
Suivi de la fabrication de stratifiés verre-polypropylène par réseaux de Bragg et du comportement thermomécanique induit

Matthieu Mulle¹, Husam Wafai¹, Arief Yudhanto¹, Gilles Lubineau¹, Recep Yaldiz², Warden Schijve², Nikhil Verghese²

1. King Abdullah University of Science and Technology (KAUST), Physical Science and Engineering, COHMAS Laboratory, Thuwal 23955-6900, Saudi Arabia
Matthieu.mulle@kaust.edu.sa, gilles.lubineau@kaust.edu.sa

2. SABIC, P.O. Box 319, 6160 AH Geleen, The Netherlands

RÉSUMÉ. Le moulage par presse chauffante de stratifiés unidirectionnels (UD) en polypropylène renforcé de fibres de verre (GFPP) a été suivi par capteur fibre optique à réseaux de Bragg (FBG). Ces capteurs ont été incorporés au cœur du matériau pour suivre les déformations induites par le procédé. La phase de refroidissement étant déterminante dans la fabrication des composites thermoplastiques, affectant la cristallinité et les déformations résiduelles, deux moules métalliques (acier et aluminium) ayant des propriétés de diffusion thermique différentes ont été utilisés. Les capteurs à cœur ont permis de déterminer différentes phases du procédé et des points de transition clés tels que le début de la fusion ou la solidification. Le comportement dans le sens longitudinal est gouverné par celui des fibres de renfort. Dans le sens transverse, le stratifié réalisé avec le moule en aluminium présente des déformations résiduelles supérieures au stratifié réalisé avec le moule acier. Le comportement thermomécanique est évalué par TMA (Thermomechanical Analysis) suivant une procédure de recuit. Un comportement singulier est observé pour le stratifié réalisé avec le moule acier, indiquant l'influence de la diffusion thermique sur la construction cristalline. Le coefficient d'expansion thermique du stratifié réalisé avec le moule en aluminium est significativement supérieur. Une analyse DSC (Differential Scanning Calorimetry) révèle des taux de cristallinité semblables pour chaque matériau après fabrication ainsi qu'une même augmentation de ces taux lors du traitement thermique. La différence de propriétés thermomécaniques est alors attribuée à l'état initial de déformation des stratifiés.

ABSTRACT. Hot-press molding of glass-fiber-reinforced polypropylene (GFPP) laminates was monitored using embedded fiber Bragg gratings (FBGs) in unidirectional laminates. These sensors allowed the monitoring of process-induced strains. Because the cooling phase is critical in thermoplastics manufacturing, affecting crystallinity and ultimately residual strain, two metallic molds with different heat diffusion capacities were used (steel and aluminum). The optical sensors proved to efficiently characterize some material properties; for example, strain variations could be related to physical changes of the laminate, revealing key transition

points such as the onset of melt or solidification. After the GFPP plates were released from the mold, residual strains were estimated. The longitudinal behavior is controlled by the behavior of the glass fibers. The transverse residual strain of the laminate made with the aluminum mold is higher than that of the laminate made with the steel mold. The thermal expansion behavior was investigated during a post-process heating procedure. A particular behavior was observed at the first heating ramp for the laminate made with the steel mold, indicating that the relatively poor thermal diffusion had a significant influence on the crystalline microstructure. The thermal expansion coefficient is higher for the aluminum mold made laminate. A DSC (Differential Scanning Calorimetry) of both materials showed a similar degree of crystallinity after processing and a similar increase after the heat treatment. This suggested that the difference of thermal expansion properties is related to the initial strain state of the laminates.

MOTS-CLÉS : suivi de procédé, moulage par presse chauffante, fibre à réseaux de Bragg, déformations résiduelles, propriétés, thermoplastiques.

KEYWORDS: process monitoring, hot-press molding, fiber Bragg gratings, residual strains, properties, thermoplastics.

DOI:10.3166/RCMA.28.55-73 © Lavoisier 2018

1. Introduction

L'utilisation de matériaux légers dans les véhicules permet la réduction de la consommation de carburant et des émissions. À cette fin, les matériaux composites thermoplastiques sont de bons candidats car, pour ce marché à grand volume, ils permettent une fabrication beaucoup plus rapide que les composites thermodurcissables. Les cadences appliquées augmentent cependant les risques de mauvaise maîtrise et de qualité. Ainsi, les techniques de suivi et les procédures qui identifient les relations entre les paramètres de fabrication et les propriétés finales de la pièce réalisée sont souhaitées.

Le moulage par presse à plateaux chauffants est un procédé couramment utilisé pour la fabrication de composites thermoplastiques. Le matériau est transformé de l'état solide à l'état liquide et vice-versa. Les changements de phase sont liés à trois principaux paramètres de fabrication qui sont la température, la pression et le temps. En plus d'influer sur la durée du cycle, ces paramètres influent sur les déformations résiduelles et donc sur l'état de contrainte initial de la pièce fabriquée (Potter *et al.*, 2005).

Les contraintes résiduelles sont globalement générées pendant la phase de refroidissement et cela à différents niveaux. Le premier est à l'échelle des constituants où les contraintes sont générées par le comportement thermomécanique différentiel entre les fibres et la matrice (Guillen et Cantwell, 2002 ; Barnes et Byerly, 1994 ; Parlevliet *et al.*, 2006). Le second est à l'échelle du stratifié, où les déformations résiduelles résultent de différences de comportement thermomécanique d'un pli à l'autre. Le troisième est connu sous le nom de « niveau global », où les gradients de température ou les interactions moule-pièce peuvent entraîner des gradients de déformation résiduelle dans l'épaisseur du stratifié (Mulle

et al., 2009; Twigg *et al.*, 2002). Les déformations résiduelles peuvent être responsables de déformations géométriques de la pièce fabriquée. Elles peuvent également être responsables de contraintes qui conduisent à des microfissures ou à un état précontraint, préjudiciable aux chargements ultérieurs (Youssef et Denault, 1998). Par ailleurs, la vitesse de refroidissement a un effet direct sur la cristallisation de la matrice (Nielsen et Pyrz, 1998) et affecte par conséquent les propriétés mécaniques (Guillem et Cantwell 2002).

Une compréhension claire de la façon dont les déformations induites par le processus évoluent au cours du cycle est importante pour optimiser les paramètres de fabrication, améliorer les propriétés initiales de la pièce composite et minimiser les temps de cycle. La conception des pièces en composites thermoplastiques doit donc tenir compte à la fois des déformations et des contraintes résiduelles, mais ces effets restent largement inexplorés. Cet article présente une étude expérimentale visant à estimer l'influence de la géométrie et du matériau du moule sur les déformations induites par la fabrication par presse chauffante de stratifié en polypropylène copolymère renforcé de fibres de verre (GFPP, pour *Glass Fiber/Polypropylene*) ainsi que sur les propriétés thermomécaniques.

Les déformations induites par le procédé ont été mesurées à l'aide de capteurs fibres optiques à réseaux de Bragg (FBG, pour *Fiber Bragg Gratings*) (Mulle *et al.*, 2016, Kuang *et al.*, 2005 ; Sorensen *et al.*, 2006 ; Parlevliet *et al.*, 2007). Les FBG présentent de nombreux avantages par rapport aux techniques conventionnelles et autres techniques avancées (Lubineau, 2008). En effet, leur petite taille leur permet d'être intégrés entre les plis d'un stratifié composite sans affecter de manière significative le matériau hôte (Levin et Skontorp, 2002 ; Hadzic, 1999), et leur nature en silice leur permet de résister aux températures élevées impliquées dans la fabrication des composites (Kuang *et al.*, 2001). Pour notre étude, des capteurs FBG ont été disposés longitudinalement et transversalement entre les plis de stratifiés GFPP, unidirectionnels, afin de déterminer les déformations résiduelles. (Mulle *et al.*, 2009, Twigg *et al.*, 2002, Mulle *et al.*, 2016). Pour étudier l'influence du taux de refroidissement, de la diffusion thermique ainsi que celle des contraintes résiduelles, deux moules ont été utilisés, l'un, épais et en acier, l'autre, fin et en aluminium. Une fois les stratifiés fabriqués et les déformations résiduelles évaluées, les matériaux ont été soumis à une analyse thermomécanique pour évaluer les coefficients de dilatation thermique (CTE, pour *Coefficient of Thermal Expansion*) ainsi qu'à une analyse par DSC (*Differential Scanning Calorimetry*) pour évaluer les taux de cristallinité.

2. Expérimental

2.1. Matériaux et fabrication

Le composite thermoplastique considéré ici est fourni par SABIC. Il est constitué de fibres de renfort en verre E et d'une matrice constituée d'un copolymère de polypropylène et d'élastomère. Le matériau brut se présente sous forme de bande pré-imprégnée unidirectionnelle. La largeur de bande est de 110 mm, l'épaisseur est

de 250 μm et la fraction volumique de fibres est de $41 \pm 2 \%$. Nous avons étudié des stratifiés UD [0]₈. Le cycle de fabrication préconisé par le fabricant est paramétré de la façon suivante : une mise sous pression à 6,8 bar, une rampe de température à 10 °C/min de 25 °C à 210 °C, un plateau isotherme pendant 20 minutes, une phase de refroidissement jusqu'à température ambiante et un relâchement de pression. Pour notre étude, nous avons apporté une modification au cycle de pression en fixant sa mise en action principale (de 1 à 6,8 bar) après le début du plateau isotherme. Cela nous a permis de séparer l'effet de deux paramètres variant en même temps, simplifiant ainsi l'analyse des déformations induites par le processus. Le taux de refroidissement (CR, pour *Cooling Rate*) choisi correspond au taux maximum que permet d'atteindre le système de la presse. Il se situe entre 24 °C/min (plateau de presse inférieur) et à 30 °C/min (plateau de presse supérieur).

2.2. Instrumentation

Le principe de fonctionnement des FBG a été décrit de nombreuses fois en détail dans la littérature (Hill and Meltz, 1997 ; Rao, 1997). Rappelons qu'un FBG est une modulation périodique de l'indice de réfraction au cœur d'une fibre optique. Il renvoie par réflexion une partie d'un signal lumineux incident sous la forme d'un spectre de longueur d'onde. Son pic définit la longueur d'onde de Bragg, λ_B , caractéristique du capteur, selon la loi de Bragg :

$$\lambda_B = 2 n_{\text{eff}} \Lambda \quad (1)$$

où n_{eff} est l'indice de réfraction effectif et Λ est la période du réseau. Lorsque le FBG est soumis à une déformation élastique axiale, $\varepsilon_{\text{of}}^e$, ou des changements de température, ΔT , le pic se déplace en conséquence. La variation de la longueur d'onde de Bragg peut être exprimée comme suit :

$$\Delta\lambda_B / \lambda_B = (1 - p_e) \varepsilon_{\text{of}}^e + (\alpha_{\text{of}} + \xi) \Delta T \quad (2)$$

où p_e est le coefficient photo-élastique, α_{of} est le coefficient de dilatation thermique de la fibre optique et ξ est le coefficient thermo-optique.

Dans cette étude, les FBG sont soumis simultanément à la température et aux déformations. Pour séparer ces deux quantités, nous avons utilisé la technique du FBG encapsulé pour laquelle deux FBG sont nécessaires. Le premier, FBG1, est soumis à la fois à la température et aux déformations. Le deuxième, FBG2, est inséré dans un tube hermétique de telle sorte que le capteur ne subisse pas de contraintes mécaniques externes et n'est donc sensible qu'à la température. Le capteur est situé dans le même environnement thermique que FBG1. En soustrayant la composante en température donnée par le FBG2 encapsulé de l'information globale fournie par FBG1 (équation 3), la valeur de déformation élastique peut être obtenue à partir de :

$$\varepsilon_{\text{of}}^e = (\Delta\lambda_{\text{FBG1}} / \lambda_{\text{FBG1}} - \Delta\lambda_{\text{FBG2}} / \lambda_{\text{FBG2}}) / (1 - p_e) \quad (3)$$

Bien que cette technique soit considérée comme intrusive en raison de la taille du tube hermétique (\varnothing extérieur = 400 μm), elle est très précise et exempte de toute procédure d'étalonnage FBG en ce qui concerne la sensibilité à la température. Habituellement, la méthode de compensation de température est effectuée en utilisant un thermocouple (TC) intégré. Cela requiert une longue procédure d'étalonnage du coefficient thermo-optique du FBG avant de procéder au suivi de fabrication. Cette procédure d'étalonnage est d'autant plus importante que le comportement thermo-optique des FBG n'est pas linéaire dans la gamme des températures considérées.

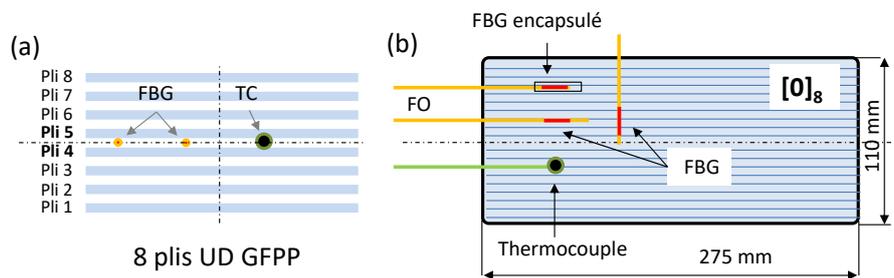


Figure 1. a) Schéma d'une section de stratifié GFPP $[0]_8$ montrant la position des TC et FBG. b) Vue en plan des FBG et TC entre les plis 4 & 5.

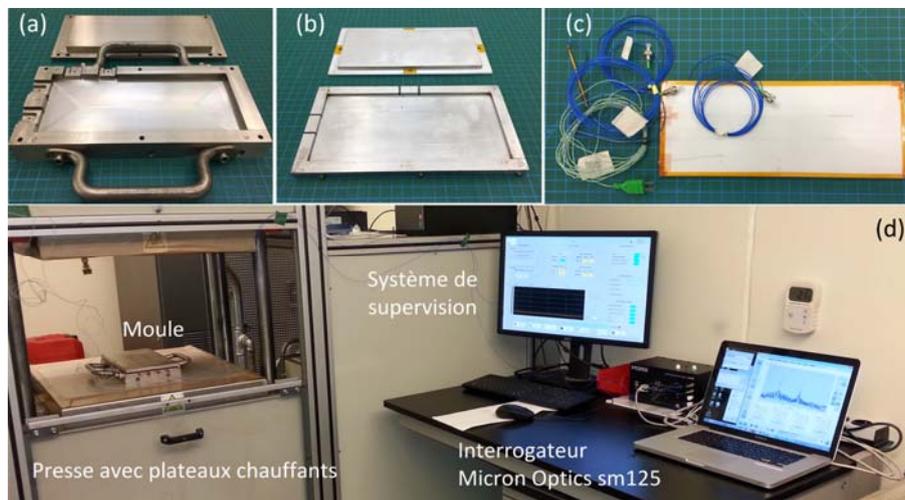


Figure 2. a) Moule acier avec rainures pour l'instrumentation. b) Moule aluminium avec rainures pour l'instrumentation. c) Stratifié instrumenté. d) Dispositif de suivi de fabrication

L'instrumentation des stratifiés par FBG consiste à intégrer les capteurs entre les couches de pré-imprégnés lors de l'empilement. Les figures 1a et 1b illustrent l'instrumentation d'un stratifié [0]₈. Les capteurs ont été positionnés de façon à éviter les croisements, mais suffisamment proches les uns des autres. Cela nous a permis de supposer que la température dans un pli donné était la même à chaque position de FBG. Les réseaux de Bragg, d'une longueur de 3 mm, ont été inscrits sur des fibres de type SMF28. Le revêtement polyacrylate a été retiré au niveau du capteur pour assurer un bon transfert de charge. Bien que la température à l'intérieur du stratifié puisse être donnée par le FBG encapsulé, un thermocouple (TC) a été placé pour validation.

2.3 Moules

Deux moules ont été spécialement fabriqués pour le moulage et le suivi des *tapes* pré-imprégnés SABIC. L'un est en acier inoxydable et mesure 45 mm d'épaisseur, l'autre est en aluminium et mesure 15 mm d'épaisseur. Des rainures ont été usinées dans les côtés de chaque moule pour permettre l'instrumentation par fibres optiques et thermocouples (figures 2a, 2b, 2c). Les moules sont démontables pour faciliter l'opération de démoulage du stratifié avec son instrumentation. La figure 2d présente le dispositif expérimental de suivi de fabrication. Le procédé avec moule acier inox sera nommé SHP-S (*Static Hot-Press-Steel*) tandis que celui utilisant le moule aluminium sera nommé SHP-A (*Static Hot-Press-Aluminum*).

2.4 Analyses expérimentales post-procédé

Des échantillons des stratifiés ont été soumis à une analyse thermomécanique (TMA) afin de déterminer les coefficients d'expansion thermique. Nous avons utilisé un système Netzsch DIL 402C. Le cycle unitaire de température consistait en une rampe de chauffe à 1 °C/min jusqu'à 80 °C et un refroidissement jusqu'à la température ambiante. Ce cycle est répété deux autres fois. Trois échantillons de chaque plaque ont été analysés.

Nous avons également réalisé une analyse DSC (*Differential Scanning Calorimetry*) pour mesurer le taux de cristallinité des stratifiés avant et après traitement thermique. Nous avons utilisé pour cela un système Netzsch 204 F1. Les échantillons d'environ 20 mg ont été chauffés suivant une rampe de 10 °C/min jusqu'à 190 °C, soit bien au-delà de la fusion. Trois échantillons recuits (après TMA) et trois non recuits (avant TMA) de chaque stratifié ont été analysés.

3. Résultats et discussion

3.1. Suivi du procédé de fabrication et déformations résiduelles.

La figure 3 présente des courbes de température (obtenues par mesure FBG et TC) et des courbes de déformations induites par le procédé en fonction du temps

pour les procédés SHP-S et SHP-A, respectivement figures 3a et 3b. Les courbes de déformation (en bleu pour le sens longitudinal et en rouge pour le sens transverse) sont très semblables d'un procédé à l'autre.

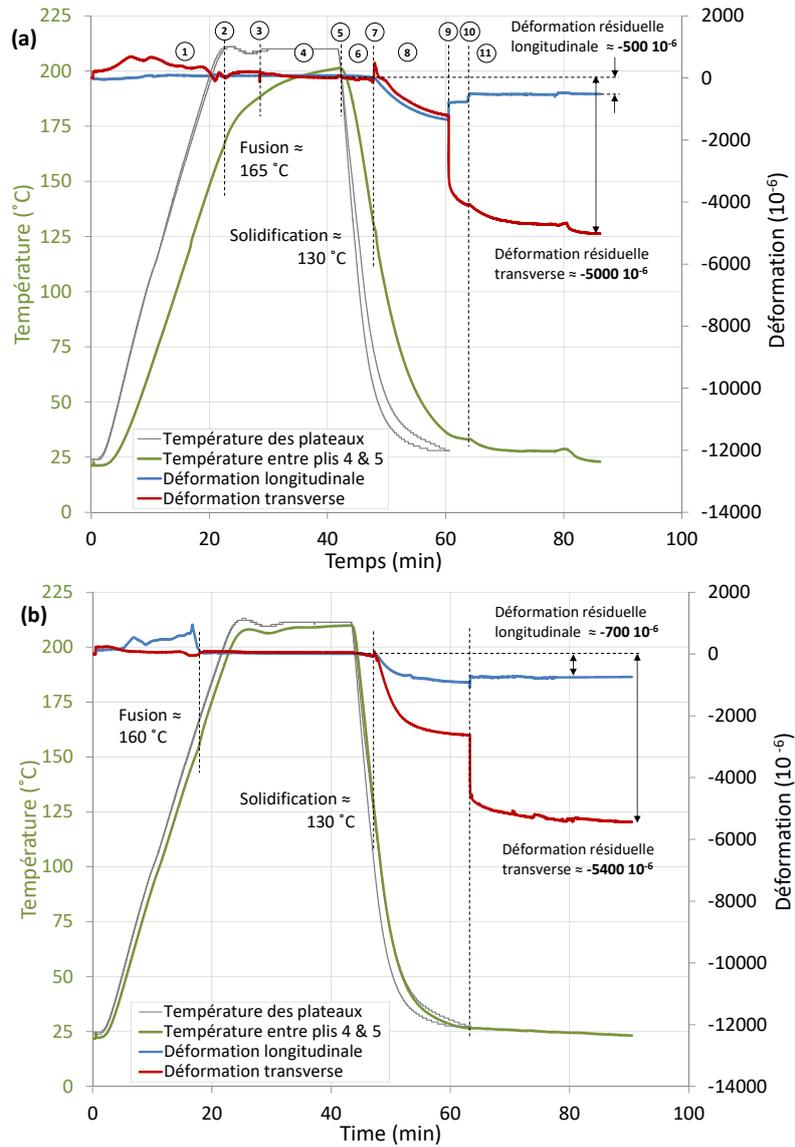


Figure 3. Évolution de la température et des déformations longitudinales induites par le procédé en fonction du cycle de fabrication pour un stratifié GFPP UD avec moule en acier (a) et moule en aluminium (b)

Les différentes phases de déformation observées sont numérotées dans la figure 3(a) et analysées comme suit.

1. Au début, la pression a été établie à 1 bar pour une pression minimum et un contact suffisant entre les plateaux chauffants et le moule assurant un bon transfert de chaleur. La température augmente d'environ 10 °C/min. Les FBG sont en contact avec les plis et ont tendance à mesurer l'expansion thermique des plis de GFPP suivant un transfert par friction inégal.

2. La courbe de déformation se stabilise. Cela correspond au début de la fusion de la matrice à environ $T = 150$ °C. Une analyse DSC a confirmé cette valeur (Mulle 2016). Sur le graphique de suivi de procédé, une légère variation de la courbe de température confirme également que cette transition est accompagnée d'une réaction thermique.

3. La pression augmente jusqu'à 6,8 bar. Un petit sursaut de la déformation est observé car l'ensemble du moule se déforme instantanément.

4. Depuis le point (2) la matrice est dans un état fluide, donc aucune contrainte mécanique n'est transférée aux FBG à l'exception du point (3). On suppose que pendant cette phase, le matériau est libre de contrainte.

5. La phase de refroidissement débute.

6. La matrice est toujours liquide. Le niveau de déformation reste similaire à celui de la phase 4.

7. Le point de la solidification est atteint. Une nette variation dans la courbe de déformation est observée autour de $T = 130$ °C. Cela a été confirmé par analyse DSC décrite par (Mulle 2016).

8. Les déformations induites par le procédé sont générées et entièrement transférées aux FBG.

9. Vers la fin du refroidissement le stratifié fabriqué dans le moule acier se déforme brusquement. La contraction thermomécanique du stratifié provoque sa libération de son support.

10. Le cycle de fabrication est terminé; Le refroidissement est arrêté et la pression est relâchée entraînant une nouvelle variation des déformations.

11. Le stratifié est entièrement libéré du moule. Les déformations résiduelles peuvent être estimées (figures 3 et 5a).

Une analyse de la réponse spectrale FBG tout au long du cycle de fabrication a montré qu'aucune distorsion de spectre n'a été observée. Cela nous a permis de supposer qu'aucun effet transversal ou qu'aucun gradient de contrainte significatif n'est apparu au niveau des capteurs optiques et, par conséquent, les mesures de la déformation axiale peuvent être considérées comme fiables.

Les déformations et contraintes résiduelles sont estimées à partir du point de solidification jusqu'à la température ambiante. Dans la direction longitudinale, celle des fibres de verre, les déformations résiduelles ne sont pas très différentes d'un procédé à l'autre. Sachant que le CTE de la fibre de verre E est $\alpha_v = 5,4 \cdot 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$, un calcul des déformations résiduelles longitudinales ε_l basé sur une simple loi

thermomécanique, telle que $\varepsilon_l = \alpha_v \Delta T$, avec $\Delta T = 107 \text{ }^\circ\text{C}$ (entre la température de solidification ($130 \text{ }^\circ\text{C}$) et la température ambiante ($23 \text{ }^\circ\text{C}$)) nous permet d'estimer une déformation résiduelle d'origine thermique $\varepsilon_l = 578 \cdot 10^{-6}$. Cette valeur est proche des valeurs mesurées par FBG. Cela indique que les déformations longitudinales sont gouvernées par le comportement des fibres de renfort. Ainsi, après ce constat, notre étude s'est uniquement concentrée sur le comportement transversal des deux stratifiés fabriqués.

Dans la direction transversale les déformations résiduelles sont supérieures d'environ 10 % pour le procédé SHP-A. Cette différence pourrait être attribuée à la différence de taux de refroidissement qui influe sur le taux de cristallinité. Cependant la différence de CR, mesurée avec les thermocouples placés au cœur du matériau pendant la fabrication ($25 \text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ pour le SHP-A et de $15 \text{ }^\circ\text{C}/\text{min}$ pour SHP-S) est trop faible pour générer des différences de cristallinité (Wafai *et al.*, 2016). Nous verrons plus bas qu'une analyse par DSC confirme la similitude des taux de cristallinité pour chaque stratifiés après fabrication. Nous attribuons la disparité des déformations résiduelles à la différence de comportement thermomécanique des matériaux avec lesquels sont fabriqués les moules. Les CTE sont $14 \cdot 10^{-6}/^\circ\text{C}$ et $23 \cdot 10^{-6}/^\circ\text{C}$ pour l'acier et l'aluminium, respectivement. Plus le CTE du matériau est important, plus le volume dans lequel le GFPP se consolide (au point de solidification) est grand. Lors du refroidissement vers la température ambiante, le moule se contracte pour retrouver sa géométrie initiale générant des contraintes dans le matériau moulé. Ces contraintes et les déformations induites sont d'autant plus importantes que ne l'est l'expansion thermique du moule.

3.2. Analyse thermomécanique (direction transverse) et CTE

La figure 4 montre l'évolution des déformations mesurées lors de 3 cycles consécutifs de chauffage/refroidissement auxquels ont été soumis des échantillons des deux stratifiés. Il s'agissait d'évaluer les CTE correspondants. Lors de la montée en température du premier cycle, le comportement thermomécanique du matériau réalisé par SHP-S montre une évolution des déformations suivant deux pentes très distinctes (figure 4a). Le changement de pente s'opère vers $40 \text{ }^\circ\text{C}$. On note ensuite une hystérésis importante après refroidissement jusqu'à la température ambiante. Il s'agit d'un retrait additionnel (figure 5b), non réversible, dû au processus de recuit. Les deuxième et troisième cycles montrent des comportements linéaires lors du réchauffement et du refroidissement. Dans le cas du stratifié réalisé par SHP-A aucune double pente ni hystérésis significatifs ne sont observés. Le comportement thermomécanique est linéaire dès le premier cycle (figure 4b) et aucun retrait significatif n'est observé. Ce phénomène de double pente dans la courbe de déformations thermomécaniques est donc singulier à la fabrication SHP-S. S'il s'agit d'un effet dû à la relaxation de contrainte nous observerions le même phénomène pour la fabrication SHP-A qui, comme nous l'avons vu au paragraphe précédent, génère d'avantage de déformations résiduelles. L'augmentation du taux de cristallinité pendant la procédure de recuit ne peut être retenue comme raison à ce phénomène car notre analyse DSC des matériaux après traitement thermique montre

que cette variation de cristallinité est similaire pour les deux conditions de fabrication (figure 6). Finalement, nous attribuons l'origine de ce changement de pente à une réorganisation cristalline d'une microstructure qui n'est présente que dans le stratifié issue de la fabrication avec moule acier. A la différence du moule en aluminium, la constitution et l'épaisseur du moule en acier empêche une diffusion thermique rapide et homogène à travers le stratifié, entraînant lors du refroidissement, la formation d'une microstructure hétérogène dans l'épaisseur du stratifié. Cette lenteur relative de la diffusion de température est nettement visible dans la figure 3. Les courbes grises représentent l'évolution de la température dans les plateaux inférieurs et supérieurs. Pour le cas du procédé SHP-S (figure 3a) nous voyons que lors de la montée en température, ces courbes ne sont pas suivies par celle du TC intégré au cœur du stratifié. Il existe une très forte inertie de transfert thermique au point que la température de plateau n'est toujours pas atteinte par le TC avant le refroidissement. Lors de cette dernière phase, la température à cœur est très décalée par rapport à celle des plateaux. Au point de solidification il y a 55 °C d'écart avec la température du plateau supérieur. De plus, à ce même point, il y a un écart de 20 °C entre les deux plateaux. Cela entraîne un fort gradient de température au sein du matériau au moment même où celui-ci se fige et par conséquent, génère une microstructure cristalline très hétérogène. Pour confirmer cette observation nous avons fabriqué deux plaques en polypropylène copolymère sans fibre de renfort, suivant les mêmes conditions de procédure SHP-S et SHP-A. L'intérêt de faire une plaque sans renfort est de permettre une meilleure observation de la structure cristalline car elle ne se confond pas avec les fibres de verre. Une photo de la plaque réalisée par SHP-S est présentée figure 7. Nous voyons clairement à l'œil nu des formations dendritiques de cristaux. Elles apparaissent uniquement sur une face de la plaque. Il existe bien une distribution hétérogène des microstructures cristallines dans l'épaisseur du stratifié. Dans le cas de la plaque réalisée avec le moule aluminium, nous ne détectons aucune formation sphérolitique de ce genre.

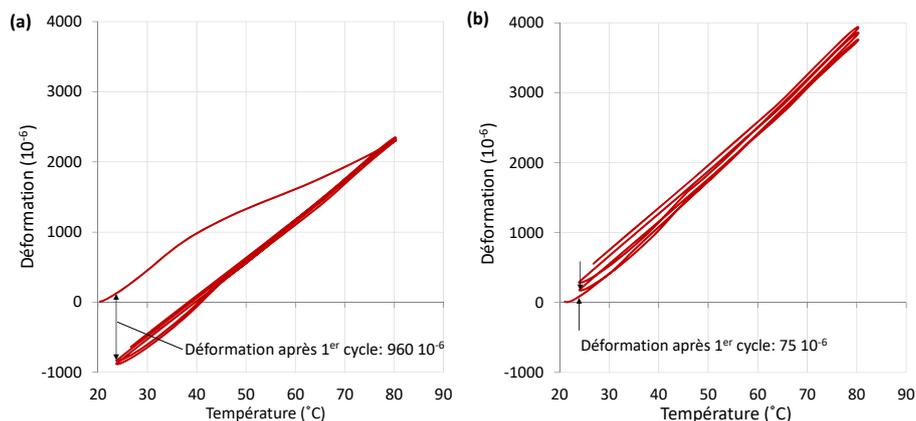


Figure 4. Evolutions des déformations transverse en fonction de la température mesurées par dilatomètre suivant 3 cycles de 20 à 80°C pour un échantillon de stratifié fabriqué avec (a) le moule en acier et (b) le moule en aluminium

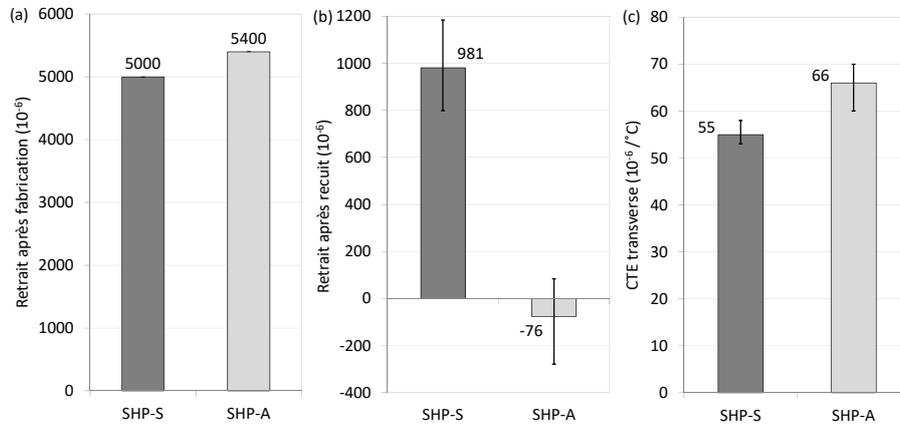


Figure 5. a) Retraits transverses après fabrication mesurés par FBG. b) Retraits transverses après recuit (traitement thermique) mesurés par dilatomètre. c) Coefficients d'expansion thermique mesurés par dilatométrie

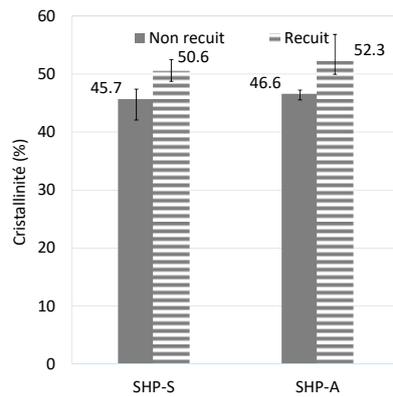


Figure 6. Taux de cristallinité des stratifiés avant et après recuit (traitement thermique) mesuré par DSC

Les CTE sont mesurés en considérant la pente des courbes du deuxième cycle et sont présentés dans la figure 5c. Le CTE du stratifié réalisé par SHP-A est supérieur d'environ 20 % par rapport à celui du stratifié réalisé par SHP-S. L'analyse DSC a montré que les taux de cristallinité des stratifiés fraîchement fabriqués (figure 6) sont très similaires et que la procédure de recuit entraîne une augmentation également similaire, d'environ 10 %. La différence de comportement thermomécanique ne provient donc pas de la cristallisation. Par ailleurs, un calcul prenant en compte les quantités et densités des phases amorphes et cristallines, montre que le retrait après recuit (figure 5b) est essentiellement dû à l'augmentation

du taux de cristallinité qui s'accompagne d'une réorganisation de la microstructure dans le cas du stratifié réalisé dans le moule en acier alors que cela ne semble pas être le cas pour le stratifié réalisé dans le moule en aluminium. L'hystérésis dans le comportement thermomécanique observé lors du premier cycle de chauffe (figure 4) pouvant être majoritairement dû aux réorganisations de microstructures, il ne semble donc pas attribuable à la relaxation de contraintes induites lors de la fabrication. Celles-ci restent probablement présentes après recuit. Ceci suggère que la différence des CTE transverses des deux stratifiés résulte de la différence leurs états de contrainte initiaux.

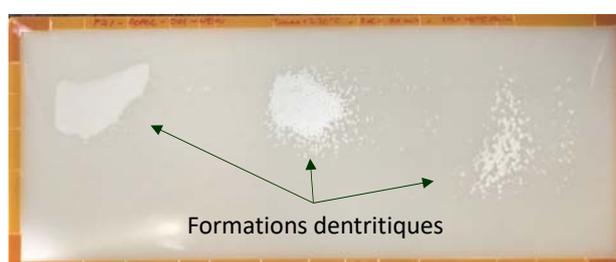


Figure 7. Plaque de PP copolymère sans renfort fabriquée dans les conditions SHP-S laissant apparaître des formations dendritiques de cristaux

4. Conclusion

Le moulage par presse à plateaux chauffants de stratifiés UD GFPP a été suivi à l'aide de FBG. Les fabrications sont réalisées avec deux moules différents, l'un en acier, l'autre aluminium. Les stratifiés sont instrumentés à cœur dans le sens longitudinal et transversal.

Les différentes phases de fabrication ont pu être identifiées grâce au suivi des déformations et de la température, en particulier les phases de fusion et de solidification. Les déformations résiduelles ont été estimées après fabrication et démoulage des stratifiés. Nous avons pu mettre en évidence que le transfert des déformations du matériau vers le capteur optique s'effectue principalement à partir de la solidification. Nous avons constaté que le moule aluminium favorise les déformations résiduelles d'environ 10 %. Lors du refroidissement, la différence de comportement thermomécanique entre le stratifié GFPP et le moule en aluminium génère des contraintes plus importantes qu'avec le moule en acier.

Une analyse thermomécanique par dilatomètre a été effectuée dans le sens transverse des stratifiés UD. L'évolution des déformations est marquée par un changement singulier de pente lors de la montée en température pour les échantillons fabriqués avec le moule en acier, uniquement. L'inertie de diffusion thermique de ce moule entraîne un gradient de température dans l'épaisseur du stratifié qui favorise la formation d'une microstructure cristalline hétérogène. Celle-ci se transforme lors de la procédure de recuit et génère du retrait.

Une analyse DSC montre que les stratifiés réalisés avec les moules acier et aluminium ont le même taux de cristallinité. La procédure de recuit augmente le taux de façon identique. Le retrait observé après recuit est essentiellement dû à la formation et réorganisation cristalline et non à la relaxation des contraintes résiduelles.

Les CTE transverses sont mesurés après recuit. Le stratifié réalisé avec le moule aluminium donne un CTE supérieur d'environ 20 %. L'état initial des contraintes a donc une influence significative sur les propriétés thermomécaniques du GFPP.

Remerciements

Ces travaux de recherche ont été réalisés grâce au support financier de SABIC (Saudi Arabia Basic Industries Corporation) au titre de la convention de subvention RGC/3/2050-01-01, et de KAUST (King Abdullah University of Science and Technology), sur des fonds BAS/1/1315-01-01.

Bibliographie

- Barnes J.A., Byerly G.E. (1994). The formation of residual stresses in laminated thermoplastic composites. *Composite Science and technology*, vol. 51, p. 479-494.
- Guillen J.F., Cantwell W.J. (2002). The influence of cooling rate on the fracture properties of glass Reinforced/Nylon fiber-metal laminate. *Polymer composites*, Vol. 23, n°. 5.
- Hadzic R., John S., and Herszberg I. (1999). Structural integrity analysis of embedded optical fibres in composite structure. *Composite Structures*, vol.47, p. 759-765.
- Hill K.O., Meltz G. (1997). Fiber Bragg grating technology fundamentals and overview. *J. Lightwave Technol.*, vol. 15(8), p.1263-76.
- Parlevliet P.P., Bersee H.E.N., Beukers A. (2006). Residual stresses in thermoplastic composites, a study of the literature-Part I: Formation of residual stresses, *Composites: Part A*, vol. 38, p. 1847-1857.
- Kuang K.S.C., Kenny R., Whelan M.P., Cantwell W.J., Chalker P.R. (2001). Embedded fibre Bragg grating sensors in advanced composite materials. *Compos Sci Technol.* vol. 61, p. 1379-87.
- Kuang K.S.C., Zhang L., Cantwell W.J., Bennion I. (2005). Process monitoring of aluminum-foam sandwich structures based on thermoplastic fibre-metal laminates using fibre Bragg gratings, *Composites Science and Technol.*, vol. 65, p. 669-676.
- Levin K., Skontorp A. (2002). Fibre optic sensors in composite structures. *European Workshop on SHM*, Paris France, p. 530-537.
- Lubineau G. (2008). Estimation of residual stresses in laminated composites using field measurements on a cracked sample. *Composites Science and Technology*, vol. 68(13), p. 2761-2769.
- Mulle et al., Process monitoring of glass reinforced polypropylene laminates using fiber Bragg gratings, *Composites Science and Technology* 123 (2016) 143-150.
- Mulle M., Collombet F., Olivier P., Grunevald Y.-H. (2009). Assessment of cure residual strains through the thickness of carbon-epoxy laminates using FBGs, part I: elementary specimen. *Composites: Part A*, vol. 40, p. 94-104.

- Nielsen A. S., Pyrz R. (1998). The effect of cooling rate on thermal residual strains in carbon/polypropylene microcomposites. *Science and engineering of composite materials*, vol. 7, n° 1-2.
- Parlevliet P.P., Bersee H.E.N., Beukers A. (2007). Residual stresses in thermoplastic composites, a study of the literature-Part II: Experimental techniques, *Composites: Part A*, vol. 38, p. 651-665.
- Potter K.D., Campbell M., Langer C., Wisnom M.R. (2005). The generation of geometrical deformations due to tool/part interaction in the manufacture of composite components, *Composites Part A*, vol. 36, p. 301-308.
- Rao Y.-J. (1997). In-fibre Bragg grating sensors. *Meas. Sci. Technol.* Vol.8, p. 355-375.
- Sorensen L., Gmur T., Botsis J. (2006). Residual strain development in an AS4/PPS thermoplastic composite measured using fibre Bragg grating sensors. *Composites: Part A*, vol. 37, p. 270-281.
- Twiggs G, Poursartip A, Fernlund G. (2003). An experimental method for quantifying tool-part shear interaction during composites processing. *Composite science and technology*, vol. 63 p.1985-2002.
- Wafai H, Lubineau G, Yudhanto A, Mulle M, Schijve W, Verghese N. Effects of the cooling rate on the shear behavior of continuous glass fiber/impact polypropylene composites (GF-IPP) *Composites: Part A* 2016; 91 :41–52
- Youssef Y., Denault J. (1998). Thermoformed glass fiber reinforced Polypropylene: Micro structure, mechanical properties and residual stresses, *Polymer composites*, vol. 19. n° 3.