

# Vers la simulation numérique des pores dans des pièces composites stratifiées

## *Towards numerical simulation of voids in laminated composite parts*

A.L. Briard<sup>1,2</sup>, R. D'Elia<sup>1</sup>, F. Berthet<sup>1</sup>, A. Cheruet<sup>2</sup> et F. Schmidt<sup>1</sup>

1 : Institut Clément Ader (ICA)  
Université de Toulouse, CNRS, IMT Mines Albi, INSA Toulouse, ISAE SUPAERO, UT3  
Toulouse, France  
e-mail : anne-lise.briard@mines-albi.fr

2 : Airbus Saint-Martin  
26 chemin de l'Espeissière, 31300 Toulouse, France  
e-mail : anne-lise.briard@airbus.com

### Résumé

Ces travaux visent à anticiper les futurs défis liés à la porosité dans les composites préimprégnés thermodurcissables. Bien que la maîtrise de la porosité soit actuellement satisfaisante, l'évolution des enjeux et des besoins dans le domaine de l'aéronautique pourrait entraîner l'apparition de nouveaux phénomènes de porosité, compromettant les performances mécaniques et la durabilité des structures. La formation de pores résulte principalement de l'air piégé, des gaz dissous dans la résine, des volatiles résiduels, et d'une imprégnation inadéquate des fibres. Une première implémentation du modèle de croissance de bulle développé dans une étude précédente [1] dans des sous-programmes numériques *User MATerial* (UMAT) pour le solveur éléments finis Abaqus a été corrigé et amélioré. La simulation de l'évolution du rayon de bulle au cours de la polymérisation montre de bons résultats par rapport aux mesures expérimentales. Cependant, ces modèles ne prennent pas encore en compte les interactions entre bulles et fibres, ni même entre deux bulles (coalescence). Pour pallier cela, des approches type fluides à l'échelle microscopique basées sur le logiciel *open source* OpenFOAM sont envisagées, ainsi que l'utilisation d'approches non-locales dans Abaqus. Les prochaines étapes de ces travaux de recherche consisteront à valider expérimentalement le modèle.

### Abstract

This research aims to anticipate future challenges related to porosity in thermosetting prepreg composites. While porosity control is currently well managed, evolving demands and requirements in the aerospace sector could lead to new porosity phenomena, potentially compromising the mechanical performance and durability of structures. Void formation mainly results from entrapped air, gases dissolved in the resin, residual volatiles, and inadequate fiber impregnation. Bubble growth model developed in a previous study [1] have been implemented into numerical *User MATerial* (UMAT) subroutines to simulate autoclave curing and predict final porosity. The simulation of bubble radius evolution during curing shows promising results compared to experimental measurements. However, these models do not yet account for interactions between bubbles and fibers, or between two bubbles (coalescence). To address this, microscale fluid approaches based on the open-source software OpenFOAM are being considered, along with the use of non-local approaches in Abaqus. The next steps in this research will involve experimental validation of the model.

**Mots Clés :** Porosité, Composites thermodurcissables, Croissance de bulles, Simulation numérique

**Keywords :** Porosity, Thermoset composites, Voids growth, Numerical simulation

## 1. Contexte et objectifs de l'étude

Les problèmes de porosité lors de la mise en œuvre des préimprégnés thermodurcissables traditionnels en autoclave sont plutôt bien maîtrisés, cependant, de nouveaux enjeux apparaissent dans le domaine aéronautique. En effet, l'accélération des procédés de fabrication dans le but d'augmenter la productivité, ainsi que le développement de nouveaux matériaux pour répondre à de nouveaux besoins (structures sandwiches, ajout de nodules de thermoplastiques pour l'amélioration de la ténacité, ...) introduisent de nouvelles contraintes. Ces contraintes, par exemple la diminution de la pression de

l'autoclave pour éviter l'écrasement de la structure sandwich, peuvent entraîner la formation de pores. La porosité dans les matériaux composites préimprégnés therm durcissables est un défaut qui peut significativement impacter certaines propriétés mécaniques et donc la durabilité des pièces finales. La porosité se définit comme la distribution aléatoire de microcavités ouvertes ou fermées, dues à l'emprisonnement de gaz (air, solvants, produits de réaction) dans la matrice d'un stratifié. Ces pores peuvent se former dans les composites préimprégnés principalement par quatre mécanismes [2] :

- l'air (humide) piégé mécaniquement entre les plis pendant l'étape de drapage ;
- l'eau et les gaz dissous et adsorbés par la résine ;
- les volatiles résiduels, par exemple les solvants, présents dans la résine et les condensats formés au cours de la polymérisation ;
- une imprégnation inadéquate des fibres.

Les principaux facteurs qui rentrent en jeu lors du procédé de fabrication sont les conditions de stockage avec une possible reprise d'humidité, la gestion inadéquate de la température et de la pression lors de la polymérisation ou des réactions chimiques imprévues dans la résine.

Comprendre et prédire les mécanismes de formation et d'évolution de la porosité est essentiel pour la qualité finale des pièces composites. L'objectif de cette étude est donc de développer un modèle numérique capable de prédire la formation et l'évolution de la porosité en fonction des paramètres de fabrication dans des pièces à l'échelle industrielle.

## 2. Modèle de croissance de bulle

Le premier modèle de stabilité d'une bulle de gaz entourée de liquide a été développé par Epstein et Plesset [3], offrant une solution analytique pour décrire l'évolution du diamètre d'une bulle en fonction du temps dans un liquide sous-saturé ou sursaturé en gaz dissous. Dans le domaine des composites, Kardos [4] a développé le premier modèle de croissance des bulles. Ce modèle inclut un cycle de polymérisation en autoclave et utilisant la diffusion pour modéliser les vides contenant de l'eau ou un mélange d'air et de vapeur d'eau. Il a également défini la taille de rayon de bulle critique en s'appuyant sur la théorie classique de la nucléation de Gibbs [5]. Ledru [6] a amélioré ces modèles en introduisant un comportement visqueux, tenant compte des propriétés rhéologiques de la résine, tandis que Arefmanesh [7] a proposé un modèle de diffusion autour d'une bulle dans un liquide visqueux. Enfin, le modèle proposé par Parscau du Plessix [1] reprend le couplage diffusif de Ledru et inclut la prise en compte d'un mécanisme de diffusion de Langmuir [8] et d'une couche limite de diffusion autour des bulles, améliorant ainsi la précision des prédictions de la croissance des bulles. Dans le cadre de la diffusion de Langmuir, l'eau libre fait référence à l'eau qui n'est pas adsorbée sur les surfaces des particules et peut se déplacer librement, tandis que l'eau liée désigne l'eau qui est adsorbée, formant des liaisons avec la surface, ce qui limite sa mobilité et influence les propriétés de diffusion dans le système. Ces modèles semi-analytiques reposent sur des hypothèses qui peuvent être incompatibles avec un outil numérique de prédiction des pores dans des pièces composites : l'absence de prise en compte de la nucléation de bulles, de la coalescence, des interactions entre les bulles et les fibres et de la géométrie réelle d'une pore (autre que sphérique).

Un sous-programme codé en Fortran *User MATerial* (UMAT) pour ABAQUS a été corrigé et amélioré afin d'alimenter un modèle éléments finis (FEM), initialement développé par Airbus dans le cadre d'un projet précédent. Cette UMAT combine un modèle de cinétique de polymérisation basé sur les travaux d'Ersoy [9], le modèle de flux-compaction d'Hubert [10] ainsi que le modèle de croissance de bulle développé par Parscau du Plessix [1]. Un cycle de pression et de température est défini pour simuler la polymérisation en autoclave. Les fibres et la résine sont considérées comme homogènes et leurs propriétés sont initialisées avec des données issues de la littérature [1]. La résine est classée selon trois états (liquide, caoutchoutique, solide) en fonction du degré de polymérisation et de la température de transition vitreuse. En effet, au cours de la polymérisation, une résine therm durcissable passe d'un

état liquide à un état caoutchoutique caractérisé par le passage du point de gel, où les chaînes polymères commencent à se lier et former un réseau. Ensuite, elle continue à durcir jusqu'à atteindre l'état solide, caractérisé par la température de transition vitreuse ( $T_g$ ), où elle devient rigide et amorphe en raison de la formation d'un réseau polymère tridimensionnel formé par la réticulation. Les contraintes et la matrice jacobienne du modèle constitutif sont mises à jour à chaque incrément de temps.

On considère donc une bulle sphérique composée de 55 % d'eau et de 45 % d'air dans un milieu homogène continu (HCM), comme illustré dans la Fig. 1. Une couche limite de diffusion, caractérisée par un coefficient de diffusion  $D_2$  inférieur à celui du milieu homogène continu  $D_1$ , est ajoutée afin de ralentir la diffusion entre la bulle et son environnement. Au sein du modèle numérique, le rayon de la bulle  $R$  est calculé à chaque instant en fonction de la viscosité de la résine, de la pression hydrostatique, et de la pression du gaz dans la bulle.

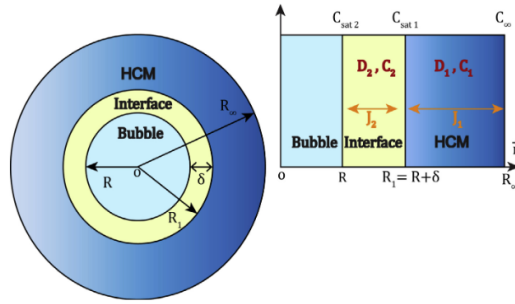


FIG. 1. – Schéma du modèle de croissance de bulle avec couche limite de diffusion de rayon  $R_1 = R + \delta$ . HCM = milieu homogène continu [1]

La densité de flux de particules entre la couche limite et la bulle  $J_2$  (Eq. 1) s'exprime grâce à la seconde loi de Fick.

$$J_2 = -\frac{R_\infty(R + \delta)}{\gamma R_\infty \delta + R(R_\infty - R - \delta)} (D_{1\_F} \cdot (C_{\infty\_F} - C_{SAT2\_F}) + D_{1\_B} \cdot (C_{\infty\_B} - C_{SAT2\_B})) \quad (\text{Eq. 1})$$

Où :

$R_\infty$  est le rayon du HCM (supposé très grand devant le rayon de la bulle),  $R_1 = R + \delta$  est le rayon de la couche limite de diffusion,  $C_{\infty\_F}$  et  $C_{\infty\_B}$  sont respectivement les concentrations en eau libre et liée loin de la bulle,  $D_{1\_F}$  et  $D_{1\_B}$  sont les coefficients de diffusion en eau libre et en eau liée entre le HCM et la couche limite  $C_{SAT2\_F}$  et  $C_{SAT2\_B}$  sont les concentrations en eau libre et liée à saturation entre la bulle et la couche limite et  $\gamma = \frac{D_1}{D_2}$ .

La variation de la quantité de matière dans la bulle  $\frac{dn}{dt}$  est exprimée par :

$$\frac{dn}{dt} = -\frac{4\pi R^2 J_2}{M_{H_2O}} \quad (\text{Eq. 2})$$

Avec  $M_{H_2O}$  la masse molaire de l'eau.

Le modèle de croissance de la bulle est donné par :

$$\frac{dR}{dt} = \frac{(P_G - P_{imp})}{4\mu} R - \frac{\gamma LV}{2\mu} \quad (\text{Eq. 3})$$

Où :

$P_G$  est la pression du gaz dans la bulle,  $P_{imp}$  représente la pression imposée à la bulle,  $\mu$  la viscosité

de la résine et  $\gamma_{LV}$  la tension superficielle.

Les équations (Eq. 1), (Eq. 2) et (Eq. 3) permettent de résoudre le problème de croissance de bulle. Ce modèle a donc été implémenté dans un sous-programme appelée à chaque pas de temps par le sous-programme de polymérisation.

### 3. Approche préliminaire à l'échelle microscopique

Ces modèles ont commencé à être implémentés sur le logiciel de mécanique des fluides numérique (CFD) *open source* OpenFOAM pour simuler le comportement des bulles à une échelle plus fine. Un volume élémentaire représentatif (VER) de l'intra-ply UD de volume  $0.1 \times 0.1 \times 0.001 \text{ mm}^3$  et de taux volumique de fibres (TVF) égal à 60 % a été généré grâce au logiciel Digimat. Des bulles ont été intégrés dans la résine afin d'étudier les interactions bulles-fibres et bulles-bulles à l'échelle microscopique. Le VER est illustré dans la Fig. 2. Le modèle donne déjà une première idée du

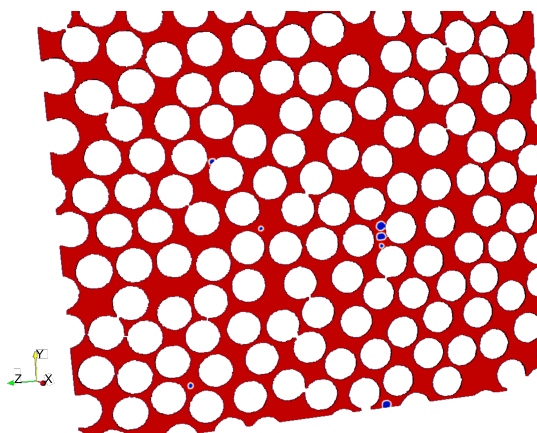


FIG. 2. – VER de l'intra-ply UD de volume  $0.1 \times 0.1 \times 0.001 \text{ mm}^3$  et de TVF égal à 60 %

potentiel d'OpenFOAM pour simuler les porosités du point de vue de la CFD. Seul un modèle simple d'évolution de bulles au sein du VER est mis en place au moment de la rédaction de cet article. Un solveur *Volume of Fluid* (VOF) est utilisé ici, ce qui est plutôt bien adapté pour simuler des écoulements multiphasiques avec suivi de la fraction volumique et des interfaces entre les différentes phases. Les paramètres sont à affiner pour bien représenter la réalité mais ce modèle est une approche préliminaire à l'échelle microscopique.

### 4. Résultats et discussion

Le modèle numérique ABAQUS ainsi développé a été testé sur un volume de matière soumis à une pression sur la face supérieure et les côtés, représentant un pli de préimprégné. La Fig. 3.a) illustre le cycle de pression avec un palier à 6 bars et le cycle de température comportant deux paliers à 135 °C et 180 °C. La Fig. 3.b) montre l'évolution de la viscosité au cours de la polymérisation, passant par un minimum indiquant que la résine est à l'état liquide, et l'évolution du degré de polymérisation au cours de la cuisson. Enfin la Fig. 4 montre l'évolution du rayon de bulle au cours de la réaction : une légère croissance est observée en début de polymérisation, due à l'augmentation de la température et à la diminution de viscosité de la résine, puis une décroissance importante a lieu lors de l'application de la pression. Enfin, lorsque le point de gel est atteint, la rayon de bulle n'évolue plus et atteint ainsi son rayon final. Le rayon final obtenu dans ces conditions est de l'ordre du micromètre, ce qui est une valeur réaliste comparée aux dimensions des pores observées expérimentalement par Parscau du Plessix [1] : les pores situées à l'intérieur des couches de renforts mesurent de quelques nanomètres à quelques micromètres.

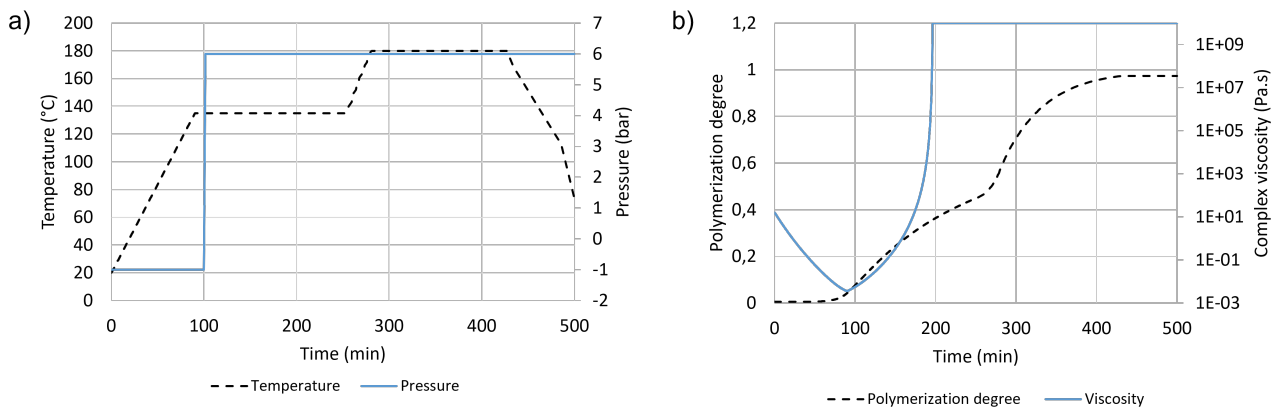


FIG. 3. – (a) Cycle de pression et de température, (b) évolution temporelle du degré de polymérisation et de la viscosité de la résine [1]

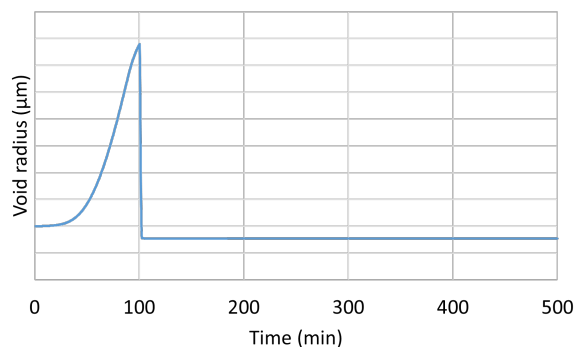


FIG. 4. – Évolution temporelle du rayon de la bulle au cours du cycle de polymérisation

Les simulations numériques ont montré une bonne évolution du rayon de bulle en fonction des paramètres de polymérisation. Une étape de validation par la confrontation à des résultats issus de la littérature et de coupons présentant des pores est en cours. Actuellement, la température est considérée comme homogène dans la pièce et égale à la température de consigne en tout point. Un modèle thermique pourrait donc être implémenté pour prendre en compte l'effet possible du terme source lié à l'exothermie de la réaction dans l'équation de la chaleur et examiner comment la température locale pourrait influencer sur l'évolution des pores.

Cependant, cet outil numérique ne permet pas encore de prédire les interactions entre les fibres et les bulles et entre les bulles entre elles. L'idée est donc de développer une approche type mécanique des fluides à l'échelle microscopique, c'est-à-dire à l'échelle d'un volume élémentaire représentatif (VER) d'un pli de préimprégné. Le logiciel de CFD *open source* OpenFOAM s'est révélé prometteur pour la prise en compte des écoulements multiphasiques et les interactions fluide/structure. Ce logiciel est largement utilisé pour des simulations de mécanique des fluides, mais sa flexibilité permet également de l'appliquer à des problématiques de diffusion, de transport de chaleur et de polymérisation dans des matériaux composites. Pour le pendant de ce modèle à l'échelle macroscopique, l'utilisation des approches non-locales dans Abaqus est envisagée.

Quant à la nucléation de bulles, plusieurs approches peuvent être mises en place : l'implémentation d'une loi statistique de distribution de la porosité initiale ou une loi de nucléation hétérogène basée sur les modèles de moussage des polymères. En effet, bien que la loi de Weibull [11] soit traditionnellement utilisée pour décrire la probabilité de défaillance d'un matériau en fonction des caractéristiques de ses défauts et de la contrainte appliquée, son cadre statistique pourrait s'appliquer à la modélisation de la porosité dans les matériaux composites [6]. Mascaro [12] et Ledru [13] montrent que la loi d'échelle

ou loi de Korcak donne de bons résultats pour décrire la granulométrie en nombre des porosités. Pour l'approche avec l'implémentation d'une loi de nucléation hétérogène, le concept du volume de non-influence développé dans les modèles de moussage de polymères [14] permet de définir un volume autour d'une bulle dans lequel il ne peut pas y avoir de nucléation d'une autre bulle. Ces deux approches seront évaluées pour déterminer la mieux adaptée à la nucléation hétérogène des pores dans les matériaux composites stratifiés.

## 5. Conclusion et perspectives

Un sous-programme couplant un modèle de polymérisation, un modèle de compaction et un modèle de croissance de bulles a été développé et testé. Les prochaines étapes de la recherche consisteront à comparer ces approches avec des résultats issus de la littérature. Un modèle à l'échelle d'un VER de l'intra-ply sera développé sous le logiciel OpenFOAM. Les résultats des simulations, notamment en termes d'interactions fibres-bulles et bulles-bulles, seront destinés à enrichir le modèle macroscopique pour déterminer avec une meilleure précision la porosité sur des pièces industrielles.

## Références

- [1] B. Parscau du Plessix « Analyses et Modélisation Du Développement de Porosités Lors de La Cuisson de Pièces Composites Thermodurcissables Hautes Performance », These de doctorat, Nantes, 2016.
- [2] J. R. Wood, M. G. Bader « Void Control for Polymer-Matrix Composites (1) : Theoretical and Experimental Methods for Determining the Growth and Collapse of Gas Bubbles », *Composites Manufacturing* Vol. 5 n° 3, pp. 139–147, 1994, ISSN 0956-7143.
- [3] P. S. Epstein, M. S. Plesset « On the Stability of Gas Bubbles in Liquid-Gas Solutions », *The Journal of Chemical Physics* Vol. 18 n° 11, pp. 1505–1509, 1950, ISSN 0021-9606.
- [4] J. L. Kardos, M. P. Duduković, R. Dave « Void Growth and Resin Transport during Processing of Thermosetting — Matrix Composites », in : H. Benoit, H.-J. Cantow, G. Dall'Asta, K. Dušek, H. Fujita, M. Gordon, G. Henrici-Olivé, G. Heublein, H. Höcker, H.-H. Kausch, J. P. Kennedy, A. Ledwith, S. Okamura, S. Olivé, C. G. Overberger, H. Ringsdorf, T. Saegusa, J. L. Schrag, G. V. Schulz, W. P. Slichter, J. K. Stille, K. Dušek (Eds.), *Epoxy Resins and Composites IV*, vol. 80, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, ISBN 978-3-540-16423-4 978-3-540-39775-5, , pp. 101–123, 1986.
- [5] J. W. Gibbs, *The Scientific Papers of J. Willard Gibbs*, Vol. 1 : Thermodynamics, Dover Publications Inc., Woodbridge, Conn, ISBN 978-0-486-60721-4, 1961.
- [6] Y. Ledru « Etude de la porosité dans les matériaux composites stratifiés aéronautiques », Ph.D. thesis, 2009.
- [7] A. Arefmanesh, S. G. Advani, E. E. Michaelides « An Accurate Numerical Solution for Mass Diffusion-Induced Bubble Growth in Viscous Liquids Containing Limited Dissolved Gas », *International Journal of Heat and Mass Transfer* Vol. 35 n° 7, pp. 1711–1722, 1992, ISSN 0017-9310.
- [8] I. Langmuir « The Adsorption of Gases on Plane Surfaces of Glass, Mica and Platinum. », *Journal of the American Chemical Society* Vol. 40 n° 9, pp. 1361–1403, 1918, ISSN 0002-7863.
- [9] N. Ersoy, M. Tugutlu « Cure Kinetics Modeling and Cure Shrinkage Behavior of a Thermosetting Composite », *Polymer Engineering & Science* Vol. 50 n° 1, pp. 84–92, 2010, ISSN 1548-2634.
- [10] P. Hubert « Aspects of Flow and Compaction of Laminated Composite Shapes during Cure », Ph.D. thesis, University of British Columbia, 1996.
- [11] W. Weibull « A Statistical Distribution Function of Wide Applicability », *Journal of Applied Mechanics* Vol. 18 n° 3, pp. 293–297, 1951, ISSN 0021-8936, 1528-9036.
- [12] B. Mascaro « Caractérisation Ultrasonore de La Porosité Dans Les Composites Carbone/Époxy Stratifiés », These de doctorat, Toulouse 3, 2005.
- [13] Y. Ledru, R. Piquet, L. Michel, F. Schmidt, G. Bernhart « Quantification 2-D et 3-D de La Porosité Par Analyse d'images Dans Les Matériaux Composites Stratifiés Aéronautiques », in : P. O. e. J. LAMON (Ed.), *JNC 16*, AMAC, Toulouse, France, , pp. 11 p., 2009.
- [14] M. A. Shafi, R. W. Flumerfelt « Initial Bubble Growth in Polymer Foam Processes », *Chemical Engineering Science* Vol. 52, pp. 627–633, 1997, ISSN 0009-2509.