

Développement d'un moyen d'essai expérimental pour l'étude du comportement des stratifiés composites en environnement cryogénique

Development of an experimental setup for the study of composite laminates behavior in cryogenic environment

Lou NARBONNE¹, Marc NARDONE², Abdelaziz ZITOUNI², Mathieu BARRAGAN², Stephane ORIEUX¹, Nicolas LAURIEN¹, Laurent BENDICHOUS², Jean-Marc LAGARRIGUE², Pablo NAVARRO¹, Jean-François FERRERO¹, Steven MARGUET¹

1 : Université de Toulouse, Institut Clément Ader
UMR CNRS 5312, INSA/ISAE/Mines Albi/UPS
3 rue Caroline Aigle, 31400 Toulouse

e-mail : lou.narbonne@univ-tlse3.fr, stephane.orieux@univ-tlse3.fr, nicolas.laurien@insa-toulouse.fr,
pablo.navarro@univ-tlse3.fr, jean-francois.ferrero@univ-tlse3.fr, steven.marguet@univ-tlse3.fr

2 : Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses
CNRS, UPR 3228

143 avenue de Rangueil, 31400 Toulouse
e-mail : marc.nardone@lncmi.cnrs.fr

Résumé

Dans un contexte de transition énergétique, l'hydrogène se présente comme solution prometteuse. Toutefois, son stockage en conditions cryogéniques demeure un sujet de recherche actif, en particulier concernant le comportement des matériaux composites à très basse température. La littérature scientifique, bien que riche, ne permet pas un consensus en raison de l'hétérogénéité des protocoles expérimentaux.

Ce travail présente le développement d'un moyen d'essai expérimental conçu pour réaliser des essais mécaniques sur des stratifiés composites à des températures cryogéniques allant jusqu'à 20 K. La stabilité thermique du cryostat est assurée par un système de refroidissement utilisant un cryogénérateur de type Pulse-Tube, une technologie permettant de limiter les vibrations, tout en améliorant sa fiabilité et sa durée de vie. Les composants, le fonctionnement du dispositif, ainsi que les campagnes expérimentales prévues sont détaillés dans ce compte-rendu.

Ce banc d'essai a pour objectif de produire des données reproductibles afin de mieux comprendre les effets de l'environnement cryogénique sur les propriétés mécaniques des composites, et ainsi contribuer à la validation ou à la révision des résultats disponibles dans la littérature.

Abstract

In the context of the energy transition, hydrogen is emerging as a promising solution. However, its storage under cryogenic conditions remains an active area of research, especially regarding the behavior of composite materials at very low temperatures. Although the scientific literature is extensive, no consensus has been reached due to the heterogeneity of experimental protocols.

This work presents the development of an experimental setup designed to perform mechanical tests on composite laminates at cryogenic temperatures down to 20 K. Thermal stability is ensured by a cooling system based on a Pulse-Tube cryocooler, a technology that minimizes vibrations while enhancing reliability and service life. The components, operating principles of the setup, and the planned experimental campaigns are detailed in this report.

The aim of this test bench is to generate reproducible data to improve understanding of how cryogenic environments affect the mechanical properties of composites, thereby contributing to the validation or refinement of findings reported in the literature.

Mots Clés : Composites caractérisation cryogénique

Keywords : composites characterization cryogenic CFRP

1. Introduction et état de l'art

Dans un contexte de transition écologique, les études sur les transports utilisant l'énergie hydrogène se multiplient. En aviation civile, l'utilisation d'hydrogène est une piste sérieuse mais controversée par rapport à son stockage [1]. En effet, une première solution consiste à le stocker à température ambiante sous forme de gaz à haute pression [2]; cette solution apporte des dangers comme les explosions, les flammes invisibles ou encore d'inflammation instantanée [3]. Ainsi, une solution apportée à ce facteur d'insécurité est le stockage de l'hydrogène à froid (20 K) [4], permettant de conserver ce gaz sous forme liquide (LH_2) et à pression atmosphérique. De plus, l'énergie par unité de volume du LH_2 est significativement augmentée par rapport à l'hydrogène gazeux (GH_2) [5]. Pour la fabrication de réservoirs légers et performants, les matériaux composites à fibres longues constituent des candidats prometteurs [1].

Cette méthode engendre de nouveaux besoins d'étude sur les matériaux utilisés pour ces réservoir car leurs comportements présentent des variations importantes aux températures cryogéniques [6], [7]. Dans la littérature, plusieurs articles se penchent sur la caractérisation de composites plastiques renforcés à l'échelle macroscopique [8] [9] [10]. Généralement, en passant de la température ambiante aux températures cryogéniques, le module longitudinal en traction et la contrainte limite sont augmentés tandis que l'allongement à rupture est diminué [11] [12]. Cependant, aucun consensus n'a été trouvé sur leur comportement à de telles températures. Selon une étude de 2004 [13] il a été observé que pour une résine thermodurcissable renforcée par des tissus en fibre de carbone, le module longitudinal augmente jusqu'à 77K puis diminue jusqu'à 4K. Puis pour une même résine renforcée par un tissu en fibre de verre, une seconde étude observe une baisse du module et de la contrainte limite [14] tandis qu'une autre observe une augmentation de ces valeurs [11].

Cependant, les nombreuses études réalisées portent sur des expérimentations différentes en ce qui concerne les fibres, les matrices utilisées, l'architecture du composite (tissus [13], UD [15]), les températures - différentes ou non stabilisées [1] - ainsi que les types de sollicitation (délaminage ou rupture [15]). Pour comparer le comportement sur des paramètres équivalents la littérature comprend donc trop peu de données.

Un moyen expérimental stable, dont la température de l'enceinte reste constante en environnement cryogénique, permettrait de réaliser les essais dans de meilleures conditions et ainsi mieux comprendre les différents événements mis en place lors des essais à basse température. Un premier cryostat comprenant un système d'essai mécanique a été développé en 2017 par une équipe chinoise et a été utilisé pour réaliser des essais mécaniques sur de l'acier inoxydable 316L [16]. Le cryostat développé en collaboration entre le Laboratoire National des Champs Magnétiques Intenses (LNCMI) et l'Institut Clément Ader (ICA) s'est appuyé sur ces travaux. Ce développement respecte la conception d'origine en y apportant quelques modifications afin de mieux correspondre aux futurs travaux du laboratoire.

A ce jour, les travaux restant à réaliser pour réaliser une première campagne se limitent à l'intégration du cryostat sur une machine de traction installée à l'ICA et la réalisation d'éprouvettes de composites utilisables en environnement cryogénique. Les matériaux utilisés seront choisis de façon à valider les résultats expérimentaux de la littérature présenté dans cet état de l'art.

2. Moyen expérimental

Le cryostat développé comprend un module pour réaliser les essais mécanique dans un environnement basse température, il est représenté sur la figure 1. La finalité étant de descendre dans un premier temps jusqu'à une température de 20 K, le système de refroidissement utilise des têtes cryo-générateurs de type "Pulse-Tube" de la société *Cryomech*. Le système de refroidissement utilise la puissance fri-

gorifique générée sur les 1er et 2eme étages des têtes froides pour, respectivement, refroidir l'écran anti-radiation thermique et la cuve expérimentale construite en cuivre de haute conductibilité thermique.

Des cryogénérateurs type Pulse-Tube ont été préférés au système Gifford-McMahon qui était utilisé dans le moyen d'essai développé par l'académie chinoise des sciences à Beijing [16]. Pour le système Pulse Tube, l'absence de pièces mobiles dans la tête froide permet une plus grande fiabilité, l'allongement de la durée de vie et une meilleure stabilité thermique.

Le couplage thermique entre l'éprouvette et la paroi de la cuve est réalisé à l'aide de gaz d'échange hélium préalablement introduit dans la cuve. Douze blocs circulaires de mousse ont été placés de façon à limiter le volume mort et isoler la partie supérieure de la barre de traction tout en facilitant les mouvements de la tige. Des hublots ont été ajoutés sur la cuve expérimentale et sur l'enceinte à vide afin de pouvoir mettre en place de la corrélation d'image lors des essais.

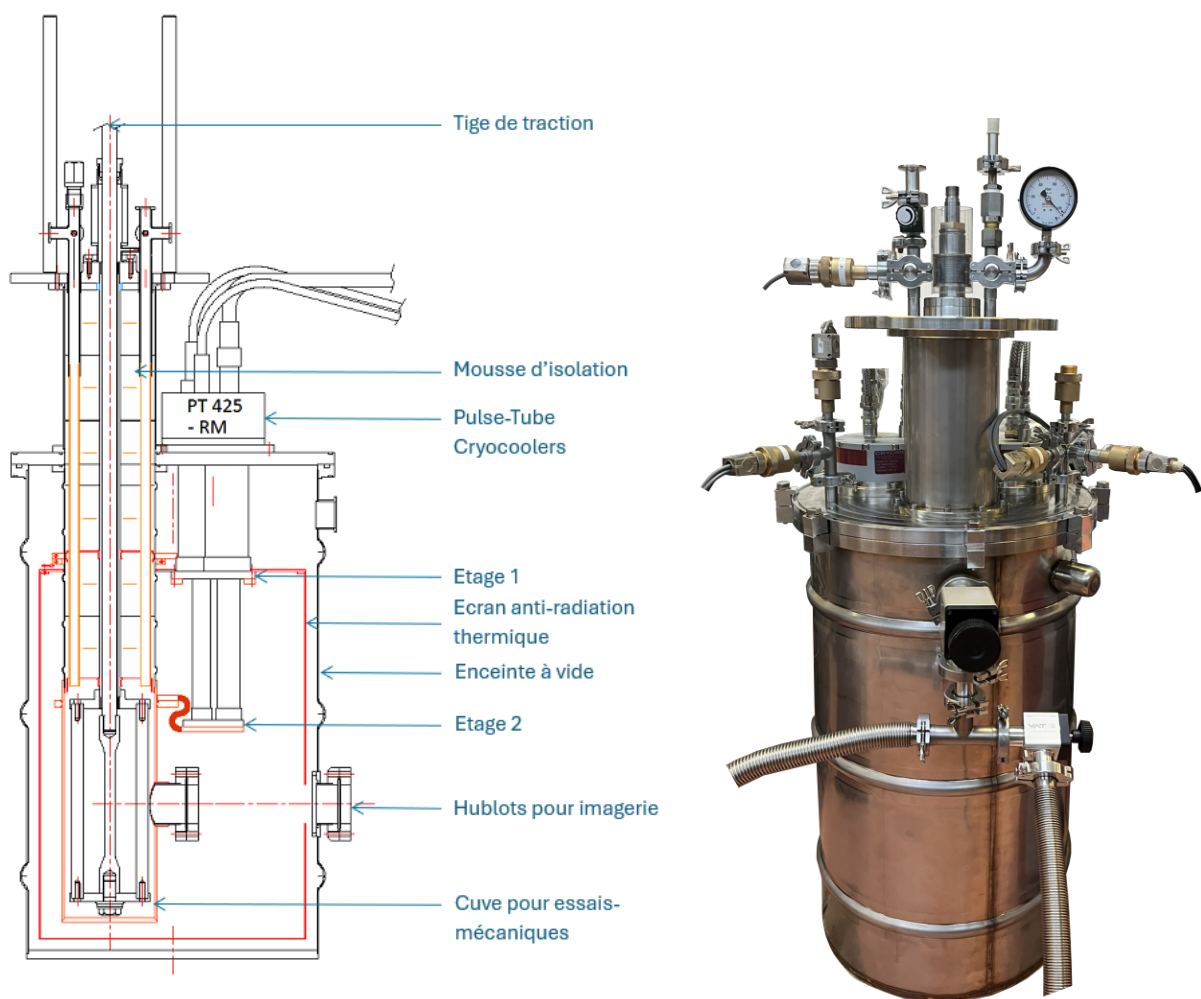


FIG. 1. – Schéma du principe du cryostat

Pour réaliser les essais mécaniques, la tige de traction est pilotée par une machine de traction. La conception du système de maintien des éprouvettes a été réalisée à l'aide d'une étude thermomécanique par calcul élément fini. Le coefficient de dilatation étant différent pour les métaux et les composites, il est nécessaire de les prendre en compte pour que les éprouvettes restent immobiles au niveau des mors, un design auto-serrant a donc été adopté.

En terme de performances, de nombreux tests de descente et remontée en température ont été faits.

Le cryostat permet donc de descendre à une température de 20K en 3h à 3h30 et de remonter à température ambiante en 4h30, afin de ne pas dépasser la température maximale recommandée pour les cryocoolers, fixée à 324K. Plus tard, des essais à des températures inférieures pourront être envisagés.

Le dimensionnement de la cuve d'essai mécanique du cryostat permet un volume utile de $40^2 \times \pi \times 240mm^3$. Ce volume comprend également les mors, système d'attache des éprouvettes pour la sollicitation mécanique.

3. Travaux et essais mécaniques

La fabrication des éprouvettes est un point important à réaliser à ce jour. En effet, les températures cryogéniques ont un impact sur le type d'éprouvette que nous pouvons réaliser. Les éprouvettes de composites sont souvent de forme rectangulaire et comprennent des talons collés à chaque extrémité. Les colles deviennent cassantes lorsque la température de l'environnement est inférieure à celle de leur transition vitreuse [17]. Ainsi, d'autres formes d'éprouvettes sont étudiées, notamment en renforçant leurs extrémités sans utilisation de talons. Une éprouvette comprenant un lâcher de pli interne aux deux extrémités est proposé comme solution alternative. Le nombre de pli et la largeur de celle-ci sont choisis en fonction de la capacité de la machine de traction et de l'angle du lâcher de pli.

A terme, les essais envisagés dans le cryostat comprendront une sollicitation thermique et/ou mécanique. Compte tenu du manque de concordance entre les données de la littérature, il serait intéressant de réaliser différents essais sur des composites à architectures différentes. Les matériaux pourraient être renforcés par des fibres de carbone ou de verre, sous forme de tissus ou UD, et sollicités à 0° ou 90° dans un premier temps. Dans la littérature, une différence de ratio entre la matrice et les fibres semble modifier le comportement des composites [1], cela pourra donc également faire l'objet de l'étude expérimentale. Le choix du type de résine sera également important.

Références

- [1] J. Hohe, A. Neubrand, S. Fliegner, C. Beckmann, M. Schober, K.-P. Weiss, S. Appel « Performance of fiber reinforced materials under cryogenic conditions—A review », *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing* Vol. 141, pp. 106226, 2021, ISSN 1359-835X.
- [2] C. Winnefeld, T. Kadyk, B. Bensmann, U. Krewer, R. Hanke-Rauschenbach « Modelling and Designing Cryogenic Hydrogen Tanks for Future Aircraft Applications », *Energies* Vol. 11 n° 1, pp. 105, 2018, ISSN 1996-1073, number : 1 Publisher : Multidisciplinary Digital Publishing Institute.
- [3] A. Magliano, C. Perez Carrera, C. M. Pappalardo, D. Guida, V. P. Berardi « A Comprehensive Literature Review on Hydrogen Tanks : Storage, Safety, and Structural Integrity », *Applied Sciences* Vol. 14 n° 20, pp. 9348, 2024, ISSN 2076-3417, number : 20 Publisher : Multidisciplinary Digital Publishing Institute.
- [4] R. Heydenreich « Cryotanks in future vehicles », *Cryogenics* Vol. 38 n° 1, pp. 125–130, 1998, ISSN 0011-2275.
- [5] S. K. Mital, J. Z. Gyekenyesi, S. M. Arnold, R. M. Sullivan, J. M. Manderscheid, P. L. N. Murthy « Review of Current State of the Art and Key Design Issues With Potential Solutions for Liquid Hydrogen Cryogenic Storage Tank Structures for Aircraft Applications », Tech. Rep. E-15621, nTRS Author Affiliations : Toledo Univ., N and R Engineering, NASA Glenn Research Center NTRS Document ID : 20060056194 NTRS Research Center : Glenn Research Center (GRC), 2006.
- [6] J. B. Schutz « Properties of composite materials for cryogenic applications », *Cryogenics* Vol. 38 n° 1, pp. 3–12, 1998, ISSN 0011-2275.
- [7] Y. Li, J. Meng, J. Luo, P. Wang, J. Ma, Z. Zhao, H. Lei « Cryogenic mechanics and damage behaviors of carbon fiber reinforced polymer composites », *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing* Vol. 169, pp. 107484, 2023, ISSN 1359-835X.
- [8] S. Sethi, B. C. Ray « Mechanical Behavior of Polymer Composites at Cryogenic Temperatures », in : S. Kalia, S.-Y. Fu (Eds.), *Polymers at Cryogenic Temperatures*, Springer, Berlin, Heidelberg, ISBN 978-3-642-35335-2, , pp. 59–113, 2013.
- [9] A. T. Nettles, E. J. Biss « Low Temperature Mechanical Testing of Carbon-Fiber/Epoxy-Resin Composite Materials »,

nTRS Author Affiliations : NASA Marshall Space Flight Center NTRS Report/Patent Number : M-821 NTRS Document ID : 19970003683 NTRS Research Center : Marshall Space Flight Center (MSFC), 1996.

- [10] J. French, C. Dahlkamp, M. Czabaj « Formation of cryobiasial-induced damage in tape-laminate composites », *Composite Structures* Vol. 235, pp. 111816, 2020, ISSN 0263-8223.
- [11] M. Miura, Y. Shindo, T. Takeda, F. Narita « Effect of damage on the interlaminar shear properties of hybrid composite laminates at cryogenic temperatures », *Composite Structures* Vol. 93 n° 1, pp. 124–131, 2010, ISSN 0263-8223.
- [12] M. Madhukar, C. Kidwell, D. Reed, N. Martovetsky, D. Irick « The effects of glass weave on the low temperature flexure properties of composite laminates », *Journal of Composite Materials* Vol. 47, pp. 1117–1127, 2013.
- [13] S. Kumagai, Y. Shindo « Experimental and Analytical Evaluation of the Notched Tensile Fracture of CFRP-Woven Laminates at Low Temperatures », *Journal of Composite Materials* Vol. 38 n° 13, pp. 1151–1164, 2004, ISSN 0021-9983, publisher : SAGE Publications Ltd STM.
- [14] S. Kumagai, Y. Shindo, A. Inamoto « Tension–tension fatigue behavior of GFRP woven laminates at low temperatures », *Cryogenics* Vol. 45 n° 2, pp. 123–128, 2005, ISSN 0011-2275.
- [15] F. Crescenzi, F. Marini, C. Nardi, A. Pizzuto, P. Rossi, L. Verdini, H. Rajainmaki, J. Knaster, L. Bettinali « Mechanical characterization of glass fibre–epoxy composite material for ITER pre-compression rings », *Fusion Engineering and Design* Vol. 86 n° 9, pp. 2553–2556, 2011, ISSN 0920-3796.
- [16] H. Zhang, D. Xu, R. Huang, C. Huang, H. Liu, Y. Han, L. Li « Liquid helium free mechanical property test system with G-M cryocoolers », *Cryogenics* Vol. 85, pp. 58–62, 2017, ISSN 0011-2275.
- [17] S. Nam, Y. H. Yu, I. Choi, C. S. Bang, D. G. Lee « Fracture toughness improvement of polyurethane adhesive joints with chopped glass fibers at cryogenic temperatures », *Composite Structures* Vol. 107, pp. 522–527, 2014, ISSN 0263-8223.