

Développement de mousses thermoplastiques réactives pour applications dans panneaux sandwich multifonctionnels

Development of reactive thermoplastic foams for application in multifunctional sandwich structures

Raffaele D'Elia¹, Mathilde Lafon², Victor Morlet² et Estelle Mathieu²

1 : Institut Clément Ader (ICA)
Université de Toulouse, CNRS UMR 5312, IMT Mines Albi, UPS, INSA,
ISAE-SUPAERO, Campus Jarlard, F-81013 Albi, France
raffaele.delia@mines-albi.fr

2 : IMT Mines Albi, Campus Jarlard, F-81013 Albi, France

Résumé

Les panneaux sandwich multifonctionnels sont une classe de matériaux composites qui permettent d'intégrer des fonctions secondaires dans une structure porteuse. L'isolation acoustique ou encore la résistance à l'impact sont des propriétés fortement dépendantes des matériaux d'âme et plus particulièrement de leur microstructure. Afin de développer des nouvelles solutions plus respectueuses de l'environnement d'un point de vue du cycle de vie, cette étude propose d'explorer une technique de moussage novatrice pour obtenir des matériaux d'âme à partir d'une résine thermoplastique réactive Elium® C195E. L'idée de base consiste à exploiter le teneur élevé du monomère méthacrylate de méthyl (MMA) dans le mélange réactif (75-80%), sa faible température d'ébullition (101°C), ainsi que la forte réactivité après mélange du système pour obtenir une mousse thermoplastique à faible densité. Les premiers résultats sont encourageants et ont permis d'obtenir plusieurs échantillons dans un moule fermé avec une bonne stabilité dimensionnelle. La microstructure observée après enrobage et polissage reste assez hétérogène, avec des pores de grosses dimensions d'environ 2 mm. Les prochaines campagnes d'essais mécaniques, acoustiques et à la tour de chute permettront de déterminer les applications potentielles ainsi que de délimiter des potentielles voies d'amélioration pour pouvoir intégrer ces matériaux d'âme dans des panneaux sandwich multifonctionnels.

Abstract

Multifunctional sandwich panels are a class of composite materials that enable the integration of secondary functions into load-bearing structures. Properties such as acoustic insulation and impact resistance are highly dependent on the core materials, particularly their microstructure. To develop new solutions that are more environmentally friendly from a life cycle perspective, this study explores an innovative foaming technique to produce core materials using a reactive thermoplastic resin, Elium® C195E. The approach leverages the high content of methyl methacrylate (MMA) monomer in the reactive mixture (75-80%), its low boiling point (101°C), and the system's high reactivity after mixing to create a low-density thermoplastic foam. Initial results are promising, as several samples were successfully produced in a closed mold with good dimensional stability. The microstructure observed after embedding and polishing remains somewhat heterogeneous, with large pores approximately 2 mm in size. Upcoming mechanical, acoustic, and drop tower tests will help identify potential applications and outline avenues for improvement, enabling the integration of these core materials into multifunctional sandwich panels.

Mots Clés : composites sandwich, mousses polymères, matériaux multifonctionnels, évaporation, porosité

Keywords : sandwich composites, polymeric foams, multifunctional materials, evaporation, porosity

1. Introduction

Les structures composites multifonctionnelles (*multi-functional structures*, ou MFS en anglais) sont une classe émergente de matériaux composites permettant la conception d'une structure porteuse, tout en assurant une ou plusieurs fonctions secondaires. Ce concept permet en effet de réduire la masse et le volume du système, tout en optimisant son efficacité globale [1], [2], ce qui est très intéressant dans les structures aéronautiques [3], [4], spatiales [5], [6], [7] ou encore automobiles. Parmi les différentes solutions, les panneaux sandwich représentent sans doute une des plus utilisées, grâce à leur rapport

résistance-poids élevé, mais surtout à la présence d'une âme légère. Cet élément a comme rôle principale de séparer les deux peaux rigides pour augmenter le moment d'inertie de la section. Un avantage ultérieur est lié à la possibilité d'exploiter les propriétés des matériaux d'âme, qui peuvent assurer une ou plusieurs propriétés spécifiques. Les matériaux d'âme légers comportant des porosités ou de vides peuvent être classés dans la famille des solides cellulaires [8] et revêtent un intérêt particulier pour les applications légères. Parmi les plus utilisés, l'on trouve les matériaux à base de bois, les structures lattices, les nids d'abeille à base d'aluminium ou de Nomex[®]. Ces derniers sont particulièrement très utilisés en intérieur cabine d'avion, grâce à leur résistance au feu [9].

Un groupe très intéressant est celui constitué des mousses polymères, qui présentent des propriétés fonctionnelles fortement dépendantes de leur microstructure [10]. Des cellules ouvertes sont par exemple à privilégier lorsqu'il faut optimiser l'isolation acoustique d'une structure. Cette microstructure permet en effet de piéger et dissiper les ondes acoustiques par des phénomènes visqueux, thermiques et d'amortissement [11]. L'isolation thermique, quant à elle, peut être optimisée par des cellules fermées. L'utilisation de mousses polymères pour répondre à des applications demandant une résistance à l'impact représente un autre domaine d'intérêt pour cette famille de matériaux. En effet, les charges d'impact produisent principalement des déformations hors plan, qui dépendent largement du matériau d'âme plutôt que des peaux. Cela a conduit à une large gamme de recherches sur ces matériaux et leurs propriétés pour des applications liées à l'impact [12].

Le développement de nouvelles solutions multifonctionnels doit néanmoins se confronter aux défis grandissants qui concernent l'impact de ces matériaux sur l'environnement, notamment en termes de cycle de vie, allant du resourcement au recyclage et à la fin de vie [13]. Cette constatation a progressivement emmené à évaluer des matériaux avec un impact environnemental réduit dans le monde des composites, comme par exemple les vitrimères [14], [15], les polymères thermoplastiques ou encore les polymères thermoplastiques réactifs [16]. Ces derniers en particulier associent les propriétés de remise en forme et recyclabilité des thermoplastiques avec la mise en œuvre par voie liquide des matériaux thermodurcissables. Afin de répondre à ces défis et proposer des nouvelles solutions multifonctionnelles, cette étude se propose d'explorer un procédé de fabrication de mousses à partir de polymères thermoplastiques réactifs.

2. Matériaux et méthodes

2.1. Matériaux

Le matériau choisi pour cette étude fait partie de la famille des résines thermoplastiques réactives Elium[®], développées par Arkema. Il s'agit d'un produit constitué de copolymères acryliques, dilués dans du monomère MMA (méthacrylate de méthyl). Pour cette étude la résine Elium[®] C195E a été choisie, avec un teneur en monomères compris entre 20 et 25% [17], présentant une viscosité avant polymérisation de l'ordre de 0.1 Pa.s. Sa réaction de polymérisation est initiée par la dissociation d'un peroxyde organique, qui commence à partir d'une température de l'ordre de 50-70°C.

2.2. La méthode de moussage

Les propriétés fonctionnelles des mousses sont fortement influencées par leur microstructure. Le type de cellule (ouvertes, fermées), leur taille et distribution sont tributaires de l'homogénéité du mélange, de la quantité d'agent moussant dispersé dans le polymère, des coefficients de diffusion, de la température et pression ainsi que de l'évolution de la viscosité du mélange. Ce dernier paramètre en particulier est influencé par l'évolution de la polymérisation dans le cas de polymères réactifs [17]. Plusieurs techniques de moussage sont détaillées dans la littérature en fonction du type d'agent moussant, avec une réaction d'expansion qui peut être de nature physique, chimique ou syntactique [18]. Ces agents moussants permettent d'obtenir de taille de pores variables, mais en générale il est

difficile de descendre en dessous de la plage 10-100 μm . Pour descendre à des porosités submicroniques, il est nécessaire de passer par des techniques d'émulsification, avec une bonne maîtrise de la phase de séchage [19]. En effet sous ces conditions, les mousses ont des propriétés d'isolation thermique ou électrique très intéressantes, mais leur microstructure devient très fragile. Dans le cadre de cette étude il a été décidé d'explorer une technique de moussage faisant partie des techniques dites physiques, en exploitant le réservoir de monomères disponibles dans le mélange de la résine Elium[®] C195E (entre 75 et 80%) et de l'utiliser comme agent moussant pour le système. Le monomère MMA, avant polymérisation radicalaire, présente une température d'évaporation de 101°C, qui est bien proche de la gamme de température de polymérisation après ajout de l'initiateur peroxyde. La résine C195E présente une réactivité très importante à des températures proches de la température d'évaporation des monomères [17], [20], ce qui permet en effet de générer des bulles dans un mélange en cours de polymérisation. Pour que cette microstructure soit effective, il faut cependant que la réaction de gelification du système soit assez rapide, ce qui est en effet le cas pour ce système à des températures de l'ordre de 100 à 120°C (quelques minutes). Cette dernière correspond à la phase d'augmentation soudaine de la viscosité, ainsi qu'à l'apparition de l'élasticité dans le polymère [18].

3. Résultats

3.1. Moussage des échantillons et premières caractérisations

La résine Elium[®] C195E est mélangée avec un peroxyde organique à hauteur de 3 phr (*per hundred resin*). Dans les différentes expériences réalisées, 20 g de résine sont mélangés avec 0.6 g de peroxyde pendant environ 2 minutes, jusqu'à obtenir un mélange homogène. Le système est stable à température ambiante et la polymérisation est activée à partir de températures supérieures à 50°C [17]. Pour permettre la génération d'une mousse, il est important que la polymérisation du mélange et l'évaporation des monomères se produisent au même temps et sur un temps assez court. De plus, l'effet masse lié à l'effet Trommsdorff [17], induit une augmentation soudaine de la température, liée à une auto accélération de la réaction de polymérisation. Généralement cet effet doit être évité pour ne pas produire des porosités dans un matériau composite. Ici l'idée est d'exploiter cet effet pour générer de la porosité de façon maîtrisée. Une configuration préliminaire choisie consiste à placer le mélange de résine et peroxyde dans un moule isolant en Teflon, fermé par deux bouchons étanches, sur lequel un produit démoulant a été préalablement appliqué. Cette configuration permet d'obtenir un effet masse marqué lorsque la température de polymérisation est atteinte. Le système fermé est placé sur une plaque chauffante, dont la température est réglée à 85°C. L'ensemble moule et plaque est placé sous un couvercle en composite isolant thermique en fibre de verre, en créant ainsi une enceinte thermique. Les éléments de l'enceinte avec thermocouples sont présentés dans la Fig. 1.

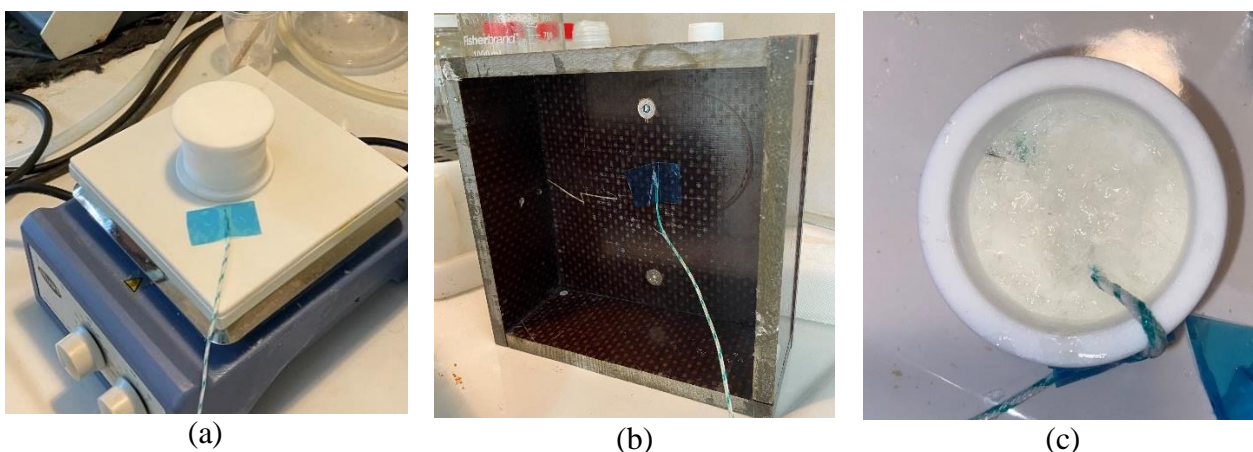


Fig. 1. Essais de moussage par évaporation de monomères : (a) plaque avec thermocouple ; (b) couvercle en composite isolant avec thermocouple ; (c) échantillon dans moule en Teflon avec thermocouple immergé.

Pour valider la démarche, des essais préliminaires ont été réalisés avec des mesures de températures en trois points : au niveau de la plaque chauffante, au niveau du couvercle et dans la résine. Les mesures de température sont présentées dans la Fig.2 : une température de consigne d'environ 85°C (plaque) est imposée, avec un effet Trommsdorff observé au niveau de la résine et un pic allant jusqu'à 130°C. La température du couvercle reste inférieure à celle de la plaque, ce qui se justifie par un environnement en convection naturelle à l'intérieur de l'enceinte.

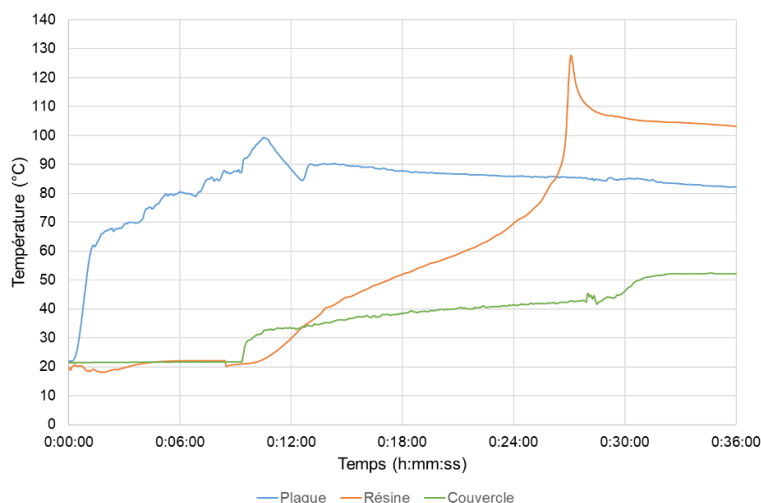


Fig. 2. Suivi de température pendant un essai de moussage de la résine Elium® C195E.

Après démoulage, l'échantillon présente une très bonne stabilité dimensionnelle (Fig.3a), qui est préservée lorsque des cubes d'environ 20 x 20 x 20 mm³ sont découpés avec une micro-tronçonneuse (Fig.3b). Les observations au microscope optique après une étape d'enrobage et polissage (plusieurs étapes jusqu'à la finition avec de la silice colloïdale 0.1 µm) montrent une microstructure hétérogène, avec des pores allant jusqu'à 2-3 mm de diamètre (Fig.3c). Les échantillons non enrobés ont également été utilisés pour mesurer la densité avec la méthode de double pesée, avec une pesée à sec et une pesée dans l'eau. Une moyenne de 280±60 kg/m³ est obtenue à partir de 5 échantillons.

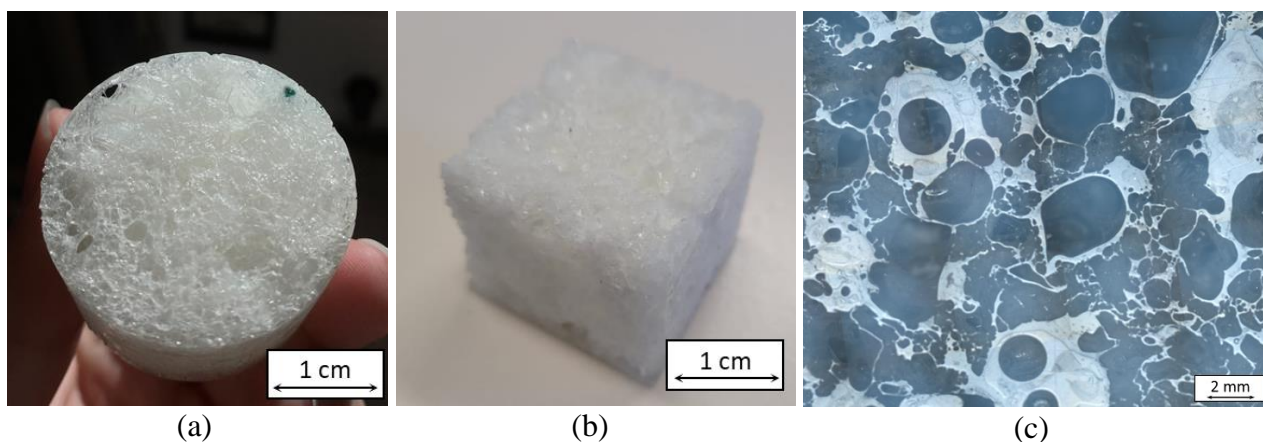


Fig. 3. Echantillons de mousse Elium® C195E : (a) échantillon après démoulage ; (b) échantillon après découpe, cube 20 x 20 x 20 mm³ ; (c) microstructure observée au microscope optique (2.5 x, reconstruction mosaïque) après enrobage et polissage.

4. Conclusions et travaux en cours

Les essais réalisés dans cette étude ont mis en évidence la possibilité d'obtenir des mousses thermoplastiques acryliques en utilisant une technique de moussage par évaporation de monomères. Les échantillons obtenus dans des moules fermés présentent une bonne stabilité dimensionnelle à l'échelle macroscopique. Les premières observations microscopiques ont mis en exergue une microstructure hétérogène, avec des pores allant jusqu'à 2-3 mm de diamètre environ. Ces hétérogénéités sont principalement liées aux phénomènes de croissance et coalescences des bulles lors de la phase d'expansion, du fait de la forte teneur en monomères (75-80%) dans le mélange réactif, ainsi qu'à la faible viscosité du mélange avant polymérisation. L'effet d'auto accélération ou effet Trommsdorff a été mis en évidence lors des essais d'expansion par des mesures de température par thermocouple.

Les échantillons fabriqués seront prochainement caractérisés en compression. Les essais mécaniques seront couplés à des mesures de corrélation d'images 2D sur une face, pour obtenir la loi de comportement mécanique du matériau. Les matériaux seront également caractérisés sur un tube de Kundt (ou tube d'impédance) pour analyser leur absorption acoustique, et sur une tour de chute pour évaluer leur capacité d'absorption d'énergie à l'impact. Ces résultats préliminaires permettront de comparer les performances acoustiques et à l'impact de ces matériaux par rapport à d'autres mousses du commerce, pour ensuite optimiser la microstructure. Pour ce faire, des essais sont prévus pour étudier l'influence des paramètres procédés (température, pression, vitesse de chauffe, viscosité) sur la microstructure, ainsi que l'ajout de charges pour améliorer certaines propriétés spécifiques (fibres courtes de carbone, élastomères, ...). Les différents matériaux seront utilisés pour produire des panneaux sandwich, qui seront à leur tour testés pour en évaluer la potentielle intégration dans des structures multifonctionnelles légères.

Remerciements

Ce projet est mené en partie dans le cadre des enseignements réalisés à l'IMT Mines Albi. Les travaux ont été réalisés pendant les années académiques 2023-2024 et 2024-2025 dans le cadre du module de deuxième année de la formation filière étudiants (IFIE) de *Projet Recherche*. Les auteurs souhaitent remercier la contribution des étudiants IFIE2025 ayant participé à ce projet pendant l'année académique 2023-2024 : Lydia Hederbache, Elisa Lovichi, Ange Szabo et Maxime Gosset. Les auteurs souhaitent également remercier Karine Vieilleigne pour la mise en place du protocole de polissage des échantillons.

Références

- [1] R. F. Gibson, "A review of recent research on mechanics of multifunctional composite materials and structures," *Compos Struct*, vol. 92, no. 12, pp. 2793–2810, Nov. 2010, doi: 10.1016/j.compstruct.2010.05.003.
- [2] R. D'Elia, L. Sanches, G. Michon, and J.M. Dês, "Développement d'un panneau sandwich multifonctionnel à base de mousse expansive pour applications en intérieur cabine avion," in *Recueil résumés JNC23*, Besançon, 2023, pp. 28–29.
- [3] A. K. Noor, S. L. Venneri, D. B. Paul, and M. A. Hopkins, "Structures technology for future aerospace systems," *Comput Struct*, vol. 74, no. 5, pp. 507–519, Feb. 2000, doi: 10.1016/S0045-7949(99)00067-X.
- [4] S. N. Nguyen *et al.*, "Conceptual Multifunctional Design, Feasibility and Requirements for Structural Power in Aircraft Cabins," *J Aircr*, vol. 58, no. 3, pp. 677–687, May 2021, doi: 10.2514/1.C036205.
- [5] G. S. Aglietti, C. W. Schwingshackl, and S. C. Roberts, "Multifunctional Structure Technologies for Satellite Applications," *The Shock and Vibration Digest*, vol. 39, no. 5, pp. 381–391, Sep. 2007, doi: 10.1177/0583102407077397.
- [6] K. Salonitis, J. Pandremenos, J. Paralikas, and G. Chryssolouris, "Multifunctional materials: engineering applications and processing challenges," *The International Journal of Advanced Manufacturing Technology*, vol. 49, no. 5–8, pp. 803–826, Jul. 2010, doi: 10.1007/s00170-009-2428-6.
- [7] K. K. Sairajan, G. S. Aglietti, and K. M. Mani, "A review of multifunctional structure technology for aerospace applications," *Acta Astronautica*, vol. 120, Elsevier, pp. 30–42, 2016. doi: 10.1016/j.actaastro.2015.11.024.

- [8] L.J. Gibson and M.F. Ashby, *Cellular Solids: Structure and Properties*, 2nd Edition. 1999.
- [9] V. Papadogianni, A. Romeos, K. Perrakis, and T. Panidis, “Fire behaviour of a Carbon/Nomex honeycomb sandwich composite used in aircraft interiors as ceiling panel,” *Heat and Mass Transfer*, vol. 60, no. 12, pp. 2049–2058, Dec. 2024, doi: 10.1007/s00231-022-03313-z.
- [10] G. Wu *et al.*, “A review of thermoplastic polymer foams for functional applications,” Jul. 01, 2021, *Springer*. doi: 10.1007/s10853-021-06034-6.
- [11] L. Cao, Q. Fu, Y. Si, B. Ding, and J. Yu, “Porous materials for sound absorption,” Dec. 01, 2018, *Elsevier Ltd*. doi: 10.1016/j.coco.2018.05.001.
- [12] O. Dorival *et al.*, “Experimental results of medium velocity impact tests for reinforced foam core braided composite structures,” *Journal of Sandwich Structures & Materials*, vol. 20, no. 1, pp. 106–129, Jan. 2018, doi: 10.1177/1099636216650990.
- [13] D. Atabay, K. A. Rosentrater, and S. Ghnimi, “The sustainability debate on plastics: Cradle to grave Life Cycle Assessment and Techno-Economical Analysis of PP and PLA polymers with a ‘Polluter Pays Principle’ perspective,” *Frontiers in Sustainability*, vol. 3, Sep. 2022, doi: 10.3389/frsus.2022.931417.
- [14] V. Schenk *et al.*, “Epoxy Vitrimer Formulation for Resin Transfer Molding: Reactivity, Process, and Material Characterization,” *ACS Appl Polym Mater*, May 2024, doi: 10.1021/acsapm.4c00796.
- [15] V. Schenk, R. D’Elia, P. Olivier, K. Labastie, M. Destarac, and M. Guerre, “Exploring the Limits of High- T_g Epoxy Vitrimers Produced through Resin-Transfer Molding,” *ACS Appl Mater Interfaces*, Sep. 2023, doi: 10.1021/acsami.3c10007.
- [16] K. van Rijswijk and H. E. N. Bersee, “Reactive processing of textile fiber-reinforced thermoplastic composites – An overview,” *Compos Part A Appl Sci Manuf*, vol. 38, no. 3, pp. 666–681, Mar. 2007, doi: 10.1016/j.compositesa.2006.05.007.
- [17] D. Gacon, O. De Almeida, R. D’Elia, and F. Schmidt, “Experimental and computational study of the polymerization kinetics of a reactive acrylic thermoplastic resin,” in *ECCM21*, Nantes, 2024, pp. 49–56.
- [18] R. D’Elia, L. Sanches, J. M. Des, and G. Michon, “Experimental characterization and numerical modeling of a viscoelastic expandable epoxy foam: Time–temperature transformation and time–temperature equivalence diagrams,” *J Appl Polym Sci*, vol. 140, no. 23, Jun. 2023, doi: 10.1002/app.53929.
- [19] S. Huš and P. Krajnc, “PolyHIPEs from Methyl methacrylate: Hierarchically structured microcellular polymers with exceptional mechanical properties,” *Polymer (Guildf)*, vol. 55, no. 17, pp. 4420–4424, Aug. 2014, doi: 10.1016/j.polymer.2014.07.007.
- [20] N. Han, I. Baran, J. S. M. Zanjani, O. Yuksel, L. L. An, and R. Akkerman, “Experimental and computational analysis of the polymerization overheating in thick glass/Elium® acrylic thermoplastic resin composites,” *Compos B Eng*, vol. 202, Dec. 2020, doi: 10.1016/j.compositesb.2020.108430.