L Shape 78
3.5 Points utilisés pour déterminer le spring back 78
3.6 Déformée de la pièce en fin de cuisson 79
3.7 Évolution du taux de polymérisation α en fonction du temps 80
3.8 Comparaison de la température à différent endroit de la pièce 80
3.9 Évolution de l'ange θ au cours de la simulation 81

3.10 Comparaison de l'évolution de l'ange θ sur un pièce "L Shape" unidirectionnelle pour les deux types de modèle utilisés 82
3.11 Comparaison des prédictions de spring back réalisées par les différents modèles analytique et numérique 83
3.12 Représentation schématique de la géométrie des moules 84
3.13 Représentation schématique de la géométrie d'un échantillon composites sur le moule 86
3.14 Comparaison des températures de consigne, du moule 30° et du moule 90° pour les deux cycles de cuisson 86
3.15 Représentation schématique de la géométrie d'un échantillon composites sur le moule 87
3.16 Comparaison du spring back mesuré et du spring back prédit par la simulation pour le moule 30° 88
3.17 Comparaison du spring back mesuré et du spring back prédit par la simulation pour le moule 90° 89
3.18 Géométrie du cadre de fuselage 90
3.19 Géométrie de la section du cadre de fuselage 90
3.20 Déformée du cadre de fuselage obtenue après le calcul de la seconde étape 91
3.21 Déformée de la section obtenue après encastrement du web et avec un facteur d'échelle appliqué 92

4.1 Illustration du fonctionnement de l'analyse de sensibilité 94
4.2 Déformée obtenue pour des conditions aux limites libres 96
4.3 Vue schématique des conditions aux limites imposées pour empêcher les mouvements de corps rigide 97
4.4 Déformée obtenue pour des conditions de suppression de mouvement corps rigide 97
4.5 Schéma des conditions aux limites pour une face encastrée 98
4.6 Déformée obtenue pour des conditions aux limites pour une face encastrée 98
4.8 Impact du nombre de simulations sur l'erreur et le temps de calcul . . 102
4.9 Analyse de sensibilité de Sobol réalisée sur les modèles analytiques pour la configuration unidirectionnelle 104
4.10 Analyse de sensibilité FAST réalisée sur les modèles analytiques pour la configuration unidirectionnelle 105
4.11 Analyse de sensibilité de Sobol réalisée sur les modèles analytiques pour la configuration quasi-isotrope 106
4.12 Analyse de sensibilité de FAST réalisée sur les modèles analytiques pour la configuration quasi-isotrope 108
4.13 Analyse de sensibilité Sobol des paramètres d'entrée du modèle numérique pour la configuration unidirectionnelle 110
4.14 Analyse de sensibilité Sobol des paramètres d'entrée du modèle numérique pour la configuration quasi-isotrope 111
4.15 Variation du spring back en fonction des variations relatives du paramètre CRC_{33} 112

4.16 Variation du spring back en fonction des variations relatives du paramètre CET_{33} . . . 113
4.17 Analyse de sensibilité Sobol sur le module cinétique . . . 114
4.18 Impact des variations des énergies d'activation sur la prédiction du spring back . . . 115

5.1 Schéma de fonctionnement de la méthode DIC 3D [25] . . . 120
5.2 Photographie du dispositif expérimental DIC . . . 121
5.3 Photographie d'un échantillon recouvert d'un motif aléatoire . . . 121
5.4 Déformation dans le sens longitudinal (croix) et transverse (point) en fonction de la variation de la température pour un échantillon non réticulé . . . 123
5.5 Déformation dans le sens longitudinal (croix) et transverse (point) en fonction de la variation de la température pour un échantillon totalement réticulé . . . 124
5.6 Déformations dans le sens des fibres (croix) et dans le sens transverse (point) en fonction du temps pour un essai isotherme à 170 °C . . . 126
5.7 Déformations dans le sens transverse aux fibres en fonction du degré d'avancement α . . . 127
5.8 Déformée du cadre obtenue avec les nouvelles valeurs du CET et CRC 128

Bibliographie

[1] Youssef Abou Msallem. *Caractérisation thermique et mécanique d'un matériau composite aéronautique pendant le procédé d'élaboration : contribution à l'estimation des contraintes résiduelles*. PhD thesis, Nantes Université, 2008.

[2] Carolyne Albert and Göran Fernlund. Spring-in and warpage of angled composite laminates. *Composites Science and Technology*, 62(14) :1895–1912, 2002.

[3] J-L Bailleul, D Delaunay, and Y Jarny. Determination of temperature variable properties of composite materials : methodology and experimental results. *Journal of reinforced plastics and composites*, 15(5) :479–496, 1996.

[4] Ismet Baran, Kenan Cinar, Nuri Ersoy, Remko Akkerman, and Jesper H Hattel. A review on the mechanical modeling of composite manufacturing processes. *Archives of computational methods in engineering*, 24 :365–395, 2017.

[5] C Bellini, L Sorrentino, W Polini, and A Corrado. Spring-in analysis of cfrp thin laminates : numerical and experimental results. *Composite Structures*, 173 :17–24, 2017.

[6] Jean-Marie Berthelot. *Matériaux composites : comportement mécanique et analyse des structures*. Editions Tec & Doc, 2005.

[7] Boeing. Introducing the 777x, 2017.

[8] Travis A Bogetti and John W Gillespie Jr. Process-induced stress and deformation in thick-section thermoset composite laminates. *Journal of composite materials*, 26(5) :626–660, 1992.

[9] Emanuele Borgonovo and Elmar Plischke. Sensitivity analysis : A review of recent advances. *European Journal of Operational Research*, 248(3) :869–887, 2016.

[10] Comsol Multiphysique. Comsol documentation. https://doc.comsol.com/5.6/doc/com.comsol.help.sme/sme_ug_solid.07.058.html, 2025. (accédé 03 Juillet 2025).

[11] RI Cukier, JH Schaibly, and Kurt E Shuler. Study of the sensitivity of coupled reaction systems to uncertainties in rate coefficients. iii. analysis of the approximations. *The Journal of Chemical Physics*, 63(3) :1140–1149, 1975.

[12] Barbara Zaparoli Cunha. *Enhancing Structural Dynamics and Vibroacoustics Design through Digital Twins Enabled by Machine Learning and Transfer Learning*. PhD thesis, Ecully, Ecole centrale de Lyon, 2023.

[13] Shiqiang Deng, Meng Hou, and Lin Ye. Temperature-dependent elastic moduli of epoxies measured by dma and their correlations to mechanical testing data. *Polymer testing*, 26(6) :803–813, 2007.

[14] AT DiBenedetto. Prediction of the glass transition temperature of polymers : a model based on the principle of corresponding states. *J. Polym. Sci. B Polym. Phys.*, 25(9) :1949–1969, 1987.

[15] Anxin Ding, Jihui Wang, Aiqing Ni, and Shuxin Li. A new analytical solution for cure-induced spring-in of l-shaped composite parts. *Compos. Sci. Technol.*, 171 :1–12, 2019.

[16] Chensong Dong. Sensitivity analysis for the spring-in of composite shells. *Advanced Composites Letters*, 20(5) :096369351102000503, 2011.

[17] Duqueine. Documentation interne, 2022. Non publiée.

[18] John B Enns and John K Gillham. Time–temperature–transformation (ttt) cure diagram : Modeling the cure behavior of thermosets. *Journal of applied polymer science*, 28(8) :2567–2591, 1983.

[19] Epsilon Composites. Propriétés mécaniques des fibres de carbone. https://www.epsilon-composite.com/fibre-de-carbone, 2025. (accédé le 16 Septembre 2025).

[20] Nuri Ersoy, Tomasz Garstka, Kevin Potter, Michael R Wisnom, David Porter, and Graeme Stringer. Modelling of the spring-in phenomenon in curved parts made of a thermosetting composite. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 41(3) :410–418, 2010.

[21] Wibke Exner, Alexandra Kühn, Artur Szewieczek, Mark Opitz, Thorsten Mahrholz, Michael Sinapius, and Peter Wierach. Determination of volumetric shrinkage of thermally cured thermosets using video-imaging. *Polymer Testing*, 49 :100–106, 2016.

[22] Jalal Faraj. *Analyse thermocinétique de la cristallisation en milieu confiné d'un composite à base d'une résine thermoplastique (Polyamide 66)*. PhD thesis, Nantes, 2016.

[23] John D Ferry. *Viscoelastic properties of polymers*. John Wiley & Sons, 1980.

[24] M Fiorina, A Seman, Bruno Castanié, KM Ali, C Schwob, and L Mezeix. Spring-in prediction for carbon/epoxy aerospace composite structure. *Composite Structures*, 168 :739–745, 2017.

[25] C Flament, M Salvia, B Berthel, and G Crosland. Digital image correlation applied to thermal expansion of composites. In *Proceedings of the 19th International Conference on Composite Materials (ICCM-19)*, volume 28, pages 5235–5243. IEEE Montreal, QC, Canada, 2013.

[26] Camille Flament, Bruno Berthel, Michelle Salvia, Gérard Grosland, and Isabelle Alix. Characterization of the thermal behavior of a complex composite (clutch facing) combining digital image stereo correlation and numerical approach. *Materials*, 15(7) :2582, 2022.

[27] RH Gardner, DD Huff, RV O'Neill, JB Mankin, J Carney, and J Jones. Application of error analysis to a marsh hydrology model. *Water Resources Research*, 16(4) :659–664, 1980.

[28] David M Hamby. A review of techniques for parameter sensitivity analysis of environmental models. *Environmental monitoring and assessment*, 32(2) :135–154, 1994.

[29] Ricky Hardis, Julie LP Jessop, Frank E Peters, and Michael R Kessler. Cure kinetics characterization and monitoring of an epoxy resin using dsc, raman spectroscopy, and dea. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 49 :100–108, 2013.

[30] Mehran Hayaty, Mohammad Hosain Beheshty, and Masoud Esfandeh. A new approach for determination of gel time of a glass/epoxy prepreg. *Journal of Applied Polymer Science*, 120(3) :1483–1489, 2011.

[31] Diana G Heflin and Jan-Anders E Mansson. Mechanisms for combining polyamide and epoxy and their effects on mechanical performance—a review. *Polymers and Polymer Composites*, 30 :09673911221130120, 2022.

[32] Stephen Heinz, Jianwei Tu, Matthew Jackson, and Jeffrey Wiggins. Digital image correlation analysis of strain recovery in glassy polymer network isomers. *Polymer*, 82 :87–92, 2016.

[33] Jon C Helton, Jay Dean Johnson, Cedric J Sallaberry, and Curt B Storlie. Survey of sampling-based methods for uncertainty and sensitivity analysis. *Reliability Engineering & System Safety*, 91(10-11) :1175–1209, 2006.

[34] Hexcel Corporation. Hexply M21 global data sheet. https://www.hexcel.com/user_area/content_media/raw/HexPly_M21_global_DataSheet.pdf, 2020. (accédé d 15 Juillet 2025).

[35] Hexcel Corporation. Hextow ima carbon fiber. https://hexcel.com/user_area/content_media/raw/IMA_HexTow_DataSheet.pdf, 2023. (accédé 03 Juillet 2025).

[36] Masaki Hojo, Satoshi Matsuda, Mototsugu Tanaka, Shojiro Ochiai, and Atsushi Murakami. Mode i delamination fatigue properties of interlayer-toughened cf/epoxy laminates. *Composites Science and Technology*, 66(5) :665–675, 2006.

[37] Toshimitsu Homma and Andrea Saltelli. Importance measures in global sensitivity analysis of nonlinear models. *Reliability Engineering & System Safety*, 52(1) :1–17, 1996.

[38] Pascal Hubert, G Fernlund, and A Poursartip. Autoclave processing for composites. In *Manufacturing techniques for polymer matrix composites (PMCs)*, pages 414–434. Elsevier, 2012.

[39] Stephen Joe and Frances Y Kuo. Constructing sobol sequences with better two-dimensional projections. *SIAM Journal on Scientific Computing*, 30(5) :2635–2654, 2008.

[40] Andrew Johnston, Reza Vaziri, and Anoush Poursartip. A plane strain model for process-induced deformation of laminated composite structures. *Journal of composite materials*, 35(16) :1435–1469, 2001.

[41] Andrew A Johnston. *An integrated model of the development of process-induced deformation in autoclave processing of composite structures*. PhD thesis, University of British Columbia, 1997.

[42] MR Kamal and S Sourour. Kinetics and thermal characterization of thermoset cure. *Polymer Engineering & Science*, 13(1) :59–64, 1973.

[43] Marcin Kamiński. Sensitivity analysis of homogenized characteristics for some elastic composites. *Computer methods in applied mechanics and engineering*, 192(16-18) :1973–2005, 2003.

[44] Erik Kappel. On thermal-expansion properties of more-orthotropic prepreg laminates with and without interleaf layers. *Composites Part C : Open Access*, 3 :100059, 2020.

[45] Erik Kappel. An engineering approach for prepreg characterization. *Composites Part C : Open Access*, 4 :100083, 2021.

[46] Erik Kappel, Daniel Stefaniak, and Christian Hühne. Process distortions in prepreg manufacturing–an experimental study on cfrp l-profiles. *Composite Structures*, 106 :615–625, 2013.

[47] B Kechaou, M Salvia, B Beaugiraud, D Juvé, Z Fakhfakh, and D Treheux. Mechanical and dielectric characterization of hemp fibre reinforced polypropylene (hfrpp) by dry impregnation process. *Express Polym Lett*, 4(3) :171–182, 2010.

[48] Pierre Kerfriden. *Stratégie de décomposition de domaine à trois échelles pour la simulation du délaminage dans les stratifiés*. PhD thesis, École normale supérieure de Cachan-ENS Cachan, 2008.

[49] Karine Khoun. *Process-induced stresses and deformations in woven composites manufactured by resin transfer moulding*. PhD thesis, McGill University, Montréal, 2009.

[50] Young-Min Kim, L Kris Kostanski, and John F MacGregor. Kinetic studies of cationic photopolymerizations of cycloaliphatic epoxide, triethyleneglycol methyl vinyl ether, and cyclohexene oxide. *Polymer Engineering & Science*, 45(11) :1546–1555, 2005.

[51] Jack PC Kleijnen and Jon C Helton. Statistical analyses of scatterplots to identify important factors in large-scale simulations, 1 : Review and comparison of techniques. *Reliability Engineering & System Safety*, 65(2) :147–185, 1999.

[52] Olga Klinkova. *SIMULATION NUMERIQUE DE LA CUISSON ET DE L'USINAGE DE MATERIAUX COMPOSITES*. PhD thesis, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, 2012.

[53] Kyler R Knowles, Jianwei Tu, and Jeffrey S Wiggins. Thermal and volumetric property analysis of polymer networks and composites using elevated temperature digital image correlation. *Polymer Testing*, 58 :48–53, 2017.

[54] Oleksandr G Kravchenko, Sergii G Kravchenko, and R Byron Pipes. Chemical and thermal shrinkage in thermosetting prepreg. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 80 :72–81, 2016.

[55] Oleksandr G Kravchenko, Chunyu Li, Alejandro Strachan, Sergii G Kravchenko, and R Byron Pipes. Prediction of the chemical and thermal shrinkage in a thermoset polymer. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 66 :35–43, 2014.

[56] Raghav Kulkarni and Ozden Ochoa. Transverse and longitudinal cte measurements of carbon fibers and their impact on interfacial residual stresses in composites. *Journal of Composite Materials*, 40(8) :733–754, 2006.

[57] Chang-Hoon Lee and Jae-Jun Park. The properties of dsc and dma for epoxy nano-and-micro mixture composites. *Transactions on electrical and electronic materials*, 11(2) :69–72, 2010.

[58] Eric Leroy, Jérôme Dupuy, Abderrahim Maazouz, and Gérard Seytre. Evolution of the coefficient of thermal expansion of a thermosetting polymer during cure reaction. *Polymer*, 46(23) :9919–9927, 2005.

[59] Kenneth Levenberg. A method for the solution of certain non-linear problems in least squares. *Quarterly of applied mathematics*, 2(2) :164–168, 1944.

[60] Chun Li, Kevin Potter, Michael R Wisnom, and Graeme Stringer. In-situ measurement of chemical shrinkage of my750 epoxy resin by a novel gravimetric method. *Composites Science and Technology*, 64(1) :55–64, 2004.

[61] Qun Liang, Xi-ping Feng, Kun Zhang, Jian Li, Shu-hua Chen, and Xiao Hou. Global sensitivity analysis of parameters during cure process of srm composite case. *Advances in Astronautics Science and Technology*, 4(1) :19–26, 2021.

[62] ST Liu, GD Cheng, Y Gu, and XG Zheng. Mapping method for sensitivity analysis of composite material property. *Structural and multidisciplinary optimization*, 24(3) :212–217, 2002.

[63] Yi Liu, Xinhui Zhong, and Yingfeng Yu. Gelation behavior of thermoplastic-modified epoxy systems during polymerization-induced phase separation. *Colloid and Polymer Science*, 288(16) :1561–1570, 2010.

[64] Donald W Marquardt. An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters. *Journal of the society for Industrial and Applied Mathematics*, 11(2) :431–441, 1963.

[65] Jarlath McHugh, P Fideu, A Herrmann, and Wolfgang Stark. Determination and review of specific heat capacity measurements during isothermal cure of an epoxy using tm-dsc and standard dsc techniques. *Polymer Testing*, 29(6) :759–765, 2010.

[66] Navid Mehreganian and Arash Soleiman Fallah. Blast loading effects on aircraft fuselage. In *Multiphysics Simulations in Automotive and Aerospace Applications*, pages 239–285. Elsevier, 2021.

[67] Nicholas Metropolis and Stanislaw Ulam. The monte carlo method. *Journal of the American statistical association*, 44(247) :335–341, 1949.

[68] L Mezeix, A Seman, MNM Nasir, Y Aminanda, A Rivai, Bruno Castanié, Philippe Olivier, and KM Ali. Spring-back simulation of unidirectional carbon/epoxy flat laminate composite manufactured through autoclave process. *Composite structures*, 124 :196–205, 2015.

[69] Laure Moretti. *Simulation des distorsions de cuisson de pièces composites élaborées par co-bonding en autoclave*. PhD thesis, Ecole des Mines d'Albi-Carmaux, 2019.

[70] Max D Morris. Factorial sampling plans for preliminary computational experiments. *Technometrics*, 33(2) :161–174, 1991.

[71] MNM Nasir, MA Seman, L Mezeix, Y Aminanda, A Rivai, and KM Ali. *Effect of stacking layup on spring-back deformation of symmetrical flat laminate composites manufactured through autoclave processing*, volume 184. IOP Publishing, 2017.

[72] MDS Neeraj Malhotra and MDS Kundabala Mala. Light-curing considerations for resin-based composite materials : a review. part i. *Compendium*, 31(7) :498–506, 2010.

[73] MDS Neeraj Malhotra and MDS Kundabala Mala. Light-curing considerations for resin-based composite materials : a review. part ii. *Compendium*, 31(8) :583–92, 2010.

[74] Ron H Nelson and Douglas S Cairns. Prediction of dimensional changes in composite laminates during cure. *Tomorrow's Materials : Today.*, 34 :2397–2410, 1989.

[75] RV O'neill, RH Gardner, and JB Mankin. Analysis of parameter error in a nonlinear model. *Ecological Modelling*, 8 :297–311, 1980.

[76] Christophe Paris. *Étude et modélisation de la polymérisation dynamique de composites à matrice thermodurcissable*. PhD thesis, Institut National Polytechnique de Toulouse-INPT, 2011.

[77] Jean-Pierre Pascault and Roberto JJ Williams. Thermosetting polymers. *Handbook of polymer synthesis, characterization, and processing*, pages 519–533, 2013.

[78] JP Pascault and RJJ Williams. Glass transition temperature versus conversion relationships for thermosetting polymers. *Journal of Polymer Science Part B : Polymer Physics*, 28(1) :85–95, 1990.

[79] Glaucio C Pereira, P LeBoulluec, Wei-Tsen Lu, MI Yoshida, Ana P Alves, and Antonio F Avila. Spring-back behavior on l-shaped composite structures : A statistical analysis of angular recovery as a function of time and residual cure. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 124 :105491, 2019.

[80] He Pingsheng, Zhou Zhiqiang, Pan Caiyuan, and Wu Renjie. An epoxy resin copolymer with zero shrinkage : Part 1 volume change on cure. *Journal of materials science*, 24(5) :1528–1532, 1989.

[81] Christophe Pradere and C Sauder. Transverse and longitudinal coefficient of thermal expansion of carbon fibers at high temperatures (300–2500 k). *Carbon*, 46(14) :1874–1884, 2008.

[82] Donald W Radford and TS Rennick. Separating sources of manufacturing distortion in laminated composites. *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, 19(8) :621–641, 2000.

[83] Saman Razavi, Anthony Jakeman, Andrea Saltelli, Clémentine Prieur, Bertrand Iooss, Emanuele Borgonovo, Elmar Plischke, Samuele Lo Piano, Takuya Iwanaga, William Becker, et al. The future of sensitivity analysis : an essential discipline for systems modeling and policy support. *Environmental Modelling & Software*, 137 :104954, 2021.

[84] D Roşu, CN Caşcaval, F Mustaţă, and C Ciobanu. Cure kinetics of epoxy resins studied by non-isothermal dsc data. *Thermochimica Acta*, 383(1-2) :119–127, 2002.

[85] M Sadeghinia, KMB Jansen, and LJ Ernst. Characterization and modeling the thermo-mechanical cure-dependent properties of epoxy molding compound. *International Journal of Adhesion and Adhesives*, 32 :82–88, 2012.

[86] AF Saleeb, TE Wilt, NR Al-Zoubi, and AS Gendy. An anisotropic viscoelastoplastic model for composites—sensitivity analysis and parameter estimation. *Composites Part B : Engineering*, 34(1) :21–39, 2003.

[87] Andrea Saltelli, Stefano Tarantola, and KP-S Chan. A quantitative model-independent method for global sensitivity analysis of model output. *Technometrics*, 41(1) :39–56, 1999.

[88] Richard Allan Schapery. Thermal expansion coefficients of composite materials based on energy principles. *Journal of Composite materials*, 2(3) :380–404, 1968.

[89] Darshil U Shah and Peter J Schubel. Evaluation of cure shrinkage measurement techniques for thermosetting resins. *Polymer Testing*, 29(6) :629–639, 2010.

[90] Irini Sideridou, Dimitris S Achilias, and Eleni Kyrikou. Thermal expansion characteristics of light-cured dental resins and resin composites. *Biomaterials*, 25(15) :3087–3097, 2004.

[91] Ilya M Sobol. Global sensitivity indices for nonlinear mathematical models and their monte carlo estimates. *Mathematics and computers in simulation*, 55(1-3) :271–280, 2001.

[92] Ilya Meyerovich Soboĺ. Sensitivity estimates for nonlinear mathematical models. *Math. Model. Comput. Exp.*, 1 :407, 1993.

[93] Eric B Stark, James C Seferis, Antonio Apicella, and Luigi Nicolais. Stoichiometric and heating-rate effects on dsc-evaluated kinetics for a high-performance epoxy system. *Thermochimica acta*, 77(1-3) :19–33, 1984.

[94] Wolfgang Stark. Investigation of the curing behaviour of carbon fibre epoxy prepreg by dynamic mechanical analysis dma. *Polymer Testing*, 32(2) :231–239, 2013.

[95] Kheir Eddine Tarsha-Kurdi and Philippe Olivier. Thermoviscoelastic analysis of residual curing stresses and the influence of autoclave pressure on these stresses in carbon/epoxy laminates. *Composites science and technology*, 62(4) :559–565, 2002.

[96] Graham Twigg, Anoush Poursartip, and Göran Fernlund. An experimental method for quantifying tool–part shear interaction during composites processing. *Composites Science and Technology*, 63(13) :1985–2002, 2003.

[97] Luigi-Jules Vandi. Understanding the co-cured epoxy/thermoplastic interface in thermoset composite welding (tcw). 2015.

[98] Hongbing Wang and Kok Siong Siow. Measurement of tg in epoxy resins by dsc—effects of residual stress. *Polymer Engineering & Science*, 39(3) :422–429, 1999.

[99] Wei-Ting Wang, HaNa Yu, Kevin Potter, and Byung Chul Kim. Effect of the characteristics of nylon microparticles on mode-i interlaminar fracture toughness of carbon-fibre/epoxy composites. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 138 :106073, 2020.

[100] Scott R White and HT Hahn. Cure cycle optimization for the reduction of processing-induced residual stresses in composite materials. *Journal of Composite Materials*, 27(14) :1352–1378, 1993.

[101] Wikipédia. Transversale isotropie. https://fr.m.wikipedia.org/wiki/Fichier:Transversale_Isotropie.png, 2010. (accédé 23 septembre 2025).

[102] Roberto JJ Williams. Thermosetting polymers. 2002.

[103] H Henning Winter. Can the gel point of a cross-linking polymer be detected by the G'-G" crossover ? *Polymer Engineering & Science*, 27(22) :1698–1702, 1987.

[104] Michael R Wisnom, M Gigliotti, N Ersoy, M Campbell, and KD Potter. Mechanisms generating residual stresses and distortion during manufacture of polymer–matrix composite structures. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 37(4) :522–529, 2006.

[105] Michael R Wisnom, Kevin D Potter, and Nuri Ersoy. Shear-lag analysis of the effect of thickness on spring-in of curved composites. *Journal of composite Materials*, 41(11) :1311–1324, 2007.

[106] Jianjun Xu, Marco Holst, Max Rüllmann, Mirko Wenzel, and Ingo Alig. Reaction-induced phase separation in a polysulfone-modified epoxy-anhydride thermoset. *Journal of Macromolecular Science, Part B : Physics*, 46(1) :155–181, 2007.

[107] B Yates, BA McCalla, LN Phillips, DM Kingston-Lee, and KF Rogers. The thermal expansion of carbon fibre-reinforced plastics : Part 5 the influence of matrix curing characteristics. *Journal of Materials Science*, 14(5) :1207–1217, 1979.

[108] H Yu, SG Mhaisalkar, EH Wong, and GY Khoo. Time–temperature transformation (ttt) cure diagram of a fast cure non-conductive adhesive. *Thin solid films*, 504(1-2) :331–335, 2006.

[109] Mauro Zarrelli, Alexandros A Skordos, and Ivana K Partridge. Investigation of cure induced shrinkage in unreinforced epoxy resin. *Plastics, rubber and composites*, 31(9) :377–384, 2002.

[110] 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.

[111] Rima Sfar Zbed, Steven Le Corre, and Vincent Sobotka. Process-induced strains measurements through a multi-axial characterization during the entire curing cycle of an interlayer toughened carbon/epoxy prepreg. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 153 :106689, 2022.

[112] Jiawei Zhang, Zhen Zhang, Ran Huang, and Lianjiang Tan. Advances in toughening modification methods for epoxy resins : A comprehensive review. *Polymers*, 17(9) :1288, 2025.