

UNIVERSIDADE FEDERAL DE MINAS GERAIS PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM ENGENHARIA MECÂNICA

# EFEITO DE SPRING-BACK EM COMPÓSITOS CURVOS

Uma análise estatística Multivariável

## **GLÁUCIO CARLEY PEREIRA**

Belo Horizonte, 30 de agosto de 2019.

Gláucio Carley Pereira

Gláucio Carley Pereira

## EFEITO DE SPRING-BACK EM COMPÓSITOS CURVOS

Uma análise estatística Multivariável

### Versão final

Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Engenharia Mecânica da Universidade Federal de Minas Gerais, como requisito parcial à obtenção do título de Doutor em Engenharia Mecânica.

Área de concentração: Processos de Fabricação Orientador: Prof. Antônio Ferreira Ávila, PhD.

Belo Horizonte

2019

P436e	Pereira, Gláucio Carley. Efeito de spring-back em compósitos curvos [recurso eletrônico ]: uma análise estatística multivariável/ Gláucio Carley Pereira 2019. 1 recurso online (280 f.: il., color.) : pdf.
	Orientador: Antônio Ferreira Ávila.
	Tese (doutorado) - Universidade Federal de Minas Gerais, Escola de Engenharia.
	Apêndices: f. 205-214. Anexos: f. 215-280. Bibliografia: f. 191-204.
	Exigências do sistema: Adobe Acrobat Reader.
	<ol> <li>Engenharia Mecânica - Teses. 2. Estatística–análise - Teses.</li> <li>Calorimetria - Teses. 4. Compósitos – Teses. I. Ávila, Antônio Ferreira.</li> <li>II. Universidade Federal de Minas Gerais. Escola de Engenharia. III. Título.</li> </ol>
	CDU: 621 (043)

Ficha catalográfica: Biblioteca Profº Mário Werneck, Escola de Engenharia da UFMG



## "EFEITO DE SPRING BACK EM COMPÓSITOS CURVOS: UMA ANÁLISE ESTATÍSTICA MULTIVARIÁVEL"

### **GLAUCIO CARLEY PEREIRA**

Tese submetida à Banca Examinadora designada pelo Colegiado do Programa de Pós-Graduação em Engenharia Mecânica da Universidade Federal de Minas Gerais, como parte dos requisitos necessários à obtenção do título de "Doutor em Engenharia Mecânica", na área de concentração de "Processos de Fabricação".

Tese aprovada no dia 30 de agosto de 2019.

Por:

tomo term Al

Prof. Antonio Ferreira Avila Orientador - Departamento de Engenharia Mecânica/UFMG

Prof. Volnei Tita Universidade de São Paulo/SP

Prof. Jánes Landre Júnior Pontifícia Universidade Católica de Minas Gerais/PUC-MINAS

**Profa. Maria Irene Yoshida** Departamento de Química/UFMG

**Prof. Jose Eduardo Mautone Barros** Departamento de Engenharia Mecânica/UFMG

Para o Professor Wen Chan

#### AGRADECIMENTOS

À minha mãe, Gercilha, pelo carinho, perseverança, apoio irrestrito, incentivo e suporte.

Ao meu irmão Carlos pelo apoio (principalmente financeiro), compreensão, auxílio em todas as ocasiões, e por não desistir de mim, pelo menos ainda.

Ao professor Antônio Ferreira Ávila, pela oportunidade única de aprendizado e desenvolvimento como pesquisador. Sua orientação e liderança ultrapassam a fronteira do ensino e do didatismo. Propicia um engrandecimento geral, da forma de se aproveitar ao máximo e da melhor forma, todas as possibilidades educacionais e também pessoais. Sua perseverança, apoio e trabalho foram o aspecto primordial e decisivo para o sucesso dessa pesquisa. A contribuição de suas ideias sempre foram originais, sensatas e oportunas. Não há forma de transcrever em palavras o valor de seu tempo, comprometimento e dedicação para o sucesso dessa tese. Seu incentivo a sempre enfrentar novos desafios e a busca de novos conhecimentos são extraordinários. Todo seu empenho e ajuda para meu estágio PDSE nos EUA proporcionaram a mim um capítulo enriquecedor e fascinante dessa pesquisa. Agradeço também por me apresentar ao meu supervisor nesse período, Professor Chan. Muito obrigado.

Ao Doutor Wen S Chan, que me recebeu e me tratou como um filho durante meu período PDSE na *University of Texas at Arlington* (UTA). Um exemplo irrepreensível de profissional e educador. Suas pesquisas em compósitos curvos foram o embrião desse trabalho. Infelizmente ele não está mais entre nós para acompanhar os desdobramentos de seus ensinamentos passados a mim. Sua dedicação, perseverança e bondade jamais serão esquecidos por todos aqueles que tiveram a honra e o privilégio de sua convivência.

À *University of Texas at Arlington*, onde fui muito bem recebido. A todos os funcionários do Woolf Hall, principalmente aos *Formula guys*, que pacientemente me ajudaram a trabalhar na autoclave e me acompanharam durante a manufatura de todos os corpos de prova. Especial agradecimento ao professor Eriam Armanios pela excelente acolhida no Departamento de Engenharia Mecânica e, também ao Dr. Ashfaq Adnam, bem como à Ms Janet K Gobert, por todo seu profissionalismo na resolução de meus tramites administrativos para minha estadia no Texas.

Ao professor Luiz Carlos Meira-Belo do CNEN/CDTN pela minha primeira oportunidade em trabalhar com pesquisa.

Aos professores Elmo Salomão, Daniel Elias e Juliana Brant do Departamento de Física da UFMG por terem me introduzido na física dos materiais de carbono.

Especial agradecimento à Professora Viviany Geraldo Moraes que foi minha co-orientadora no mestrado e me ensinou em muito, como melhorar minha postura como pesquisador. Seu grande incentivo e aconselhamentos me propiciaram a galgar mais esse degrau.

A todos meus amigos e colegas do Laboratório de Compósitos, especialmente Almir, Diego e José Ávila. Profissionais que pacientemente me ensinaram vários aspectos teóricos e práticos de toda a rotina e maquinário do Laboratório, além de auxílio pedagógico na minha adaptação à Engenharia Mecânica.

Aos grandes amigos que fiz no meu período no Texas: especialmente ao Dr. Peter LeBoullec e Wen-Tsei Lu por tornarem minha vida bem mais fácil na adaptação ao modo americano de trabalhar. Ao Professor Woods e seus alunos: Sawyer, Scott e Marco, que também me ensinaram a trabalhar nos equipamentos do laboratório de compósitos.

Um agradecimento especial à Dr.<sup>a</sup> Ana Paula Alves, do Departamento de Física da UFMG, colaboradora, co-autora dos artigos produzidos por essa pesquisa. Sua lucidez e conhecimento foram peças chave na concatenação do material produzido nessa tese, principalmente os resultados estatísticos, como abordá-los e dispor as ideias da melhor forma possível. Sem sua valiosa colaboração durante o início da produção dos artigos, acredito que essa etapa, da defesa da tese, jamais se concretizaria. Uma amiga para toda uma vida e certamente uma excelente pesquisadora e professora.

A Professora Maria Irene Ioshida, do Departamento de Química da UFMG, que não mediu esforços na produção das mais de 200 análises de DSC. Acreditou nas possibilidades e sucesso desse trabalho. Jamais sua generosidade, bondade, conhecimento e disponibilidade serão esquecidos. Sem sua valiosa colaboração não seria possível avaliar o grau de cura das amostras ao longo desses quase três anos de trabalho.

Aos meus amigos de toda uma vida pelo incentivo constante, honestidade e confiança: Viviane Afonso (sempre disposta e interessada em falar sobre a pesquisa), Dr. José Flávio Nogueira Guimarães (meu segundo irmão), Dr<sup>a</sup> Jussara Silva (minha primeira irmã), Salvino Campos (o mais antigo de todos, grande amigo), minha prima Dr<sup>a</sup> Rozélia

Geralda (que não deveria ter sido advogada nem professora e sim psicóloga ou terapeuta) e uma das minhas principais incentivadoras em todas as horas, principalmente naquelas mais difíceis: Cibele Eponina.

Ao programa de Pós-graduação em Engenharia Mecânica da Universidade Federal de Minas Gerais. Professores e funcionários, principalmente à Marina, que sempre ajuda todos os alunos com carinho, paciência e dedicação adicionais.

Ao CNPq e a CAPES pela concessão de auxílio financeiro para o desenvolvimento desse projeto.

A todos aqueles que de alguma forma direta ou indireta contribuíram para a realização desse estudo.

*"Porque"* cada um, independente das habilitações que tenha, ao menos uma vez na vida fez ou disse coisas muito acima da sua natureza e condição, e se a essas pessoas pudéssemos retirar do quotidiano pardo em que vão perdendo os contornos, ou elas a si próprias se retirassem de malhas e prisões, quantas mais maravilhas seriam capazes de obrar, que pedaços de conhecimento profundo poderiam comunicar, porque cada um de nós sabe infinitamente mais do que julga e cada um dos outros infinitamente mais do que neles aceitamos reconhecer."

#### José Saramago (A Jangada e a Pedra)

#### RESUMO

Este trabalho investiga o efeito de spring-in em função do tempo de compósitos em L. O efeito de spring-in representa a deformação angular medida imediatamente após a fabricação de um compósito curvo, mas ao longo do tempo, essa deformação varia. O principal objetivo desse estudo é reclassificar esta deformação angular como efeito de spring-back, ou seja, como o retorno da deformação angular do spring-in ao longo do tempo. O efeito de spring-back é medido ao longo de aproximadamente 30 meses para diversas famílias de compósitos. Resultados estatísticos comprovaram que o grau de cura associado à taxa de resfriamento e à rigidez extensional tem efeito significativo sobre o spring-back. A fim de se investigar a influência das variáveis mecânicas nos efeitos de spring-in e spring-back, calculou-se as componentes das forças e momentos a partir do processamento de amostras em três diferentes taxas de resfriamento da autoclave, diferentes espessuras e várias sequências de empilhamento. Esta deformação angular variável ao longo do tempo, medida para diferentes configurações, tende a se estabilizar após aproximadamente três anos a partir da fabricação do compósito. A variação observada na deformação angular mostra dependência direta com o processo de cura residual da resina que compõe a matriz polimérica epóxi de cada amostra. Treze medidas de deformação angular foram feitas ao longo desse período de tempo, desde maio de 2015 até dezembro de 2018. As componentes de forças e momentos foram obtidas indiretamente através da Teoria Clássica de Laminação para cada configuração de família. Propôs-se um estudo estatístico utilizando: Análise de regressão multivariável paramétrica de forma linear e não linear, Modelos Aditivos Generalizados (GAM) e Modelos Random Forest. As análises feitas pela primeira abordagem estatística investigou o efeito de diversas grandezas mecânicas e físicas, bem como a variável tempo como fatores preditivos da deformação angular. As demais abordagens investigaram a influência dessas componentes de forças e momentos no efeito de spring-in e spring-back. As análises de regressão multivariável encontraram uma relação direta entre o grau de cura, espessura, rigidez e tempo como fortes influenciadores dessas deformações angulares. A análise obtida por meio da modelagem GAM e Random Forest provaram que as componentes de forças  $N_x$  e o momento  $M_x$  mostraram uma grande influência no efeito de *spring-in* e *spring-back*. Os modelos estatísticos GAM atestaram a influência das componentes das forças e momentos com precisão próxima de 90%, enquanto a Modelagem Random Forest explica a deformação angular, na média, em valores superiores a 85%.

Palavras chave: Spring-in, spring-back, Dependência temporal, Grau de cura residual, Calorimetria diferencial de escaneamento, Análise estatística.

#### ABSTRACT

This work investigates the spring-in effect as a function of time in L-shaped composites. The spring-in effect represents the angular deformation measured immediately after the manufacture of a curved composite, but this deformation varies over time. The main objective of this study is to reclassify this angular deformation as a spring-back effect, that is, as the return of angular deformation of the spring-in over time. The spring-back effect is measured over approximately 30 months for several different composite families. Statistical results have shown that the degree of cure associated with the cooling rate and extensional rigidity has a significant effect on spring-back. In order to investigate the influence of mechanical variables on spring-in and spring-back effects, forces and moments components were calculated from samples processed from three different autoclave processing cooling rates, different thicknesses, and several stacking sequences. This angular deformation variable tends to stabilize after approximately three years from the manufacture of the composite. The angular deformation observed shows direct dependence on the residual curing process of the resin composing the epoxy polymer matrix of each sample. Thirteen angular deformation measurements were taken over from May 2015 to December 2018. The forces and moments components were obtained indirectly through the Classical Lamination Theory (CLT) for each configuration family. It was proposed a statistical study using: Linear and non-linear multivariable regression analysis, Generalized Additive Models (GAM) and Random forest models. Analyzes made by the first statistical approach investigated the effect of several mechanical and physical properties, as well as the time variable as predictive factors of angular deformation. The other approaches investigated the influence of these components of forces and moments on the spring-in and spring-back effect. Multivariate regression analysis found a direct relationship between degree of cure, thickness, stiffness and time as strong influencers of these angular deformations. The analysis obtained by means of the GAM and Random Forest modeling proved that the N<sub>x</sub> force component and the M<sub>x</sub> momentum component showed a great influence on the spring-in and spring-back effect. The GAM statistical models predicted the influence of the components of the forces and moments with accuracy close to 90%, while the Random Forest Model explains the angular deformation, on average, in values greater than 85%.

Keywords: Spring-in, Spring-back, Time-dependency, Residual degree of cure, Differential scanning calorimetry, Statistical analysis.

### LISTA DE FIGURAS

FIGURA 1	Esquema representativo mostrando o efeito mola em compósitos	37
FIGURA 2	Esquema mostrando o efeito do alongamento do compósito	44
FIGURA 3	As seções transversais de um laminado	45
FIGURA 4	Distorções angulares nos moldes	47
FIGURA 5	Mecanismo proposto para a fabricação de compósitos	49
FIGURA 6	Efeito da manufatura de um compósito em um molde curvo	50
FIGURA 7	Exemplos de efeitos locais que levam a deformação angular	50
FIGURA 8	Deformação de spring-in em um compósito em L	51
FIGURA 9	Porcentagem do efeito mola de acordo com o elemento de fabricação	52
FIGURA 10	Microscopia óptica da área transversal parcial de um laminado $[0^{\circ}]_8$	54

FIGURA 11	Efeito de spring-in em espécimes $[45^\circ, -45^\circ]_{ns}$ e $[0^\circ, 90^\circ]_{ns}$	58
FIGURA 12	Spring-in em relação ao ângulo de cada camada do laminado	59
FIGURA 13	Efeito de spring-in de acordo com a sequência de empilhamento	61
FIGURA 14	Spring-in como função da temperatura de cura constante	63
FIGURA 15	Spring-in como função do grau e da temperatura de cura	64
FIGURA 16	Spring-in como função do grau de cura a	64
FIGURA 17	Spring-down e Spring-in	67
FIGURA 18	Diferença entre spring-in e warpage	68
FIGURA 19	Esquema de um ciclo de cura típico	70
FIGURA 20	Mudança no ângulo de spring-in devido à deformação não mecânica	73
FIGURA 21	Padrão de tensões residuais normais ao plano em um laminado curvo	74
FIGURA 22	Deformação provocada pela fração do gradiente de volume	75
FIGURA 23	Aumento da espessura da curvatura em um compósito unidirecional	76

FIGURA 24	Gráfico do grau de cura de um polímero por DSC	78
FIGURA 25	Processo esquemático da cura de resinas termofixas	80
FIGURA 26	Esquema da mudança de volume da resina durante o processo de cura	81
FIGURA 27	Evolução do processo de cura e polimerização da resina epóxi	85
FIGURA 28	Representação de um polímero com regiões de cura incompleta	85
FIGURA 29	Peso molecular percentual em cadeias poliméricas	86
FIGURA 30	Desenvolvimento do processo de cura recomendado pelo fabricante	87
FIGURA 31	Módulo de Young, E, como função do grau de ligações cruzadas	87
FIGURA 32	Módulo de cisalhamento, G, como função do grau de ligações cruzadas	88
FIGURA 33	Um molde convexo típico em L	90
FIGURA 34	Procedimento de colocação das camadas do prepreg no molde	93
FIGURA 35	Ciclos de cura da autoclave para a temperatura	94
FIGURA 36	Autoclave onde as amostras foram curadas	94

FIGURA 37	Ciclos de cura para pressão e vácuo no processo de cura	95
FIGURA 38	Ilustração do ângulo de spring-in e do spring-back	96
FIGURA 39	Digi-pass DWL – 3000 XY	97
FIGURA 40	Esquema de aquisição de dados que foi utilizado Digi-pass DWL – 3000 XY	97
FIGURA 41	Gráfico do fluxo de energia (mW) em função da temperatura (°C)	98
FIGURA 42	Shimadzu DSC-60A (Differential Scanning Calorimetry)	99
FIGURA 43	Representação de um empilhamento genérico de um compósito simétrico	108
FIGURA 44	Representação esquemática do perfil estrutural do compósito	109
FIGURA 45	Convenção dos eixos mutuamente perpendiculares adotada	110
FIGURA 46	Esquema geral para cálculo geométrico da curvatura das amostras	111
FIGURA 47	Esquema específico para cálculo geométrico da curvatura	111
FIGURA 48	Esquema para cálculo geométrico do deslocamento linear	113
FIGURA 49	Fluxograma para a obtenção das forças e momentos	115

FIGURA 50	Análise descritiva da variável resposta Y	121
FIGURA 51	Gráfico de dispersão suavizado entre escores do Fator e Y	126
FIGURA 52	Análise de resíduos para o modelo de regressão multivariável linear	128
FIGURA 53	Modelo não linear para a regressão multivariável em relação ao fator 1	129
FIGURA 54	Análise de resíduos para o modelo não linear	129
FIGURA 55	Modelo não linear de regressão multivariável em relação ao fator 2	130
FIGURA 56	Análise de resíduos do modelo ajustado	131
FIGURA 57	Box-plots para a variável spring-in e todas as suas covariáveis	135
FIGURA 58	R <sup>2</sup> ajustado e <i>deviance explained</i> para a análise de spring-in	144
FIGURA 59	Gráficos dos resíduos em função de quantidades teóricas para o spring-in	145
FIGURA 60	Auto Correlation Function (ACF) pelo Lag para o modelo 10. Caso spring-in	146
FIGURA 61	R <sup>2</sup> ajustado e <i>deviance explained</i> para a análise de spring-back	149
FIGURA 62	Gráficos dos resíduos em função de quantidades teóricas para o spring-back	151

FIGURA 63	Auto Correlation Function (ACF) pelo Lag para o modelo 10, spring-back	152
FIGURA 64	Estimativa Out of Bag Error Estimation para o spring-in	153
FIGURA 65	Mean Squared Error para o spring-in	155
FIGURA 66	Derivada (IncMSE) spring-in	156
FIGURA 67	Erros em relação ao número de árvores considerado, spring-in	157
FIGURA 68	Erros quadrados médios (MSE), spring-in	158
FIGURA 69	Out of Bag Error Estimation para o spring-in	160
FIGURA 70	Mean Squared Error para o spring-back	161
FIGURA 71	Derivada (IncMSE) spring-back	162
FIGURA 72	Erros em relação ao número de árvores considerado, spring-back	164
FIGURA 73	Erros quadrados médios (MSE), spring-back	165
FIGURA 74	Spring-in e spring-back para compósitos com quatro camadas	169
FIGURA 75	Spring-in e spring-back para compósitos com oito camadas	172

FIGURA 76	Spring-in e spring-back para compósitos com dezesseis camadas	173
FIGURA 77	Esquema da influência da parte curva do compósito na deformação	175
FIGURA 78	Momentos e forças médios, análise de spring-back.	178
FIGURA 79	Análise descritiva de X <sub>1</sub>	216
FIGURA 80	Análise descritiva de X <sub>2</sub>	217
FIGURA 81	Análise descritiva de X <sub>3</sub>	218
FIGURA 82	Análise descritiva de X <sub>4</sub>	219
FIGURA 83	Análise descritiva de X <sub>5</sub>	220
FIGURA 84	Análise descritiva de X <sub>6</sub>	221
FIGURA 85	Análise descritiva de X <sub>7</sub>	222
FIGURA 86	Análise descritiva de X <sub>8</sub>	223
FIGURA 87	Análise descritiva de X9	224

### LISTA DE TABELAS

TABELA 1	Matrizes de rigidez para laminados $[0^{\circ},90^{\circ}]_{ns} e [+45^{\circ},-45^{\circ}]_{ns}$ ,	58
TABELA 2	Matrizes de rigidez para laminados em ângulo da forma $[\theta_4, -\theta_4]_s$	60
TABELA 3	Matrizes de rigidez para sequências de empilhamento em grupo e dispersas	61
TABELA 4	Mecanismos que contribuem para a indução de processos de deformação	66
TABELA 5	Propriedades mecânicas para o pre-peg IM7/8552.	91
TABELA 6	Amostras preparadas para se avaliar os efeitos de spring-in e spring-back	92
TABELA 7	As três taxas de resfriamento utilizadas na autoclave	93
TABELA 8	Relação entre os parâmetros mecânicos e físicos usados como variáveis	102
TABELA 9	Tempo, em dias e em meses, entre as medições de spring-in	103
TABELA 10	Constantes Mecânicas usadas na TCL para se obter as matrizes de rigidez	105
TABELA 11	Matriz de correlação dos dados originais	117
TABELA 12	Análise Fatorial	118

TABELA 13	Coeficientes para cálculo dos escores	119
TABELA 14	Matriz de correlação entre os escores	121
TABELA 15	Modelo linear ajustado	122
TABELA 16	Medidas descritivas das variáveis do banco de dados temporal longitudinal	128
TABELA 17	Medidas descritivas após a transformação da covariáveis	129
TABELA 18	Medidas descritivas para spring-in em cada um dos tempos	131
TABELA 19	Matriz de correlação entre os resíduos por tempo	132
TABELA 20	Modelo final longitudinal temporal	133
TABELA 21	Modelos GAM de 1 a 5 para o spring-in	136
TABELA 22	Modelos GAM de 6 a 10 para o spring-in	137
TABELA 23	Modelos GAM de 1 a 5 para o spring-back	142
TABELA 24	Modelos GAM de 6 a 10 para o spring-back	143
TABELA 25	Rigidez média em relação ao número de camadas para a família [90° <sub>4</sub> ] <sub>ns</sub>	170
TABELA 26	Spring-in inicial e final para todas as famílias, taxa de resfriamento CR1	175

- TABELA 27Spring-in inicial e final para todas as famílias, taxa de resfriamento CR2177
- TABELA 28Spring-in inicial e final para todas as famílias, taxa de resfriamento CR3178

## ABREVIATURAS E SIGLAS

CDTN	Comissão de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear
CNEN	Comissão Nacional de Energia Nuclear
DSC	Calorimetria Diferencial de Escaneamento
DTG	Derivada da Termogravimetria
GAM	Modelo Aditivo Generalizado
LM	Linearized Model - Modelo Linearizado
PREPREG	Pré-impregnado de resina epóxi
PDSE	Programa de Doutorado Sanduíche no Exterior
TG	Termogravimetria
TCL	Teoria Clássica de Laminação
UFMG	Universidade Federal de Minas Gerais
UTA	University of Texas at Arlington

## LISTA DE SÍMBOLOS

μm	micrometro
mm	milímetro
d <sub>m</sub>	elemento diferencial de massa
$\alpha_{T}$	coeficiente de expansão térmica
ΔΤ	variação de temperatura
$V_{\rm f}$	fração volumétrica de fibras
DOC	Degree of cure - grau de cura
$\Delta \phi_{SPI}$	variação angular de spring-in
$\mathcal{E}_{\mathrm{T}}$	elongação total
$\mathcal{E}_{\mathrm{r}}$	elongação radial
φ'	abertura angular original
Фт	deformação angular total
τ <sup>visc</sup> máx	tensão de deslizamento máxima no estado viscoso da

resina

E <sup>visc</sup> <sub>22</sub>	módulo de elasticidade no estado viscoso - direção YY
G <sup>visc</sup>	módulo de cisalhamento no estado viscoso - direção YY
G <sup>elástico</sup>	módulo de cisalhamento no estado elástico - direção YY
$ au_{máx}^{elástico}$	tensão de deslizamento máxima no estado elástico
$\mu_{m\acute{a}x}^{el\acute{a}stico}$	coeficiente de fricção no estado elástico máximo
$E_{22}^{elástico}$	módulo de elasticidade no estado elástico - direção YY
2D	deformação em duas dimensões
input	dados - variáveis de entrada para modelagem estatística
D <sub>x</sub>	matriz de rigidez em relação à direção X
Nm	Newton metro
T <sub>1</sub>	temperatura genérica constante
CET	coeficiente de expansão térmica
C <sub>p</sub>	capacidade calorífera
$\Delta h_{cura}$	entalpia de cura
T <sub>0</sub>	temperatura ambiente

T <sub>c</sub>	temperatura de cura
$\Delta \Theta$	deformação causada pelo spring-in
θ	ângulo de deformação inicial
$\alpha_1$	coeficiente de expansão térmica no plano do laminado
$\alpha_{T}$	coeficiente de expansão térmica através da espessura
$\beta_1$	coeficiente de encolhimento químico no plano do laminado
$\beta_T$	coeficiente de encolhimento químico através da espessura
$\Delta \phi$	deformação angular de spring-in
$\mathcal{E}_{\mathrm{R}}$	deformação através da espessura no estágio elástico da cura
φ	raio em radianos do laminado
е	número de Euler
R	raio interno do molde
$E_{\theta}$	modo de flexão no plano
$G_{\theta R}$	módulo de cisalhamento interlaminar
t	espessura

$\alpha^g_{\Theta}$	coeficiente de expansão térmica no plano - estado vítreo
$\alpha^g_R$	coeficiente de expansão térmica através da espessura
$\beta^g_\theta$	coeficiente de encolhimento químico planar após vitrificação
$\beta_R^g$	coeficiente de encolhimento químico através da espessura
υ <sub>ZR</sub>	coeficiente de Poisson através da espessura - direção Z
E <sup>0</sup> Z	deformação na direção do comprimento - direção Z
С	deformação do molde no estado elástico de cura
К	temperatura em Kelvin
E	módulo de Young
α	grau de ligações cruzadas no processo de polimerização
GPa	Giga Pascal
m/m/°C	metro por metro por graus Celsius
°C/min	graus Celsius por minuto
F/min	Fahrenheit por minuto
,	minuto

kPa	kilo Pascal
mW	miliWhatt
$\Delta$ %	variação percentual
m/N	metro por Newton
M <sub>x</sub>	momento na direção X
My	momento na direção Y
M <sub>xy</sub>	momento na direção XY
N <sub>x</sub>	força na direção X
Ny	força na direção Y
N <sub>xy</sub>	força na direção XY
GEE	modelos marginais estatísticos
Qi	valores de estimativa para modelos marginais estatísticos
β	parâmetros de estimativa para modelos marginais estatísticos
X <sub>i</sub>	covariáveis de modelos marginais estatísticos
yi	variável resposta de modelos marginais estatísticos

Ex	Módulo Longitudinal
Ey	Módulo transversal
G <sub>xy</sub>	Módulo de cisalhamento no plano
$\upsilon_{xy}$	Coeficiente de Poisson - direção XY
$\eta_{xy,x}$	Coeficiente de influência mútua : XY - X
$\eta_{xy,y}$	Coeficiente de influência mútua : XY - Y
V	estrutura correta de estimativa GEE
W	estrutura correta de estimativa GEE
AR(1)	estrutura de auto correlação de primeira ordem
TCL	Teoria Clássica de Laminação
n	número de correlações
A	matriz de rigidez extensional
D	matriz de rigidez de flexão
S	matriz de rigidez primitiva
Q	matriz de rigidez reduzida

$T_{\sigma}(\theta)$	matriz de rotação tensional
$T_{E}(\theta)$	matriz de rotação extensional
$\overline{Q}_{\theta}$	matriz para cálculo do em camadas com diferentes ângulos
h <sub>K</sub>	altura do laminado
$E_n^0$	deslocamentos médios
K <sub>n</sub>	curvaturas
IncMSE	Erro incremental médio quadrático
Q-Q plot	quantile-quantile plot
Log	logarítmo decimal
IC	intervalo de confiança
ANOVA	análise de variância
R <sup>2</sup>	coeficiente de determinação
ACF	Auto Correlation Function
Lag	atraso
OBB <sub>error</sub>	Out of Bag estimation Error

$M_{try}$	número de preditivas por nó
% <b>δ</b> θ	variação angular percentual do spring-in
$\Delta_{2018}$	spring-back em 2018
$\Delta_{2016}$	spring-back em 2016
R <sub>A</sub>	rigidez média genérica em relação à matriz A
R <sub>B</sub>	rigidez média genérica em relação à matriz B
ID	identificação numérica sequencial para os corpos de prova
$\Delta \Theta_i$	medição inicial de spring-in
$\Delta \Theta_{\rm f}$	medição final de spring-in
SΔΘ	desvio padrão das medidas angulares de spring-in

# SUMÁRIO

1. I	NTRODUÇÃO
2. 0	DBJETIVOS
2.1	OBJETIVOS GERAIS
2.2	OBJETIVOS ESPECÍFICOS
3. F	REVISÃO BIBLIOGRÁFICA43
3.1	EFEITOS TÉRMICOS NA PRODUÇÃO DE TENSÕES RESIDUAIS44
3.2	EFEITOS DA ESPESSURA E DISTRIBUIÇÃO DE CAMADAS NO SPRING-IN56
3.3	SPRING-IN, SPRING-BACK E DEFORMAÇÃO NA LITERATURA DE COMPÓSITOS 62
3.4	INFLUÊNCIA DOS ESTADOS DA RESINA COMO GERADORES DE TENSÕES68
3.5	TENSÕES E DEFORMAÇÕES DURANTE O PROCESSO QUÍMICO DE CURA69
3	.5.1 ANTES DA FASE GELATINOSA
3	.5.2 ENTRE A GELIFICAÇÃO E A VITRIFICAÇÃO70
3	.5.3 DEPOIS DA VITRIFICAÇÃO
3.6	OUTRAS CAUSAS E MECANISMOS DE DEFORMAÇÃO ANGULAR
3.7	GRAU DE CURA E DEFORMAÇÕES76
3.8	MECANISMOS QUÍMICO-MOLECULARES QUE GERAM TENSÕES RESIDUAIS 78
3	8.1 EFEITOS DA VARIAÇÃO VOLUMÉTRICA DA RESINA
3	8.2 MODELAGENS PRÉVIAS EFEITO DE SPRING-IN EM COMPOSITOS CURVOS81
3	.8.3 JUSTIFICATIVA PARA TEORIZAÇÃO DA MODELAGEM ESTATÍSTICA
4. N	METODOLOGIA90
4.1	PROCEDIMENTOS EXPERIMENTAIS
4	.1.1 MATERIAIS
4	.1.2 CONFIGURAÇÕES GEOMÉTRICAS DO LAMINADO

4.1.3 PROCEDIMENTOS DE FABRICAÇÃO DO LAMINADO	
4.1.4 AQUISIÇÃO DE DADOS EXPERIMENTAIS	
4.2 ANÁLISES ESTATÍSTICAS	
4.2.1 MODELO A: MODELO DE REGRESSÃO MULTIVARIÁ	VEL 101
4.2.2 MODELO B: MODELO LONGITUDINAL TEMPORAL	
4.2.2.1 SISTEMATIZAÇÃO PARA O CÁLCULO DAS FORÇAS	SEMOMENTOS105
4.2.2.1.1 CÁLCULO DOS DESLOCAMENTOS E CURVATURA	AS108
4.2.2.1.1.1 CÁLCULO DAS CURVATURAS	
4.2.2.1.1.2 CÁLCULO DOS DESLOCAMENTOS	
4.2.2.1.2 CÁLCULO DAS FORÇAS E MOMENTOS	
4.2.3 MODELO C: GENERALIZED ADDITIVE MODEL (GAM	A)115
4.2.4 MODELO D: RANDOM FOREST	
5. RESULTADOS E DISCUSSÃO	
5.1 RESULTADOS DA MODELAGEM ESTATÍSTICA	
5.2.1 MODELO A: MODELO DE REGRESSÃO MULTIVARIÁ	VEL120
5.2.2 MODELO B: MODELO LONGITUDINAL TEMPORAL	
5.2.2.1 ANÁLISE DESCRITIVA DO MODELO	
5.2.2.2 MODELO TEMPORAL LONGITUDINAL	
5.2.3 MODELO C: GENERALIZED ADITIVE MODEL (GAM)	
5.2.3.1 GAM PARA O SPRING-IN	
5.2.3.1.1 MODELOS GAM PRODUZIDOS	
5.2.3.1.2 DIAGNÓSTICOS DE AJUSTES E RESÍDUOS	
5.2.3.2 GAM PARA O SPRING-BACK	
5.2.3.2.1 MODELOS GAM PRODUZIDOS	
5.2.3.2.2 DIAGNÓSTICOS DE AJUSTES E RESÍDUOS	

5.2.4 MODELO D: RANDOM FOREST	
5.2.4.1 RANDOM FOREST PARA O SPRING-IN	152
5.2.4.1.1 PRÉ DIAGNÓSTICO	
5.2.4.1.2 MODELO RANDOM FOREST: RESULTADOS	153
5.2.4.1.3 PÓS DIAGNÓSTICO	157
5.2.4.2 RANDOM FOREST PARA O SPRING-BACK	159
5.2.4.2.1 PRÉ DIAGNÓSTICO	159
5.2.4.2.2 MODELO RANDOM FOREST: RESULTADOS	160
5.2.4.2.3 PÓS DIAGNÓSTICO	
5.3 RESULTADOS EXPERIMENTAIS	167
5.3.1 SPRING-IN E SPRING-BACK COMO FUNÇÃO DO TEMPO	167
5.3.2 FORÇAS E MOMENTOS RELATIVOS AO SPRING-BACK	176
6. CONCLUSÕES	
7. SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS	
8. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	191
9. APÊNDICES	205
APÊNDICE 9.1 – GRAU DE CURA APURADO POR DSC	205
APÊNDICE 9.2 –MATRIZES DE RIGIDEZ	
APÊNDICE 9.3 – PROPRIEDADES MECANICAS DOS LAMINADOS	214
ANEXOS	
ANEXO A - ANÁLISE DESCRITIVA DAS VARIÁVEIS PREDITIVAS MODELO A.	
ANEXO B - ARTIGO PRODUZIDOS	
B.1 ARTIGO 1 - PUBLICADO	
B.2 ARTIGO 2 - A SER SUBMETIDO	
# 1. INTRODUÇÃO

O efeito de *spring-in* em compósitos termofixos curvos é uma medida do ângulo côncavo do laminado que se torna menor quando ele é retirado do molde, após um processo de cura dos compósitos na autoclave, como mostra a FIG.1. Este efeito é devido a deformações na estrutura da amostra, geradas durante e após o processo de cura de sua matriz polimérica, como observado por Ding *et al.* [1]. Segundo Groh *et al.* [2], o efeito de *spring-in* resulta de tensões residuais governadas por três mecanismos principais: a retração térmica induzida mecânica e química, as forças e momentos induzidos por temperatura, e a curvatura do laminado. Esses mecanismos que ocorrem em diferentes escalas de comprimento e fases de cura afetarão as tensões residuais resultantes de formas diferentes, como afirma Black *et al.* [3]. Uma visão geral de alguns parâmetros relevantes que afetam esse efeito de *spring-in* em compósitos curvos estará descrita a seguir.



Figura 1: Esquema representativo mostrando o efeito de spring-in em compósitos.

Segundo Radford [4], pode-se aproximar o ângulo de *spring-in* com base na geometria de comprimentos curados e não curados de uma viga curva. Três níveis de escala gerais, nomeadamente o nível de fibras de matriz, o nível da lâmina-laminado e o nível estrutural, para aumentar a escala de comprimento, têm sido estudados por Caiazzo *et al.* 

[5]. Na ausência de uma análise multi-escala, tensões residuais na camada/laminado e níveis estruturais têm recebido mais atenção, enquanto tensões residuais no nível fibramatriz são considerados fatores que diminuem consideravelmente as propriedades de resistência dos materiais [5].

Caiazzo et al. [5] propuseram um modelo termomecânico para calcular as tensões residuais em cada nível de escala. Com base nas propriedades do material à sua temperatura final, em vez da variação de temperatura; através da diferença entre a temperatura livre de tensão eficaz e da temperatura final. Este efeito foi analisado por diferentes abordagens. Haghshenas et al. [6] sugeriram uma análise em escala múltipla, onde as interações no nível da matriz de fibra, nível de camadas e nível estrutural do laminado foram investigadas. Infelizmente, os mecanismos envolvidos entre escala de análise: micro (nível das fibras - µm), meso (nível do fio do reforço de fibra de carbono -10<sup>-1</sup> mm) e macro (célula unitária do tecido do laminado - mm) não são simples, não são bem definidos e algumas vezes requerem tempo computacional considerável, como demonstrado por Bussetta et al. [7]. A dificuldade está em se determinar com precisão como eliminar ou se reduzir as tensões residuais. Seus resultados sugerem que várias condições sem tensões podem existir para cada camada no laminado de acordo com os níveis da escala [8]. Fernlund et al. [9] classificaram duas fontes dessas tensões residuais, ou seja, fontes intrínsecas e extrínsecas com base em seu impacto em cada um desses níveis de escala.

Há incompatibilidade no Coeficiente de expansão térmica (CET) entre camadas e entre o laminado e o molde. Alguns autores como Fernlund e Pousartip [10] definem o fenômeno de *spring-in* em compósitos como uma deformação angular somente da parte curva da estrutura em L. Esses autores concluíram que o efeito de *spring-in* é principalmente devido à anisotropia na retração térmica e cura do laminado resultante da diferença entre as camadas ao longo da espessura no plano e é dominante em partes curvas. Afirmam, entretanto que o efeito de empenamento é predominantemente resultante da interação do laminado que está sendo curado e seu molde, devido ao momento de flexão induzido como um resultado da diferença entre as tensões que atravessam a espessura no

plano, o que afeta o raio de curvatura inicial do laminado. Esses dois mecanismos são complementares e, portanto, os modelos analíticos propostos devem ser capazes de prever esta deformação fora do plano do compósito. Por esse motivo, para se compreender o efeito de *spring-in* em compósitos, segundo esses autores, faz-se necessária uma combinação de diferentes modelos [10].

A idéia principal deste trabalho é reclassificar o efeito de *spring-back* como a recuperação angular do *spring-in* ao longo do tempo. Este estudo será baseado principalmente, por meio de análises de DSC (*Differential Scanning Calorimetry*). Para todas as amostras produzidas, fizemos duas análises de DSC em intervalos de aproximadamente um ano, que indicam o aumento no grau de cura da resina epóxi da matriz polimérica das amostras. Estes resultados provaram que após o processo de cura tradicional do compósito na autoclave, há cura residual da resina. Esta cura residual ocorre devido à absorção de calor pelo ambiente. Essa cura residual agindo com o passar do tempo influenciará a deformação angular de *spring-in* e *spring-back*.

Existem dois fatores principais que afetam a rigidez dessas amostras. O primeiro é a liberação da tensão residual que fica presa e bloqueada durante o processo de cura padrão na autoclave, e esse processo é bem conhecido na literatura de compósitos. Segundo, quando a resina da matriz sofre essa cura residual ao longo do tempo, a rigidez média das amostras de compósitos aumenta. Assumimos que ambos os fatores desempenham um papel importante para produzir mudanças nas forças e momentos residuais que promovem as deformações angulares de *spring-in* e de *spring-back*.

Outro objetivo deste trabalho é quantificar e mostrar a importância de forças e momentos temporais no *spring-in* e *spring-back* por meio de análise estatística. Assumimos que o grau residual de cura da resina epóxi aumenta ao longo do tempo. Mudanças estruturais nas amostras ocorrem devido ao processo de polimerização durante a cura na autoclave e permanecem ao longo do tempo. A polimerização não uniforme da resina causa estresse residual, bem como mudanças na rigidez do laminado. Este processo pode dar origem a valores diferentes em forças e momentos que desenvolvem deformação angular em maior ou menor intensidade. Este processo dinâmico pode aumentar ou diminuir o efeito de *spring-in*, embora geralmente o *spring-in* tenda a diminuir durante um longo período de tempo. Esse comportamento foi monitorado ao longo de aproximadamente de três anos. Para todas as amostras analisadas, as medições finais do *spring-in* após o período de três anos são muito menores que as medidas iniciais. Portanto o efeito de *spring-back* ocorreu para todos esses corpos de prova.

A principal hipótese da previsão de *spring-in* ao longo do tempo é baseada em um estudo paramétrico. Variáveis como grau de cura, taxa de resfriamento, rigidez, espessura e sequência de empilhamento são avaliadas. Essas variáveis são de natureza mútua e o comportamento geral de *spring-in*, e portando também de *spring-back*, resulta de uma combinação de tais inter-relações. Primeiramente uma análise estatística será realizada para avaliar quais correlações mútuas são as mais importantes e como elas influenciam a previsão final do *spring-in*. Uma segunda análise estatística será realizada, mensurando as forças e momentos temporais que atuam durante esse processo de pós-cura da resina epóxi, discutindo sua significância e hierarquização como influenciadores dessas deformações angulares.

## 2. OBJETIVOS

### 2.1 Objetivos Gerais

Analisar o comportamento do efeito de *spring-back*, que nesse trabalho será conceituado com a recuperação angular do *spring-in* através do tempo. Estudar os mecanismos causadores desse efeito e a influência matemática de cada um deles. Determinar modelos estatísticos de Regressão Múltiváriável e *Machine Learning* para prever e ranquear os mais importantes fatores determinantes dessa deformação angular. Compreender como o processo de cura residual ao longo do tempo provoca o surgimento de forças e momentos após o processo de cura do compósito na autoclave, desencadeando o surgimento do *spring-back*.

### 2.2 Objetivos Específicos

- Discutir como a liberação gradual ao longo do tempo das tensões residuais que são produzidas durante o processo de cura do compósito na autoclave produzem a deformação de *spring-back*.
- Obtençao das propriedades mecânicas e físicas que se relacionam com o efeito de *spring-back* e como suas interassociações podem ser utilizadas para equacionar a deformação angular pós-cura.
- Estudar como fatores ambientais, como umidade e temperatura, provocam o aumento do grau de cura espontâneamente através do tempo, principalmente pelo mecanismo de absorção de calor pela resina da matriz polimérica dos compóstitos curvos (grau de cura residual espontâneo).

- Mostrar que, como os compósitos possuem após a cura na autoclave, graus de cura diferentes de acordo com cada taxa de resfriamento do ciclo de temperatura, configuração de sequência de empilhamento e espessura, a liberação das tensões residuais em cada uma dessas famílias será desigual. Portanto possuírão comportamentos distintos nessa cura residual espontânea.
- Investigar que, devido a diferentes porcentagens de cura dos compósitos, a evolução particular de cada família de amostras produzirá liberações de tensões residuais também distintas que influenciarão na produção de forças e momentos e nas suas propriedades mecânicas, especialmente rigidez, o que provocará a recuperação angular específica de cada amostra, o *spring-back*, também de forma diferente e particular.
- Discutir que, apesar da liberação de tensões residuais ser o principal mecanismo gerador dessa deformação angular nos compósitos curvos, outros fatores como dano, porosidade, fração de vazios na matriz polimérica, desalinhamento das fibras de reforço, concentração anisotrópica da quantidade de resina ao longo do corpo de prova, níveis de cura diferenciados da resina ao longo da amostra, podem também ser causadores do efeito de *spring-back*.
- Categorizar matematicamente os principais fatores influenciadores diretos do efeito de *spring-back*.
- Obter uma relação matemática que explicite o tempo decorrido após o processo de cura na autoclave como variável influenciadora do efeito de *spring-back*.

# 3. REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

#### 3.1 Efeitos térmicos na produção de tensões residuais

Darrow e Smith [11] consideraram em seu estudo o efeito de *spring-in* do laminado associado à cura de materiais compósitos reforçados termofixos. Esses autores, também demonstraram que o efeito de spring-in é mais pronunciado nos compósitos com geometria plana, comparativamente àqueles com geometria curva, e é mais prevalente com pecas que não possuem uma secção transversal fechada. Três contribuições para o efeito de spring-in foram considerados: a espessura do encolhimento pós-cura, a expansão do molde, e os gradientes de temperatura na fração de volume das fibras. Esses efeitos foram combinados em um modelo de elementos finitos preditivo (MEF). O alongamento e encolhimento do molde foram descritos através de uma análise da expansao térmica dentro e fora do plano da peça, enquanto os gradientes ( de expanção térmica) da fração volumétrica das fibras foram contabilizados levando-se em conta as propriedades elásticas e térmicas dessas fibras e sua fração de volume em espessura em relação ao volume do laminado. Esses autores concluiram que para as partes mais finas ( com espessura menor do que 2,0 mm), o efeito de *spring-in* foi predominantemente dominado pelas fibras e pelo efeito de alongamento do molde. Enquanto que para as peças como comprimento maior do que 2,0 mm, o efeito determinante foi o do encolhimento pós-cura. A análise demonstrou que o modelo de elementos finitos proposto foi capaz de explicar 80% do efeito de spring-in nos compósitos processados para peças com espessura variando entre 1,0 e 5,0 mm, possuindo raio de curvatura entre 3,0 e 13,0 mm. Esses pesquisadores demonstraram também que uma análise linear simples pode descrever o comportamento do efeito de spring-in esperado em uma faixa abrangente de materiais e espessuras.

Efeitos de gradientes de temperatura ao longo da estrutura de compósitos à base de resina epóxi também podem produzir deformações geométricas. Observando-se a FIG. 2 é

possível perceber que a não uniformidade da temperatura, primeiro na região tangente ao molde; provocada pelos diferentes valores de gradiente de temperatura do material que é feita a peça e o molde, provocam diferentes valores de expansão e contração desses materiais, e em seguida, o mesmo efeito sendo provocado pela interação ar ambiente e compósito.



Figura 2: Esquema mostrando o efeito do alongamento do composito ocasionado pelo molde quando um laminado é curado, onde:  $d_m$  é um elemento de massa das fibras ,  $\alpha_T$  é o coeficiente de expansão térmica do molde e  $\Delta T$  é a variação da temperatura de cura causada pelo meio ambiente, adaptado de [11].

A FIG. 3 mostra como um único lado da peça pode ser influenciado pelo gradiente de temperatura do volume das fibras ou por regiões ricas em resina na superfície do préimpregnado [11].

A contração volumétrica geralmente ocorre durante o processo de cura em compósitos de resina epóxi. O reforço de fibras tende a limitar esse efeito no plano, por meio do encolhimento ao longo da espessura, restringindo esse efeito de contração. Isso tem pouca importância para as peças planas, mas irá contribuir para o efeito de *spring-in* em partes curvas.



Figura 3: As seções transversais de um laminado unidirecional mostrando regiões ricas em matriz que ocorrem entre as camadas, adaptado de [11].

Este efeito de contração térmica ortotrópica pode ser ilustrado considerando-se um laminado como uma dobra que é comprimido através da espessura. Se o ângulo de curvatura é limitado durante esta compressão, a camada interior vai ser esticada e camada exterior será comprimida. A remoção dessa restrição resulta em efeito de *spring-in* [12, 13].

Kollar [14] desenvolveu um modelo analítico baseado na Teoria Clássica de Laminação (TCL) para estimar o efeito de *spring-in* de materiais compósitos laminados sob carregamento higrotérmico. Esse modelo incluiu a mudança constante e linear de temperatura e umidade através da espessura em seu modelo analítico. Além de calcular a deformação dos laminados, o modelo também determinou o efetivo coeficiente térmico de expansão (CTE) e coeficiente de expansão por , para cálculos mais precisos pelo Método dos Elementos Finitos (MEF). Kollar concluiu que o alongamento tem um efeito significativo sob a constante mudança na temperatura através da espessura, mas não sob a mudança linear da temperatura através da espessura.

Uma observação comum entre os fabricantes de compósitos e pesquisadores é de que existe um componente que afeta a alteração dos compósitos pós-cura que não pode ser facilmente controlada, a anisotropia do material. Segundo Ridgard [15], em particular,

laminados de fina espessura e simétricos não mantêm sua superfície plana após a fabricação, sendo observadas superfícies planas para baixo, ou seja, um empenamento após o processo de fabricação. A explicação muitas vezes invocada para essa deformação é uma incompatibilidade entre a ferramenta de fabricação (molde) e o material de que é feito o compósito. Nesse caso leva-se em conta a interação molde/laminado ao longo de sua interface, induzindo tensões residuais, que por sua vez levam ao empenamento. Horgberg *et al.* [16] investigaram a influência da espessura e das características do molde, conjuntamente com as propriedades mecânicas do laminado, obtido por meio da Teoria Clássica de Laminação, como fatores determinantes que induzem a deformação angular de compósitos em L. Essa pesquisa foi realizada experimentalmente e também por simulações em elementos finitos. Horgberg mostra uma forte dependência do efeito de *spring-in* com a espessura do laminado e a forma do molde. Embora, o fator mais importante com causador de deformações angulares, segundo esse autor, seja a rigidez de flexão do laminado.

Bellini [17] evidenciou o aparecimento de tensões residuais por modelos termomecânicos e termoquímicos em compósitos curvos na forma de L e U. Os resultados obtidos mostram o aparecimento de tensões residuais no processo de cura para o arranjo de diferentes compósitos. Bellini concluiu a partir desses resultados que o efeito da sequência de empilhamento é mais relevante para produzir *spring-in* do que outros fatores, como por exemplo, espessura e forma do molde.

Corrado *et al.* [18] mostraram que as características anisotrópicas da resina combinadas com a alta temperatura e pressão à qual o laminado é submetido no processo de cura na autoclave são fatores que induzem tensões residuais. Testes experimentais e análises de simulação numérica foram realizados em um laminado em forma de T. Essa abordagem previu com sucesso o efeito de *spring-in*. Ding *et al.* [19] propuseram um modelo analítico para analisar laminados de resina epóxi reforçados com fibra de carbono. Usaram um molde curvo com dois diâmetros diferentes, e sequências de empilhamento unidirecional e transversal. Esses autores concluíram, com base em condições de deformação plana e de tensões no plano, que um raio de molde maior causa menor efeito de *spring-in*, e que o efeito de deformação angular é mais pronunciado em compósitos com

reforços cruzados do que em espécimes unidirecionais. Shah *et al.* [20] investigaram a influência do material utilizado na fabricação de moldes, ciclo de cura, sequência de empilhamento e espessura dos laminados como causa do *spring-in*. Seus resultados revelaram que a principal influência no efeito de *spring-in* é em função do material do molde (coeficientes de expansão térmica, CET, diferentes do molde e da resina) e da espessura do laminado (rigidez), enquanto a sequência de empilhamento e o ciclo de cura exibem um menor efeito.

Kappel [21] utilizou em sua pesquisa um conjunto de compensação linear no molde que reduziu drasticamente o efeito de deformação angular após o processo de cura. Ele propôs um mecanismo no qual o molde era mais côncavo, apoiado por uma modelagem matemática que reduziu o efeito de *spring-in*, como ilustrado pela Fig. 4.



Figura 4: Distorções angulares nos moldes após a realização de uma simulação baseada em compensação linear, adaptado de [21].

Como mostrado por Benavente *et al.* [22], a incompatibilidade térmica devido a diferentes CET da matriz polimérica e as fibras também podem desencadear tensões residuais. Este efeito combinado com a interação da peça e do molde contribui significativamente para a deformação angular.

Vários autores, tais como Johnston *et al.* [23], e também Nelson *et al.* [24], têm oferecido explicações qualitativas semelhantes de como o ferramental pode induzir deformações em painéis sanduiche, laminados angulares e laminados planos. Um outro mecanismo alternativo de fabricação de laminados curvos, proposto por Twig *et al.* [25], considera um laminado processado com um CTE baixo contra um molde com um CTE consideravelmente maior. Sob essas circunstâncias o molde (base) e o laminado são forçados em conjunto devido à pressão de uma autoclave e sujeitos a uma elevação de temperatura, o laminado é então estirado devido a expansão do conjunto laminado-molde. As camadas mais próximas do molde (invólucro) são esticadas mais do que as camadas do laminado mais interiores, promovendo a criação de um gradiente de esforço através da espessura do laminado. Esta distribuição não uniforme de tensões, que estava inicialmente bloqueada entre a resina e o molde, após a remoção deste provoca um momento resultante fletor que deforma a parte externa do laminado ( conforme FIG. 5).

Na FIG. 5 (a), a base do molde se expande com o seu aquecimento pela autoclave e transfere calor para a cura do *prepreg*<sup>1</sup>. Em seguida, fricção e acoplamento na interface molde/laminado induzem tensões de tração no laminado. Na Fig. 5 (b) ocorre um deslizamento entre as camadas, pois aquelas mais próximas da base sofrem maior expansão devido ao gradiente de tensão normal, e finalmente em (c) o laminado se deformada, tornando-se curvo, como resultado desse processo [25].

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> Genericamente, o pré-impregnado é um produto intermediário, pronto para moldagem, e pode ser definido como sendo uma mistura (ou composição) de fibras de determinado polímero, termorrígido formulado ou termoplástico, em uma particular fração em peso <sup>26</sup>.



Figura 5: Mecanismo proposto para a fabricação de compósitos, adaptado de [25].

Resultados semelhantes foram obtidos por Çinar *et al.* [27], que propuseram um modelo de elementos finitos associado a verificações experimentais para prever o efeito de *spring-in* em compósitos curvos. O desenvolvimento das propriedades do material durante a cura foi modelado com mudanças graduais durante as transições entre os três estágios da resina epóxy: viscoso, elástico e vítreo. O molde foi estruturado com uma interface deslizante e com um cisalhamento de deslizamento sujeito a constante tensão (FIG. 6).



Figura 6: (a) Efeito da manufatura de um compósito em um molde curvo, (b) mostrando o efeito do encolhimento pós-cura e (c) o efeito da interação do molde, respectivamente. Adaptado de [27].

Investigando a influência da interação laminado e moldes no estiramento e encolhimento que ocorrem na fabricação de compósitos, Groh et al [2] analisaram a expansão térmica de espécimes no plano e fora do plano do laminado. Seus resultados indicam que os gradientes térmicos existem na direção da espessura do laminado. São dependentes da fração volumétrica das fibras ( $V_f$ ), do grau de cura (DOC) e de suas propriedades elásticas e térmicas como mostrado na Fig. 7. A Fig. 8 mostra o efeito de *spring-in* que ocorre prioritariamente na parte curva da amostra.



Figura 7: Exemplos de efeitos locais que levam a deformação angular, influenciando a redução do ângulo interno de laminados curvos, adaptado de [2].



Figura 8: Deformação de *spring-in* em um compósito em L. Mostrando como mecanismos de elongação  $\mathcal{E}$  e deformação angular  $\varphi$  ocorrem para se obter o valor da deformação angular total:  $\Delta \varphi_{SPI}$ , adaptado de [2].

Grankall *et al.* [28] analisaram um método alternativo para se curar os laminados, usando moldes côncavos e convexos. Essas montagens permitem que o material laminado deslize no molde, a fim de compensar qualquer deformação. Além disso, eles colocaram os pré-impregnados em uma superfície pré-aquecida para aquecê-los antes da cura. As camadas mais flexíveis são então colocadas no molde curvo para serem curadas. De acordo com Grankall, isso pode reduzir o efeito da deformação angular.

O efeito de diferentes variáveis geométricas do laminado e também aspectos mecânico-físicos sobre a deformação das partes da peça em L foram investigados por uma análise de parâmetros mecânicos (FIG. 9).



Figura 9: Porcentagem do efeito de *spring-in* de acordo com o elemento de fabricação dos compósitos, e variáveis mecânicas de engenharia. Adaptado de [29].

As previsões do efeito de *spring-in* obtidas pelo método de elementos finitos foram comparadas com medicões experimentais de pecas unidirecionais de várias espessuras e raios. Os resultados indicam que, embora um modelo de plano de deformação 2D possa prever o efeito de *spring-in* medido no plano de simetria relativamente bem, ele não é suficiente para capturar os padrões complexos da deformação observada [29]. Observa-se que esse tipo de alteração dimensional é altamente variável de parte a parte e pode depender de parâmetros tais como: o pré- impregnado, tempo de cura, resina e viscosidade dessa resina, assim como variáveis do processo, tais como a taxa de aplicação e magnitude de pressão aplicada, e obviamente, da temperatura.

Alguns autores como o grupo de Moore e colaboradores [30] pesquisaram a relação temperatura-curvatura não-linear para os laminados compósitos assimétricos, usando

Técnica de *Rayleigh-Ritz*<sup>2</sup>. A atenção é focada em estudar o efeito da temperatura do material de que é feito o compósito, bem como a quantidade de camadas de que ele é constituido; especialmente no ponto de bifurcação, por utilização do método analítico. Para este fim, as teorias analíticas são bem conhecidas e extensivamente usadas para analisar a dependência da temperatura do material. Os resultados obtidos a partir da teoria, são em seguida, comparados com os resultados de simulações de elementos finitos e uma boa correlação é obtida. Realizou-se também uma investigação experimental e vários espécimes com as estruturas [90°,0°]<sub>T</sub>, [60°,-30°]<sub>T</sub> e [30°,-30°]<sub>T</sub> foram utilizados. A fim de se estudar o efeito das camadas de resina, a microscopia óptica (FIG. 10) também foi utilizada e a espessura exata das diferentes camadas nos modelos fabricados foi determinada.

As tensões residuais resultam da distribuição de tensão não uniforme na amostra, durante o processo de cura, causando mudanças nas propriedades mecânicas do laminado. Isto dá origem a uma tensão remanescente aprisionada na resina curada, como mostrado por Zakaria et al [31]. Quando o laminado é retirado do molde, observa-se uma pressão resultante que deforma as camadas do laminado mais afastadas do molde. Lipcan *et al.* [32] criaram uma abordagem analítica que calcula o comportamento da tensão termoelástica ortotrópica para seções transversais arbitrárias da estrutura do compósito. O comportamento de expansão de seções transversais em T foi formulado pela primeira vez em diferentes níveis geométricos, levando-se em conta a contribuição da carga radial. Em todas essas investigações, as interações entre o molde utilizado e o compósito são modeladas como uma interface deslizante submetida a uma tensão de cisalhamento constante.

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> O método de Rayleigh-Ritz é um método de obtenção de resultados aproximados para Equação diferencial parcial. São utilizadas funções testes que atendem as condições de contorno do problema em questão. O problema de valor limite é primeiramente reformulado para um problema de escolha. Entre todo o conjunto de funções diferenciáveis que satisfazem as condições de limite, escolhe-se as funções que minimizam uma certa integral[33].

Dois outros fatores com igual importância da temperatura, na análise do efeito de *spring-in* em compósitos curvos, são a velocidade de cura e a forma de seu processamento. White e Hahn [34] estudaram um modelo para incluir o efeito da cinética de cura e análise de estresse viscoelástico em tensões residuais durante a cura.



Figura 10: Microscopia óptica da área transversal parcial de um laminado  $[0^{\circ}]_{8}$ , adaptado de [31].

Este modelo ressaltou a extensa série de estudos de caracterização de materiais necessários como entrada e a importância dos efeitos viscoelásticos durante a fase de gelificação que são negligenciadas em modelos termoelásticos.

Os parâmetros termoquímicos durante a fase de gelificação, tais como, a resposta viscoelástica do material a temperatura, e a cinética de cura da resina, são mecanismos complicados que tem sido um desafio para os pesquisadores em deformação angular em compósitos [2]. Como tal, as ferramentas analíticas desenvolvidas estão limitadas a condições explícitas e configurações existentes, incluidos diferentes dados relacionados a cada processo específico como poderemos analisar a seguir.

Loos e Springer [35] pesquisaram modelos que descrevem o processo de cura de compósitos reforçados com fibras, resina termoendurecível e materiais pré-impregnados em matriz contínua. Na base dos modelos, um código de computador foi desenvolvido para os compósitos de placa plana, que foi curada por um ciclo de cura especificado. Esse código proporciona a inclusão de diversos fatores como input: distribuição de temperatura, o grau de cura da resina, sua viscosidade no interior do compósito, a mensuração dos vazios, a temperatura e a pressão no interior desses vazios, e a distribuição de tensões residuais após a cura. Além disso, esse código pode ser usado para determinar a quantidade de resina que flui para fora do compósito e o teor de resina que ele possui após a cura. Testes foram realizados medindo a distribuição da temperatura e do fluxo de resina nos compósitos construídos a partir de uma resina epóxi com reforços de grafite pré-impregnado. Os dados foram comparados com os resultados calculados com o código de computador. Foi encontrada uma boa concordância entre os dados experimentais e os resultados computacionais. Um estudo paramétrico também foi realizado para ilustrar a forma como o modelo computacional associado pode ser utilizado para se determinar a cura apropriada de um ciclo para uma determinada aplicação. Os autores concluiram então, que os compósitos fabricados por essa sistemática resultam em uma composição que é curada de forma uniforme, tem um baixo índice de vazios, e é curado no mais curto espaço de tempo.

Martin *et al.* [36] desenvolveram uma análise de simulação de cura associada a um modelo de teoria das placas laminadas. O objetivo foi estudar a tensão residual em materiais compósitos termofixos de maior espessura. Em sua pesquisa, incluíram efeitos como empenamento, início de rachaduras na matriz e delaminação. Esses autores concluíram que os efeitos da cinética de cura, mudanças no volume específico da resina durante a cura, e resfriamento, foram fatores significativos na determinação de tensões residuais.

O raio de curvatura do compósito fabricado tem uma importância significativa sobre o efeito de *spring-in*. Benzie [37] investigou o efeito desse raio de curvatura como variável principal do processo, tendo concluído que esse efeito é menor do que 0,20° em impacto de efeito no *spring-in*, para peças com raio entre 3.0 a 13.0 milímetros. O autor utilizou uma matriz fatorial fracionária Taguchi<sup>3</sup> para investigar uma variedade de fatores que afetam o efeito de *spring-in* em laminados com ângulos de fabricação das camadas de 60°, 90° e 120°. Concluiu ser uma tendência comum que o aumento do ângulo acarreta um aumento do efeito de *spring-in*.

### 3.2 Efeitos da espessura e da distribuição de camadas no spring-in

O efeito da sequência de empilhamento do laminado no efeito de *spring-in* foi extensamente estudado por vários pesquisadores na literatura de compósitos curvos. Darrow e Smith [39] concluiram que existe um efeito menor do que  $0,10^{\circ}$  em impacto no efeito de *spring-in* ao se alterar a orientação da camada do laminado a partir de  $0^{\circ}$  até +45° ou até -45°. Wang *et al.* [40], utilizaram um algoritmo genérico para otimizar o ângulo de *spring-in* em compósitos através da variação das sequências de empilhamento, com base no modelo analítico de Kollar [41]. A otimização foi realizada com base na constante mudança

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup> O método Taguchi possibilita se determinar a melhor combinação de fatores e interações que influenciam no comportamento da variável-resposta de determinado processo. Geralmente, o uso do método requer menor esforço de amostragem, diminuindo o custo com ensaios, sem grande prejuízo às conclusões obtidas[38].

de temperatura e raio específico. Baseou-se também nas propriedades dos materiais à temperatura ambiente. Os ângulos otimizados nas sequências de empilhamento foram:  $0^{\circ}$ ,  $45^{\circ} e \pm 90^{\circ}$ .

Ao se estudar o efeito da espessura do laminado no efeito de *spring-in*, o aumento da rigidez à flexão, que acompanha o aumento da espessura dos compositos é dominante sobre outros mecanismos [41]. O efeito de *spring-in* em compósitos é geralmente menos pronunciado em laminados mais espessos. Kollar [41], concluiu a partir de seu modelo analítico, que o espessamento tem um efeito significativo sob a constante mudança na temperatura através da espessura das peças fabricadas, mas não sob a mudança do comportamento linear da temperatura através da espessura. Twigg et al. [42] investigaram o efeito de laminados de 4, 8 e 16 camadas de laminados na distribuição interfacial entre a tensão de corte do molde e do laminado. Constataram que, na modelagem do cisalhamento interfacial molde/laminado, o empenamento máximo também diminuiu com o aumento da espessura. Conclusão semelhante obtiveram Black et al.[3]. Esses autores analisaram a influência da espessura do laminado como determinante no efeito de *spring-in*, realizando uma série de experimentos com sequências de empilhamento de camadas [45°,-45°]<sub>ns</sub> e  $[0^{\circ},90^{\circ}]_{ns}$ , conforme mostrado na FIG. 11. A matriz de flexao a rigidez  $D_x$  tambem é apresentada juntamente com cada laminado (Tabela 1). Conforme sugerido por Syed e Chan [43], para esse tipo de análise, a tendência geral de diminuição do efeito de spring-in (em graus) foi observada com o aumento da espessura do laminado, e consequentemente aumentos de sua rigidez conforme apresentado na Tabela 1. Os autores atribuiram esse fato à maior dominância de efeitos termodinâmicos, como o equivalente efeito de flexão em compósitos mais rígidos e espessos. Em concordância com a idéia de que o aumento do ângulo de spring-in é menos pronunciado com o aumento da espessura.



Figura 11: Comparação do efeito de *spring-in* em espécimes  $[45^\circ, -45^\circ]_{ns}$  (quadrado sólido preto) e  $[0^\circ, 90^\circ]_{ns}$  (disco vermelho sólido). Adaptado de [3].

Número de camadas	Matriz de rigidez D <sub>x</sub> ( Nm )		
	[0°,90°] <sub>ns</sub>	$[+45^{\circ}, -45^{\circ}]_{ns}$	
4	5,27	0,64	
8	29,27	5,46	
16	221,82	43,79	

Tabela 1: Matrizes de rigidez para laminados  $[0^{\circ},90^{\circ}]_{ns}$  e  $[+45^{\circ},-45^{\circ}]_{ns}$ . Adaptado de [3].

Adicionalmente Black *et al.* [3] realizaram testes nessa série de compósitos para determinar o efeito do ângulo entre as lâminas da amostra como influenciador do efeito de

*spring-in*. Também compararam quantitativamente o efeito de camadas de fibras em feixe e dispersas.

Esses autores primeiramente pesquisaram o efeito do ângulo entre as camadas do laminado. São comparados vários ângulos das lâminas  $[\theta_4, -\theta_4]_s$  mantendo-se o número de camadas igual a 16 (como mostrado na FIG. 12 e na Tabela 2). Uma grande variação da distribuição foi observada conforme o ângulo,  $\Theta$ , entre as camadas variava. O maior efeito de *spring-in* foi observado para a série  $[60^\circ_4, -60^\circ_4]_s$  de laminados. Nota-se também um aumento gradual no ângulo de *spring-in* quando  $\theta$  aumenta de 30° para 60°, o que poderia ser atribuído à diminuição da matriz de rigidez do feixe de flexão equivalente, D<sub>x</sub>. No entanto, foi observado em  $[90^\circ]_{16T}$ , a menor rigidez de flexão equivalente (D<sub>x</sub> = 26,85 Nm), mas com um ângulo de *spring-in* apenas 25% menor do que  $[0^\circ]_{16T}$ , com a mais elevada rigidez de flexão equivalente (D<sub>x</sub> = 379,92 Nm).



Figura 12: Comparação do spring-in para compósitos em relação ao ângulo de cada camada do laminado. Adaptado de [3].

Ângulo Ə	Matriz de rigidez D <sub>x</sub> (Nm)
0°	379,92
30°	94,08
45°	40,71
60°	28,09
90°	26,85

Tabela 2: Matrizes de rigidez para laminados agrupados em ângulo da forma  $[\theta_4, -\theta_4]_s$ . Adaptado de [3].

Buscando determinar a maior quantidade possível de parâmetros que provocam o efeito de *spring-in*, Black e colaboradores investigaram também o efeito de pacotes de camadas *versus* camadas dispersas. O efeito de *spring-in* em compósitos é determindo utilizando-se os espécimes em pares:  $[45^{\circ}, -45^{\circ}]_{4s}$  e  $[45^{\circ}_{4}, -45^{\circ}_{4}]_{s}$ ;  $[0^{\circ}, 90^{\circ}]_{4s}$  e  $[0^{\circ}_{4}, 90^{\circ}_{4}]_{s}$  respectivamente, como mostrado na FIG. 13 e Tabela 3. Cada conjunto tinha o mesmo número de camadas e orientação angular em cada seqüência de empilhamento e compartilharam o mesmo nível de carga térmica induzida. Para a sequência de empilhamento ± 45°, uma mudança inferior a 5% em ângulo de *spring-in* foi encontrada. E para os conjuntos a 0° e 90°, uma mudança de aproximadamente 25% no *spring-in* foi observada. A mudança significativa no efeito de *spring-in*, em ângulo, para os conjuntos a 0° e 90° poderia ser atribuída, segundo os autores, ao aumento de aproximadamente 60% na rigidez à flexão equivalente, D<sub>x</sub>. Para a primeira sequência de empilhamento,  $[0^{\circ}, 90^{\circ}]_{4s}$ , observou-se D<sub>x</sub>  $\approx 213$  Nm. Para a segunda,  $[0^{\circ}_{4}, 90^{\circ}_{4}]_{s}$ , D<sub>x</sub>  $\approx 337$  Nm .



Figura 13: Comparação do efeito de spring-in de acordo com a sequência de empilhamento, adaptado de [3].

	Matrizes de rigidez	$D_x(Nm)$	
[45°, -45°] <sub>4s</sub>	$[45^{\circ}_4, -45^{\circ}_4]_s$	[0°, 90°] <sub>4s</sub>	$[0^{\circ}_4, 90^{\circ}_4]_s$
43,79	40,71	212,82	337,19

Tabela 3: Matrizes de rigidez para sequências de empilhamento em grupo e dispersas. Adaptado de[3].

3.3 Spring-in, spring-back e deformação na literatura de compósitos.

De acordo com Kappel [44], uma nomenclatura não muita clara é utilizada para se descrever os processos induzidos na fabricação de compósitos que provocam deformações. Os efeitos desses processos foram categorizados semanticamente em: *Spring-forward*, *spring-back*, *spring-down*, *warpage* e *spring-in* e são geralmente usados como sinônimos na literatura de materiais compósitos.

Como mencionado anteriormente, laminados termofixos que são curados a altas temperaturas sofrem deformações devido ao encolhimento térmico e ao processo de cura [44]. Tensões residuais serão desenvolvidas nesses laminados devido à incompatibilidade da expansão térmica ao longo e através das fibras, encolhimento devido à cura da resina termofixa, e da mudança de temperatura de cura para a temperatura ambiente [44]. Essas deformações e tensões residuais levam a uma indesejável distorção da forma do laminado quando ele é retirado do molde, como estudado por Wiersma et al. [45]. Uma particular distorção da forma desse laminado é a diminuição de seu ângulo interno e é denominada por vários autores como O'neil e colaboradores [46], Nelson e Cairns [47] e Hamamoto [48] como spring-forward. Alguns desses autores [47,48] mostraram que essa deformação não pode ser explicada somente pela incompatibilidade da expansão térmica ao longo e através das fibras. Eles observaram qualitativamente que outras possíveis causas do springforward seriam: o "encolhimento químico" da resina ao produzir as ligações químicas cruzadas durante o seu processo de cura, e também a tensão residual à máxima temperatura de cura [46]. Wiersma et al. [45] acrescentam que outro possível fator para essa deformação seria a falta de homogeneidade da distribuição fibra/matriz através da espessura do laminado.

Autores como Sarrazin *et al.* [49] propõem o conceito de *spring-in* como sendo a deformação de laminados planos para a forma côncava. Elencando, como os autores anteriores, que essa deformação seria devido à contração química, expansão térmica durante o aquecimento da resina e sua contração térmica durante o seu resfriamento. Esse último processo a cada turno introduziria tensões dentro do material do laminado, que

justaposto ao molde, dentro da autoclave a altas pressões, mantêm e acumula essas tensões até que o laminado é retirado do molde após o processo de cura. Sarrazin descreve que os parâmetros que seriam responsáveis por essa deformação seriam: a temperatura, a sequência de empilhamento das camadas do laminado e demais fatores do processo de cura, como por exemplo, a faixa do ciclo responsável pelo resfriamento (*cooling down*). Em sua pesquisa foi verificado que os efeitos da temperatura de cura no spring-in são pequenos quando os espécimes são curados a baixa temperatura (~ 148.9 °C) e crescem com o seu aumento ( até ~ 204 °C) como mostra a Fig 14. O spring-in também aumenta com o aumento do grau de cura (Fig 15 e Fig 16). Para o material usado, um prepreg de grafite/epóxi (T300/976) ocorreu um aumento acentuado do spring-in a partir de 50% de cura. Aparentemente, a maior parte do encolhimento da matriz epóxi contribuindo para o spring-in ocorre para valores superiores a 50% de cura. A taxa de resfriamento também parece afetar o efeito de spring-in, sendo que, taxas de resfriamento mais lentas parecem diminuir sua intensidade. Esse resultado está em contraste com o estudado por Hahn [50], que não encontrou nenhuma mudança significativa no spring-in associado à taxa de resfriamento.



Figura 14: Spring-in como função da temperatura de cura constante, adaptado de [49].



Figura 15: *Spring-in* como função do grau e da temperatura de cura. Laminado curado a temperatura constante [49].



Figura 16: *Spring-in* como função do grau de cura  $\alpha$ , no qual a temperatura de cura é aumentada. Adaptado de [49].

Fernlund e Floyd [51] basearam-se nos estudos acadêmicos disponíveis na área com o objetivo de resumir os processos que induzem deformação em compósitos. Sumarizaram a nomenclatura utilizada de algumas deformações em compósitos curvos e suas causas (Tabela 4), explicitando adicionalmente o conceito de *spring-down*, diferenciando-o do significado de *spring-in* como ilustra a Fig.17.

Fiorina e colaboradores [52] produziram um trabalho onde apresentam e classificam de forma pormenorizada as causas do *spring-in*. Segundo esses autores o *spring-in* também é causado devido a tensões residuais que surgem devido ao processo de cura. Vários pesquisadores elucidaram esses mecanismos e três diferentes fontes de tensões nesse processo foram catalogadas: mecanismos químicos [53], mecanismos termomecânicos [53], e interações do molde com o laminado [54,55]<sup>•</sup> O mecanismo químico principal, segundo esses autores, é o encolhimento da resina epóxi.

A mudança do estado da resina durante o ciclo de cura resulta em uma mudança em seu volume contribuindo para o surgimento de tensões internas [52]. O mecanismo térmicomecânico é devido à micro diferenças a nível mecânico entre as fibras e matriz polimérica. Experimentos demostraram que laminados unidirecionais apresentam defecções, embora teoricamente, nenhum encurvamento devesse ser observado já que todas as laminas tem a mesma orientação. Como mencionado anteriormente, a interação molde laminado é devida aos seus respectivos diferentes coeficientes de expansão térmica (CET) [35]. Portanto, devido a influência do molde, as camadas do laminado mais próximas a ele, dilatam-se no inicio do ciclo de cura, quando a resina está no estado viscoso e gradientes de tensões no plano se desenvolvem através da espessura do laminado. Por consequência, no fim do ciclo de cura, quando a resina esta quase que completamente polimerizada, essas tensões ficam então presas. Finalmente quando a pressão é removida, o momento forçando o encurvamento do laminado originado dessas tensões residuais age.

Mecanismo	Causadores	Descrição
Springdown	Molde/laminado CET. Temperatura de cura.	O molde se expande quando aquecido e o laminado acompanha essa expansão. Quando o conjunto é resfriado para a temperatura ambiente, o molde e o laminado podem se contrair de formas diferentes.
Spring-in	Anisotropia na Expansão térmica, encolhimento de cura do laminado e sua curvatura.	Um grande encolhimento através da espessura que no plano causa encolhimento angular ou <i>spring-in</i> nas partes curvas do compósito, o <i>spring-in</i> pode também causar outras deformações devido aos efeitos das interações geométricas tridimensionais.
Interação molde/laminado	Molde/laminado CET Temperatura de cura Interface molde/laminado Comportamento cisalhante Espessura do laminado	Quando o molde se expande na rampa de aquecimento do ciclo, tensões cisalhantes na interface molde/laminado podem causar através da espessura do compósito, gradientes de tensões, que provocarão, após a sua cura, deformações e um <i>gap</i> em relação ao molde. O efeito é extremamente dependente do comprimento e espessura do laminado.
Gradientes de cura	Rampas de aquecimento rápidas no ciclo da autoclave Transferência de calor deficiente. Moldes e laminados espessos	Podem causar gradientes de tensões e deformações devido a diferentes encolhimentos e tensões que surgem através da espessura do laminado

Tabela 4: Mecanismos que contribuem para a indução de processos de deformação em compósitos, adaptado de [51].



Figura 17: Spring-down e Spring-in, adaptado de [51].

No ínicio da etapa de resfriamento do ciclo, o laminado está quase completamente curado, e como o CET do laminado é menor que o CET do molde, tensões fora do plano são induzidas através da espessura do laminado e ele finalmente se desloca criando um *gap* a partir do molde [56].

Um grande número de parâmetros de manufatura possuem um impacto significativo no processo de *spring-in*. Eles podem ser divididos em duas categorias: intrínsecos e extrínsecos [57]. A origem dos fatores intrínsecos está nas características físicas do laminado. Mas as características extrínsecas são produzidas pelos parâmentos de manufatura do processo de cura, que dependem principalmente dos diferentes valores de CET do molde e do laminado [48]. Experimentos demonstraram que as fontes intrínsecas produzem *spring-in* nas partes curvas do compósito, enquanto que as fontes extrínsecas provocam alterações na forma de laminados mais finos [49]. Para Fiorina e colaboradores [52] *spring-in* define-se como a deformação final após a cura da parte curva dos laminados ( em L ), enquanto *warpage* (deformação) seria a alteração, encurvamento das partes planas do laminado ( FIG 18). A tensão no plano e a tensão cisalhante fora do plano, produzidas principalmente pelo estiramento das camadas do laminado e pela interação molde/laminado respectivamente, são os dois fatores principais a serem considerados segundo suas pesquisas.



Figura 18: Diferença entre spring-in e Warpage, adaptado de [52].

A tensão no plano ocorre durante o ciclo de cura. O comportamento do compósito pode, portanto, ser modelado como função do seu grau de cura, ou simplesmente pela lei do comportamento linear elástico, relacionada com os três diferentes estados da resina epóxi: viscoso, elástico e vítreo [54].

3.4 Influência dos estados da resina epóxi como geradores de tensões

Como discutido anteriormente, tensões residuais surgem durante o processo de cura do compósito na autoclave. Wisnom e colaboradores [54] realizaram um estudo demonstrando como a evolução do processo de cura da resina epóxi contribui para o surgimento dessas tensões e sua consequente influência na deformação e *spring-in*. Esses autores esclarecem a importância do processo de cura da resina quando ela passa por dois estados críticos: o gelatinoso e o vítreo.

Polímeros se encolhem durante o processo de cura, produzindo uma mudança de volume adicional além daquela causada pelos efeitos térmicos da autoclave. Esse efeito pode ser significativo, aproximadamente de 7%, que é a mudança de volume típica para a resina epóxi [58]. Contração química pode causar efeitos similares à contração térmica, com tensões surgindo a nível micro mecânico, tensões no plano e distorções nos laminados, e também mudanças angulares em suas partes curvas [52].

3.5 Tensões e deformações durante o processo químico de cura

Durante o processo de cura da matriz de laminados de base epóxi, a resina que domina a matriz polimérica atravessa alguns estágios, como mostrado na Fig. 19 que serão discutidos pormenorizadamente a seguir [40].

3.5.1 Antes da fase gelatinosa

Nos estágios iniciais de cura a resina não pode suportar tensões significativas. A resina flui e a consolidação da cura do laminado pode causar mudanças na sua geometria, podendo contribuir para distorções em sua forma. Por exemplo, devido ao acoplamento das fibras nas partes curvas de forma diferente das planas por existência de quantidades diferentes de resina nessas regiões [59].



Figura 19: Esquema de um ciclo de cura típico mostrando o grau de cura e o comportamento do material da matriz de resina epóxi do laminado como função da temperatura e do tempo, adaptado de [42].

## 3.5.2 Entre a gelificação e a vitrificação

Depois da gelificação a matriz está no estado elástico. Seu módulo de cisalhamento é muito baixo, mas ela não tem um módulo de compressibilidade apreciável. Esse comportamento produz tensões hidrostáticas em regiões tridimensionais onde não existem limitações significativas, e podem causar inclusive, danos nas partes mais espessas do laminado nos processos iniciais de cura da matriz, quando ela ainda não esta suficientemente rígida [60,61]. Tensões no plano do laminado produzidas por efeitos térmicos ou encolhimento da resina nesse estágio da cura, são geralmente muito pequenas, e portanto, não produzem deformações significativas. Nas partes planas do laminado, as mudanças no volume da resina podem ser acomodadas pela alteração da espessura do laminado que nesse caso, não produziriam deformações. Isso foi demonstrado por Weistman *et al.* [62], em seus experimentos com resina epóxi curada com medidores de tensões em aparatos de alumínio. Tensões negligenciáveis foram medidas até a transição vítrea de temperatura ser alcançada.

Se as partes curvas do laminado pudessem ser curadas sem nenhum tipo de limitação pelo molde, mudanças de volume através da espessura poderiam causar deformações, apesar das pequenas tensões existentes. Isso ocorria porque nas partes curvas, diferentes tensões no plano e através da espessura provocam uma mudança na curvatura que é o efeito na mudança da geometria do laminado, e não requer tensões para mantê-lo. Quando o laminado é limitado e está preso pelo molde, pequenas tensões de cisalhamento são desenvolvidas. Através de uma certa distância do molde isso pode produzir tensões significativas na direção das fibras. Essas tensões são encapsuladas e presas na vitrificação da matriz. Quando o laminado é retirado do molde, essas tensões causam uma distorção equivalente àquela que poderia ocorrer em um laminado sem limitações tridimensionais [49].

De forma semelhante, pequenas tensões de cisalhamento também ocorrem por causa da interação molde/laminado nessa fase de cura, que por conseguinte, produzem tensões significativas em distâncias consideráveis a partir do molde na direção das fibras, resultando em deformações [49].

3.5.3 Depois da vitrificação

Quando a resina é vitrificada, ela desenvolve uma rigidez significativa e pode ser tratada como um sólido elástico. Tensões térmicas e distorções relativas a esse processo surgem desse ponto em diante. Contrações/encolhimentos químicos nessa fase são equivalentes a tensões termais, e podem ser tratados da mesma forma. A quantidade de contração química após a fase vítrea é geralmente pequena, e então os efeitos térmicos predominam [27].

Não ocorrem mais efeitos adicionais da interação molde/laminado nessa fase. Como o material é agora elástico, qualquer tensão gerada nessa etapa da cura desaparecerá quando o laminado for removido do molde, e então nenhuma deformação será produzida [49].

3.6 Outras causas e mecanismos de deformação angular

Segundo Hyer *et al.* [63], é pouco explorada a ideia que tensões residuais ao nível das camadas do laminado também podem produzir distorções nas partes curvas do compósito. Até mesmo quando uma sequência de empilhamento das camadas é feita de forma balanceada e simétrica. Ding *et al.* [64] mostraram como essas tensões provocam o efeito de *spring-in* através da liberação de tensões residuais que ficam temporariamente presas no processo de cura do compósito na autoclave como mostra a Fig. 20. Esses autores mostraram também que a deformação que ocorre nas partes planas da amostra tem uma pequena influência na deformação angular total do laminado.

Como também estudado por Wisnom et al [54], a Fig. 21 mostra o padrão das tensões residuais no plano através da espessura, em um empilhamento balanceado e simétrico, determinado pelo método de elementos finitos. Os valores nas seções curvas são muito similares aos das partes planas do empilhamento. Considere-se as duas lâminas em azul escuro das bordas, que possuem suas fibras na direção circunferencial. As tensões circunferenciais atuam através da mesma região, isto é, a espessura da lâmina/camada vezes a dimensão normal do plano da figura. Portanto, tensões de igual magnitude nessas duas lâminas, nessa direção, não poderiam produzir nenhum encurvamento da peça.


Figura 20: Mudança no ângulo de spring-in devido a deformação não mecânica através da espessura do laminado. (a) Pequeno módulo de cisalhamento interlaminar. (b) Forte módulo de cisalhamento interlaminar, adaptado de [64].

Entretanto, na direção axial, normal à seção, as tensões na camada interna agem através de uma área menor do que aquela área da camada externa, porque internamente a circunferência possui menor comprimento. As forças estão então não balanceadas em relação a um plano médio transversal à espessura do laminado, causando encurvamento e um deslocamento do eixo neutro/inicial do laminado. Isso também afeta o *spring-in* devido ao coeficiente de Poisson. O mesmo fenômeno provoca torção nas regiões curvas com camadas em ângulo.



Figura 21: Padrão de tensões residuais normais ao plano em um laminado curvo, balanceado e simétrico. As tensões circunferênciais ( ao longo do comprimento das fibras) agindo em camadas simétricas sem causar deformação. As tensões axiais ( através da espessura) agindo nas camadas mais externas e mais internas, com áreas diferentes, causando deformação. Adaptado de [54].

Nelson *et al.*[47], também salientam o fato do maior CET através da espessura do laminado (dominado pela matriz) em relação ao CET no plano da lâmina (dominado pelas fibras). Esse fato causa uma mudança no ângulo das partes curvas do laminado com a temperatura, para qualquer tipo de sequência de empilhamento e sua origem é o já bem conhecido efeito de *spring-in*.

Umidade causa inchaço/aumento de volume da matriz que produz efeitos similares aos causados pela dilatação/contração térmica ou pela mudança de volume ocasionada pela cura química, como por exemplo, mudanças na curvatura de compósitos [65]. Variações da fração do volume através da espessura de compósitos podem fazer surgir, especialmente onde a resina está sendo "derretida" e fundida durante a cura. Isso pode provocar deformações até mesmo em compósitos planos [66]. Regiões ricas em resina próximas a interface compósito/molde e regiões pobres em resina na superfície mais afastada do molde tendem a possuir maiores e menores coeficientes de expansão térmica, respectivamente, levando ao desenvolvimento de um compósito deformado para a forma convexa [66], conforme mostrado esquematicamente na Fig. 22.



Figura 22: Deformação provocada pela fração do gradiente de volume através da espessura do compósito laminado plano. Adaptado de [66].

O movimento das fibras durante a cura pode causar mudanças na geometria da peça e nas suas propriedades, provocando tensões e deformações. A consolidação da cura da resina e o seu processo de acomodação dentro da peça, na parte angular, podem produzir um aumento de espessura dessa região com moldes na parte côncava da peca, ou uma diminuição na espessura quando o molde é colocado na região convexa [67]. A Fig. 23 mostra, esquematicamente, um aumento considerável na espessura na região angular de um laminado espesso, com 32 camadas, de um compósito feito de resina epóxi e carbono unidirecional [68]. O acoplamento na região curva da peça e o aumento de sua espessura resultam em regiões ricas em resina e com frações de volume de forma desigual ao longo do laminado, o que tende a aumentar consideravelmente o efeito de *spring-in*. Enrugamentos na superfície da peça também podem aparecer nas partes curvas, particularmente com moldes colocados na região convexa do laminado [69].

Diferentes graus de cura podem ocorrer ao longo da espessura do laminado devido à falta de homogeneidade no aquecimento da peca, ou gradientes de temperatura não lineares (temperaturas diferentes no mesmo período de tempo) [67]. Exotermia pode ser importante

nas partes espessas, podendo causar tensões residuais adicionais e gradientes de tensões ao longo da espessura.



Figura 23: Aumento da espessura da curvatura em um compósito unidirecional de resina epóxi e carbono, adaptado de [63].

## 3.7 Grau de cura e deformações

Como já citado anteriormente por Mezeix *et al.* [58], tanto o *spring-in* quanto o *spring-back* surgem como consequência de tensões internas que são construídas durante o processo de cura do compósito na autoclave. Essas tensões internas são originadas de três mecanismos principais diferentes: o mecanismo químico, o termo-mecânico e a interação entre o molde e o compósito que esta sendo laminado. Durante o ciclo de cura, alterações na estrutura molecular da resina, ao mudar de fases na seguinte ordem: viscosa, elástica e vítrea, produz mudanças em seu volume, que podem contribuir para o surgimento dessas tensões residuais.

As propriedades físicas de um polímero dependem significantemente de seu grau de cura. Um polímero menos curado possuirá um módulo de elasticidade menor e também menor resistência ao aquecimento comparativamente a um polímero bem curado. Por esse motivo, quando se deseja produzir lotes de polímeros uniformes, com as mesmas propriedades, seus graus de cura devem ser controlados para que esse objetivo seja alcançado [70].

Existem várias técnicas que permitem validar o grau de cura de um polímero, sendo que a mais usada atualmente na área de compósitos a base de resina epóxi, por produzir resultados mais precisos, é a técnica de Calorimetria exploratória diferencial (*Differential Scanning Calorimetry* : DSC) [71].

A determinação do grau de cura por DSC de polímeros termofixos é acompanhada pela liberação de calor, cujo valor é proporcional ao número de grupos químicos em reação [72]. Através da calorimetria exploratória diferencial é possível medir diretamente o calor envolvido na reação, através do comportamento de cura, quantificando a cura térmica.

A cura é classificada como térmica quando ela é induzida pela ação do calor. Esse processo é caracterizado pela liberação de calor, que será proporcional ao número de grupos funcionais que reagem, portanto permitindo a caracterização dos polímeros curados termicamente pela análise via DSC [73]. A determinação dos parâmetros cinéticos da cura obtida por análise térmica de uma amostra termicamente curável, pressupõe uma capacidade calorífica,  $C_p$ , constante ou que varia linearmente com a temperatura na qual a cura ocorre [74]. O fato de que a temperatura e o grau de cura simultaneamente variam constituen uma limitação na avaliação da cura térmica. Através da análise por DSC é possível estabelecer modelos que permitam estimar a extensão da cura, desde a integração da área gráfica correspondente à reação. O resultado obtido representa o valor da entalpia de cura,  $\Delta H_{cura}$ . Quando se aumenta o grau de cura o valor do  $\Delta H$  diminui, representado pela área entre as curvas vermelha e azul ou preta e azul da Fig. 24.



Figura 24: Gráfico do grau de cura de um polímero por DSC.

Neste caso, deve-se ter em mente que esse valor relativo do grau de cura está normalizado. Se não detectado no gráfico, a cura pode ser considerada como completa [75].

## 3.8 Mecanismos químico-moleculares que geram tensões residuais

Vários autores, como Garstka *et al.* [76] têm estudado os mecanismos geradores de deformação angular em compósitos curvos. Sabe-se que o aparecimento de tensões residuais durante o processo de cura da resina epóxi na autoclave é um fator determinante para a explicação desse fenômeno [44]. Como citado anteriormente, o processo de cura em si já proporciona o aparecimento dessas tensões, que decorrem de fatores como: a forma anisotrópica da geometria do laminado, interação do molde e da peça (diferentes coeficientes de expansão térmica e transmissão de calor dos materiais que compõe essas estruturas), cura incompleta e cura residual, por exemplo [77]. Essa seção concentra-se em investigar como o aparecimento dessas tensões residuais devido a cura incompleta que

ocorre no processamento das amostras na autoclave, desencadeia o surgimento de forças e momentos variáveis ao longo do tempo, que por sua vez provocam os efeitos de *spring-in* e *spring-back*. Modelos que explicam a intercorrelação entre esses graus de cura incompletos e o aparecimento dessas tensões angulares deformantes também serão apresentados e discutidos.

3.8.1 Efeitos da variação volumétrica da resina

Garstka e colaboradores [76] estudaram a relação entre a contração química e o grau de cura através de um modelo de cinética de cura. Computaram as contribuições relativas de encolhimento de cura, expansão térmica e consolidação para a tensão através da espessura do laminado. Esses autores demostraram que durante a cura de compósitos termofixos a resina sofre reações de interligação que levam a um aumento de sua massa específica, e portando redução do volume. Um esquema da representação desse processo é mostrado na Fig. 25. Essa figura apresenta o progresso do processo de cura. Ocorrem a formação e crescimento de cadeias lineares poliméricas , primeiramente através da ramificação e, em seguida a formação de ligações cruzadas (*cross-link*) para uma extensa rede interligada. O processo de redução de volume, geralmente nomeado como encolhimento químico, juntamente com as contrações térmicas podem levar ao desenvolvimento de altas tensões residuais que ficam presas (contidas) onde há esse encolhimento na amostra.

Um esquema representativo da mudança volumétrica da resina epóxi devido à expansão térmica e a contração química são mostrados na Fig. 26. Os estágios de a-d são descritos como se segue: Estágio a-b: o volume da resina aumenta quando ela é instantaneamente aquecida a partir da temperatura de referência  $T_0$  (temperatura ambiente), para a temperatura de cura,  $T_C$ , devido à expansão térmica antes que ocorra qualquer retração química. Estágio b-c: o volume diminui devido à contração química a uma

temperatura constante, e a resina se vitrifica ( essa fase do processo de cura é a qual a resina recebe a maior quantidade de calor para a promoção da cura do compósito, conhecida com *dwelling* ou *soak phase*).



Figura 25: Processo esquemático da cura de resinas termofixas. Adaptado de [78].

Estágio c–d: o volume diminui devido à contração térmica quando a resina se resfria até alcançar a temperatura ambiente. A inclinação entre c–d é menor quando comparada à inclinação a–b, porque o coeficiente de expansão térmica no estado vítreo é menor que no estado elástico [76].



Figura 26: Esquema da mudança de volume da resina epóxi durante o processo de cura em relação à temperatura, adaptado de [76].

3.8.2 Modelagens prévias do efeito de spring-in em compósitos curvos.

Ersoy *et al.* [79] utilizaram essa mesma premissa, citada na seção anterior, para proporem um modelo baseado em efeitos termo elásticos e químicos do processo de cura da resina na autoclave. Essa modelagem previa a deformação angular causada pelo efeito de *spring-in.* 

Esse modelo, relacionando os influenciadores propostos por esses autores como principais causadores da deformação angular em compósito curvos, é apresentado na equação 1, a seguir:

$$\frac{\Delta \Theta}{\Theta} = (\alpha_1 - \alpha_T) \Delta T + (\beta_1 - \beta_T)$$
 Equação 1

Onde  $\Delta \Theta$  é a deformação causada pelo *spring-in* no ângulo  $\Theta$ ,  $\alpha_1$  é o coeficiente de expansão térmica no plano e  $\alpha_T$ , o coeficiente de expansão térmica através da espessura.  $\Delta T$  é a variação de temperatura, e  $\beta_1$  e  $\beta_T$  são os coeficientes de encolhimento químico no plano do laminado e através da espessura respectivamente.

Wisnom *et al.*[80] propuseram uma solução analítica alternativa para compósitos de matriz termofixa curvos. Levaram em conta a baixa rigidez de cisalhamento do material no estado elástico antes que ele alcançasse sua máxima cura percentual. Essa solução analítica é formulada como:

$$\Delta \phi = -\mathcal{E}_R \left[ \phi - \frac{\left(e^{aR\phi} - e^{-aR\phi}\right)}{Ra \left(e^{aR\phi} + e^{-aR\phi}\right)} \right] + \phi \left[ \left(\alpha_{\theta}^g - \alpha_R^g\right) \Delta T + \left(\beta_{\theta}^g - \beta_R^g\right) \right]$$

## Equação 2

Onde  $\Delta\Theta$  é a deformação angular, o *spring-in*.  $\mathcal{E}_R$  é a deformação através da espessura no estágio elástico de cura, R seria o raio interno do molde,  $\alpha_{\Theta}^g e \alpha_R^g$  denotam os coeficientes de expansão térmica no plano e através da espessura no estado vítreo,  $\beta_{\Theta}^g e \beta_R^g$  são os coeficientes de encolhimento químico no plano e através da espessura, respectivamente, depois da vitrificação da resina. O símbolo  $\emptyset$  é o raio em radianos do laminado,  $\Delta T$  a variação de temperatura total durante o processo de cura. A constante "a" é em função do modo de flexão no plano  $E_{\Theta}$ , modulo de cisalhamento interlaminar  $G_{\Theta R}$  e espessura t como a equação seguinte descreve:

$$a = \sqrt{10G_{\Theta R}/E_{\Theta}t^2}$$
 Equação 3

Segundo esses autores, esta solução analítica fornece uma nova visão sobre os processos físicos que influenciam o mecanismo de *spring-in* de compósitos curvos. Mostra que o cisalhamento através da espessura pode ter um efeito significativo na redução da elasticidade, devido à expansão térmica e às propriedades químicas do encolhimento entre as fases de gelificação e vitrificação. A análise prevê um efeito significativo da espessura do laminado no efeito de *spring-in* e esse fato foi confirmado por medições experimentais.

Ding e al. [1] modificaram essa modelagem proposta por Wisnom, adicionando o termo:

$$V_{ZR}(\mathcal{E}_Z^0 - \mathcal{C})[\emptyset - (e^{aR\emptyset} - e^{-aR\emptyset})/Ra(e^{aR\emptyset} + e^{-aR\emptyset})]$$

# Equação 4

Onde  $V_{ZR}$  é o coeficiente de poison através da espessura na direção Z, perpendicular ao plano do laminado,  $\mathcal{E}_Z^0$  é a deformação na direção do comprimento na direção Z. A constante C é igual a deformação do molde na direção do comprimento do laminado no estagio elástico de cura, ou seja, entre os estágios gelatinoso e vítreo.

Comparando-se essa nova solução, com a solução analítica dada por Wisnom, esse termo adicional reflete as deformações na direção do comprimento no estado elástico de cura da resina. Essa abordagem é baseada na condição de tensão plana generalizada em vez da condição de tensão no plano. Portanto a nova modelagem segue a equação:

$$\Theta_{spring-in} = -[\mathcal{E}_R^0 + V_{ZR}(\mathcal{E}_Z^0 - C)] \left[ \emptyset - \frac{\left(e^{aR\emptyset} - e^{-aR\emptyset}\right)}{Ra\left(e^{aR\emptyset} + e^{-aR\emptyset}\right)} \right] \\ + \emptyset \left[ (\alpha_{\Theta} - \alpha_R) \Delta T + (\beta_{\Theta} - \beta_R) \right]$$

Equação 5

3.8.3 Justificativa para a teorização utilizada na modelagem estatística.

Ao longo do processo de cura da resina na autoclave, é um fato bem consolidado na literatura de compósitos curvos, a ocorrência de processos físico-químicos que geram tensões residuais enquanto o laminado está encapsulado dentro do molde. Segundo Wisnom *et al.* [54], a resina da matriz do *prepreg* passa pelos 3 estágios de cura ao receber calor no processo: gelatinoso, elástico e vítreo. Durante os dois primeiros estágios a resina está ainda em um estado líquido/viscoso e está parcialmente livre para se movimentar/fluir e se acomodar dentro da estrutura ( o laminado a ser curado está submetido a alta pressão e temperatura conforme o ciclo de cura a ser utilizado, geralmente recomendado pelo fabricante do *prepreg*). Durante esse processo também ocorre a polimerização e reticulação dessa resina, conforme ilustrado pela Fig. 27. Iniciando-se na forma de monômeros (a), em seguida o crescimento linear da cadeia com ramificações (b), depois formação do gel com ligações cruzadas (*cross-link*) (c) mas incompletamente reticulado, e finalmente aglomerados – *clusters* (d) [75].



Figura 27: Evolução do processo de cura e polimerização da resina epóxi, adaptado de [75].

Ao começar a atingir o estado de cristalização e cura total localizada (estado vítreo), a resina tende a estabelecer regiões geolocalizadas de forma randômica ao longo da peça do laminado onde a cura esta praticamente completa e em outras não (regiões destacadas em vermelho na Fig. 28).



Figura 28: Representação esquemática de um polímero com regiões de cura incompleta, adaptado [75].

Nessas regiões de cura incompleta o calor recebido da autoclave não foi suficiente para fornecer energia à matriz e se percorrer todo o processo de cura citado anteriormente, então a resina cessa o processo de polimerização antes do estado vítreo [75].

Segundo Li e Strachan [78], esse processo de cura incompleta provoca alterações das propriedades mecânicas da resina epóxi. Esses autores mostraram que essas propriedades tem relação direta com o nível de cura e este depende da quantidade e forma que a polimerização se apresenta, ou seja, quanto maior o numero de ligações cruzadas, estado mais avançado da cura, maior será o grau de cura dessa resina, como mostra a Fig. 29. Garstka e colaboradores [74], também mostraram que o grau de cura após o ciclo de cura na autoclave também produz cura incompleta, como mostra a Fig. 30.



Figura 29: Peso molecular percentual em cadeias poliméricas em função do grau de cura. Cadeias dispersas/livres (linha sólida verde), cadeias lineares com ramificações ( linha sólida azul), cadeias com ligações cruzadas ( linha sólida preta), adaptado de [75].



Figura 30: Desenvolvimento do processo de cura recomendado pelo fabricante, e grau de cura alcançado para sistemas epóxi. Adaptado [76].

Clancy e colaboradores [81] expandiram esse estudo, e demonstraram como as propriedades mecânicas da resina são diretamente proporcionais ao grau de ligações cruzadas  $\alpha$  dessas amostras, como mostram as figuras 31 e 32.



Figura 31: Módulo de Young, E , como função do grau de ligações cruzadas  $\alpha$  para diferentes temperaturas de cura, adaptado de [81].



Figura 32: Módulo de cisalhamento, G, como função do grau de ligações cruzadas  $\alpha$  para diferentes temperaturas de cura, adaptado de [81].

Um outro aspecto que deve ser levado em consideração, que foi tratado pela pesquisa de Ersoy *et al.* [79], é o fato de que a resina que compõe a matriz polimérica do laminado ao ser curada, está sendo aquecida, derretida e moldada dentro de um involucro curvo. O laminado desenvolve regiões pobres em resina (principalmente na parte curva da peça [44]) e ricas em volume de resina (distribuição volumétrica anisotrópica) conjuntamente com os efeitos térmicos de expansão e contração, fases de aquecimento e resfriamento do ciclo de cura do compósito na autoclave. Essa resina também, conjuntamente, desenvolve regiões de cura completa e regiões não curadas distribuídas de forma relativamente randômica ao longo do laminado [76]. Essa distribuição não uniforme encapsula (prende) tensões residuais que são liberadas assim que o laminado é retirado da autoclave e do molde. Essas tensões residuais que emergem, por sua vez, tendem a provocar aparecimento de forças e momentos, que parecem ser os responsáveis pelas alterações angulares no compósito, os efeitos de *spring-in*, que são medidas imediatamente após o processo de cura[44].

Após o processo de cura do compósito na autoclave, as regiões que tem cura completa e que não estão cem por cento curadas podem estar sujeitas a um rearranjo a nível microscópico, como descrito anteriormente. As regiões que a cura não ocorreu completamente começam então a receber calor do meio ambiente gradativamente e utilizam essa energia para continuar com o processo de cura (cura residual). Esse processo de cura residual promove a continuação das alterações da forma volumétrica e distribuição da resina ao longo do compósito, pois o processo de polimerização continua nessas regiões. Esse fato faz surgir novas tensões residuais. As forças e momentos que originalmente surgiram após a retirada do laminado da autoclave continuam e agir e podem mudar gradativamente de intensidade ( evolução temporal das tensões residuais e das forças e momentos, que aumentam sua intensidade acompanhando o aumento do percentual de cura total da resina polimérica – aumento da rigidez dessa matriz). Esse mecanismo faz com que as propriedades físicas e mecânicas da matriz evoluam no tempo juntamente com essas forças e momentos, o que provoca uma alteração da forma da peça, ou seja, o spring-in evolui, muda de valor, conforme a cura residual se completa ao longo do tempo. Quando esse valor da deformação angular diminui, tem-se uma evidência do efeito de spring-back.

Uma modelagem estatística na forma de regressão multivariável será desenvolvida, e mostrada na parte de resultados estatísticos desse trabalho, principalmente de duas formas principais, cada uma delas com duas modelagens estatísticas distintas. Primeiramente mostrando a influência matemática de diversas grandezas mecânicas correlacionadas com o grau de cura como influenciadores dessas deformações angulares. E em seguida como a evolução temporal dessas forças e momentos influencia os efeitos de *spring-in* e *spring-back*.

#### 1. METODOLOGIA

#### 4.1 Procedimentos experimentais

### 4.1.1 Materiais

Na fabricação de todos os corpos de prova dessa pesquisa foi utilizado um molde em forma de L com 90,0 graus de ângulo interno feito de baixo carbono e aço inoxidável (Fig. 33). Esse molde possuia 5,08 centímetros de raio interno (2,0 polegadas), como mostrado na Fig. 34. O material utilizado na confecção de todas as amostras foi IM7/8552, um *prepreg* de resina epoxi reforçado com fibras de carbono. Suas principais propriedades mecânicas estão descritas na Tabela 5. Nas superfícies do molde foi depositada uma camada com um liquido antiaderente previamente ao processo de colocação das camadas do *prepreg*.



Figura 33: (a) Um molde convexo típico em L e (b) As três espessuras de amostras que foram utilizadas: 4,8 e 16 camadas.

IM7/8552		
E <sub>11</sub>	161,00	GPa
$E_{22}$ (= $E_{33}$ )	11,38	GPa
$G_{12} (= G_{13})$	5,17	GPa
G <sub>23</sub>	3,92	GPa
$v_{12} (= v_{13})$	0,32	
$\upsilon_{23}$	0,45	
$\alpha_{11}$	0,06 x 10 <sup>-5</sup>	m/m/°C
$\alpha_{22} (= \alpha_{33})$	3,00 x 10 <sup>-5</sup>	m/m/°C

Tabela 5: Propriedades mecânicas para o prepreg IM7/8552. Adaptado de [3].

### 4.1.2 Configurações geométricas dos laminados

Para se avaliar os efeitos de *spring-in* e *spring-back*, um total de 81 tipos diferentes de amostras foram analizadas. Esses corpos de prova foram preparados em 9 diferentes sequências de empilhamento angulares (famílias ), como mostrado na Tabela 6.

O símbolo "s" indica que existe uma simetria no empilhamento das camadas. Por exemplo, se a sequência de empilhamento for  $[0^{\circ}, 90^{\circ}]_{s}$ , a ordem das camadas no composito será  $[0^{\circ},90^{\circ},90^{\circ},0^{\circ}]$ . Com o objetivo de se testar compósitos finos e espessos, amostras também foram feitas com 8 e 16 camadas como mostrado na Tabela 6.

A espessura da lâmina do rolo de *prepreg* utilizado é de 0,127 milímetros. Para as familias 8 e 9 listadas na Tabela 6 uma camada do *prepreg* é composta de uma subcamada com orientação (+) e outra com orientação (-), para as lâminas de  $\pm 45^{\circ}$  e  $\pm 30^{\circ}$ . A espessura total de uma camada  $\pm 45^{\circ}$  ou  $\pm 30^{\circ}$  é também de 0,127 mm. Logo, para a sequência de empilhamento da familia 8 ,  $[\pm 45^{0}_{4}]$  , e da família 9 ,  $[\pm 45^{\circ}, \pm 30^{\circ}]_{s}$ , o número de camadas efetivas baseadas na equivalencia de espessura é de 4 camadas.

Família	-	<b>-</b>	
	4	8	16
1	[90 <sup>0</sup> <sub>4</sub> ]	$[90^{0}_{4}]_{s}$	$[90^{0}_{4}]_{2s}$
2	[0°, 90°] <sub>s</sub>	[0°, 90°] <sub>2s</sub>	[0°, 90°] <sub>4s</sub>
3	[45°, 30°] <sub>s</sub>	[45°, 30°] <sub>2s</sub>	[45°, 30°] <sub>4s</sub>
4	$[30^{\circ}, 60^{\circ}]_{s}$	[30°, 60°] <sub>2s</sub>	[30°, 60°] <sub>4s</sub>
5	$[0^{0}{}_{4}]$	$[0^{0}_{4}]_{s}$	$[0^{0}{}_{4}]_{2s}$
6	$[0^{\circ}, 60^{\circ}]_{s}$	$[0^{\circ}, 60^{\circ}]_{2s}$	$[0^{\circ}, 60^{\circ}]_{4s}$
7	[0°, 30°] <sub>s</sub>	[0°, 30°] <sub>2s</sub>	[0°, 30°] <sub>4s</sub>
8	[±45 <sup>°</sup> <sub>4</sub> ]	$[\pm 45^{0}_{4}]_{s}$	$[\pm 45^{0}_{4}]_{2s}$
9	$[\pm 45^{\circ}, \pm 30^{\circ}]_{s}$	[±45°, ±30°] <sub>2s</sub>	[±45°, ±30°] <sub>4s</sub>

Sequência de Empilhamento (camadas)

Tabela 6: Amostras preparadas para se avaliar os efeitos de *spring-in* e *spring-back* em relação a sequência de empilhamento e espessura.

# 4.1.3 Procedimentos de fabricação dos laminados

Todos os corpos de prova foram fabricados sobre um molde em L como pode ser visto na Fig 34 (a), onde as camadas de *prepreg* foram depositadas na parte convexa do molde. Para cada tipo de amostra foram utilizadas três taxas de resfriamento diferentes no processo de cura do compósito na autoclave, como listadas na Tabela 7:



Figura 34: (a) Procedimento de colocação das camadas do *prepreg* no molde, (b) ensacamento e configuração de vácuo nas amostras.

Taxa de resfriamento	Valor (°C/mim)	Valor (°F/mim)
CR1	2,78	5,00
CR2	5,56	10,00
CR3	11,12	20,00

Tabela 7: As três taxas de resfriamento utilizadas no ciclo de temperatura da autoclave para a fabricação das amostras desse estudo.

O ciclo de temperatura da autoclave usado está mostrado na Fig 35, onde as três taxas de resfriamento estão destacadas. Em cada processo de cura do compósito na autoclave (Fig. 36), foram fabricados três corpos de prova por vez.



Figura 35: Ciclos de cura do compósito na autoclave para a temperatura, utilizados na cura dos compósitos.



Figura 36: Autoclave onde as amostras foram curadas.

Na preparação das amostras, os corpos de prova foram depositados no molde e inseridos em um invólucro em sequida, como mostrado na Fig.34 (a) e (b). O vácuo foi aplicado, como mostrado na Fig.34 (b), por 10 minutos após o procedimento de empilhamento das camadas no molde. Os ciclos de cura, um por vez, foram então programados e armazenados no painel da autoclave. A temperatura atual do processo durante o funcionamento da autoclave foi registrada para cada procedimento de cura e seus valores corresponderam aos descritos na Fig. 35. Os ciclos de pressão e vácuo dentro da autoclave estão mostrados na Fig. 37. Quando o compósito a ser curado é introduzido na autoclave a pressão é aumentada imediatamente para 103.4 kPa e o vácuo é feito dentro da câmara da autolclave. Essa pressão é mantida nesse patamar por 100 minutos. Em seguida aumenta instantaneamente para 206.8 kPa , quando é feita ventilação automática na câmara e o vácuo é desfeito, a pressão aumenta até 689.4 kPa e permanece com esse valor até o fim do ciclo, como ilustrado pela Fig. 37.



Figura 37: Ciclos de cura para pressão e vácuo no processo de cura do compósito na autoclave utilizados nessa pesquisa.

4.1.4 Aquisição dos dados experimentais

A fim de melhor ilustrar os efeitos de *spring-in* e *spring-back*, as setas pretas na Fig. 38 mostram o efeito de *spring-in*, definido pelo ângulo  $\Theta_1$ , e as setas vermelhas ilustram o efeito de *spring-back*, definido pelo ângulo  $\Theta_2$ . O efeito de spring-in,  $\Theta_1$ , representa a medida angular após o processo de fabricação na autoclave. Essa deformação acontece após a retirada da amostra do molde, onde seu ângulo interno diminui em relação ao ângulo inicial do molde que é de 90,0 graus.

Por outro lado, o efeito de spring-back,  $\Theta_2$ , representa uma recuperacao parcial dessa deformação em função do tempo depois do processo de fabricação da amostra. Geralmente, somente alguns meses são necessários para se observar o fenômeno de *spring-back*.



Figura 38: Ilustração do ângulo de *spring-in*, representado por  $\Theta_1$ , e do ângulo de *spring-back* representado por  $\Theta_2$ .

A aquisição desses dados angulares foi realizada através de medições utilizandose o equipamento Digi-pass DWL - 3000 XY (Fig. 39).



Figura 39: Digi-pass DWL - 3000 XY

Para se medir a deformação angular, como ilustrado na Fig. 40, esse equipamento foi posicionado em cada haste do compósito em forma de L. A Fig. 40 mostra o sistema de aquisição de dados, ilustrando como o equipamento de medição foi colocado nos eixos horizontal, (a), e vertical, (b). As amostras foram medidas 20 vezes em diferentes posições em cada uma das hastes do compósito. Para cada medição temporal uma média desses valores foi calculada.



Figura 40: Esquema de aquisição de dados que foi utilizado pelo medidor Digi-pass DWL – 3000 XY para aquisição das deformações angulares nas amostras.

A Fig. 41 (a) ilustra os procedimentos adotados para se avaliar o grau de cura de cada uma das amostras que foi feito com um Shimadzu DSC-60A (*Differencial Scanning Calorimetry device* – Fig. 42). Para cada amostra do polímero era fornecido calor pelos aquecedores. Os sensores conectados a um computador obtêm a relação entre o fluxo de calor (mW) em função da temperatura (°C).



Figura 41: Gráfico do fluxo de energia (mW) em função da temperatura (°C) para se avaliar grau de cura da amostra  $[0_4]_s$  pelo período aproximado de 8 meses. (a) Esquema representativo do processamento via DSC da amostra. (b) Grau de cura da amostra em 10 de abril de 2017: 95,26 %. (c) Em 04 de dezembro de 2017: 99,89 %.

As análises DSC foram obtidas em atmosfera dinâmica de  $N_2 UP^4$ , acondicionando aproximadamente 2,5 – 3,5 mg de amostras pulverizadas, em cadinhos de alumínio com tampa ( não fechados hermeticamente).

A área entre as curva em azul e em vermelho representa a parte não curada da resina. Um resultado típico, avaliando o fluxo de energia em função da temperatura para duas datas diferentes de aquição dos dados está mostrado da Fig. 41 (b) e (c). Para a amostra  $[0_4]_s$ , em 10 de abril de 2017, como mostrado na Fig.41 (b), o grau de cura obtido foi de 95,26%. O grau de cura obtido aproximadamente 8 meses após a primeira análise foi de 99,89%, como mostra a Fig. 41 (c). Essa amostra foi curada na autoclave em 9 de março de 2016 utilizando-se a taxa de resfriamento CR3.



Figura 42: Shimadzu DSC-60 (Differential Scanning Calorimetry).

 $<sup>^4</sup>$  N<sub>2</sub> ultrapuro

Se nenhuma área significativa é detectada entre as curvas azuis e vermelhas nos gráficos, a cura pode ser assumida como quase completa, já que qualquer cura ainda restante pode estar fora da faixa de detecção do Shimadzu DSC-60 [72].

O grau de cura [72],  $\alpha$ , pode ser definido como a diferença entre a entalpia da resina curada,  $\Delta H_{curado}$ , e a entalpia da resina não curada,  $\Delta H_{não}$  curado, dividida pela entalpia da resina não curada,  $\Delta H_{não}$  curado, como mostrado na Eq. 6.

$$\alpha = \frac{\Delta H_{curado} - \Delta H_{n\tilde{a}o \ curado}}{\Delta H_{n\tilde{a}o \ curado}} \qquad Equação 6$$

Todas as amostras foram mantidas em uma câmara de isolamento em relação à umidade. Além disso, todos os corpos de prova utilizados nesse estudo foram pesados e tiveram suas dimensões medidas, mês a mês, durante um ano. Verificou-se que não houve alterações no peso ou volume durante esse período de tempo. Por esse motivo, a absorção de umidade foi desconsiderada como um influenciador dos efeitos de *spring-in* e *spring-back*.

## 4.2 Análises estatísticas

Buscou-se um modelo estatístico para avaliar o efeito de *spring-in* nos compósitos considerando-se como variáveis: a sequência de empilhamento das camadas, a taxa de resfriamento e o tempo. A correlação entre o grau de cura via DSC, e a espessura e a sequência angular de empilhamento dos compósitos curvos também foi investigada. O propósito desse estudo prévio seria estabelecer uma relação direta quantitativa entre o grau de cura dessas amostras e o comportamento de recuperação angular do *spring-in* considerando a minimização do erro padrão estatístico.

Essa análise estatística foi realizada de quatro formas principais. Primeiramente, foi proposto o Modelo A: Modelo de regressão multivariável, como descrito na Seção 3.2.1, que descreve a influência de nove variáveis paramétricas interrelacionadas estatisticamente. Utilizou-se como variáveis, grau de cura e propriedades físicas e mecânicas, que serão detalhadamente mostradas nessa secão. Em seguida, propôsse o Modelo B: Temporal Longitudinal, como mostrado na Seção 3.2.2. O Modelo B analisa a influência de cofatores estatísticos pra predizer o spring-in, variável resposta, considerando-se como variáveis as forças e momentos em cada período de tempo que o spring-in foi medido. Nessa análise, em particular, o efeito do decorrer do tempo após as amostras serem retiradas da autoclave, foi um fator explícito considerado como um influenciador dessa variável resposta. O Modelo C: Generalized Additive Model (GAM), como mostrado na Seção 3.2.3, avalia o efeito das forças e momentos locais como influenciadores do spring-in para cada uma das medidas temporais. Em cada umas das medições que foram realizadas, buscou-se mensurar a importância dessas grandezas físicas em cada uma dessas respectivas datas. Essa modelagem GAM também foi realizada levando-se em conta somente a taxa de retorno da deformação angular, ou seja, o springback. Finalmente, a seção 3.2.4 apresenta o Modelo D: Random Forest, que analisa e avalia o efeito preditivo das forças e momentos de forma global, também de duas formas distintas como a realizada para a modelagem GAM, analisando a importância relativa dessas grandezas físicas para explicar o efeito de spring-in em uma primeira modelagem, e em seguida somente para o spring-back.

4.2.1 Modelo A: Modelo de regressão multivariável

Para encontrar um modelo que melhor descrevesse a influência dos parâmetros mecânicos e físicos no efeito de *spring-in* e *spring-back*, um estudo das variáveis envolvidas com a deformação do material foi previamente realizado. O objetivo foi se determinar o melhor tratamento estatístico aplicável aos dados disponíveis. Como pode ser visto na Tabela 8.

Na Tabela 8, os fatores mecânicos e físicos usados nesse estudo foram descritos, mostrando a associação entre eles que foi utilizada. As correspondências entre esses quocientes e as variáveis que foram usadas na construção desse modelo estão descritas nessa tabela.

Fator	Unidade	Variável
Spring-in	graus	Y
$\Delta$ spring-in / $\Delta$ tempo	graus / dias	$\mathbf{X}_1$
$\Delta$ spring-in / taxa de resfriamento	graus / °C	$X_2$
$\Delta$ grau de cura / espessura	$\Delta$ % cura / mm	$X_3$
$\Delta$ grau de cura / $\Delta$ tempo	$\Delta$ % cura / dias	$X_4$
$\Delta$ grau de cura / taxa de resfriamento	$\Delta$ % cura / °C	$X_5$
$\Delta$ grau de cura / $E_x$	Δ% cura * m / N	$X_6$
$\Delta$ grau de cura / $\rm E_y$	Δ% cura * m / N	$X_7$
$\Delta$ grau de cura / $G_{xy}$	Δ% cura * m / N	$X_8$
Taxa de resfriamento	°C / mim	X9

Tabela 8: Relação entre os parâmetros mecânicos e físicos usados como variáveis no modelo paramétrico de regressão multivariável e a associação utilizada na modelagem entre esses quocientes e as variáveis adotadas no modelo.

## 4.2.2 Modelo B: Modelo de regressão multivariável temporal longitudinal

O banco de dados utilizado foi composto de 81 corpos de prova. Essas amostras foram medidas em 10 datas diferentes, entre maio de 2016 e agosto de 2018. Esses períodos de medição foram codificados a partir de "0", a medida de tempo inicial que corresponde a quando os últimos compósitos fabricados foram retirados da autoclave, até "9", última medição de *spring-in* que foi considerada nessa análise. O tempo em dias, e em meses entre a medição inicial de *spring-in* e essas medições posteriores estão mostrados na Tabela 9.

Medições de spring-in	Tempo (dias)	Tempo (meses)
0	0	0
1	29	0,97
2	57	1,90
3	261	8,70
4	342	11,40
5	372	12,40
6	403	13,43
7	586	19,53
8	648	21,60
9	850	28,33

Tabela 9: Tempo, em dias e em meses, entre a medição inicial de spring-in e as subsequentes.

Medições adicionais foram realizadas em setembro, outubro, novembro e dezembro de 2018, mas desde agosto de 2018 (medição de número 9 presente na Tabela 9)

não foram detectadas mudanças angulares nas medidas das amostras, portanto somente as medidas coletadas entre maio de 2016 e agosto de 2018 foram utilizadas nessa análise estatística. As variáveis utilizadas para esse estudo são as componentes das forças (N) e momentos (M) obtidos para cada uma dessas medições de *spring-in*. Elas são:  $M_x$ ,  $M_y$ ,  $M_{xy}$ ,  $N_x$ ,  $N_y$ ,  $N_{xy}$ . Uma descrição detalhada de como essas grandezas físicas foram obtidas encontra-se na próxima seção.

Segundo Fitzmaurice *et al.* [82] quando é ajustado um modelo de regressão linear simples, algumas suposições são feitas, como assumir variância constante para os erros do modelo. Quando temos dados coletados durante o tempo, essa suposição é frágil e provavelmente quebrada. A alternativa mais usual para contornar esse fato são os modelos marginais para dados longitudinais em que, além de modelar a média, vai ser estudada também a estrutura de variância-covariância. Utilizamos o método de máxima verossimilhança (usual ou restrito) para estimar os parâmetros da estrutura de média e covariância escolhida simultaneamente. Os modelos marginais (GEE) não assumem distribuição para a variável resposta e investigam qual é o impacto ao utilizar W em detrimento de V na estrutura de covariância e variância, assumindo que inicialmente V seria a ideal. Assim, os valores de  $Q_i$  estimados dos parâmetros  $\beta$ , serão obtidos a partir de:

$$Q_i = (y_i - X_i \beta)^{\gamma} V_0^{-1} (y_i - X_i \beta)$$
 Equação 7

Onde X representa as covariáveis de  $X_1$  a  $X_9$  citadas anteriormente, e Y o *springin*. As flexibilidades suposições do GEE são: Investigar a possibilidade de não especificar distribuição para Y e qual o impacto ao utilizarmos erroneamente W ao invés da estrutura correta V e o principio das equações de estimação generalizadas, como mostrado por Diggle et al [83]. O efeito é que a estimação pontual não é viciada, porém, a variância é viciada, entretanto bem próxima da original caso a estrutura fosse correta, sendo na maioria das vezes um estimador razoável. Portanto, no GEE requer apenas a especificação correta da estrutura de média das variáveis resposta, sem fazer qualquer suposição distribucional. O GEE gera valores estimados consistentes e assintoticamente normais para os parâmetros, mesmo com a má especificação da estrutura de variância. As possibilidades de especificação da estrutura de variância são: independência (dados longitudinais não correlacionados), simetria composta (mesma correlação para todos os componentes), AR(1)<sup>5</sup>, a correlação vai diminuindo ao longo do tempo, porém é válida apenas para medidas igualmente espaçadas e não estruturadas, que estimam todos as  $\frac{n(n-1)}{2}$  correlações [82,83].

## 4.2.2.1 Sistematização para o cálculo das forças e momentos

Primeiramente, com os valores do grau de cura em duas datas diferentes para cada amostra, foi realizada uma regressão linear simples. À partir dessa regressão linear, obtevese o grau de cura aproximado para cada uma das 10 datas em que foi realizada a medição de *spring-in* (apêndice 9.1). Esse percentual de grau de cura foi então utilizado para corrigir as constantes mecânicas listadas na Tabela 10.

Símbolo da propriedade mecânica	Nome
$E_X$	Módulo Longitudinal
$E_y$	Módulo Transversal
$G_{xy}$	Módulo de Cisalhamento no plano
$\upsilon_{xy}$	Coeficiente de Poisson
$\begin{array}{l} \eta_{xy,x} \\ \eta_{xy,y} \end{array}$	Coeficientes de influência mútua

Tabela 10: Constantes Mecânicas usadas na Teoria Clássica de Laminação (TCL) para se obter as matrizes de rigidez.

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup> Estrutura de auto correlação de primeira ordem.

A Teoria Clássica de Laminação (TCL) [84] foi utilizada no cálculo das matrizes de rigidez **A** e **D**. Primeiramente devemos calcular a matriz de rigidez **S**, a partir das constantes mecânicas apuradas anteriormente utilizando-se as relações:

$S = \begin{bmatrix} S_{11} & S_{12} & 0\\ S_{12} & S_{22} & 0\\ 0 & 0 & S_{66} \end{bmatrix}$	Equação 8
$S_{11} = \frac{1}{E_x}$	Equação 9
$S_{22} = \frac{1}{E_y}$	Equação 10
11000	

$$S_{12} = -\frac{e_{xy}}{E_x}$$
 Equação 11

$$S_{12} = \frac{1}{G_{xy}}$$
 Equação 12

Em seguida obtêm-se a matriz inversa de [S], denominada matriz de rigidez reduzida [Q], com orientação a 0 graus (  $[Q] = [S]^{-1}$ ). A partir dessa matriz [Q] todas as outras orientações de lâminas, camada a camada, serão obtidas através das matrizes de rotação,  $T_{\sigma}(\theta) \ e \ T_{\varepsilon}(\theta)$ :

$$[T_{\sigma}(\theta)] = \begin{bmatrix} m^2 & n^2 & 2mn \\ n^2 & m^2 & -2mn \\ -mn & mn & m^2 - n^2 \end{bmatrix}$$
 Equação 13

$$[T_{\varepsilon}(\theta)] = \begin{bmatrix} m^2 & n^2 & mn \\ n^2 & m^2 & -mn \\ -2mn & 2mn & m^2 - n^2 \end{bmatrix}$$
 Equação 14

Onde : m= cos  $\theta$ n = sen  $\theta$  $\theta$  = orientação angular das fibras

Com essas matrizes de transformação,  $T_{\sigma}(\theta) \ e \ T_{\varepsilon}(\theta)$ , e a matriz Q, obtêm-se a matriz  $\overline{Q}_{\theta}$ , conforme a equação 15:

$$\overline{Q}_{\Theta} = [T \sigma]^{-1} . [Q] . [T_{\mathcal{E}}]$$
 Equação 15

Como os compósitos fabricados são todos eles simétricos, então pode-se considerar a matriz de rigidez B (rigidez de acoplamento extensão-flexão) igual a zero, **B**=0. Para as matrizes A (de rigidez extensional) e D (rigidez de flexão) utiliza-se as equações abaixo para o seu cálculo.

$$[A] = \sum_{k=1}^{n} [\overline{Q}_{\theta}](h_k - h_{k-1})$$
 Equação 16

$$[D] = \frac{1}{3} \sum_{k=1}^{n} [\overline{Q}_{\theta}] (h_{k}^{3} - h_{k-1}^{3})$$
 Equação 17

Seguindo as convenções apresentadas na Fig. 43, obtêm-se as matrizes de rigidez para cada sequência de empilhamento e espessura.



Figura 43: Representação esquemática de um empilhamento genérico de um compósito simétrico, com todas as camadas de mesma espessura t. Onde n representa o número total de camadas do laminado e k é da forma:  $n \ge k \ge 0$ .

Em seguida foram obtidos os valores dos respectivos deslocamentos e curvaturas também para cada uma das datas em que a medição do *spring-in* ocorreu, esse tratamento matemático/geométrico realizado encontra-se na próxima seção.

## 4.2.2.1.1 Cálculo dos deslocamentos e curvaturas

No cálculo dos deslocamentos e das curvaturas foi utilizada uma adaptação da metodologia desenvolvida por Ding *et al.* [19] e Zhu e Geubelle [85], como mostrado na Fig. 44. Esses autores utilizaram uma malha de pontos discretizada por elementos finitos para prever a evolução da deformação linear, e também a alteração da curvatura das amostras. Nesse trabalho, uma estratégia similar foi desenvolvida. O deslocamento vertical (ao longo do eixo Z da Fig. 44) foi computado como sendo o deslocamento produzido pelo efeito de *spring-in* e *spring-back*, os demais deslocamentos ao longo dos eixos X e Y foram considerados desprezíveis e desconsiderados.


Figura 44: Representação esquemática do perfil estrutural do compósito para cálculo das curvaturas e deslocamentos, adaptado de [85].

A Fig. 45 (a) ilustra a convenções dos eixos mutuamente perpendiculares que foi usada, e Fig. 45 (b), a representação esquemática das forças (N) e momentos (M) seguindo essa convenção direcional.



Figura 45: Convenção dos eixos mutuamente perpendiculares (a) que foi utilizada no cálculo das forças e momentos para as amostras (b).

# 4.2.2.1.1.1 Cálculo das curvaturas

A Fig. 46 mostra o esquema geral, e a Fig. 47 o esquema específico que foram utilizados, para obtenção da curvatura em cada amostra a partir de suas respectivas medições de *spring-in*.



Figura 46: Esquema geral para cálculo geométrico da curvatura das amostras através da deformação de *spring-in* em cada medição temporal.



Figura 47: Esquema específico para cálculo geométrico da curvatura das amostras através do ângulo de deslocamento do *spring-in*.

Considerem-se, os eixos em preto da Fig. 46 como sendo a amostra em sua geometria original. Após a deformação angular de *spring-in* ou *spring-back* essa amostra sofre a deformação concêntrica mostrada pela reta em vermelho. Alterando-se portanto sua curvatura, e ocorrendo um deslocamento vertical como esquematicamente apresentado na

Fig. 47. Realizando-se os cálculos geométricos necessários obtêm-se uma relação matemática como a proposta pela equação 18 para a curvatura dos compósitos nessa nova configuração angular.

$$Tg \Theta_{d} = \frac{a}{R}$$

$$a = R Tg \Theta_{d}$$

$$R_{1} = R - a$$

$$R_{1} = R - R Tg \Theta_{d}$$

$$R_{1} = 1 (1 - Tg \Theta_{d})$$

$$C = \frac{1}{R_{1}}$$

$$C = \frac{1}{1 (1 - Tg \theta_d)}$$



Portando o cálculo da curvatura de cada amostra para as deformações de *spring-in* e de *spring-back* pode ser obtido pela equação 18 acima.

#### 4.2.2.1.1.2 Cálculo dos deslocamentos

A Fig. 48 mostra o esquema utilizado para o cálculo geométrico do deslocamento em cada uma das amostras, também a partir do spring-in apurado em cada medição. Nessa

figura, de forma análoga àquela esquematização proposta anteriormente no cálculo das curvaturas, os eixos em preto representam a amostra com sua geometria original e em vermelho após sofrerem deformação. Seguindo essa premissa, obtém-se a equação 19 para o cálculo dos deslocamentos em cada corpo de prova.



Figura 48: Esquema para cálculo geométrico do deslocamento linear das amostras através do ângulo de *spring-in*.

Sen  $\Theta_d = \frac{D_z}{X}$ 

$$D_z = X \operatorname{Sen} \Theta_d$$

Equação 19

A equação 19 descreve como foi obtido o deslocamento em cada uma das amostras, braço de alavanca, através do ângulo de deformação de *spring-in* e *spring-back*, para posterior cálculo dos respectivos momentos. O deslocamento utilizado então para o cálculo das forças e momentos temporais foi computado para cada amostra, em cada orientação por eixo, seguindo as equações da Teoria clássica de Laminação para compósitos angulares, como discutido na próxima seção.

4.2.2.1.2 Cálculo das forças e momentos

Finalmente com as matrizes de rigidez **A** e **D** podemos calcular as forças e os momentos a partir dessas matrizes e dos deslocamentos e curvaturas , segundo as equações 20 e 21 a seguir:

$$\begin{bmatrix} N_{x} \\ N_{y} \\ N_{xy} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \mathbf{A} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathcal{E}_{x}^{0} \\ \mathcal{E}_{y}^{0} \\ \gamma_{xy}^{0} \end{bmatrix}$$
 Equação 20

$$\begin{bmatrix} M_x \\ M_y \\ M_{xy} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \mathbf{D} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} K_x \\ K_y \\ K_{xy} \end{bmatrix}$$
 Equação 21

Onde,  $\mathcal{E}^0 = \frac{D_Z}{D_0}$  e  $\gamma^0 = \frac{D_Z}{D_0}$ , D<sub>0</sub> representa a espessura do laminado.

Onde  $\mathcal{E}_n^0$  e  $\gamma_{xy}^0$  representam os deslocamentos calculados anteriormente e K<sub>n</sub> as curvaturas. No cálculo das forças e momentos para a modelagem *spring-in* foram utilizadas as medições temporais de deformação angular medidas nas 10 datas citadas na tabela 8. Já para o cálculo das forças e momentos no caso do *spring-back*, onde se desejava avaliar

somente a recuperação angular temporal das amostras, foi utilizada a primeira medição de *spring-in* como referência e as nove medições posteriores foram subtraídas dessa medição inicial. Assim considera-se somente o efeito de *spring-back*.

Um fluxograma explicativo contendo as etapas do cálculo das forças e momentos, usando a Teoria Clássica de Laminação, a partir do grau de cura em cada medição do *spring-in* e do seu respectivo grau de cura da resina, está sumarizado na Fig. 49.



Figura 49: Fluxograma para a obtenção das forças e momentos a partir do grau de cura e *spring-in* das amostras.

#### 4.2.3 Modelo C: Generalized Additive Model (GAM)

Foram utilizadas modelagens de regressão para testar a predição das variáveis Y (*spring-in e spring-back*) e X (forças e momentos) em diferentes medições temporais.

Assim, um banco de dados foi construído, constituído de 10 medições de Y em diferentes datas de diferentes anos (2016, 2017 e 2018) com seis variáveis X como preditivas alinhadas a cada data,  $N_x$ ,  $N_y$ ,  $N_{xy}$ ,  $M_x$ ,  $M_y$  e  $M_{xy}$ . Previamente a construção dos modelos do banco de dados temporal, todas as variáveis X que integraram os modelos finais foram submetidas ao teste de correlação de Pearson usando função *chart.Correlation* do pacote *PerformanceAnalytics* [86]. Considerou-se como critério e separação de variáveis com alta multicolinearidade, coeficientes de Pearson maiores que 0.70 ou menores que -0.70, evitando sobreposição e mascaramento da real contribuição linear de cada variável X para a predição do Y [60].

Também como pré-teste foram conduzidos testes de linearidade entre as variáveis Y e X utilizando testes de Komolgorov-Smirnov e Cramér-Von-Mises [87] usando a função *cumres* do pacote *gof* no software R versão 3.5.1 [61]. Os testes de linearidade para cada modelo foram feitos aplicando-se um modelo linearizado (LM – *Linearized Model*) com as mesmas variáveis Y e X que entraram nos modelos GAM e se p-valores dos dois testes fossem menores que 0,05 em algum X, então sua relação com Y seria não linear.

Uma vez que foram evidenciadas relações não-lineares da maioria dos X com os Y medidos em suas respectivas datas, aplicou-se um modelo generalizado aditivo (GAM – *Generalized additive model*). Esse modelo é uma solução robusta quando as relações são complexas entre variáveis e não podem ser modeladas usando simples funções lineares [88,89,90,91,92]. O GAM utiliza funções de *smooth* que permitem atenuar o preditor linear de forma a ajustar sua relação não linear com a variável resposta [93]. Além disso, o modelo GAM permite generalizações de distribuição de erros de qualquer família pertence à distribuição de probabilidades exponencial (como por exemplo: Gaussiana, Poisson e Binomial) [94]. Nos modelos GAM do presente trabalho, a distribuição de erros considerada foi a gaussiana devido a natureza contínua dos dados. Outra razão pela qual foi utilizado o GAM é sua flexibilidade aditiva para melhor controlar efeitos de autocorrelação temporal [95]. Os modelos GAM foram executados usando a função *gam* do pacote *mgcv* [96] no software R versão 3.5.1 [97].

Em cada modelo GAM foi verificada a concurvidade entre as variáveis preditivas usando a função *concurvity* do pacote *mgcv* da biblioteca do software R. A concurvidade pode ser vista como uma generalização da colinearidade. Pode causar problemas similares de sobreposição devido a sobreposição estatística entre as variáveis preditivas em suas contribuições para a variável resposta [98, 99, 100]. Assim, a concurvidade mostrada em valores de 0 indicam nenhum viés e 1 indica total falta de identificabilidade da contribuição real de cada preditiva [99]. Dos 10 modelos GAM, nove mostraram valores de concurvidade entre 0 e 1, tendo assim sido mantidas todas as suas preditivas elencadas inicialmente. Apenas um modelo apresentou uma variável com concurvidade precisamente igual a 1 e essa foi removida do modelo. Aos modelos GAM, foi adicionada a estrutura *corAR1* do pacote *nlme*, que é relativa a estrutura de correlação de primeira ordem e uma das mais amplamente utilizadas e conhecidamente robustas para controlar enviesamentos de modelos com variáveis com dependência temporal [94,101]. A correlação temporal entre os resíduos de um modelo pode enviesar o cômputo de seus parâmetros, fornecendo p-valores não confiáveis e a estrutura *corAR1* controla esse viés de autocorrelação temporal de variáveis advindos de medições em datas temporais distintas [94,102]. O ajuste dos resíduos dos modelos GAM foi verificado observando principalmente a simetria na distribuição de frequência dos resíduos crus (raw residuals) no gráfico Histogram of Residuals que está incluído dentre os gráficos de diagnóstico de ajuste do modelo. Todas as análises descritas acima, também foram realizadas utilizando-se o software R versão 3.5.1.

#### 4.2.4 Modelo D: Random Forest

Foi utilizado um modelo Random Forest de regressão via árvore de decisão para testar a predição do Y final (2018), considerado estacionário, a partir de 60 variáveis X preditivas de diferentes datas em diferentes anos (2016, 2017 e 2018). Nessa modelagem, como também foi realizada na modelagem GAM anterior, foram utilizadas as mesmas forças e momentos resultantes para o *spring-in* e *spring-back*. Essas 60 variáveis preditivas,

também foram selecionadas após se ter conferido seus níveis de multicolinearidade através dos coeficientes de Pearson. Usou-se a função *chart.Correlation* do pacote *performance Analytics*. Assumiu-se também, como critério de alta e não aceitável multicolinearidade, para aquelas covariáveis com coeficientes maiores que 0.70 ou menores que -0.70, evitando-se sobreposição e mascaramento da real contribuição linear de cada variável X para a predição do Y. Assim, todas as 60 variáveis preditivas aqui usadas tiveram coeficientes abaixo do crítico mencionado, sendo portanto, aceitáveis num mesmo modelo.

O modelo Random Forest é uma técnica de aprendizagem computacional autointerativa supervisionada. Produz múltiplos modelos, a partir de um conjunto de dados de treinamento sobre os dados fornecidos, e então simplesmente combina suas regras de saída (variáveis preditivas), gerando assim um modelo robusto de alto desempenho que corrige a superestimativa de amostragem (*overfitting*) e equilibra desigualdades em variância [103]. Ou seja, esse modelo melhora o poder preditivo a partir de árvores decisão, reduzindo suas variâncias a partir do cálculo de suas médias. A árvore de decisão é um tipo de modelagem que opera com ganho de informação em cada nó, classificando pontos de dados com maior incremento de informação em cada um dos nós. Quando todos os nós são esgotados quanto às suas classificações em ganho de informação, o modelo atinge seu resultado de ótimo desempenho. O modelo Random Forest é considerado em diversos casos a mais robusta abordagem em termos de árvores de decisão. Ele não seleciona todos os pontos de dados nos nós em cada uma das árvores de decisão como diversos outros modelos fazem, mas ao contrário disso, coleta os pontos de dados e variáveis aleatoriamente em cada árvore criada, removendo viés.

Em seus resultados, o Random Forest fornece porcentagem de explicação da variância do Y a partir do conjunto todo de preditivas considerado e também a média do erro residual quadrado nas predições a partir de uma abordagem chamada *Out of Bag Error Estimation (OBB*, um método robusto e eficiente de ajuste e estimativa de erros [96]. Além disso, o Random Forest é um modelo de boa performance para dados temporais, especialmente a partir de medições a curto e médio prazo no tempo [104]. O modelo Random Forest foi computado usando a função *randomForest* do pacote de mesmo nome

[85] no software R versão 3.5.2 , utilizando 500 árvores de decisão e 40 variáveis preditivas por nó. A modelagem foi conduzida sob 70% das amostras das variáveis no banco de dados (*train set*), visando comparar o desempenho em relação à predição pelo conjunto de dados de teste-validação (*validation set*), respectivamente. Os resultados descritos foram conduzidos com o subconjunto de dados de treinamento (*train set*, 70% das observações). O número de preditivas por nó (10) foi obtido usando a função *tuneRF* do pacote *randomForest*, a qual aponta a partir de quantas preditivas o erro de predição do modelo é reduzido.

Para se verificar a acurácia de predição do modelo foram adotados alguns pósdiagnósticos. Primeiro, foi computado o erro quadrado médio (Mean Squared Error-MSE) em relação ao número de variáveis utilizado em cada nó da árvore de decisão, considerando todas as 60 preditivas por nó. O MSE foi computado em relação ao número de preditivas consideradas por nó para o banco de dados teste (Test ou validation set) para os 30% restante dos dados e para os dados de treinamento (train set) com todas as árvores ajustadas através do Out of Bag Error Estimation (OBB). A acurácia preditiva do modelo Random Forest calculado nesse trabalho foi estimada ajustando função linear (LM) para o modelo conduzido sobre os dados de validação (validation set, 30% dos dados) e demonstrada pelo valor de R<sup>2</sup>. Adicionalmente, utilizando a função rfcv do pacote randomForest, computouse um teste de 'cross-validation' para performance do modelo com número sequencialmente reduzido de preditivas (ranqueadas por suas importâncias) [105]. A contribuição de cada variável preditiva para predição do modelo foi computada usando a função importance do pacote randomForest, elencando os resultados em ordem decrescente, sendo as variáveis mais importantes aquelas com maiores valores demonstrados no método de estimativa de importância, "IncMSE" [106].

# 5. RESULTADOS E DISCUSSÃO

5.1 Resultados da modelagem estatística

5.2.1 Modelo A: Modelo de Regressão Multivariável.

Nessa seção a partir de um modelo de regressão, a relação entre as 9 variáveis mecânicas e físicas medidas (conforme descrito anteriormente na Tabela 3) com a variável resposta Y (spring-in) será investigada. A análise descritiva prévia que foi realizada estará discutida.

O histograma, *boxplot* e gráfico Normal Q-Q *Plot* para a variável resposta Y é mostrado na Fig. 50. Análises descritivas das outras variáveis do modelo, X<sub>1</sub>, X<sub>2</sub>, X<sub>3</sub>, X<sub>4</sub>, X<sub>5</sub>, X<sub>6</sub>, X<sub>6</sub>, X<sub>8</sub> e X<sub>9</sub>, são apresentadas no anexo A.

Nota-se a presença de pontos atípicos no *boxplot*, e distribuição com caudas pesadas. É possível concluir que existem evidências contra a suposição de normalidade, pois os pontos no Q-Q *Plot* (último gráfico) estão distantes da reta. A Tabela 11 apresenta a matriz de correlação de *Pearson* dos dados originais.

Nota-se a presença de altas correlações entre as possíveis covariáveis do modelo de regressão, como exemplificado e destacado entre  $X_3$  e  $X_8$ , sendo praticamente uma associação positiva e perfeita.



Figura 50: Análise descritiva da variável resposta Y.

De acordo com Dormann *et al.* [107], para se evitar problemas de multicolinearidade, apenas uma dessas variáveis deve ser mantida na modelagem estatística e a outra deve ser desconsiderada. Nesse caso, aquela variável X que possui a correlação mais alta com a variável Y é mantida, conforme mostrado na primeira coluna desta tabela. Com relação às variáveis  $X_3$  e  $X_8$  exemplificadas, a variável  $X_3$  é mantida, pois tem maior correlação com a variável Y, 0,268, que a variável  $X_8$ , que tem correlação com Y de 0,203.

O maior valor de multicolinearidade entre as variáveis X e a variável Y, que neste caso foi a variável X<sub>3</sub> (-0,346), foi destacado em negrito na primeira coluna da tabela. Valores de multicolinearidade superiores a 0,500 também foram destacados entre as variáveis X, como 0,588, entre as variáveis  $X_5$  e  $X_8$ .

122
-----

	Y	X <sub>1</sub>	<b>X</b> <sub>2</sub>	X <sub>3</sub>	X <sub>4</sub>	X5	X <sub>6</sub>	$\mathbf{X}_7$	<b>X</b> <sub>8</sub>	X9
Y	1,000	-0,346	-0,288	0,268	0,180	0,079	0,166	-0,028	0,203	-0,017
$\mathbf{X}_1$	-0,346	1,000	0,800	-0,229	0,118	0,083	-0,451	0,146	-0,152	0,102
$\mathbf{X}_{2}$	-0,288	0,800	1,000	-0,253	0,037	-0,170	-0,398	0,070	-0,193	-0,006
<b>X</b> <sub>3</sub>	0,268	-0,229	-0,253	1,000	0,724	0,570	0,662	0,747	0,986	0,211
$\mathbf{X}_4$	0,180	0,118	0,037	0,724	1,000	0,770	0,349	0,545	0,747	0,242
<b>X</b> <sub>5</sub>	0,079	0,083	-0,170	0,570	0,770	1,000	0,268	0,416	0,588	0,203
<b>X</b> <sub>6</sub>	0,166	-0,451	-0,398	0,662	0,349	0,268	1,000	0,171	0,569	0,162
$\mathbf{X}_7$	-0,028	0,146	0,070	0,747	0,545	0,416	0,171	1,000	0,803	0,140
<b>X</b> <sub>8</sub>	0,203	-0,152	-0,193	0,986	0,747	0,588	0,569	0,803	1,000	0,210
X9	-0,017	0,102	-0,006	0,211	0,242	0,203	0,162	0,140	0,210	1,000

Tabela 11: Matriz de correlação de Pearson para os dados originais

Cada número em negrito está relacionado a duas variáveis. Essas variáveis estão fortemente relacionadas e terão uma grande influência na previsão do efeito de *spring-in*. Além disso, as "variáveis em negrito  $(X_i-X_j)$ " exercem influência mútua na previsão do modelo de *spring-in* em construção. Variáveis em negrito com valores altos, como por exemplo,  $(X_2-X_1, X_8-X_3 e X_8-X_7)$ , são as que têm maior influência na predição de *spring-in*. No entanto, as variáveis  $X_8-X_5 e X_8-X_6$  não podem ser negligenciadas, pois também terão influência nas previsões da modelagem estatística. O "efeito mútuo" mais importante na predição do *spring-in* é a variável  $X_8$ - $X_3$ , o que significa que o efeito combinado da variação da cura pela rigidez do acoplamento e o grau de variação da cura pela a espessura são variáveis essenciais e mais relevantes para a predição do efeito de *spring-in*.

Não é interessante manter no mesmo ajuste, variáveis fortemente correlacionadas, para se evitar problemas de multicolinearidade, o que superestima o desvio padrão das estimativas dos parâmetros no modelo final. Nota-se também baixa correlação das candidatas a preditoras com a variável resposta Y, sendo a maior com  $X_1$ . Para a construção do modelo, foi realizada análise fatorial via componentes principais, para se criar fatores independentes entre si e seus escores utilizados como covariáveis para modelar a variabilidade da variável resposta Y. A Tabela 12 apresenta o resultado final da análise fatorial com dois fatores.

Variável	Fator 1	Fator 2	Comunalidade
$\mathbf{X}_1$	-0,197	-0,921	0,88
$\mathbf{X}_2$	-0,282	-0,850	0,80
$X_3$	0,971	-0,036	0,94
$\mathbf{X}_4$	0,820	-0,332	0,78
$X_5$	0,721	0,211	0,57
$X_6$	0,637	0,468	0,63
$X_7$	0,736	-0,371	0,68
$X_8$	0,967	-0,059	0,94

Tabela 12: Análise Fatorial

O fator 1,  $F_1$ , bem como o fator 2,  $F_2$ , são compostos pelas variáveis  $X_1$ ,  $X_2$ ,  $X_3$ ,  $X_4$ ,  $X_5$ ,  $X_6$ ,  $X_7$  e  $X_8$ . Os 2 fatores escolhidos representam 77,80% da variabilidade total. Ao realizar a análise com 2 fatores, a variável  $X_9$  apresentou comunalidade muito baixa e ao

estender para 3 fatores não se agrupou com nenhuma outra variável. Como não é interesse um fator ser composto por apenas uma variável,  $X_9$  foi excluída da analise fatorial, entrando no modelo na sua forma original. Constatou-se que as variáveis no mesmo fator são mais parecidas entre si. Isso quer dizer que a variável  $X_9$  não é parecida com nenhuma outra. Esse fato era esperado, pois ao se observar a Tabela 11, nota-se que as correlações de  $X_9$  com as outras variáveis são baixas.

A Tabela 13 mostra os coeficientes utilizados para cálculo dos coeficientes. Esse cálculo pode ser feito de duas maneiras, considerando-se todas as variáveis ou apenas aquelas que se agruparam no fator. As duas abordagens foram consideradas.

Variável	Fator1	Fator2
$X_1$	-0,048	-0,441
$X_2$	-0,068	-0,407
$X_3$	0,235	0,017
$X_4$	0,198	-0,159
$X_5$	0,174	-0,101
$X_6$	0,154	0,224
$X_7$	0,178	-0,178
$X_8$	0,234	-0,028

Tabela 13: Coeficientes para cálculo dos escores.

Portanto, os escores do fator 1 e fator 2 são calculados como:

$$\begin{split} F_1 = & -0,048 * X1 - 0,068 * X2 + 0,235 * X3 + 0,198 * X4 + 0,174 * X5 \\ & + 0,154 * X6 + 0,178 * X7 + 0,234 * X8 \end{split}$$

$$F_2 = -0.441 * X1 - 0.407 * X2 + 0.017 * X3 - 0.159 * X4 - 0.101 * X5 - 0.224 * X6 - 0.178 * X7 - 0.028 * X8$$

## Equação 23

É possível notar que os escores do Fator 1,  $F_1$ , são dominados pelas variáveis  $X_3$ ,  $X_4$ ,  $X_5$ ,  $X_6$ ,  $X_7$  e  $X_8$  e do Fator 2,  $F_2$ , pelas variáveis  $X_1$  e  $X_2$ , valores em negrito na Tabela 13. Foi também calculado um escore levando-se em consideração apenas essas questões para os dois fatores, que foi chamado de fator corrigido. A vantagem de se realizar a análise fatorial é sair da configuração que se tem muitas variáveis correlacionadas entre si para o cenário com menos variáveis, não correlacionadas, e que resumem de forma satisfatória toda a informação original da variabilidade.

A Fig. 51 mostra os gráficos de dispersão dos escores dos fatores (normais e corrigidos) com a variável resposta Y. Entende-se como fator corrigido aquele em que os escores foram calculados apenas com as variáveis que compõe o mesmo. Nota-se a evidência da ausência de uma associação linear.

Nota-se que, como esperado, as maiores correlações são entre os fatores 1 e 2 e o seu respectivo fator corrigido. A correlação entre o Fator 1 e Fator 2 é 0. Na Tabela 15 observamos o ajuste do modelo linear, a estimativa de mínimos quadrados dos parâmetros e o teste t para os coeficientes. Nota-se que o fator 1 e fator 2 foram significativos considerando a probabilidade de erro do tipo 1 igual a 0,05.



Figura 51: Gráfico de dispersão suavizado entre escores dos Fatores e a variável resposta Y.

A Tabela 14 apresenta a matriz de correlação entre os escores dos fatores.

	Y	F <sub>1</sub>	F <sub>2</sub>	$F_2$ corrigido	F1 corrigido
Y	1,00	0,22	0,27	0,29	0,21
$F_1$	0,22	1,00	0,00	0,28	0,93
$F_2$	0,27	0,00	1,00	0,85	-0,23
F <sub>2</sub> corrigido	0,29	0,28	0,85	1,00	0,07
F <sub>1</sub> corrigido	0,21	0,93	-0,23	0,07	1,00

Tabela 14: Matriz de correlação entre os escores.

	Estimativa	Erro Padrão	Valor p
Intercepto	1,2382	0,0456	< 0,001
$\mathbf{F}_1$	0,1142	0,0478	0,0200
$F_2$	0,1295	0,0485	0,0090

Tabela 15: Modelo Linear ajustado.

Portanto o modelo linear, que prevê o efeito de spring-in ao longo do tempo,  $\hat{Y}$ , é da forma:

$$\hat{Y} = 1,238 + 0,114 * F_1 + 0,129 * F_2$$

#### Equação 24

Através da análise de resíduos, observa-se evidências para rejeição da hipótese de normalidade dos erros do modelo a partir do Q-Q *Plot*, devido ao fato das caudas serem pesadas, Fig. 52 (a). Porém, desvios naquela região são esperados. No gráfico de resíduos padronizados versus valores ajustados, é possível notar um ponto distante dos demais. Ao ser excluído, todos os coeficientes deixam de ser significativos. Portanto, foi escolhido mantê-lo, Fig. 52 (b). A Fig. 52 (c) apresenta o histograma dos resíduos com relativa tendência central, mas com pouca simetria. No gráfico da Fig. 52 (d): resíduos versus ordem, não temos fortes evidências da rejeição da hipótese de independência dos erros. Os escores foram calculados a partir da Tabela 15, sem considerar o fator corrigido, pois não se observou diferenças significativas entre o fator com e sem correção.



Figura 52: Análise de resíduos para o modelo de regressão multivariável linear.

Foi ajustado também um modelo não linear, relacionado à variável resposta Y e os escores dos fatores. Na Fig. 53, temos a reta ajustado e sua equação. A estimativa do parâmetro foi de 1,16738, com erro padrão de 0,06340.

A Fig. 54 exibe a análise de resíduos para o modelo não linear. A hipótese de normalidade para os erros do modelo parece mais adequada, Fig. 54 (a), do que a análise anterior para o modelo linear, Fig. 51, mesmo apresentando um desvio grande na cauda da distribuição, Fig. 54 (b). Nos gráficos de resíduos padronizados versus valores ajustados e de resíduos padronizados versus ordem, não é possível notar a presença de indícios para a rejeição da hipótese de independência e variância constante dos erros do modelo, Fig. 54 (c) e (d) respectivamente.



Figura 53: Modelo não linear para a regressão multivariável em relação ao fator 1.

# Gráficos de resíduos de Y



Figura 54: Análise de resíduos para o modelo não linear.

A Figura 55 apresenta o gráfico de dispersão do fator 2 com a variável resposta Y e a forma da equação ajustada. A estimativa do parâmetro foi de 1,21221, com erro padrão de 0,04200.



Figura 55: Modelo não linear de regressão multivariável em relação ao fator 2.

A Fig. 56 apresenta a análise de resíduos do modelo ajustado. A hipótese de normalidade não é rejeitada a partir do gráfico de probabilidade normal, Fig. 56 (a), pois a maioria dos pontos estão próximos da reta, e nem pelo histograma, Fig. 56 (b). Também não é possível notar evidências fortes para a rejeição da hipótese de independência e variância constante, Fig. 56 (c) e (d). Como visto anteriormente, foi decidido manter o ponto com valor ajustado muito superior aos demais.

Assume-se que o *spring-in* ocorre devido a mudanças estruturais decorrentes do processo de polimerização que ocorre durante o processo de cura do compósito na

autoclave. Essa deformação angular é recuperada ao longo do tempo como *spring-back*. O rearranjo da estrutura molecular na resina da matriz, devido ao processo de polimerização não uniforme, promove a liberação de deformações residuais ao mesmo tempo em que ocorrem alterações na sua rigidez. Este processo dá origem a diferentes valores em forças e momentos que desenvolvem deformação angular em maior ou menor intensidade. Esse processo dinâmico pode aumentar ou diminuir o efeito de *spring-in* ao longo do tempo, embora, em termos gerais, o *spring-in* tenda a diminuir por um longo período, geralmente superior a 24 meses. Esse comportamento foi monitorado por aproximadamente três anos. Para todas as amostras analisadas, as medidas finais de *spring-in*, após esse período, foram menores que as medidas iniciais.





Figura 56: Análise de resíduos do modelo ajustado.

Os efeitos de *spring-in* são de fato influenciados por muitos fatores, incluindo incompatibilidades térmicas entre camadas adjacentes, gradientes de temperatura, fração de

volume de fibra, taxa de resfriamento e assim por diante, o que resulta em tensão residual gerada durante o processo de cura. Algumas técnicas são aplicadas para se reduzir o efeito de spring-in, como por exemplo, ajustes nos ciclos de cura de temperatura da autoclave, alterações nos materiais dos moldes para se reduzir os efeitos de incompatibilidade térmica na interface molde\laminado, geometrias alternativas de construção de compósitos, dentre outras [23,28].

Nesse estudo, em vez de se considerar como reduzir o efeito de *spring-in*, estamos nos concentrando em quantificar o efeito de *spring-back*. Encontrou-se evidências de que o efeito de *spring-back* é significativo durante um período de três anos. Como todos os outros parâmetros são controlados durante o processo de cura, para todas as amostras, os únicos fatores que induzem o efeito de *spring-in* são a sequência de empilhamento, espessura e tempo após a cura do compósito na autoclave, que são selecionados e apresentados na análise estatística.

O spring-in ao longo do tempo pode ser visto como um "comportamento viscoso" baseado na resina não curada que persiste, tentando passar pela sequência de empilhamento das fibras. Este comportamento viscoso parece ser influenciado principalmente por variáveis de correlação mútua, como por exemplo:  $\Delta$  grau de cura / rigidez de acoplamento (X<sub>8</sub>),  $\Delta$  grau de cura / espessura (X<sub>3</sub>) e  $\Delta$  grau de cura / E<sub>y</sub> (X<sub>7</sub>). Além disso, esse comportamento viscoso está diminuindo com o tempo, à medida que o grau de cura se aproxima de 100%. Finalmente, o comportamento viscoso pode ser visto como "mobilidade molecular" com base nos efeitos ambientais, como a absorção de calor da variação da temperatura ambiente.

#### 5.2.2 Modelo B: Modelo Longitudinal Temporal

O objetivo da presente seção é modelar as 10 medições realizadas entre 28 de maio de 2016 até 28 de agosto de 2018 (conforme exposto na Tabela 9 mencionada anteriormente). Essas medições de *spring-in* fornecerão as forças e momentos em cada uma

dessas datas, que combinadas com o fator tempo decorrido após cura de forma explícita na modelagem, buscarão computar os seus efeitos na explicação das deformações angulares.

#### 5.2.2.1 Análise descritiva do modelo

O banco de dados é composto por 81 medições de *spring-in* (graus) em dez datas entre 28 de maio de 2016 e 28 de agosto de 2018. Essas datas foram codificados como 0 (data inicial) até 9 ( data final ). Há também, para cada uma dessas medições de *spring-in*, seis covariáveis ao longo das mesmas datas de medições, são elas: M<sub>x</sub>, M<sub>y</sub>, M<sub>xy</sub>, N<sub>x</sub>, N<sub>y</sub> e N<sub>xy</sub>. A tabela 16 apresenta as medidas descritivas para cada uma dessas variáveis:

Variável	Mínimo	1° quartil	Mediana	Média	3° quartil	Máximo	Desvio Padrão
Spring-in	-0,098	1,061	1,298	1,426	1,590	6,465	0,746
$M_{\rm x}$	0,863	12,383	53,195	179,358	360,296	933,617	245,631
$\mathbf{M}_{\mathbf{y}}$	0,219	2,196	8,008	40,149	24,583	205,528	64,583
$M_{xy}$	-2,658	0,000	2,169	25,577	10,072	243,126	59,334
$N_x$	153,100	31706,600	62897,900	77194,600	114955,200	258414,000	56881,800
$\mathbf{N}_{\mathbf{y}}$	41,340	3098,670	10451,000	26771,710	31551,200	192027,000	37945,550
$N_{xy}$	0,000	0,000	0,000	9314,000	13268,000	91229,000	15857,850

Tabela 16: Medidas descritivas para as variáveis do banco de dados temporal longitudinal.

Como pode ser observado na Tabela 16, todas as variáveis do banco, com exceção da variável resposta *spring-in*, possuem seus valores distribuídos em um intervalo muito

grande e seus respectivos desvios são altos, no caso de  $N_x$ , por exemplo, o desvio chega a aproximadamente cinquenta e sete mil unidades. Para construção do modelo foi aplicada a função logarítmica nas covariáveis com o objetivo de se reduzir a escala desses valores. Nota-se também que pelo menos cinquenta por cento dos valores de  $N_{xy}$  são iguais a zero. As medidas descritivas das covariáveis transformadas se encontram na Tabela 17:

Variável	Mínimo	1° quartil	Mediana	Média	3° quartil	Máximo	Desvio Padrão
Log M <sub>x</sub>	-0,147	2,516	3,974	3,913	5,887	6,839	1,835
Log M <sub>y</sub>	-1,520	0,787	2,080	2,072	3,202	5,326	2,068
Log M <sub>xy</sub>	-1,074	1,099	1,643	2,030	2,570	5,506	1,450
Log N <sub>x</sub>	5,031	10,364	11,049	10,803	11,652	12,462	1,233
Log N <sub>y</sub>	3,722	8,039	9,254	9,189	10,359	12,165	1,590
Log N <sub>xy</sub>	0,000	0,000	0,000	4,260	9,493	11,421	4,804

Tabela 17: Medidas descritivas após a transformação da covariáveis.

A Fig. 57, mostra os gráficos de *box-plot* da variável *spring-in*, bem como das covariáveis momentos e forças em cada um dos tempos. Através dela pode-se notar, graficamente o efeito do tempo na variável resposta. Observando-se o gráfico nota-se que há uma tendência de diminuição da mediana do *spring-in* conforme a passagem do tempo. Esta tendência se mantém até o tempo 4, após, as medianas apresentam pouca variação. A distribuição de cada covariável não aparenta diferir ao longo dos tempos, conforme pode ser observado na Fig. 57 de (b) até (g).

A média de *spring-in* também decresce com o passar do tempo, ou seja, há indícios de que o tempo é fator importante para se explicar a deformação angular de *spring-in*. Os valores das médias e medianas em cada um dos tempos, bem como as demais medidas

descritivas para a variável *spring-in* podem ser vistas na Tabela 18, onde os valores das médias das medições estão em negrito.



Figura 57: (a) *Box-plots* para a variável *spring-in* e todas as seguintes covariáveis tomadas em cada momento de medição: (a) spring-in (vermelho), (b) log  $M_x$ , (c) log  $M_y$ , (d) log  $M_{xy}$ , (e) log  $N_x$ , (f) log  $N_y$ , (g) log  $N_{xy}$ . Vermelho representa o *spring-in*, azul os momentos M, e verde as forças N.

Tempo	Mínimo	1° quartil	Mediana	Média	3° quartil	Máximo	Desvio Padrão
T <sub>0</sub>	0,43	1,32	1,63	1,83	2,01	6,17	0,96
$T_1$	0,32	1,36	1,53	1,72	1,86	5,00	0,76
$T_2$	0,54	1,29	1,46	1,68	1,81	6,46	0,86
<b>T</b> <sub>3</sub>	0,08	1,11	1,27	1,38	1,52	3,92	0,66
$T_4$	0,20	0,97	1,20	1,31	1,51	4,17	0,64
$T_5$	0,10	0,98	1,23	1,33	1,46	4,28	0,71
T <sub>6</sub>	0,05	1,00	1,21	1,29	1,44	3,76	0,67
$T_7$	-0,10	0,98	1,17	1,25	1,43	4,19	0,67
$T_8$	0,05	0,98	1,22	1,23	1,40	3,60	0,58
<b>T</b> 9	0,05	0,98	1,22	1,23	1,40	3,60	0,58

Tabela 18: Medidas descritivas para spring-in em cada um dos tempos.

## 5.2.2.2 Modelo Temporal Longitudinal

Inicialmente foi ajustado um modelo de regressão linear múltipla para se obter a matriz de correlação dos resíduos pelos tempos, disposta na Tabela 19. Esta matriz oferece indícios de qual tipo de estrutura de variância deve ser utilizada no modelo longitudinal. É possível notar indícios de que a suposição de independência entre os erros do modelo estaria sendo violada, pois há altas correlações. Entre o tempo 8 ( $T_8$ ) e o tempo 9 ( $T_9$ ) essa correlação é de 0,986 como destacado em negrito na Tabela 19.

Tempo	T <sub>0</sub>	$T_1$	$T_2$	<b>T</b> <sub>3</sub>	$T_4$	T <sub>5</sub>	$T_6$	$T_7$	$T_8$	<b>T</b> 9
$T_0$	1,000	0,847	0,771	0,585	0,660	0,765	0,605	0,561	0,308	0,343
$T_1$	0,847	1,000	0,885	0,725	0,709	0,844	0,724	0,666	0,500	0,516
$T_2$	0,771	0,885	1,000	0,749	0,653	0,829	0,730	0,719	0,591	0,613
<b>T</b> <sub>3</sub>	0,585	0,725	0,749	1,000	0,836	0,841	0,791	0,765	0,722	0,719
$T_4$	0,660	0,709	0,653	0,836	1,000	0,835	0,771	0,672	0,653	0,649
<b>T</b> <sub>5</sub>	0,765	0,844	0,829	0,841	0,835	1,000	0,861	0,810	0,736	0,749
$T_6$	0,605	0,724	0,730	0,791	0,771	0,861	1,000	0,775	0,787	0,798
$T_7$	0,561	0,666	0,719	0,765	0,672	0,810	0,775	1,000	0,793	0,780
$T_8$	0,308	0,500	0,591	0,722	0,653	0,736	0,787	0,793	1,000	0,986
<b>T</b> 9	0,343	0,516	0,613	0,719	0,649	0,749	0,798	0,780	0,986	1,000

Tabela 19: Matriz de correlação entre os resíduos por tempo.

A partir da análise da matriz, optou-se por utilizar a estrutura de simetria composta. Esse modelo supõe que existe correlação, mas é igual em todos os tempos. Foi descartada a não estrutura por problemas de convergência na estimação, pois supõe que todas as correlações são diferentes, e do AR<sub>1</sub>, pois nem todos os tempos são igualmente espaçados. Assim, foi ajustado um primeiro modelo com todas as covariáveis, nele apenas Log M<sub>x</sub> (p-valor = 0,64), Log M<sub>xy</sub> (p-valor = 0,11) e Log N<sub>x</sub> (p-valor = 0,28) apresentaram p-valor maior que 0.05, nível de significância adotado.

Um segundo modelo foi ajustado retirando-se a variável Log  $M_x$ , a que apresentava o maior p-valor no modelo ajustado anteriormente. Nesse novo modelo, as covariáveis Log  $M_{xy}$  e Log  $N_x$  continuaram sendo não significativas, agora com valores p de 0,1 e 0,06 respectivamente. Novamente, a variável com maior valor p, Log  $M_{xy}$ , foi

Coeficiente	Estimativa	Erro Padrão	IC (95%)	p - valor
Intercepto	-3,194	0,638	[-4,4449;-1,9428]	<0,001
Log M <sub>y</sub>	-0,254	0,034	[-0,3193; -0,1880]	<0,001
Log N <sub>x</sub>	0,970	0,049	[0,8747; 1,0661]	0,047
$Log N_y$	0,497	0,056	[0,3872; 0,6072]	<0,001
$Log \ N_{xy}$	-0,053	0,010	[-0,0716; -0,0345]	<0,001
Tempo (Comparando 0-1)	-0,089	0,031	[-0,1497; -0,0273]	0,005
Tempo (Comparando 0-2)	-0,112	0,037	[-0,1857; -0,0390]	0,003
Tempo (Comparando 0-3)	-0,281	0,046	[-0,3710; -0,1908]	<0,001
Tempo (Comparando 0-4)	-0,334	0,044	[-0,4213; -0,2471]	<0,001
Tempo (Comparando 0-5)	-0,308	0,037	[-0,3810; -0,2357]	<0,001
Tempo (Comparando 0-6)	-0,322	0,043	[-0,4072; -0,2375]	<0,001
Tempo (Comparando 0-7)	-0,329	0,040	[-0,4065; -0,2517]	<0,001
Tempo (Comparando 0-8)	-0,360	0,051	[-0,4611; -0,2595]	<0,001
Tempo (Comparando 0-9)	-0,323	0,052	[-0,4241; -0,2221]	<0,001

retirada para o ajuste de um novo modelo. Nele, todas as covariáveis, incluindo Log  $N_x$ , foram significativas, e o modelo final é apresentado na Tabela 20.

Tabela 20: Modelo final longitudinal temporal.

Na Tabela 20 são mostrados os coeficientes estimados e os respectivos intervalos de confiança para o parâmetro estimado e p-valor do teste Wald, em que H<sub>0</sub>:  $\beta = 0$  versus H<sub>1</sub>:  $\beta \neq 0$ , rejeitando H<sub>0</sub> para p-valores menores que 0.05 (nível de significância

adotado). O intervalo de confiança e o teste Wald são construídos baseados na normalidade dos estimadores de máxima verossimilhança [56,57].

No modelo final obtido, ao nível de 5.0 % de significância as covariáveis log  $M_y$ , log  $N_x$ , log  $N_y$  e log  $M_{xy}$  são consideradas importantes para explicar a variável *spring-in*, bem como as comparações entre o tempo inicial e todos os demais. Nota-se que o p-valor do  $N_x$  é bastante próximo do nível de significância adotado. Portanto o modelo final é da forma:

$$\begin{split} Y &= -3,194 - 0,254 * Log \ My + 0,970 * Log \ Nx + 0,497 * Log \ Ny \\ &- 0,053 * Log \ Nxy - 0,089 * T_1 - 0,112 * T_2 - 0,281 * T_3 \\ &- 0,334 * T_4 - 0,308 * T_5 - 0,322 * T_6 - 0,329 * T_7 \\ &- 0,360 * T_6 - 0,323 * T_9 \end{split}$$

#### Equação 25

Os coeficientes estimados dos tempos estão comparando o tempo 0 (categoria base) com todos os outros. Como todos os coeficientes são negativos, é possível dizer que a média da variável resposta Y está diminuindo ao longo do tempo. Como exemplo: ao se aumentar o tempo 1, em uma unidade temporal , ou seja, um dia, o spring-in diminui em 0,089 unidades, na média. Com o aumento de uma unidade do  $M_y$  e do  $N_{xy}$ , ocorre uma diminuição da média do *spring-in* e o aumento de unidades no  $N_x$  e  $N_y$ , ocorre aumento na média do *spring-in*. Então, todos os resultados apresentados sugerem que a variável tempo computada após a cura padrão do compósito na autoclave, exerce influência no efeito de *spring-in*. Essa influência é inversamente proporcional, ou seja com o aumento da variável tempo, o *spring-in* decresce, o que evidencia o efeito de *spring-back*.

#### 5.2.3 Modelo C: Generalized Additive Model (GAM)

#### 5.2.3.1 GAM para o spring-in.

#### 5.2.3.1.1 Modelos GAM produzidos

Os 10 modelos, um modelo para cada medição de spring-in, Y, com seus respectivos cofatores X, forças e momentos, obtidos pela análise feita a partir de Modelos Aditivos Generalizados (GAM), estão listados na Tabela 21 e 22. Nessas tabelas, podemos verificar para cada um dos modelos que foram produzidos, uma análise estatística feita pelo software R (ANOVA). Essa análise descrita nas tabelas mostra os valores dos coeficientes angulares dos cofatores X (coluna coeficientes angulares de x) quando uma relação linear entre o cofator e o *spring-in* (variável Y) existe, a respectiva variável é mostrada nessa coluna. A influência desse cofator pode ser positiva ou negativa. Se a relação do cofator com a variável resposta Y é não linear, então um argumento "s ()" é aplicado na fórmula do modelo (*função smooth*). O argumento "s ()", por exemplo, usado na variável  $M_x$ , s ( $M_x$ ), significa que essa função ajusta e atenua a angulação não linear dessa variável com a variável resposta Y. Na coluna *Approximate significance of smooth* a significância é mostrada, ou seja, a importância desses cofatores nos quais a função *smooth* foi aplicada. Quando os valores são menores que 0,05 então esses cofatores são significativos para explicar a variável Y de acordo com o teste estatístico p do ANOVA.

Modelo	Coeficientes		Ap <sub>j</sub> significe	Approximate significance of smooth		
GAM	angulares de X	Valores de cada X	Valor F	p-value		
	-0,043710	Intercepto				
	0,001723	M <sub>xy</sub> 28/05/2016				
1		s(M <sub>x</sub> 28/05/2016)	1,044	0,00254 **		
		s(M <sub>y</sub> 28/05/2016)	13,162	< 2e <sup>-16</sup> ***		
		s(Ny 28/05/2016)	46,039	$< 2e^{-16} ***$		
	4,646e <sup>-17</sup>	Intercepto				
		s(M <sub>y</sub> 26/06/2016)	14,626	< 2e <sup>-16</sup> ***		
2		s(N <sub>x</sub> 26/06/2016)	0,711	0,00797 **		
		s(N <sub>y</sub> 26/06/2016)	32,827	< 2e <sup>-16</sup> ***		
		s(N <sub>xy</sub> 26/06/2016)	0,000	0,46903		
	1,26764	Intercepto				
		s(M <sub>x</sub> 13/08/2016)	0,000	0,30268		
3		s(M <sub>y</sub> 13/08/2016)	8,740	1,27e <sup>-14</sup> ***		
3		s(N <sub>x</sub> 13/08/2016)	0,149	0,15230		
		s(N <sub>y</sub> 13/08/2016)	23,734	$< 2e^{-16} ***$		
		s(N <sub>xy</sub> 13/08/2016)	1,419	0,00243 **		
	1,38272	Intercepto				
4		s(M <sub>y</sub> 16/01/2017)	12,301	$< 2e^{-16} ***$		
-		s(N <sub>x</sub> 16/01/2017)	1,464	0,000405 ***		
		s(N <sub>y</sub> 16/01/2017)	31,620	$< 2e^{-16} ***$		
	1,32800	Intercepto				
-	-2,368e <sup>-06</sup>	$N_{xy}07/04/2017$				
5		s(M <sub>y</sub> 07/04/2017)	12,069	$< 2e^{-16} ***$		
		s(N <sub>x</sub> 07/04/2017)	4,042	8,38e <sup>-08</sup> ***		
		s(N <sub>y</sub> 07/04/2017)	25,791	$< 2e^{-16} ***$		

Código de significância: 0 \*\*\*\* 0,001 \*\*\* 0,01 \*\* 0,05 \*. 0,1 \* 1

Tabela 21: Modelos GAM de 1 a 5 para o spring-in.

Modelo GAM	Coeficientes angulares de X	Valores de cada X	Approximate significance of smooth	
			Valor F	p-value
6	1,35600	Intercepto		
	-2,399e <sup>-06</sup>	N <sub>xy</sub> 07/05/2017		
		s(M <sub>y</sub> 07/05/2017)	11,440	$< 2e^{-16} ***$
		s(N <sub>x</sub> 07/05/2017)	4,817	7,86e <sup>-09</sup> ***
		s(N <sub>y</sub> 07/05/2017)	29,065	$< 2e^{-16} ***$
7	1,59500	Intercepto		
	-6,936e <sup>-03</sup>	M <sub>y</sub> 07/06/2017		
	-3,042e <sup>-06</sup>	N <sub>xy</sub> 07/06/2017		
		s(N <sub>x</sub> 07062017)	8,438	5,53e <sup>-12</sup> ***
		s(Ny 07062017)	22,843	$< 2e^{-16} ***$
8	1,28600	Intercepto		
	-4,580e <sup>-06</sup>	N <sub>xy</sub> 07/12/2017		
		s(M <sub>y</sub> 07/12/2017)	8,752	2,87e <sup>-14</sup> ***
		s(N <sub>x</sub> 07/12/2017)	8,866	9,27e <sup>-13</sup> ***
		s(N <sub>y</sub> 07/12/2017)	20,592	$< 2e^{-16} ***$
9	1,26500	Intercepto		
	$-3,893e^{-06}$	N <sub>xy</sub> 07/02/2018		
		s(N <sub>x</sub> 07/02/2018)	13,76	<2e <sup>-16</sup> ***
		s(Ny 07/02/2018)	26,08	<2e <sup>-16</sup> ***
		s(M <sub>y</sub> 07/02/2018)	11,61	<2e <sup>-16</sup> ***
10	1,23500	Intercepto		
	-5,013e <sup>-07</sup>	N <sub>xy</sub> 28/08/2018		
		s(M <sub>y</sub> 28/08/2018)	13,65	<2e <sup>-16</sup> ***
		s(N <sub>x</sub> 28/08/2018)	16,49	<2e <sup>-16</sup> ***
		s(N <sub>y</sub> 28/08/2018)	30,44	<2e <sup>-16</sup> ***

Código de significância: 0 '\*\*\*' 0,001 '\*\*' 0,01 '\*' 0,05 '.' 0,1 ' ' 1

Tabela 22: Modelos GAM de 6 a 10 para o *spring-in*.

Analisando-se os modelos presentes nessas duas tabelas, observa-se que, para todos eles, a maioria dos cofatores possui uma relação não linear com a variável resposta Y (*spring-in*). Em todos os modelos, as covariáveis não-lineares nas quais a função de *smooth* foi aplicada são significativas para se explicar o efeito *spring-in* (30 de um total de 32), exceto para a variável  $N_{xy}$  do modelo 2 e  $N_x$  do modelo 3.

#### 5.2.3.1.2 Diagnóstico de ajustes e resíduos

Com os dados da análise ANOVA feita para todos os modelos citados anteriormente, os resultados foram obtidos para o  $R^2$  ajustado e também para o *deviance explained*. Assim foi possível selecionar o melhor modelo onde forças e momentos possuem o maior poder preditivo. De acordo com o mostrado na Fig. 54, este modelo foi o de número 10.

Imediatamente após as amostras serem retiradas da autoclave, a primeira medição de *spring-in* foi realizada. A análise estatística do GAM fornece uma precisão próxima a 86% da influência dos cofatores no efeito *spring-in* para essa primeira medição, onde os efeitos da cura do compósito na autoclave são mais significativos. A precisão diminui chegando a 78% na terceira medição de *spring-in*. Esse comportamento típico pode ser resultante das mudanças estruturais na polimerização da resina no processo de cura residual produz mudanças estruturais na matriz das amostras que promoverão incrementos em sua rigidez. A tendência de elevação da precisão da análise estatística da GAM, a partir da medição 4, pode estar relacionada ao percentual de resina não curada, como mostrado na Fig. 58, ou seja, o efeito de rearranjo estrutural tornase menos significativo em relação à quantidade total de resina.



Figura 58:  $R^2$  ajustado (discos sólidos lilás) e *deviance explained* (losangos sólidos vermelhos) em função dos dez modelos GAM produzidos, para a análise do *spring-in*. O modelo 10 tem uma melhor precisão entre as previsões de todos os modelos estatísticos.

A Fig. 59 mostra uma análise descritiva para o modelo 10 através de seus resíduos. Na Fig. 59 (a) pode-se notar os pontos relativamente dispersos ao longo de uma linha reta oblíqua, mostrando a eficiência do modelo por seus resíduos. A Fig. 59 (b) mostra a relação entre os preditores lineares e os resíduos. Demonstrando que a relação entre os cofatores e a variável resposta é praticamente não-linear, como verificado anteriormente pela função *smooth*. A Fig. 59 (c) mostra o histograma dos resíduos, onde as barras estão dispostas de forma relativamente dispersa, evidenciando uma tendência central, como o pressuposto para esse tipo de modelagem deve se comportar. Finalmente, a Fig. 59 (d), mostra uma boa relação entre os valores preditivos do modelo e a variável resposta, uma vez que há uma tendência de acúmulo dos pontos em uma linha imaginária oblíqua.


Figura 59: Gráficos de (a) desvio dos resíduos em função de quantidades teóricas, (b) resíduos em função do preditor linear, (c) frequência em função dos resíduos, (d) resposta em função dos valores ajustados, para a análise de *spring-in*.

A Fig. 60 também aborda o ajuste do GAM através de seus resíduos. Quanto mais as linhas pretas verticais se apresentam dentro das linhas horizontais dos traços azuis descontínuos, mais ajustadas o modelo será. Nesse caso, os ajustes residuais são bons, conforme evidenciado pelo ACF (*Auto Correlation Function*).



Figura 60: Gráfico da *Auto Correlation Function* (ACF) pelo *Lag* para o modelo 10. Análise *spring-in*. Pelo exibido na área hachurrada em azul claro, conclui-se o ajuste residual está em boa concordância com os fatores preditores.

5.2.3.2 GAM para o spring-back

## 5.2.3.2.1 Modelos GAM produzidos

A mesma sistemática estatística de preparação dos dados utilizada na construção dos modelos para o *spring-in* (seção anterior 5.2.3.1.1) foi utilizada para a construção da modelagem para o efeito de *spring-back*. A diferença foi que, como explicado anteriormente, utilizou-se aqui somente o efeito do *spring-back* como ponto de partida para cálculo dos cofatores forças e momentos. Observando-se os modelos presentes nas tabelas 23 e 24, observa-se que, para todos eles, como na modelagem para o *spring-in*, a maioria dos cofatores possui uma relação não linear com a variável resposta Y (*spring-back*).

Madala	Coeficientes angulares de X	Valores de code V	Approximate significance of smooth		
GAM		Valores de cada A	Valor F	p-value	
	0,0635213	Intercepto			
	-0,0003740	M <sub>x</sub> 26/06/2016			
1		s(M <sub>y</sub> 26/06/2016)	0,490	0,0151 *	
		s(M <sub>xy</sub> 26/06/2016)	0,177	0,0981.	
		s(N <sub>y</sub> 26/06/2016)	25,546	<2e <sup>-16</sup> ***	
	-1,444e <sup>-01</sup>	Intercepto			
	$-1,780e^{-04}$	M <sub>x</sub> 13/08/2016			
2	$8,754e^{-04}$	M <sub>y</sub> 13/08/2016			
	2,931e <sup>-06</sup>	N <sub>xy</sub> 13/08/2016			
		s(Nx 13/08/2016)	4,178	7,14e <sup>-08</sup> ***	
		s(N <sub>y</sub> 13/08/2016)	1,067	0,00386 **	
	-0,44333	Intercepto			
		s(M <sub>y</sub> 16/01/2017)	5,276	1,19e-08 ***	
3		s(N <sub>x</sub> 16/01/2017)	1,676	0,000151 ***	
		s(N <sub>y</sub> 16/01/2017)	9,007	1,25e <sup>-14</sup> ***	
		s(N <sub>xy</sub> 16/01/2017)	0,000	0,900947	
	$-4,150e^{-01}$	Intercepto			
	4,885e <sup>-06</sup>	N <sub>x</sub> 07/04/2017			
4		s(M <sub>y</sub> 07/04/2017)	17,673	<2e <sup>-16</sup> ***	
		s(N <sub>y</sub> 07/04/2017)	24,408	<2e <sup>-16</sup> ***	
		s(N <sub>xy</sub> 07/04/2017)	0,461	0,0217 *	
	0,49130	Intercepto			
		s(M <sub>y</sub> 07/05/2017)	12,271	$< 2e^{-16} ***$	
5		s(N <sub>x</sub> 07/05/2017)	0,765	0,00575 **	
		s(N <sub>y</sub> 07/05/2017)	14,252	$< 2e^{-16} ***$	
		s(Nxy 07/05/2017)	0,000	0,56384	

Código de significância: 0 '\*\*\*' 0,001 '\*\*' 0,01 '\*' 0,05 '.' 0,1 ' ' 1

Tabela 23: Modelos GAM de 1 a 5 para o spring-back.

Modelo GAM	Coeficientes angulares de X		Approximate significance of smooth		
		Valores de cada X	Valor F	p-value	
	$4,327e^{-01}$	Intercepto	Intercepto		
	5,052e <sup>-06</sup>	N <sub>x</sub> 07/06/2017			
6		s(M <sub>y</sub> 07/06/2017)	10,83	<2e <sup>-16</sup> ***	
		s(N <sub>y</sub> 07/06/2017)	13,23	<2e <sup>-16</sup> ***	
		s(Nxy 07/06/2017)	0,16	0,107	
	$4,737e^{-01}$	Intercepto			
	3,058e <sup>-06</sup>	N <sub>x</sub> 07/12/2017			
7	$7,804e^{-06}$	N <sub>xy</sub> 07/12/2017			
		s(M <sub>y</sub> 07/12/2017)	18,55	<2e <sup>-16</sup> ***	
		s(N <sub>y</sub> 07/12/2017)	14,80	<2e <sup>-16</sup> ***	
	5,033e <sup>-01</sup>	Intercepto			
	2,977e <sup>-06</sup>	N <sub>x</sub> 07/02/2018			
8	$5,754e^{-06}$	N <sub>xy</sub> 07/02/2018			
		s(N <sub>y</sub> 07/02/2018)	13,89	<2e <sup>-16</sup> ***	
		s(M <sub>y</sub> 07/02/2018)	12,58	<2e <sup>-16</sup> ***	
9	5,033e <sup>-01</sup>	Intercepto			
	3,040e <sup>-06</sup>	N <sub>x</sub> 28/08/2018			
	5,580e <sup>-06</sup>	N <sub>xy</sub> 28/08/2018			
		s(M <sub>y</sub> 28/08/2018)	12,53	<2e <sup>-16</sup> ***	
		s(N <sub>y</sub> 28/08/2018)	14,03	<2e <sup>-16</sup> ***	

Código de significância: 0 '\*\*\*' 0,001 '\*\*' 0,01 '\*' 0,05 '.' 0,1 ' ' 1

Tabela 24: Modelos GAM de 6 a 9 para o *spring-back*.

Em todos os modelos, a maioria das variáveis não-lineares nas quais a função de *smooth* foi aplicada são significativas para se explicar o efeito de *spring-back*.

De forma análoga ao realizado para os dados de *spring-in*, os resultados da análise ANOVA foram obtidos para o  $R^2$  ajustado e também para o *deviance explained*. Assim foi possível selecionar o melhor modelo onde forças e momentos possuem o maior poder preditivo para o caso do *spring-back*. De acordo com o mostrado na Fig. 61, este modelo foi o de número 4.



Figura 61:  $R^2$  ajustado ( quadrados sólidos em laranja ) e *deviance explained* ( losangos sólidos azuis ) em função dos nove modelos GAM produzidos. O modelo de número 4 tem uma melhor precisão entre as previsões de todos os modelos estatísticos.

Partindo-se do mesmo princípio de rearranjo molecular/ polimerização promovidos pela cura residual que foi discutido para essa modelagem em relação aos dados do *spring*-

*in*, quando se considera apenas o efeito de *spring-back*, ou seja o efeito da cura residual após a cura tradicional do compósito na autoclave, o poder preditivo/explicativo das covariáveis forças e momentos é maior no início do processo da janela temporal de estudo, de maio de 2016 até agosto de 2018. Nos primeiros meses após a cura do compósito na autoclave, a porcentagem de resina a ser curada através da absorção de calor é maior em valores percentuais. Portanto o efeito explicativo das covariáveis é mais significativo nesse intervalo de tempo, de maio de 2016 até abril de 2017, sofrendo uma ligeira queda após a essa data. Esse comportamento pode ser observado na Fig. 61.

A Fig. 62 mostra uma análise descritiva para o modelo 4 através de seus resíduos. Na Fig. 62 (a) pode-se notar os pontos relativamente dispersos ao longo de uma linha reta oblíqua, mostrando a eficiência do modelo por seus resíduos, de forma similar ao encontrado para o caso do *spring-in*, mas aqui a dispersão é menor e aparece de forma mais homogênea como pode ser constatado pelo gráfico. A Fig. 62 (b) mostra a relação entre os preditores lineares e os resíduos, demonstrando que a relação entre os cofatores e a variável resposta é praticamente não-linear, como verificado anteriormente pela função *smooth*. Nesse caso os resultados são análogos aos encontrados no tratamento estatístico para o *spring-in*. A Fig. 62 (c) mostra o histograma dos resíduos, onde as barras estão dispostas de forma relativamente dispersa, evidenciando-se uma tendência central, como o pressuposto para esse tipo de modelagem deve se comportar, destaca-se aqui a extrema simetria encontrada, muito superior àquela apurada no caso do *spring-in*.

Finalmente, a Fig. 62 (d) mostra uma boa relação entre os valores preditivos do modelo e a variável resposta, uma vez que há uma tendência de acúmulo dos pontos em uma linha imaginária oblíqua de forma parecida como o que foi calculado no caso do *spring-in*, mas também aqui os resultados parecem ser mais adequados, pois a reta imaginária demonstra uma inclinação mais constante, principalmente entre os pontos -2.0 e 0.0 do referido gráfico.



Figura 62: Gráficos de: (a) desvio dos resíduos em função de quantidades teóricas, (b) resíduos em função do preditor linear, (c) frequência em função dos resíduos, (d) resposta em função dos valores ajustados, para o caso do *spring-back* modelo GAM de número 4.

A Fig. 63 também aborda o ajuste do GAM através de seus resíduos. Nesse caso, os ajustes residuais estão adequados, conforme evidenciado pelo ACF (*Auto Correlation Function*), embora ligeiramente inferiores aos encontrados para a modelagem *spring-in* anteriormente abordada.



Figura 63: Gráfico da *Auto Correlation Function* (ACF) pelo *Lag* para o modelo 4. Pelo exibido na área hachurrada em azul claro, conclui-se o ajuste residual está em boa concordância com os fatores preditores.

5.2.4 Modelo D: Random Forest

5.2.4.1 Random Forest para o spring-in

5.2.4.1.1 Pré-diagnóstico

Usando-se a função *tuneRF*, verificou-se que o número ótimo de preditivas por nó nas árvores de decisão do Random Forest a ser utilizada na modelagem seria 10. Isto é, os erros calculados pelo *Out of Bag Estimation* (OBB) decresce a partir de 10 preditivas, como mostrado na Fig. 64. Dessa forma, adotou-se esse número de preditivas por nó  $(M_{try})$  na construção da modelagem.



Figura 64: Estimativa de erros para a predição da variável dependente a partir da abordagem *Out of Bag Error Estimation* (OBB) relativa ao número de preditivas por nó, para o *spring-in*.

# 5.2.4.1.2 Modelo Random Forest: Resultados.

O modelo Random Forest (com 500 árvores de decisão e 10 preditivas por nó) conduzido sobre 70% dos dados (*train set*) apresentou poder de predição pelo conjunto das 60 preditivas inseridas no modelo de 60,72% de explicação da variância do comportamento da variável dependente. Ou seja, a predição do seu modelo é razoável na explicação da variância do Y (*spring-in*) pelos X (*forças e momentos*).

154

A figura 65 mostra através do método *Mean squared error*-MSE a importância em ordem decrescente de cada uma das covariáveis para o poder preditivo do modelo em relação ao Y final. As variáveis com os maiores valores são as mais importantes na predição do modelo.

Observa-se na Fig. 65 que as forças  $N_y e N_x$  são as mais importantes nessa análise, bem como a variável  $M_x$ , as covariáveis em relação as forças e momentos XY são com menor significância segundo essa análise, pois populam a base da figura. A Fig. 66 apresenta a derivada da função da Fig. 65. Essa analise busca identificar uma transição no sistema e em quais pontos isso ocorre. Nessa situação esses pontos ( correspondentes aos cofatores forças e momentos ) seriam responsáveis por influenciar com maior significância o efeito de *spring-in*. A Fig. 66 mostra então as variáveis  $N_x 07/05/2017$ ,  $N_x 16/01/2017$  e  $N_y 13/08/2016$  como principais parâmetros responsáveis por essa perturbação do sistema, e portanto as mais importantes segundo essa análise.

Percebe-se que esses resultados mostrando as variáveis  $N_y$  como mais significativas em detrimento das variáveis  $N_x$ , como era o esperado, pode decorrer do fato dessas medições estarem ainda muito influenciadas pelo efeito de rearranjo molecular/polimerização durante o tempo que o compósito permanece na autoclave, como citado anteriormente. Nas análises posteriores que serão feitas considerando-se apenas o efeito de *spring-back* esses resultados se mostrarão mais consonantes com a análise mecânica que foi feita posteriormente.



Figura 65: Importância das variáveis preditivas para a predição do modelo Random Forest para o *spring-in*, mostradas pelo *Mean Squared Error*.



Figura 66: Importância das variáveis preditivas para a predição do modelo Random Forest para o *spring-in*, mostradas pela derivada do IncMse.

O modelo Random Forest obtido mostrou estabilização de erros a partir de 100 árvores de decisão (Fig. 67), confirmando que o padrão usado de 500 árvores é suficiente para a acurácia preditiva do modelo.



Figura 67: Estimativa de erros na predição do modelo Random Forest para o *spring-in* em relação ao número de árvores considerado.

O erro quadrático médio (MSE) mostrou-se menor a partir de 10 preditivas por nó das árvores (Fig. 68), principalmente para a estimativa OBB (*Out of bag Estimation Error*) computada para o *train set* (70% dos dados). Os erros no *test set* (30% dos dados) mostraram tendências similares, porém, com oscilações um pouco mais acentuadas. De forma geral, os erros computados em ambos os casos (*train set* e *test set*) confirmam o

mostrado pela função *tuneRF*, ou seja, que 10 preditivas por nó foi de fato um número ótimo para redução de erros de predição no caso do presente modelo.



Figura 68: Estimativa de erros quadrados médios (MSE) em relação ao número de preditivas consideradas por nó, computados via OBB (*Out of Bag Error Estimation*) para o *train set* em comparação ao *test/validation set*. Análise de *spring-in*.

O poder preditivo da modelagem em Random Forest foi extremamente adequado como demonstrado pelo *validation set*. Mesmo que a predição do modelo principal baseado no *train set* (70% dos dados) que gerou os resultados acima e importâncias das preditivas foi de aproximadamente 60,72%, o poder preditivo do banco teste (*validation/test set*) foi muito bom ( $R^2 = 0.85$ ). Ou seja, com base nesse resultado do *validation set* usando 30%

dos dados pode-se dizer que os resultados descritos para o Random Forest via *train set* acima, como a importância das preditivas, pode ser considerado confiável e de alto poder preditivo.

O poder preditivo para o modelo baseado no *train set* (70% dos dados) pelo R<sup>2</sup> também foi ajustado via modelo linear (LM). No caso do *train set*, o  $R^2 = 0,92$  demonstrou ótima predição.

Foi realizado também um teste de validação cruzada (*cross-validation test*) para medir como o número mínimo (1) até o máximo (61) de preditivas no modelo influencia erros de predição. O resultado do *cross-validation test* mostrou que o aumento do número de preditivas até a inclusão de quatro preditivas no modelo aumenta o erro de predição, mas que a partir de 8 preditivas até o máximo delas o erro se torna mais estável. Isso faz sentido em comparação com os resultados dos outros diagnósticos acima que mostraram que os erros são mais estabilizados a partir de 10 preditivas por nó das árvores.

5.2.4.2 Random Forest para o spring-back

#### 5.2.4.2.1 Pré-diagnóstico

De forma análoga à usada na modelagem para o *spring-in*, foi utilizada também a função *tuneRF*. Constatou-se que o número ótimo de preditivas por nó nas árvores de decisão do Random Forest foi de 18. Isto é, os erros calculados pelo *Out of Bag Estimation* (OBB) decresce a partir de 18 preditivas (Fig. 69). Então foi adotada a quantidade de 18 preditivas por nó ( $M_{try}$ ) na modelagem para o *spring-back*.



Figura 69: Estimativa de erros para a predição da variável dependente a partir da abordagem *Out of Bag Error Estimation* (OBB) relativa ao número de preditivas por nó, para o spring-back.

## 5.2.4.2.2 Modelo Random Forest: Resultados

Para essa modelagem em relação aos dados do *spring-back* somente, o modelo Random Forest (com 500 árvores de decisão e 18 preditivas por nó) foi conduzido sobre 70% dos dados (*train set*). Essa modelagem apresentou poder de predição pelo conjunto das 60 preditivas inseridas no modelo de 70.19% de explicação da variância do comportamento da variável dependente. Ou seja, a predição desse novo modelo é consideravelmente melhor ( eficácia 15,60 % maior ) do que aquela conduzida para o *spring-in* (60,72%) na explicação da variância do Y (*spring-in*) pelos 60 X (forças e momentos). Como feito anteriormente para a modelagem para o *spring-in*, as figuras 70 e 71 apresentam através de dois métodos, Mean squared error-MSE e a derivada do MSE, respectivamente, a importância em ordem decrescente de cada uma das variáveis independentes para o poder preditivo do modelo em relação ao Y final.



Figura 70: Importância das variáveis preditivas para a predição do modelo, mostradas pelo *Mean Squared Error*, para o *spring-back*.



Figura 71: Importância das variáveis preditivas para a predição do modelo, mostradas pela derivada do IncMSE para o *spring-back*.

Para se analisar a importância das variáveis preditivas na modelagem Random Forest para o spring-back, utilizou-se a mesma sistemática utilizada para o caso do springin. Obteve-se a média quadrática do erro-MSE como mostra a Fig. 66. Classificou-se nessa figura a influência dos cofatores mecânicos. Os valores dos cofatores MSE aumentam e atingem um valor de saturação, como mostrado na Fig. 70. Em geral, um valor mais alto do MSE exibe a maior importância do cofator para prever o efeito de spring-back. A fim de se obter o cofator mecânico mais significativo, obteve-se a curva derivada a partir dos dados do MSE gerando-se uma nova curva, como mostrado na Fig. 71. O maior valor da função derivada foi obtido para o cofator  $N_x$  28/08/2018. Foi observada uma mudança abrupta próxima a esse cofator mecânico, como mostra a Fig. 71. Como citado anteriormente, a função derivada é obtida para se identificar uma transição neste sistema. Nesse caso típico, a função derivada mostra o parâmetro mecânico que exibe a influência mais importante e significativa para predizer o efeito de *spring-back* em relação a todos os demais, N<sub>v</sub>, N<sub>xv</sub>, M<sub>x</sub>, M<sub>y</sub> e M<sub>xy</sub>. Assim, o resultado obtido por meio do modelo de função derivada Random Forest IncMSE aponta o cofator N<sub>x</sub> como o cofator mecânica mais significativo para predizer o efeito de spring-back. Este resultado está completamente de acordo com os resultados da análise estatística do GAM, como mostrado na tabela 23, e como será mostrado nas medições mecânicas para forças e momentos temporais, Fig. 78.

## 5.2.4.2.3 Pós diagnósticos

A partir de 100 árvores o Random Forest já reduz de forma mais estável os erros, então 500 árvores como selecionado no modelo mostrou-se adequado para se aumentar a robustez de predição, como pode ser verificado na Fig. 72.



Figura 72: Estimativa de erros na predição do modelo em relação ao número de árvores considerado, para o *spring-back*.

O gráfico gerado na Fig. 73 mostra o número de preditivas a serem consideradas por nó através de duas formas de se calcular o erro quadrado médio (*Mean squared error*). Observa-se que o erro se reduz a partir da inclusão de 10 preditivas X em cada divisão (nó) das árvores de decisão, utilizando-se todas as 54 variáveis ao invés de apenas as 18 por nó das árvores. Embora os valores calculados de erro do Out of Bag-OBE (uma medida mais pessimista para se verificar com mais acurácia erros do modelo) sejam um pouco maiores que os erros baseados no Randon Forest test, os erros do OBE se estabilizam a partir de 10 preditivas por divisão (nó) das árvores de decisão do Random Forest, enquanto os erros do tese aumentam a partir de 10 preditivas. Assim, podemos concluir que o modelo Random Forest com base nos dados treino está adequado e otimizado com 18 variáveis preditivas por nó de cada árvore.



Figura 73: Estimativa de erros quadrados médios (MSE) em relação ao número de preditivas consideradas por nó, computados via OBB (*Out of Bag Error Estimation*) para o *train set* em comparação ao *test/validation set*, para o *spring-back*.

De forma semelhante à realizada para a modelagem *spring-in*, verificou-se o poder preditivo da modelagem em Random Forest. Constatou-se que o resultado foi extremamente adequado como demonstrado pelo *validation set*. Mesmo que a predição do modelo principal baseado no train set (70% dos dados) que gerou os resultados acima e importâncias das preditivas foi 70,19% foi razoável, o poder preditivo do banco teste (*validation/test set*) foi excelente ( $R^2 = 0.918$ ), enquanto que para o *spring-in* o resultado foi de  $R^2$ =0,850. Ou seja, com base nesse resultado do *validation set* usando 30% dos dados pode-se dizer que os resultados descritos para o Random Forest via *train set* para a modelagem dos dados de *spring-back*, com a importância das covariáveis, pode ser considerado confiável e de grande poder preditivo. O poder preditivo para o modelo baseado no train set (70% dos dados) pelo  $R^2$  também foi ajustado via modelo linear (LM). No caso do trainSet, o  $R^2$ =0,918 demonstrou ótima predição.

Realizou-se aqui também um teste de validação cruzada (*cross-validation test*) para medir como o número mínimo (1) até o máximo (61) de preditivas no modelo influencia erros de predição. O resultado do *cross-validation test* mostrou que o aumento do número de preditivas até a inclusão de quatro preditivas no modelo aumenta o erro de predição, mas que a partir de 3 preditivas, volta a se estabilizar relativamente a partir de 14 preditivas. Assim, o padrão adotado de 18 preditivas por nó adotado no modelo está coerente como já mostrado antes para um bom nível de predição.

## 5.3 Resultados Experimentais

#### 5.3.1 Spring-in e spring-back como função do tempo

Esta seção mostra os resultados de medições de deformações angulares de springin e spring-back obtidos de todas as famílias e espessura de compósitos analisadas nesse estudo. Utilizou-se diferentes taxas de resfriamento e sequências de empilhamento. O comportamento do spring-in e spring-back foi medido ao longo de aproximadamente 30 meses. Constatou-se que houve pequenas deformações angulares após esse período de tempo, mas insignificantes após agosto de 2018. Mais quatro medidas foram realizadas nos meses de setembro, outubro, novembro e dezembro de 2018, contudo nessas medições não foram encontradas nenhuma alteração dos valores de deformações angulares para as 81 amostras em relação a medição de agosto de 2018. Esse fato parece estar associado ao grau de cura das amostras, como mostra o apêndice 9.1. A maioria dos corpos de prova alcançou um grau de cura de 100%, ou muito próximo desse valor nessa data de agosto de 2018. Como a parcela não curada da resina presente na matriz é muito pequena em relação à parte curada, a quantidade de tensões residuais a ser liberada também é insignificante nesse caso. A Fig. 74 (a), (b) e (c) mostra o spring-in para todas as nove famílias, para amostras de 4 camadas para as três diferentes taxas de resfriamento, CR1, CR2 e CR3. Nessa figura, as barras azuis representam a medição inicial realizada em maio de 2016, imediatamente após as amostras terem sido retiradas da autoclave. As barras cinza representam a medição intermediária de spring-in realizada em janeiro de 2017, 8 meses após a medida inicial. As barras vermelhas representam a última medição realizada em novembro de 2018, aproximadamente 30 meses a partir da medição inicial. Os retângulos verdes claro destacados na Fig. 74 (a), (b) e (c) representam a porcentagem total de springback, ou recuperação da deformação angular, que ocorreu durante um período de 30 meses para a amostras da família 9. Basicamente, este é o percentual de diferença de spring-in entre as barras azul e vermelha. Os gráficos na família em cada taxa de resfriamento.

O percentual normalizado é calculado da forma mostrada na Eq. 26, onde o módulo da diferença nas medidas de *spring-in*, em 2018 e 2016, multiplicado por 100, é dividido pela medida de *spring-in* em 2016.

$$\% \ \partial \Theta = \left\{ \frac{|\Delta_{2018} - \Delta_{2016}|}{\Delta_{2016}} \right\} \ 100 \qquad \text{Equação 26}$$

Como mostrado na Fig. 74 (a), (b) e (c), o ângulo de *spring-in* diminui em função do tempo. Comportamento semelhante foi observado para quase todas as amostras ao longo das três taxas de resfriamento. Ao ser utilizada a taxa de resfriamento CR3, uma menor diferença, média de 16,6%, em todas as famílias é observada na recuperação do ângulo de *spring-in* entre as leituras intermediárias e finais. Comparando-se as leituras de *spring-in* iniciais e as leituras intermediárias, observa-se que a recuperação média angular, *spring-back*, é de 40,2%. Isso ocorre apesar do período mais longo de 22 meses entre as leituras intermediárias e finais, comparado a 8 meses entre as leituras inicial e intermediária. Conclui-se com esse fato que a porcentagem de resina não curada vai diminuindo ao longo do tempo, fazendo com que a liberação de tensões residuais seja mais pronunciada no início da cura espontânea das amostras. Isso parece influenciar um aumento da rigidez dos corpos de prova em maior grau no início do processo. Com o passar dos meses, pelo fato da amplitude das tensões residuais a serem liberadas serem menores, o impacto na rigidez das amostras torna-se menor. Por outro lado, a diferença na recuperação do *spring-in* entre as leituras intermediária e final é significativa para a taxa de resfriamento CR1, (38,3%).

A diferença nas medições angulares são uma medida de *spring-back*, que é na verdade, uma recuperação da deformação angular do *spring-in*. Como mostra a Fig. 74 (d), (e) e (f), o efeito total de *spring-back*, durante o período de 30 meses é mais pronunciado para a família 1 em todas as três taxas de resfriamento, sempre acima de 75,0%.



Figura 74: A deformação angular de spring-in e spring-back de compósitos feita usando quatro camadas para todas as nove variações de amostras medidas em maio de 2016 (barra azul), janeiro de 2017 (barra cinza) e novembro de 2018 (barra vermelha). Todos os dados são mostrados para três diferentes taxas de resfriamento: (a) CR1  $(2,78^{\circ}C / mim)$ , (b) CR2  $(5,56^{\circ}C / mim)$  e (c) CR3  $(11,12^{\circ}C / mim)$ . O desvio padrão para todas as 20 medições é mostrado na plotagem. As barras verdes mostram a porcentagem de spring-back para as taxas de resfriamento: (d) CR1, (e) CR2 e (f) CR3.

O maior *spring-back* ocorreu com essa família 1, na taxa de resfriamento CR2, 96,2%. Essa medição pode estar relacionada ao fato da sequência de empilhamento utilizada nessa família, [90°<sub>4</sub>]<sub>s</sub>. Para essa sequência de empilhamento, as fibras estão perpendicularmente distribuídas em relação ao comprimento longitudinal do corpo de prova, fazendo com que o reforço das fibras de carbono seja menor. Então a rigidez média dessa família de amostras será reduzida, fazendo com que o papel da matriz polimérica tenha uma maior preponderância em relação a esse reforço, portanto diminuindo sua rigidez média. Esse cenário, associado a uma menor espessura dessas amostras, possibilita uma maior liberação das tensões residuais e uma maior influência da rigidez liberada após o processo de cura.

A família 4 tem o segundo maior *spring-back*, sempre superior a 50,0% (linhas pontilhadas horizontais mostradas nas figuras), e maior para as taxas de resfriamento CR1 e CR3. Nessas amostras, que possuem a sequência de empilhamento  $[30^\circ,60^\circ]_s$ , parece ocorrer uma situação semelhante ao exposto no parágrafo anterior em relação à família  $[90^\circ_4]_s$  em relação ao reforço das fibras de carbono. O fato das fibras nessa amostra possuírem regiões com reforço desiguais ao longo de uma plano transversal perpendicular ao comprimento do laminado, parece favorecer a distribuição de regiões de cura não completa ao longo da espessura da amostra, já que nas regiões com menor porcentagem de fibras de carbono a condutividade térmica será menor ( o coeficiente de transmissão de calor das fibras é bem maior do que da resina polimérica ). Essa característica também facilitará o encapsulamento das tensões residuais durante o processo de cura do compósito na autoclave.

Para se avaliar o efeito de *spring-in* e *spring-back* como uma função do tempo para diferentes espessuras, a mesma caracterização usando amostras com oito e dezesseis camadas foi realizada como mostrado nas Fig. 75 e 76. A Fig. 75 mostra o ângulo de *spring-in* de compósitos feito usando oito camadas, onde o ângulo de *spring-in* é menor que o de amostras feitas usando quatro camadas. Esse fato é uma conclusão bem conhecida na literatura de compósitos, como pesquisado por Wisnom *et al.* [80]. Como mostrado nas Figuras 74, 75 e 76, parece haver uma relação proporcional inversa entre espessura e *spring-back*. Com o aumento do número de camadas dos laminados, o efeito de *spring-*

*back* diminui drasticamente. Para laminados de 4 camadas, os valores de *spring-back* de quase todas as famílias são próximos ou superiores a 50%. Para laminados de 8 camadas, estes valores diminuem significativamente, e para 16 camadas, exceto para a família 1 com a taxa de resfriamento CR3, todas as famílias têm valores inferiores a 50% quando se considera o efeito de *spring-back*. Para os compósitos de 8 camadas na Fig. 75, deve-se notar que havia apenas 2 casos de uma amostra de família que apresentaram um *spring-back* superior a 50%, o que ocorreu com a taxa de resfriamento CR2. Nota-se também que as famílias 3, 4 e 8 apresentam os maiores valores de *spring-back*, considerando todas as taxas de resfriamento para compósitos de 8 camadas.

A Fig. 76 mostra o efeito de *spring-in* dos compósitos feitos usando dezesseis camadas onde as medidas angulares são menores que as amostras feitas usando oito camadas. Este efeito de menor *spring-in* com laminados mais espessos é esperado com base em leis de escala estabelecidas, como previsto por Twigg *et al.* [55]. Aqui, observamos que, em geral, o *spring-in* se torna menor após um longo período de tempo após o processo de fabricação, o que também indica o efeito de *spring-back*, assim como nos compósitos mais finos, de 4 e 8 camadas. O efeito de *spring-back* para esses compósitos mais espessos é mais pronunciado para a família 4 com as taxas de resfriamento CR1 e CR2. Para a taxa de resfriamento CR3, a maior porcentagem de *spring-back* é encontrada para a família 1, que é a única amostra dos laminados com dezesseis camadas que possui uma porcentagem maior que 50%.

Na maioria das amostras dentro de cada família, observa-se que a deformação angular diminui com o tempo. Embora, em algumas famílias, para todas as taxas de resfriamento, CR1, CR2 e CR3, o ângulo de *spring-in* aumente novamente ao longo do período de 2017 a 2018, exibindo um comportamento anormal ao longo do tempo. Assume-se que essa anomalia é causada pelo rearranjo molecular da estrutura de base epóxi da resina de polímero juntamente com a liberação das tensões residuais que foram presas durante o processo de cura do compósito na autoclave. Presume-se que esse comportamento anômalo origina-se de alterações estruturais na resina, pois é mais frequente em amostras com menor espessura, como mostram as figuras 74 e 75.



Figura 75: A deformação angular de spring-in e spring-back de compósitos feita usando oito camadas para todas as nove variações de amostras medidas em maio de 2016 (barra azul), janeiro de 2017 (barra cinza) e novembro de 2018 (barra vermelha). Todos os dados são mostrados para três diferentes taxas de resfriamento: (a) CR1  $(2,78^{\circ}C / mim)$ , (b) CR2  $(5,56^{\circ}C / mim)$  e (c) CR3  $(11,12^{\circ}C / mim)$ . O desvio padrão para todas as 20 medições é mostrado na plotagem. As barras verdes mostram a porcentagem de spring-back para as taxas de resfriamento: (d) CR1, (e) CR2 e (f) CR3.



Figura 76: A deformação angular de spring-in e spring-back de compósitos feita usando dezesseis camadas para todas as nove variações de amostras medidas em maio de 2016 (barra azul), janeiro de 2017 (barra cinza) e novembro de 2018 (barra vermelha). Todos os dados são mostrados para três diferentes taxas de resfriamento: (a) CR1 ( $2,78^{\circ}$ C / mim), (b) CR2 ( $5,56^{\circ}$ C / mim) e (c) CR3 ( $11,12^{\circ}$ C / mim). O desvio padrão para todas as 20 medições é mostrado na plotagem. As barras verdes mostram a porcentagem de spring-back para as taxas de resfriamento: (d) CR1, (e) CR2 e (f) CR3.

Para as amostras com maior espessura, dezesseis camadas, observamos esse comportamento anômalo apenas para a família 6, na taxa de resfriamento CR2, como mostra a Fig. 76. Assim, entende-se esse comportamento anômalo como um rearranjo molecular da resina associado à liberação de tensões residuais aprisionadas durante o processo de cura. O processo de cura ao longo do tempo não é uniforme e grande relaxamento pode ser alcançado quando o efeito de *spring-in* aumenta como no período de 2017 a 2018. Esses processos alteram a magnitude das forças e momentos que são produzidos ao longo do tempo juntamente com o aumento na porcentagem de cura da matriz epóxi das amostras, o que aumenta sua rigidez. A transição da resina não curada para curada (que altera a densidade média do laminado) também contribui para esse processo, pois modifica a estrutura molecular do compósito, alterando também sua rigidez. Esse efeito é mais pronunciado na parte curva da amostra, pois ali existe uma menor porcentagem de resina curada em relação as partes planas. Com o decorrer do tempo e absorção de calor do meio ambiente essa parte curva se torna mais curada, rígida, Fig. 77 (a), e portanto, diminuindo o efeito de *spring-in* inicial, Fig. 77 (b).

Baseando-se na ideia de "rearranjo molecular", outras hipóteses podem ser formuladas para esses resultados anômalos. O rearranjo molecular pode ser visto como um "comportamento viscoso" da resina epóxi remanescente não totalmente curada. Esse comportamento diminui com o tempo, à medida que a cura se aproxima de 100%. Esse comportamento pode ser alterado pela sequência de empilhamento, pois a distribuição espacial da fibra pode bloquear ou permitir o comportamento viscoso. Este efeito é observado na Fig. 74 (a) famílias 4,  $[30^\circ, 60^\circ]_s$  e famílias 8,  $[\pm 45^\circ]_4$ .

Com o aumento das espessuras das amostras, de 4 para 8 e 16 camadas, sua rigidez aumenta consideravelmente, pois as propriedades mecânicas e físicas de cada uma das camadas se sobrepõe ao se empilhá-las, apesar do efeito angular das fibras de carbono também ser computado ( ver apêndice 9.2 : matrizes de rigidez ).



Figura 77: Esquema da influência da parte curva do compósito na deformação angular temporal

Esse fato pode ser ilustrado pelo aumento de rigidez das matrizes A e D verificado para a família 1 , de sequência de empilhamento  $[90^{\circ}_{4}]_{ns.}$  Nessa família foi constado o maior efeito de *spring-back* para as amostras de 4 camadas, como ilustrado pela Tabela 25.

Rigidez média para Família [90° <sub>4</sub> ] <sub>ns</sub>					
Camadas	Matriz A	Matriz D			
4	R <sub>A</sub>	R <sub>D</sub>			
8	$2R_A$	$10R_{D}$			
16	$4R_A$	80R <sub>D</sub>			

Tabela 25: Rigidez média em relação ao número de camadas para a família de compósitos [90°4]ns.

Nessa tabela os valores médios foram tomados como base em relação aos corpos de prova de 4 camadas, para se verificar o aumento comparativo das matrizes de rigidez com o aumento da espessura das amostras, para 8 e 16 camadas.

Os resultados estatísticos encontrados atestaram a influência das propriedades mecânicas e grandezas físicas propostas como influenciadores dos efeitos de deformação angular nos compósitos curvos fabricados. Primeiramente, ao se realizar o teste de correlação de Pearson nos dados medidos, constatou-se a maior correlação linear entre os fatores  $X_1$ ,  $X_2 e X_3$  (Tabela 11, página 122). Esses fatores englobam as grandezas variação de *spring-in*, tempo, taxa de resfriamento, grau de cura e espessura. Atestando a influência desses fatores como importantes influenciadores dos efeitos de *spring-in e spring-back*. Destaca-se aqui o efeito negativo do fator taxa de resfriamento, - 28,8%, (Tabela 11, página 122), que como apurado na literatura de compósitos [108] , possui um efeito inverso no efeito de deformação angular, ou seja quanto mais rápido o resfriamento das amostras na autoclave, maior o efeito de *spring-in* apurado após o processo de cura. Através das modelagens mostrou-se que esse efeito perdura durante a cura espontânea residual das amostras. Efeito que também foi constatado na modelagem final para o *spring-in* onde o fator que a taxa de resfriamento fazia parte teve um peso de 85,0% dentro do fator 2 (Tabela 12, página 123).

### 5.3.2 Forças e momentos relativos ao *spring-back*.

Esta seção mostra como os valores médios dos momentos e forças residuais são distribuídos para cada uma das famílias listadas na Tabela 6 ( página 92), para a taxa de resfriamento 2 (CR2). Esta taxa de resfriamento foi escolhida para ilustrar a distribuição das forças e momentos das diferentes famílias, uma vez que todas as taxas de resfriamento, CR1, CR2 e CR3, resultaram na mesma distribuição dessas grandezas físicas. Para comparar as forças e momentos, a Fig. 78 foi construída, nessa figura as famílias de

laminados estão separadas pela quantidade de camadas, ou seja, pela espessura da amostra. Assim, a Fig. 78 consiste em nove laminados com 4, 8 e 16 camadas respectivamente.

Os momentos e forças mostrados nos gráficos de barras são as médias de valores absolutos dos 9 períodos em que as medidas angulares de *spring-back* foram realizadas, normalizados pela espessura das amostras. O desvio padrão também é mostrado acima de cada barra. As barras azuis representam a média dos momentos  $M_x$ , as barras vermelhas  $M_y$ e as barras verdes  $M_{xy}$ . As barras pretas representam a média das forças normais  $N_x$ , as barras cinzas ,  $N_y$  , e as barras na cor laranja,  $N_{xy}$ . Forças normais e momentos fletores são mostrados na direção X e Y , força de cisalhamento na direção XY, e momento de torção na direção XY, como mostrado na Fig. 45 (página 110). A direção X está na direção longitudinal dos espécimes em forma de L.

Na Fig. 78, a distribuição das forças em relação às nove famílias tem comportamento semelhante, mas com um aumento significativo na magnitude em relação à espessura do laminado. Os valores dessas forças e momentos nas direções Y e XY são pequenos quando comparados às forças e momentos na direção X,  $N_x$  e  $M_x$ .

Embora os valores dos momentos e forças tenham sido normalizados pela espessura em todas as amostras, observando-se a Fig. 78, conclui-se também que, para todas as famílias, há um comportamento relativamente homogêneo em relação ao aumento extremamente pronunciado dos momentos em valores absolutos, com o aumento da espessura das amostras de 4 para 8 camadas ( + 261% ), e um aumento de 297% aumentando-se a espessura de 8 para 16 camadas. Em relação ao comportamento geral das forças, há também um aumento com laminados mais espessos, mas menos significativo que o dos momentos. Observa-se um aumento de 65% na duplicação da espessura das amostras de 4 para 8 camadas e um aumento de 91% nas amostras de 8 camadas em comparação com as amostras de 16 camadas. Esse comportamento resulta do aumento significativo da rigidez das amostras superior ao aumento proporcional matemático simples da espessura, como tratado anteriormente.



Figura 78: Momentos e forças médios calculados indiretamente pela Teoria Clássica de Laminação para todas as famílias usando diferentes taxas de resfriamento para compósitos de 4 camadas. A média para os componentes do momento,  $M_x$ ,  $M_y$  e  $M_{xy}$ , é mostrada em (a), (b) e (c), respectivamente. A média dos componentes de força,  $N_x$ ,  $N_y$  e  $N_{xy}$ , é mostrada em (d), (e) e (f). Análise de spring-back.

À medida que as amostras se tornam mais rígidas, o valor dessas forças e momentos necessários para proporcionar deformação equivalente torna-se significativamente maior.

Como pode ser visto na Fig. 78, as famílias 1, 2 e 9 exibiram valores mais altos para forças e momentos e as famílias 1, 2, 6 e 9 exibiram valores mais altos para forças. Essas mesmas famílias, conforme descrito nas Tabelas 26, 27 e 28, também mostraram uma grande redução dos valores angulares de *spring-in* no período de tempo estudado. Este fato evidencia uma relação direta entre forças e momentos com o *spring-back*, ou seja, a redução do *spring-in* ao longo do tempo. Nessas tabelas, a sigla ID mostra a identificação numérica sequencial para as 81 amostras. A coluna família, a codificação da sequência de empilhamento utilizada na fabricação das amostras.  $\Delta\Theta_i$ , representa a medição inicial de *spring-in* realizada em 28/05/2016.  $\Delta\Theta_f$ , a última medição de *spring-in* antes da estabilização da deformação angular em 28/08/2018. E , S $\Delta\Theta$ , mostra o desvio padrão das medidas angulares realizadas.

Supõe-se que o *spring-in* ocorra devido a mudanças estruturais devido ao processo de polimerização que ocorre durante o processo de cura na autoclave, e é recuperado ao longo do tempo como efeito de *spring-back*. Como discutido anteriormente na análise mecânica de *spring-in* e *spring-back*, o rearranjo da estrutura molecular na resina da matriz, devido ao processo de polimerização não uniforme, promove a liberação de tensões residuais ao mesmo tempo em que ocorrem alterações na sua rigidez. Este processo dá origem a valores diferentes em forças e momentos temporais que desenvolvem deformação angular em maior ou menor intensidade. Este processo dinâmico pode diminuir o efeito de *spring-in* ao longo do tempo. Para todas as amostras analisadas, as medidas finais do *spring-in* após o período de três anos são menores que as medidas iniciais.

O efeito de *spring-back* ao longo do tempo pode ser visto como um "comportamento viscoso" baseado na resina não curada que persiste tentando fluir através da barreira criada pela sequência de empilhamento das fibras.

ID	Família	Espessurra (camadas)(mm)	$\Delta \boldsymbol{\Theta}_{i}\left(^{\circ}\right)$	SΔΘ (°)	$\Delta \Theta_f(^\circ)$	SΔΘ (°)
<b>S</b> 1	[0,60] s	1,53(4)	1,900	0,010	1,200	0,040
<b>S</b> 2	[0,60] <sub>2s</sub>	3,00(8)	1,370	0,020	1,104	0,006
<b>S</b> 3	[0,60] <sub>4s</sub>	6,04(16)	1,470	0,010	1,280	0,024
<b>S</b> 4	[0,30] s	1,55(4)	2,060	0,030	1,243	0,013
S5	[0,30] <sub>2s</sub>	3,02(8)	1,615	0,025	1,135	0,021
<b>S</b> 6	[0,30] <sub>4s</sub>	6,11(16)	1,390	0,020	1,180	0,024
<b>S</b> 7	[30,60] <sub>s</sub>	1,53(4)	1,490	0,010	0,408	0,013
<b>S</b> 8	[30,60] <sub>2s</sub>	3,05(8)	1,700	0,010	0,975	0,025
<b>S</b> 9	[30,60] <sub>4s</sub>	5,94(16)	1,295	0,035	0,775	0,025
<b>S</b> 10	[0,90] s	1,54(4)	1,660	0,040	0,804	0,006
S11	[0, 90] <sub>2s</sub>	3,13(8)	1,320	0,070	1,270	0,042
S12	[0,90] <sub>4s</sub>	6,24(16)	1,355	0,008	1,220	0,030
S13	[45,30] <sub>s</sub>	1,54(4)	1,495	0,005	1,083	0,042
S14	[45,30] <sub>2s</sub>	3,02(8)	1,635	0,025	0,970	0,032
S15	[45,30] <sub>4s</sub>	5,96(16)	1,535	0,015	1,223	0,025
S16	$[\pm 45, \pm 30]_{s}$	1,59(4)	6,165	0,195	2,810	0,126
S17	$[\pm 45, \pm 30]_{2s}$	3,05(8)	2,795	0,005	2,090	0,045
S18	$[\pm 45, \pm 30]_{4s}$	6,05(16)	2,185	0,025	2,025	0,025
S19	[90 4]	1,56(4)	0,990	0,030	0,254	0,006
S20	[90 <sub>4</sub> ] <sub>s</sub>	3,00(8)	0,960	0,010	1,120	0,024
S21	[90 <sub>4</sub> ] <sub>2s</sub>	5,99(16)	1,060	0,080	0,865	0,021
S22	[± 45 4]	1,61(4)	3,055	0,045	1,818	0,032
S23	[± 45 4] s	3,08(8)	2,025	0,055	1,438	0,041
S24	$[\pm 45_4]_{2s}$	5,99(16)	1,775	0,005	1,325	0,025
S25	[0 <sub>4</sub> ]	1,60(4)	1,860	0,060	1,448	0,033
S26	[0 <sub>4</sub> ] <sub>s</sub>	3,16(8)	1,425	0,005	1,260	0,016
S27	[0 <sub>4</sub> ] <sub>2s</sub>	6,57(16)	1,220	0,030	1,025	0,025

Tabela 26: Espessura, quantidade de camadas, *spring-in* inicial e final para todas as famílias em relação à taxa de resfriamento CR1.

Esse comportamento viscoso parece estar relacionado principalmente ao grau de cura, espessura, e tempo decorrido após a retirada das amostras da autoclave. Este
comportamento viscoso pode ser visto como "mobilidade molecular" com base nos efeitos ambientais, como a absorção de calor da variação da temperatura ambiente.

Com os resultados apurados através da modelagem de regressão multivariável temporal longitudinal, ficou constatado o efeito significativo do tempo como determinante da deformação angular de *spring-in*. Como mostrado na Fig. 57 (página 135), na Tabela 18 (página 136), a média de todas as medições realizadas ao longo do período de aproximadamente 3 anos mostram uma clara diminuição da mediana dos dados apurados para deformação angular. Esse fato também pode ser constatado pelas tabelas 26, 27 e 28 que mostram o efeito de *spring-in* final de todas as amostras estudadas sempre menor que o valor inicialmente medido, independente da taxa de resfriamento. A recuperação angular age ao longo do tempo revertendo parcialmente o efeito de *spring-in* inicial através da liberação das tensões residuais provocada pela cura espontânea da resina presente nas matrizes das amostras. Esse efeito é confirmado matematicamente através da equação para modelagem do efeito de *spring-in* temporal, onde todos os fatores temporais possuem coeficientes negativos, como mostra a equação 25 (página 139).

Em relação à importância das forças e momentos para a predição das deformações angulares, a modelagem GAM demonstra a alta significância da maioria dos cofatores forças e momentos como preditivas para explicação do *spring-in* e *spring-back*. Em relação à modelagem para o *spring-in* a modelagem GAM mostrou, através da alta significância dos cofatores (Tabelas 21 e 22, nas páginas 141 e 142 respectivamente), bem como pelas análises propostas pelo  $\mathbb{R}^2$  ajustado e *deviance explained* (valores para os modelos entre 76% e 94%), o alto poder preditivo desses cofatores. Essas forças e momentos também se mostraram importantes ao se analisar os resultados encontrados através a modelagem em Randon Forest, como mostram as figuras de *importance* (Fig. 65 e 66, nas páginas 155 e 156 respectivamente).

ID	Família	Espessurra (camadas)(mm)	$\Delta \boldsymbol{\theta}_{i}\left(^{\circ}\right)$	SΔΘ (°)	$\Delta \Theta_{f}\left(^{\circ}\right)$	SΔΘ (°)
S28	[0,60] s	1,52(4)	2,465	0,015	1,260	0,047
S29	[0,60] <sub>2s</sub>	3,02(8)	2,825	0,025	1,425	0,025
S30	[0,60] <sub>4s</sub>	5,99(16)	1,710	0,010	1,400	0,025
S31	[0,30] s	1,54(4)	1,245	0,005	0,872	0,033
S32	[0,30] <sub>2s</sub>	3,06(8)	1,530	0,020	1,085	0,021
S33	[0,30] <sub>4s</sub>	6,06(16)	1,320	0,021	1,108	0,042
S34	[30,60] s	1,54(4)	2,175	0,005	1,028	0,047
S35	[30,60] <sub>2s</sub>	3,40(8)	0,710	0,020	0,253	0,005
S36	[30,60] <sub>4s</sub>	6,01(16)	1,890	0,020	1,030	0,024
S37	[0,90] <sub>s</sub>	1,56(4)	1,770	0,020	1,090	0,016
S38	[0, 90] <sub>2s</sub>	3,05(8)	1,395	0,035	1,180	0,036
S39	[0,90] <sub>4s</sub>	6,09(16)	1,315	0,015	1,275	0,025
S40	[45,30] <sub>s</sub>	1,64(4)	1,700	0,020	1,440	0,015
S41	[45,30] <sub>2s</sub>	3,05(8)	1,700	0,030	0,912	0,031
S42	[45,30] <sub>4s</sub>	6,10(16)	1,240	0,050	0,865	0,021
S43	$[\pm 45, \pm 30]_{s}$	1,57(4)	5,060	0,150	3,000	0,050
S44	$[\pm 45, \pm 30]_{2s}$	3,02(8)	2,605	0,045	2,155	0,008
S45	$[\pm 45, \pm 30]_{4s}$	6,08(16)	2,010	0,030	1,840	0,072
S46	[90 4]	1,52(4)	1,005	0,015	0,094	0,005
S47	[90 <sub>4</sub> ] <sub>s</sub>	3,00(8)	0,940	0,010	0,364	0,017
S48	[90 <sub>4</sub> ] <sub>2s</sub>	6,29(16)	0,945	0,035	0,627	0,025
S49	[± 45 4]	1,57(4)	3,125	0,155	1,555	0,036
S50	$[\pm 45_4]_s$	3,04(8)	2,450	0,010	1,395	0,036
S51	$[\pm 45_4]_{2s}$	6,14(16)	1,875	0,095	1,330	0,024
S52	[0 <sub>4</sub> ]	1,61(4)	1,630	0,080	1,210	0,016
S53	[0 <sub>4</sub> ] <sub>s</sub>	3,22(8)	1,515	0,005	1,290	0,016
S54	[0 <sub>4</sub> ] <sub>2s</sub>	6,56(16)	1,165	0,030	1,120	0,026

Tabela 27: Espessura, quantidade de camadas, *spring-in* inicial e final para todas as famílias em relação à taxa de resfriamento CR2.

ID	Família	Espessurra (camadas)(mm)	$\Delta \Theta_{i}\left(^{\circ}\right)$	$S\Delta\Theta$ (°)	$\Delta \Theta_{f}\left(^{\circ}\right)$	SΔΘ (°)
S55	[0,60] <sub>s</sub>	1,57(4)	2,015	0,005	1,448	0,043
S56	[0,60] <sub>2s</sub>	3,07(8)	1,415	0,015	1,128	0,017
S57	[0,60] <sub>4s</sub>	6,21(16)	1,475	0,050	1,440	0,025
S58	[0,30] <sub>s</sub>	1,56(4)	1,925	0,075	1,163	0,019
S59	[0,30] <sub>2s</sub>	3,09(8)	1,875	0,005	1,252	0,003
S60	[0,30] <sub>4s</sub>	6,15(16)	1,110	0,010	0,920	0,036
S61	[30,60] <sub>s</sub>	1,56(4)	2,270	0,010	0,313	0,015
S62	[30,60] <sub>2s</sub>	3,05(8)	1,670	0,040	0,997	0,004
S63	[30,60] <sub>4s</sub>	6,78(16)	1,645	0,005	0,942	0,038
S64	[0,90] <sub>s</sub>	1,56(4)	1,710	0,010	1,260	0,016
S65	[0,90] <sub>2s</sub>	3,02(8)	1,440	0,020	1,250	0,025
S66	[0,90] <sub>4s</sub>	6,08(16)	1,395	0,020	1,140	0,009
S67	[45,30] <sub>s</sub>	1,53(4)	1,670	0,010	1,270	0,024
S68	[45,30] <sub>2s</sub>	2,98(8)	1,655	0,045	1,043	0,025
S69	[45,30] <sub>4s</sub>	5,92(16)	1,455	0,025	0,970	0,024
<b>S</b> 70	$[\pm 45, \pm 30]_{s}$	1,56(4)	5,920	0,150	3,603	0,162
S71	$[\pm 45, \pm 30]_{2s}$	3,05(8)	3,470	0,040	2,438	0,037
S72	$[\pm 45, \pm 30]_{4s}$	6,04(16)	1,790	0,040	1,752	0,004
S73	[90 4]	1,54(4)	1,280	0,030	0,049	0,003
S74	[90 <sub>4</sub> ] <sub>s</sub>	2,99(8)	0,430	0,010	0,390	0,016
S75	[90 <sub>4</sub> ] <sub>2s</sub>	6,08(16)	0,865	0,015	0,500	0,010
S76	[± 45 4]	1,57(4)	2,920	0,020	1,455	0,036
S77	[± 45 4] s	3,07(8)	2,860	0,050	1,595	0,038
S78	[± 45 <sub>4</sub> ] <sub>2s</sub>	6,08(16)	2,090	0,090	1,450	0,040
S79	[0 <sub>4</sub> ]	1,62(4)	1,460	0,060	1,245	0,009
<b>S</b> 80	[0 <sub>4</sub> ] <sub>s</sub>	3,19(8)	1,535	0,055	1,355	0,036
S81	[0 <sub>4</sub> ] <sub>2s</sub>	6,58(16)	1,235	0,015	1,175	0,021

Tabela 28: Espessura, quantidade de camadas, *spring-in* inicial e final para todas as famílias em relação à taxa de resfriamento CR3.

Levando-se em consideração apenas o efeito de *spring-back*, a modelagem GAM mostra através da Tabela 23 ( página 147) e da Tabela 24 ( página 148), o quanto são importantes esses cofatores na predição e influência dessa deformação angular, onde a

maior parte deles (mais de 80%) são altamente significativos para a explicação dessa deformação angular. Essa modelagem apresentou valores entre 72% e 92 % para o  $R^2$  ajustado e *deviance explained*. A modelagem Random Forest também provou-se útil e adequada na validação das forças e momentos como fortes influenciadores do *spring-back* como atestam as figuras de *importance* de número 70 (página 161) e 71 (página 162).

#### 6. CONCLUSÕES

Este trabalho analisou a influência do efeito de cura residual para recuperar a deformação angular em diferentes compósitos. Várias sequências de empilhamento e taxas

de resfriamento do ciclo de cura da autoclave foram utilizadas nesses compósitos à base de resina epóxi reforçados com fibra de carbono, em forma de L. Observou-se que o tempo é um fator extremamente importante nesse processo, uma vez que a absorção de calor é necessária e lenta, sendo um fator determinante para que ocorra a cura residual espontânea. Constatou-se que o efeito de *spring-in* é mais pronunciado em compósitos mais finos, como era esperado. O comportamento típico observado na recuperação da deformação de *spring-in* foi denominado de *spring-back* e foi mostrado como sendo mais significativo para a sequência de empilhamento de quatro camadas em comparação com os laminados de oito e dezesseis camadas. Avaliou-se a influência na deformação angular em função do tempo, espessura, diferentes taxas de resfriamento da autoclave, e diferentes sequências de empilhamento de compósitos. Todos os resultados indicam que a cura após o processo de fabricação da autoclave padrão nunca é completa. O efeito de *spring-back* é significativo ao longo de um período de aproximadamente 30 meses. A recuperação angular observada na deformação das amostras na autoclave.

A porção não curada da resina está sujeita à absorção de calor pós-cura, que provoca tensões residuais dentro do compósito. Essas tensões residuais são liberadas gradativamente conjuntamente àquelas que ficam encapsuladas no processo de cura dos compósitos na autoclave. Esse processo provoca o aumento da rigidez das amostras. Conjuntamente com outros possíveis fatores como, frações de vazio, difusão de umidade ao longo do tempo e distribuição desigual da resina curada e não curada ao longo do corpo de prova parecem promover a deformação estrutural das amostras. Esse cenário produz forças e momentos que causam uma recuperação elástica, o chamado efeito *spring-back*, fazendo com que o *spring-in* final da peça seja menor do que o inicialmente medido. Para descrever esse fenômeno, foram propostos modelos matemáticos para prever a fração de recuperação

da deformação angular, Y, no tempo, por meio de dois métodos diferentes. Primeiramente, foi construído um modelo para o *spring-in* com relação a um conjunto de variáveis: X<sub>1</sub>, X<sub>2</sub>, X<sub>3</sub>, X<sub>4</sub>, X<sub>5</sub>, X<sub>6</sub>, X<sub>7</sub>, X<sub>8</sub>, e X<sub>9</sub>. Este conjunto de variáveis apresentou uma forte dependência com a taxa de resfriamento, tempo, espessura, grau de cura e as propriedades mecânicas e físicas dos compósitos. Para quantificar a influência da deformação mecânica *no springback* foi proposto um modelo por meio de análise de regressão multivariável paramétrica estatística que demonstra grande dependência com os fatores físicos e de engenharia relacionados ao grau de cura do material. As propriedades mais significativas como influenciadoras da deformação angular de *spring-in* segundo a modelagem de regressão multivariável foram:  $\Delta$  *spring-in* /  $\Delta$  tempo,  $\Delta$  grau de cura /  $\Delta$  tempo,  $\Delta$  grau de cura relacionado com o tempo e também propriedades geométricas das amostras detêm importante papel como influenciadores das tensões deformantes que desencadeiam as deformações angulares pós-cura.

Uma segunda parte desse estudo se concentrou em investigar o efeito das forças (N) e momentos (M) na produção da deformação angular do *spring-in*. Constatou-se que a influência de forças e momentos em diferentes medidas de *spring-in* ao longo do tempo, mostrou-se significativa para produzir uma deformação angular após o processo de cura dos compósitos na autoclave. Essas forças e momentos, que surgem devido à cura residual, são decisivos para se produzir o efeito de *spring-back*.

Foram produzidos modelos estatísticos que provaram a importância das forças (N) e momentos (M) para explicar matematicamente as alterações angulares das amostras ao longo do tempo. Foi demonstrado, através de modelagem estatística e significância, que sempre, em todas as medições realizadas ao longo do tempo, os valores de  $M_x$  e  $N_x$  que são relevantes para o efeito de deformação angular. Através destes modelos que foram produzidos, pode-se concluir que a eficiência da explicação de forças e momentos cresce como a passagem de tempo, acompanhando o processo residual de cura para o caso do *spring-in*. Com o passar do tempo após o processo de cura das amostras na autoclave, constatamos que ocorre um aumento considerável na capacidade dos cofatores, momentos e forças, para explicar o spring-in. Isso é maximizado quando o efeito de spring-in se estabiliza. O que aconteceu na última medição, 28 de agosto de 2018. Esses cofatores mostraram uma forte dependência da sequência de empilhamento dos compósitos, grau de cura e propriedades físicas e mecânicas do material. As análises experimentais constataram que as variáveis  $N_x$  (força na direção X) e  $M_x$  (momento na direção X) são majoritariamente maiores em valores absolutos em relação as demais forças e momentos nas outras direções, Ny, Nxy, My e Mxy. As modelagens estatísticas mostraram a forte dependência das alterações angulares de spring-in e spring-back em relação às forças e momentos. No caso da modelagem GAM os resultados encontrados para o R<sup>2</sup> ajustado foram, na média para as 10 modelagens, de 84,8 % e para o deviance explained, 87,1 %. Destaca-se aqui que, com o decorrer do tempo após o processo de cura, mais significativos são essas forças e momentos para a explicação dos fenômenos de spring-in, conforme o deviance explained e o R<sup>2</sup> ajustado explicitam. O primeiro modelo GAM produzido em 28 de maio de 2016 registrou um  $R^2$  ajustado de 85,6 % e um deviance explained de 87,6 %, após 2 anos e 3 meses, em 28 de agosto de 2018, o ultimo modelo GAM produzido exibiu para essas mesmas grandezas os valores de 90,0 % e 92,0% respectivamente. Resultados semelhantes foram apurados na modelagem Random forest onde as figuras de importance mostraram altas significâncias para essas forças e momentos como influenciadores das deformações angulares de spring-in e spring-back.

Quanto aos resultados gerados pelos modelos "Generalized Additive Model" (GAM) e "Random Forest" algumas considerações podem ser traçadas quando esses modelos são comparados com o modelo de teoria clássica de laminação (teoria de Kirchhoff). Note que as previsões dos modelos GAM ( $N_{xy}$  para o modelo 10) e Random Forest ( $N_y$ , segundo IncMSE) são contraditórias quando comparadas com Kirchhoff ( $N_x$  e  $M_x$ ). Essa inconsistência nos resultados pode ser atribuída a dois fatores: (i) o cálculo das forcas e momentos é baseado na variação de curvatura ( $K_x$ ,  $K_y$  e  $K_{xy}$ ), o que não permite o cálculo das deformações no plano médio ( $\mathcal{E}_x^0$ ,  $\mathcal{E}_y^0$  e  $\gamma_{xy}^0$ ); (ii) o número de "iterações/árvores" durante o processo. É sabido que os algoritmos de aprendizado de maquina ("machine learning") são instáveis quando pequenas variações nas variáveis de entrada geram grandes variações no aprendizado. Esse é provavelmente o que ocorreu nesse caso, pois embora a estimativa de erro estivesse estabilizada (veja Figura 63) os resultados foram divergentes.

### 7. SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS

Aplicar a metodologia aqui desenvolvida em outros materiais, tais como compósitos poliméricos reforçados com fibra de vidro, e outras estruturas de base carbono com geometrias alternativas. Utilizando como ponto de partida as principais variáveis mecânicas e físicas aqui encontradas como influenciadores do *spring-in* e *spring-back*.

Adicionar outros parâmetros à modelagem multivariável como:

- Material de que é constituído o molde, sua espessura e raio como fatores influenciadores da deformação angular.
- Utilização de moldes côncavos e convexos de forma comparativa para se avaliar a influência na deformação angular.
- Alteração dos ciclos de temperatura da autoclave, variando as fases de absorção de calor em magnitude e duração, bem como a quantidade de fases de absorção e a taxa de aumento de temperatura até esses patamares.
- Novas sequências de empilhamento e novas espessuras, para refinar o seus efeitos na deformação angular.
- Tamanho e largura das amostras para verificar a influencia da área superficial.

Testar novas modelagens estatísticas a partir dos parâmetros mais relevantes aqui encontrados, tais como grau de cura e tempo, como principais cofatores para a deformação angular. Verificar e criar modelos analíticos ou numéricos para o *spring-in* e para o *spring-back*.

Desenvolver processos e ações que reduzam o efeito de *spring-in*, principalmente usando a metodologia para o cálculo do *spring-back* ao longo do tempo. Utilizando-se estratégias como tratamento térmico de indução de cura residual.

Produzir e estudar modelos de cinética química para explicar o comportamento da variação da rigidez das amostras durante o processo de cura residual espontânea, buscando mensurar a quantidade de calor recebida do meio ambiente como influência direta da evolução do grau de cura.

Utilizar outras metodologias para o cálculo das curvaturas e deslocamentos para a obtenção das forças e momentos temporais para os casos do *spring-in* e *spring-back*, como aquelas propostas por Ding *et al.* [19] e Zhu Geubelle [108], através da discretização do perfil geométrico das amostras, como também comparar esses resultados com modelagens computacionais por elementos finitos.

### 8. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- [1] DING, A.; LI, S.; WANG, J.; NI, A. A new analytical solution for spring-in of curved composite parts, Composites Science and Technology, v. 142:30-40. 2017.
- [2] GROH, F.; KAPPEL, E.; HUHNE, C.; BRYMERSKI, W. Investigation of fast curing epoxy resins regarding process induced distortions of fibre reinforced composites, Composite Structures, v. 207:923-934. 2019.
- [3] BLACK, J.; TAN, X.; CHIOU, P.B.; CHAN, W. S. Experimental Investigation of Spring-in Behavior of composite Laminates. Proceedings of the 27<sup>st</sup> Technical Conference of the American Society for Composites, Arlington, Texas, October 1-3. 2012.
- [4] RADFORD, D. W. Shape Stability in Composites. Tese (Doutorado em Engenharia Mecânica). Rensselaer Polytechnic Institute. Troy, New York. Maio de 1987.
- [5] CAIAZZO, A; ROSEN, B. W.; POURSARTIP, A.; COURDJI, R.; VAZIRI, R. Integration of Process Modelling and Stress Analysis Methods for Composite Materials, Proceedings of the 34th International SAMPE Technical Conference, Baltimore, MD, November 4-7. 2002.
- [6] HAGHSHENAS, S. M.; VAZIRI, R.; POURSARTIP, A. Integration of resin flow and stress development in process modelling of composites: Part I - isotropic formulation, Journal of Composite Materials, v. 52, número 23: 3137-3155. 2018.
- [7] BUSSETTA, P.; CORREIA, N. Numerical forming of continuous fibre reinforced composite material: A review, Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, v. 113:12-31. 2018.

- [8] SODEN, P.D.; HINTON, M.J.; KADDOUR, A.S. Lamina properties, lay-up configurations and loading conditions for a range of fibre-reinforced composite laminates, Composites science and technology, v. 58:1011-1022. 1998.
- [9] FERNLUND, G.; POURSARTIP, A.; TWIGG, G.; ALBERT,C. Residual Stress, Spring-in and Warpage in Autoclaved Composite Parts, Proceedings of the 14th International Committee on Composite (*ICCM-14*), San Diego, California, July 14-18. 2003.
- [10] FERNLUND, G.; POURSARTIP, A. Tool compensation for honeycomb structures. Proceedings of the sampe fall technical conference - 37th ISTC: materials and processing technologies for revolutionary applications, Seattle, WA. 2005.
- [11] DARROW, D. A.; SMITH, L. V. Isolating Components of Processing Induced Warpage in Laminated Composites. Journal of Composite Materials, v. 36(21): 2407-2409. 2002.
- [12] CHAWLA, K. K. Composite materials: science and engineering. Springer Science & Business Media. 2012.
- [13] JAIN, L.K. ; MAI, Y.W. On Residual Stress Induced Distortions During Fabrication of Composite Shells. In: Proceedings of the American Society for Composites, Santa Monica, CA, pp. 261–270. 1995.
- KOLLAR, L. P. Approximate Analysis of the Temperature Induced Stresses and Deformations of Composite Shells. Journal of Composite Materials, v. 28(5):392-414. 1994.
- [15] RIDGARD, C. Accuracy and distortion of composite parts and tools: causes and solutions. SME Tech Paper, Tooling Compos'93. 93–113. 1993.

- [16] HORBERG, E.; NYMAN, T.; AKERMO, M.; HALLSTROM, S. Thickness effect on spring-in of prepreg composite L-profiles: an experimental study, Composite Structures, v. 209:499-507. 2019.
- [17] BELLINI, C.; SORRENTINO, L. Analysis of cure induced deformation of CFRP U-shaped laminates, Composite Structures, v. 197:1-9. 2018.
- [18] CORRADO, A.; POLINI, W.; SORRENTINO, L.; BELLINI, C. Geometrical deviation analysis of CFRP thin laminate assemblies: Numerical and experimental results, Composites Science and Technology, v. 168:1-11. 2018.
- [19] DING, A.; WANG, J.; NI, A.; LI, S. A new analytical solution for cure-induced spring-in of L-shaped composite parts, Composites Science and Technology, v. 171: 1-12. 2019
- [20] SHAH, D. B.; PATEL, K.; PATEL, A. I.; PARIYAL, V.; JOSHI, S. J. Experimental investigation on spring-back deformation during autoclave curing of parabolic antenna reflectors, Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, v. 505 (115):134-146. 2018.
- [21] KAPPEL, E. Compensating process-induced distortions of composite structures: A short communication, Composite Structures, v. 192:67-71. 2019.
- [22] BENAVENTE, M.; MARCIN, L.; COURTOIS, A.; LEVESQUE, M.; RUIZ, E. Numerical analysis of viscoelastic process-induced residual distortions during manufacturing and postcuring, Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, v. 107:205-216. 2018.
- [23] JOHNSTON A.; VAZIRI R.; POURSARTIP A. A plane strain model for process induced deformation of laminated composite structures. Journal of Composite Materials, v. 35(16):1435–69. 2001.

- [24] NELSON, R.H.; CAIRNS, D.S. Prediction of dimensional changes in composite laminates during cure. 34th International SAMPE Symposium, p. 2397-410. 1989.
- [25] TWIGG, G.; POURSARTIP, A.; FERNLUND, G. Tool-part interaction in composites processing. Part I: experimental investigation and analytical model, Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 35:121-133. 2004.
- [26] PARDINI, L. C.; PERES, R.J.C. Tecnologia de Fabricação de Pré-Impregnados para Compósitos Estruturais Utilizados na Indústria Aeronáutica. Polímeros: Ciência e Tecnologia, v. 6(2):32-42. 1996.
- [27] ÇINAR, K.; ÖZTÜRK, U.E.; NURI, E.; WISNOM, M.R. Modelling manufacturing deformations in corner sections made of composite materials. Journal of Composite Materials, v. 48:799-813. 2014.
- [28] GRANKALL, T.; HALLANDER, P.; AKERMO, M. Geometric compensation of convex forming tools for successful final processing in concave cure tools: an experimental study, Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, v. 116:187 -196. 2019.
- [29] MOORE, M.; ZIAEI-RAD, S.; FIROUZIAN-NEJAD, A. Temperature-curvature relationships in asymmetric angle ply laminates by considering the effects of resin layers and temperature dependency of material properties. Journal of Composite Materials, v. 48(9): 1071-1089. 2014.
- [30] KAPPEL, E.; STEFANIAK, D.; SPRÖWITZ, T.; & HÜHNE, C. A semi-analytical simulation strategy and its application to warpage of autoclave-processed CFRP parts. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, v. 42(12): 1985-1994. 2011.

- [31] ZAKARIA, M.; AMINANDA, Y.; RASHIDI, S. M.; RASHIDI, M. SAH, Springback of thick unidirectional carbon fibre reinforced composite laminate for aircraft structure application. Journal of Physics: Conference Series, v. 1005(1):1-8. 2018.
- [32] LIPCAN, M.; BALVERS, J.M.; HARTMANN, M.P. Thermal response of framelike composite structures to analytically assess manufacturing distortion, Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, v. 107: 399-408. 2018.
- [33] LEISSA, A.W. The historical bases of the Rayleigh and Ritz methods. Journal of Sound and Vibration, v. 287:961- 978. 2005.
- [34] WHITE, S. R.; HAHN, H. T. Process Modeling of Composite Materials: Residual Stress Development during Cure. Part I. Model Formulation, Journal of Composite Materials, v. 26(16):2423-2453. 1992.
- [35] LOOS, A. C.; SPRINGER, G. S. Curing of Epoxy Matrix Composites, Journal of Composite Materials, v. 17(2): 135-169. 1983.
- [36] MARTIN, L. P.; BOGETTI, T. A.; GILLESPIE, JR J.W. Influence of Cure Skrinkage on Process-Induced Stress and Deformation in Thick Thermosetting Composites. Proceedings of the Fifth Technical Conference: Composite Materials in Transition for the American Society for Composites. 1990.
- [37] BENZIE, M. A. Investigation of Springback Associated with Composite Material Component Fabrication, NASA TM-97-206310, *MSFC* Center Director's Discretionary Fund Final Report, Project 94-09, Marshall Space Flight Center, Alabama, November. 1997.
- [38] ROSA, J.L.; ROBIN, A.; SILVA, M.B.; BALDAN, C.A.; PERES, M.P. Electrodeposition of copper on titanium wires: Taguchi experimental design approach, Journal of Materials Processing Technology, v. 209: 1181-1188. 2009.

- [39] DARROW JR, D.A.; SMITH, L.V. Isolating components of processing induced warpage in laminated composites. Journal of Composite Materials, v. 36(21): 2407-2419. 2002.
- [40] WANG, B. P.; THO, C. H.; HENSON, M. Minimization of Spring-in in Composite Angle Components by Genetic Algorithm, Proceedings of 38th AIAA/ASME/AHS Adaptive Structures Forum, Kissimmee, FL, April 7-10. 1997.
- [41] KOLLÅR, L.P. Approximate analysis of the temperature induced stresses and deformations of composite shells. Journal of Composite Materials, v. 28(5): 392-414. 1994.
- [42] TWIGG, G; PURSARTIP, A; FERNLUND, G. An experimental method for quantifying tool-part shear interaction during composites processing. Composites Science and Technology, v. 63:1985-2002. 2003.
- [43] SYED, K. A; CHAN, W.S. Analysis of Hat-sectioned Reinforced Composite Beams, Proceedings of the 21<sup>st</sup> Technical Conference of the American Society for Composites, Dearborn, Michigan, September 17-20. 2006.
- [44] KAPPEL, E; STEFANIAK, D, HUHNE, C. Process distortions in prepreg manufacturing- An experimental study on CFRP L-profiles. Composites Structures, v. 106:615-625. 2013.
- [45] WIERSMA, H.W.; PEETER, L.J.B.; AKKERMAN, R. Prediction of springforward in continuous-fibre/polymer L-shaped parts. Composites part A, v. 29A:1333-1342.
   1998.

- [46] O'NEIL, J.M; ROGERS J. M.; SPENCER, A. J. M. Thermally induced distortions in the molding of laminated channel sections. Mathematical Engineering in industry, v. 1: 65-72. 1998.
- [47] NELSON, R. H.; CAIRNS, D. S. Prediction of dimensional changes in composite laminates during cure. In Proceedings of International SAMPE Symposium and Exhibition, Covina, CA, v. 2: 2397-2410. 1989.
- [48] HAMAMOTO, A. Curing deformation of L-shaped composite parts. In Proceedings of the International Symposium on Composite Materials and Structures, Technomic Publishing Company, Lancaster, PA, v.1:1092-1097. 1986.
- [49] SARRAZIN, H; KIM, B.; AHN, S; SPRINGER, G. Effects of processing Temperature and Layup on Springback. Journal of Composite Materials, v. 29:1278-1294. 1995.
- [50] HAHN, H T. Effect of residual stresses in polymer composites. The Journal of the Astronautical Sciences, v. 32:253-267. 1984.
- [51] FERNLUND, G; FLOYD, A. Process Analysis and tool compensation for curved composite L-angles. The Sixth Canadian- International Composites Conference, Winnipeg, Canada, august. 14-17. 2007.
- [52] FIORINA, M; SEMAN A; CASTANIE, B; ALI, K. M.; SCHWOB, C.; MEZEIX,
  L. Spring-in prediction for carbon/epoxy aerospace composite structure. Composite
  Structures, v. 168:739-745. 2017.
- [53] OLIVER, P.A. A note upon the development of residual curing strains in carbon/epoxy laminates. Study by thermomechanical analysis. Composites part A. 37:602-616. 2006.

- [54] WISNOM, M.R.; GIGLIOTTI, M.; ERSOY, N.; CAMPBELL, M.; POTTER, K. D. Mechanisms generating residual stresses and distortion during manufacture of polymer-matrix composite structures. Composite part A: Applied Science and Manufacturing, v. 37:522-529. 2006.
- [55] TWIGG, G.; POURSARTIP, A.; FERNLUND, G. Tool part interaction in composites processing. Part II: numerical modelling, Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, v. 35(1):135-141. 2004.
- [56] ALBERT, C.; FERNLUND, G. Spring-in and warpage of angled composites laminates. Composites Science and Technology, v. 62:1895-912. 2002
- [57] MARC WARIS, M.; LIOTIER P.J.; DRAPIER S. Effect of the mold on the residual strain field monitored with optical fiber sensors in resin transfer molding processes. Journal of Composite Materials, v. 29:1908-43. 1995.
- [58] MEZEIX, L.; SEMAN, A.; NASIR, M.N.M.; AMINANDA, Y.; RIVAI, A.; CATANIE, B. Springback simulation of unidirectional carbon/epoxy flat laminate composite manufactured through autoclave process. Composite Structures, v. 124:196-205. 2015.
- [59] LI, C.; POTTER, K.D.; WISNOM, M.R.; STRINGER, L.G. In situ measurement of chemical shrinkage of MY750 epoxy resin by a novel gravimetric method. Composites Science and Technology. v. 64:55–64. 2004.
- [60] WISNOM, M.R.; STRINGER, L.G.; HAYMAN, R.J.; HINTON, M.J. Curing stresses in thick polymer composites. Part I. Analysis. Proceedings of the 12<sup>th</sup> International Conference on Composite Materials. Paper 859, Paris. July.1999.

- [61] PRASATYA, P.; MCKENNA, G.B.; SIMON, S.L. A viscoelastic model for predicting isotropic residual stresses in thermosetting materials: effects of processing parameters. J Compos Mater, v. 35:826-48. 2001.
- [62] WEITSMAN, Y. Assessment of chemical cure-shrinkage stresses in two technical resins. In 24th Structures, Structural Dynamics and Materials Conference, p. 799. 1983.
- [63] HYER, M.W.; ROUSSEAU, C.Q.; TOMKINS, S.S. Thermally induced twist in graphite–epoxy tubes. Journal of engineering materials and technology, v. 110:83-88. 1988.
- [64] DING, A.; WANG, J.; NI, A.; LI, S. A new analytical solution for cure-induced spring-in of L-shaped composite parts. Composites Science and Technology, v. 171: 1-12. 2019.
- [65] WU, Y.J.; TAKATOYA, T.; CHUNG, K.; SEFERIS, J.C.; AHN, K. Development of the transient simulated laminate (TSL) methodology for moisture ingression studies using unsymmetric laminates. Journal of Composite Materials, v. 34:1998– 2015. 2000
- [66] RADFORD, D.W. Cure shrinkage-induced warpage in flat uniaxial composites.Journal of Composites, Technology and Research, v. 15:290–296. 1993
- [67] HUBERT, P.; POURSARTIP, A. Aspects of the compaction of composite angle laminates: an experimental investigation. Journal of Composite Materials, v. 35: 2-26. 2001.

- [68] WISNOM, M.R.; JONES, M.I.; HILL, G.F.J. Interlaminar tensile strength of carbon fibre-epoxy-specimen size, lay-up and manufacturing effects. Adv Compos Lett., v. 4:171-177. 2001.
- [69] BOGETTI, T.A.; GILLESPIE, J.W. Process-induced stress and deformation in thick-section thermoset composite laminates. Journal of Composite Materials, v. 26:626-660. 1992.
- [70] CHENG, S.Z. Handbook of Thermal analysis and Calorimetry: Applications to Polymers and Plastics. Elsevier, v. 3. 2002.
- [71] ACHA, B. A.; CARLSON, L.A. Evaluation of cure state of vinylester resins. J. Appl. Poly. Sci., v. 127(6):4777-4784. 2013.
- [72] SICHINA, W. Characterization of epoxy resins DSC. Thermal Analysis Application Note. Perkin Elmer Instruments, Norwalk. 2000.
- [73] KAMAL, M.; SOUROUR, S. Kinetcs and Thermal Characterization of Thermoset cure. Poly. Eng. Sci., v. 13(1):59-64. 1973.
- [74] HORIE K.; MURAOKA, M. Calorimetric investigation of polymerization reactions. Crosslinked Copolymerization of Methyl metracrylate with ethylene dimethacrilate. Journal of Polymer Science, v. 13:455-54. 1975.
- [75] K. HORIE, A. OTAGAWA, M. MURAOKA, I. MITA, Calorimetric investigation of polymerization reactions. v. crosslinked copolymerization of 575 methyl methacrylate with ethylene dimethacrylate, Journal of Polymer Science: Polymer Chemistry Edition, v. 13(2): 445-454. 1975.

- [76] GARSTKA, T.; ERSOY, N.; POTTER, K. D.; WISNOM, M. R. In situ measurements of through-the-thickness strains during processing of AS4/8552 composite. Composites Part A: applied science and manufacturing, v. 38(12):2517-2526. 2007.
- [77] STEFANIAK, D.; KAPPEL, E.; SPRÖWITZ, T.; HÜHNE, C. Experimental identification of process parameters inducing warpage of autoclave-processed CFRP parts. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, v. 43(7):1081-1091. 2012.
- [78] LI, C.; STRACHAN, A. Evolution of network topology of bifunctional epoxy thermosets during cure and its relationship to thermo-mechanical properties: A molecular dynamics study. Polymer, v. 75:151-160. 2015.
- [79] ERSOY, N.; GARSTKA, T.; POTTER, K.; WISNOM, M.R.; PORTER, D.; STRINGER, G. Modelling of the spring-in phenomenon in curved parts made of a thermosetting composite. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, v. 41(3):410-418. 2010.
- [80] WISNOM, M.R.; POTTER, K.D.; ERSOY, N. Shear-lag analysis of the effect of thickness on spring-in of curved composites, Journal of Composite Materials, v. 41 (11):1311-1324. 2007.
- [81] CLANCY, T.C.; FRANKLAND, S.J.V.; HINKLEY, J.A.; GATES, T. S. Molecular modeling for calculation of mechanical properties of epoxies with moisture ingress. Polymer, v. 50 (12):2736-2742. 2009.
- [82] FITZMAURICE, G.M.; LAIRD, N. M.; WARE, J.H. Applied longitudinal analysis. Vol. 998. John Wiley & Sons. 2012.
- [83] DIGGLE, P.; DIGGLE, P.J.; HEAGERTY, P.; HEAGERTY, P.J.; LIANG, K.Y.; ZEGER, S. Analysis of longitudinal data. Oxford University Press. 2002.

- [84] REDDY, J. N.; MIRAVETE, A. Practical analysis of composite laminates. CRC press. 1995.
- [85] ZHU, Q.; GEUBELLE, P.H. Dimensional accuracy of thermoset composites: shape optimization. Journal of composite materials, v. 36(6):647-72. 2002.
- [86] PETERSON, B.G.; CARL, P. Performance Analytics: Econometric Tools for Performance and Risk Analysis. R package version 1.5.2. https://CRAN.Rproject.org/package=PerformanceAnalytics. 2018.
- [87] DORMANN, C.F.; ELITH J.; BACHER, S.; BUCHMANN C.; CARL, G.; CARRÉ, G.; MARQUÉZ, J.R.; GRUBER, B.; LAFOURCADE, B.; LEITÃO, P.J.; MÜNKEMÜLLER, T. Collinearity: a review of methods to deal with it and a simulation study evaluating their performance. Ecography, v. 36(1):27-46. 2013.
- [88] LIN, D.Y.; WEI, L.J.; YING, Z. Model-checking techniques based on cumulative residuals. Biometrics, v. 58 (1):1-12. 2002.
- [89] HOLST, K.K. gof: Model-diagnostics based on cumulative residuals. R package version 0.9.1. 2014.
- [90] HASTIE, T.J.; TIBSHIRANI, R.J. Generalized Additive Models. New York: Chapman & Hall/CRC. 1990.
- [91] GREEN, P.J.; SILVERMAN, B.W. Nonparametric regression and generalized linear models: a roughness penalty approach. Chapman and Hall/CRC. 1994.
- [92] LIN, X.; ZHANG, D. Inference in Generalized Additive Mixed Models by Using Smoothing Splines. Journal of Royal Statistical Society: Series B, v. 61:381-400.
   1999.

- [93] WOOD, S. N. Generalized Additive Models: An Introduction with R. Boca Raton, Florida: Chapman & Hall/CRC. 2006.
- [94] ZUUR, A.; IENO, E.N.; WALKER, N.; SAVELIEV, A.A.; SMITH, G.M. Mixed effects models and extensions in Ecology with R. New York: Springer. 2009.
- [95] FANG, X.; CHAN, K.S. Additive models with spatio-temporal data. Environmental and Ecological Statistics, v. 22(1):61-86. 2015.
- [96] WOOD, S.N. Fast stable restricted maximum likelihood and marginal likelihood estimation of semiparametric generalized linear models. Journal of the Royal Statistical Society (B), v. 73(1):3-36. 2011.
- [97] R DEVELOPMENT CORE TEAM. R: A language and environment for statistical computing. Vienna, R Foundation for Statistical Computing. http://www.Rproject.org/. 2018.
- [98] AMODIO, S.; ARIA, M.; D'AMBROSIO, A. On concurvity in nonlinear and nonparametric regression models. Statistica, V. 74(1):85-98. 2014.
- [99] WOOD, S.N. Generalized Additive Models: An Introduction with R (2nd edition). Chapman & Hall/ CRC, Boca Raton, Florida. 2017.
- [100] DONNELL, D.J.; BUJA, A.; STUETZLE, W. Analysis of additive dependencies and concurvities using smallest additive principal components. The Annals of Statistics, v. 1:1635–1668. 1994.
- [101] VENABLES, W.N.; Ripley, B.D. Modern Applied Statistics with S, 4th Edition, SpringerVerlag. 2002.

- [102] BOX, G.E.; JENKINS, G.M.; REINSEL, G.C.; LJUNG, G.M. Time Series Analysis: Forecasting and Control. 3rd Edition, Holden-Day. 1994.
- [103] BREIMAN, L. Random Forests, Machine Learning, v. 45(1):5-32. 2001.
- [104] TYRALIS, H.; PAPACHARALAMPOUS, G. Variable Selection in Time Series Forecasting Using Random Forests. Algorithms 2017, v. 10(4):114.
- [105] LIAW, A.; WIENER, M. Classification and Regression by randomForest. R News, v. 2(3):18-22. 2002.
- [106] SVETNIK, V.; LIAW, A.; TONG, C.; WANG, T. Application of Breiman's Random Forest to Modeling Structure-Activity Relationships of Pharmaceutical Molecules, MCS, Roli, F. and Windeatt, T. (Eds.), v. 1:334-343. 2004.
- [107] DORMANN, F.C; MCPHERSON, M.J; ARAÚJO B.M.; BIVAND, R.; BOLLIGER, J.; CARL, G.; DAVIES, R.; HIRZEL, A.; JETZ, W.; DANIEL KISSLING W.; KÜHN, I. Methods to account for spatial autocorrelation in the analysis of species distributional data: a review. Ecography, v. 30 (5):609-28. 2007.
- [108] TAKAGAKI, K.; MINAKUCHI, S.; TAKEDA, N. Process-induced strain and distortion in curved composites. Part II: Parametric study and application. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, v. 103:219-229. 2017.

## 9. APÊNDICES

### APÊNDICE 9.1 - GRAU DE CURA APURADO POR DSC.

Sequência de empilhamento	Taxa de resfriamento	Data de fabricação (2016)	Data da 1ª DSC	Grau de Cura (%)	Data da 2ª DSC	Grau de Cura (%)
	CR 1	24/05	26/10/2017	97,598	13/06/2018	99,785
[0 60] s	CR 2	25/05	26/10/2017	98,799	13/06/2018	99,922
	CR 3	27/05	26/10/2017	99,147	13/06/2018	99,950
	CR 1	24/05	26/10/2017	96,629	13/06/2018	99,739
[0 60] <sub>2s</sub>	CR 2	25/05	26/10/2017	99,763	13/06/2018	99,910
	CR 3	27/05	27/10/2017	98,533	15/06/2018	99,644
	CR 1	24/05	27/10/2017	99,567	20/06/2018	99,957
[0 60] <sub>4s</sub>	CR 2	25/05	27/10/2017	99,110	15/06/2018	99,996
	CR 3	27/05	27/10/2017	98,904	20/06/2018	99,853
	CR 1	20/05	16/10/2017	97,970	06/06/2018	99,199
[0 30] <sub>s</sub>	CR 2	21/05	16/10/2017	99,278	06/06/2018	99,313
	CR 3	22/05	16/10/2017	94,491	06/06/2018	99,088
	CR 1	20/05	16/10/2017	94,393	17/07/2018	99,810
[0 30] <sub>2s</sub>	CR 2	21/05	19/10/2017	99,768	17/07/2018	99,933
	CR 3	22/05	19/10/2017	99,853	17/07/2018	99,861
	CR 1	20/05	25/10/2017	99,479	17/07/2018	99,718
[0 30] 4s	CR 2	21/05	25/10/2017	99,150	17/07/2018	99,610
	CR 3	22/05	25/10/2017	98,967	18/07/2018	99,333
	CR 1	16/05	07/04/2017	96,487	09/11/2017	99,817
[30,60] s	CR 2	17/05	17/02/2017	97,850	31/10/2017	99,657
	CR 3	18/05	15/12/2016	99,490	31/10/2017	100,000
	CR 1	16/05	07/04/2017	96,510	30/11/2017	99,704
[30,60] <sub>2s</sub>	CR 2	17/05	17/02/2017	96,074	31/10/2017	99,638
	CR 3	18/05	15/12/2016	98,950	31/10/2017	100,000

	<b>CR</b> 1	16/05	07/04/2017	98,256	07/11/2017	99,585
[30,60] <sub>4s</sub>	CR 2	17/05	17/02/2017	98,478	31/10/2017	99,782
	CR 3	18/05	15/12/2016	98,690	31/10/2017	99,916
	CR 1	05/05	03/05/2017	97,968	18/12/2017	99,554
[ 0,90 ] <sub>s</sub>	CR 2	06/05	11/05/2017	99,100	18/12/2017	99,589
	CR 3	08/05	11/05/2017	99,537	18/12/2017	99,582
	CR 1	05/05	11/05/2017	99,352	18/12/2017	99,824
[0,90] <sub>2s</sub>	CR 2	06/05	11/05/2017	99,358	18/12/2017	99,745
	CR 3	08/05	11/05/2017	99,497	18/12/2017	99,920
	CR 1	05/05	23/05/2017	92,873	19/12/2017	99,473
[0,90] <sub>4s</sub>	CR 2	06/05	23/05/2017	90,752	19/12/2017	97,942
	CR 3	08/05	23/05/2017	94,889	19/12/2017	99,778
	CR 1	08/04	23/05/2017	96,317	19/03/2018	99,150
[45,30] s	CR 2	20/04	23/05/2017	94,918	19/03/2018	99,876
	CR 3	25/04	01/06/2017	98,514	19/03/2018	98,996
	CR 1	08/04	01/06/2017	98,861	30/11/2017	99,342
[45,30] <sub>2s</sub>	CR 2	20/04	01/06/2017	97,612	19/03/2018	99,174
	CR 3	25/04	01/06/2017	96,584	19/03/2018	99,488
	CR 1	08/04	01/06/2017	97,778	19/03/2018	98,110
[45,30] <sub>4s</sub>	CR 2	20/04	01/06/2017	96,186	19/03/2018	98,749
	CR 3	25/04	01/06/2017	99,218	19/03/2018	99,578
	<b>CR</b> 1	27/04	07/04/2017	94,895	09/11/2017	98,104
$[\pm 45, \pm 30]_{s}$	CR 2	29/04	10/04/2017	98,209	30/11/2017	99,934
	CR 3	30/04	17/01/2017	93,175	07/11/2017	99,523
	CR 1	27/04	10/04/2017	97,479	09/11/2017	98,915
$[\pm 45, \pm 30]_{2s}$	CR 2	29/04	17/01/2017	96,071	07/11/2017	99,431
	CR 3	30/04	10/04/2017	98,454	30/11/2017	99,792
	CR 1	27/04	17/02/2017	97,312	09/11/2017	99,234
$[\pm 45, \pm 30]_{4s}$	CR 2	29/04	17/01/2017	96,270	09/11/2017	99,680
	CR 3	30/04	07/04/2017	99,089	30/11/2017	99,768

	CR 1	01/05	27/04/2017	98,497	12/12/2017	99,904
[90 4]	CR 2	02/05	27/04/2017	99,016	12/12/2017	99,898
	CR 3	04/05	27/04/2017	98,674	14/12/2017	99,989
	CR 1	01/05	27/04/2017	98,727	14/12/2017	99,766
[90 <sub>4</sub> ] <sub>s</sub>	CR 2	02/05	27/04/2017	97,732	14/12/2017	99,942
	CR 3	04/05	03/05/2017	99,217	14/12/2017	99,800
	CR 1	01/05	03/05/2017	98,589	15/12/2017	99,681
[90 <sub>4</sub> ] <sub>2s</sub>	CR 2	02/05	03/05/2017	98,554	15/12/2017	99,551
	CR 3	04/05	03/05/2017	98,725	15/12/2017	99,182
	CR 1	09/05	01/06/2017	98,148	19/03/2018	98,749
[± 45 4]	CR 2	10/05	01/06/2017	99,211	19/03/2018	99,410
	CR 3	12/05	01/06/2017	98,992	18/03/2018	99,143
	CR 1	09/05	05/09/2017	98,044	20/03/2018	99,097
[± 45 4] s	CR 2	10/05	16/10/2017	99,167	20/03/2018	99,193
	CR 3	12/05	05/09/2017	95,086	20/03/2018	98,552
	CR 1	09/05	06/09/2017	98,697	06/06/2018	99,146
[± 45 4] 2s	CR 2	10/05	06/09/2017	99,758	06/06/2018	99,785
	CR 3	12/05	06/09/2017	96,962	15/06/2018	99,177
	CR 1	26/02	10/04/2017	95,438	01/12/2017	99,904
[04]	CR 2	03/03	20/04/2017	98,450	01/12/2017	99,759
	CR 3	09/03	20/04/2017	95,748	01/12/2017	99,899
	CR 1	26/02	17/02/2017	95,528	07/11/2017	99,154
[0 <sub>4</sub> ] <sub>s</sub>	CR 2	03/03	17/01/2017	95,147	07/11/2017	99,423
	CR 3	09/03	10/04/2017	95,255	04/12/2017	99,887
	CR 1	26/02	20/04/2017	94,516	04/12/2017	99,271
[0 <sub>4</sub> ] <sub>2s</sub>	CR 2	03/03	20/04/2017	97,491	12/12/2017	99,806
	CR 3	09/03	20/04/2017	90,427	12/12/2017	98,685

	Matrizes de Rigidez							
Sequência de Empilhamento		[ A lb/i	.] n		[ <b>D</b> ] lb.in			
[30,60] s	[1,6129 0,7603 0,8618	0,7603 1,6129 0,8618	0,8618 0,8618 0,8789 *1,0*e5	[7,864 2,534 3,852	1 2,5343 3 2,8885 5 1,8928	3,8525] 1,8928 2,9296]		
[30,60] <sub>2s</sub>	[3,2258 1,5206 1,7236	1,5206 3,2258 1,7236	1,7236] 1,7236]*1,0*e5 1,7578]	[52,9614 20,2746 [26,9006	20,2746 33,0592 19,0615	26,9006] 19,0615 23,437		
[30,60] <sub>4s</sub>	[6,4515 3,0412 3,4472	3,0412 6,4515 3,4472	3,4472 3,4472 3,5155 *1,0*e5	[359,0088 162,1970 189,7277	162,1970 329,1555 177,9691	189,7277] 177,9691 187,4900]		

[0 4]	$\begin{bmatrix} 4,2820 & 0,0814 & 0\\ 0,0814 & 0,3015 & 0\\ 0 & 0 & 0,200 \end{bmatrix} *1,0*e5$	$\begin{bmatrix} 12,4891 & 0,2375 & 0\\ 0,2375 & 0,8795 & 0\\ 0 & 0 & 0,5833 \end{bmatrix}$
[0 4] s	$\begin{bmatrix} 8,5640 & 0,1628 & 0\\ 0,1628 & 0,6031 & 0\\ 0 & 0 & 0,400 \end{bmatrix} *1,0*e5$	$\begin{bmatrix} 114,1862 & 2,1711 & 0 \\ 2,1711 & 8,0413 & 0 \\ 0 & 0 & 5,3333 \end{bmatrix}$
[0 <sub>4</sub> ] <sub>2s</sub>	[1,7128 0,0326 0 0,0326 0,1206 0 0 0 0,0800]*1,0*e6	$\begin{bmatrix} 913,\!4897 & \!17,\!3692 & \!0 \\ 17,\!3692 & \!64,\!3303 & \!0 \\ 0 & \!0 & \!42,\!6667 \end{bmatrix}$
[±45, ±30] s	[1,9973 0,8734 0 0,8734 1,0022 0 0 0 0,9920]*1,0*e5	[5,1309 3,1944 1,3247] 3,1944 4,3016 1,0797 1,3247 1,0797 3,5896]
[±45, ±30] <sub>2s</sub>	$\begin{bmatrix} 3,9946 & 1,7469 & 0\\ 1,7469 & 2,0044 & 0\\ 0 & 0 & 1,9841 \end{bmatrix} *1,0*e5$	[50,2076 23,8576 2,6494] 23,8576 28,6469 2,1595 2,6494 2,1595 27,0198]

7,9892	3,4938	$\begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 3,9681 \end{bmatrix} * 1,0*e5$	419,9821	187,4664	5,2988
3,4938	4,0087		187,4664	217,6434	4,3190
0	0		5,2988	4,3190	212,7639]
0,3015	0,0814	$\begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 0,2000 \end{bmatrix} * 1,0*e5$	0,8795	0,2375	0
0,0814	4,2820		0,2375	12,4891	0
0	0		0	0	0,5833]

	[0,6031	0,1628	0 1		[8,0413	2,1711	0 ]
[90 <sub>4</sub> ] s	0,1628	5,5640	0	*1,0*e5	2,1711	144,1862	0
	LΟ	0	0,4000		LΟ	0	5,3333]

 $[\pm 45, \pm 30]_{4s}$ 

[90 4]

[90 4] 2s	[1,7128	0,0326	0	64,3303	17,3692	0
	0,0326	0,1206	0	17,3692	913,4897	0
	0	0	0,0800 *1,0*e6	0	0	42,6667]
[0 90] s	2,2918 0,0814 0	0,0814 2,2918 0	$\begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 0,2000 \end{bmatrix} *1,0*e5$	$\begin{bmatrix} 12,6148 \\ 0,2714 \\ 0 \end{bmatrix}$	0,2714 2,6637 0	0 0 0,6667]

[0 90] <sub>2s</sub>	4,5835 0,1628 0	0,1628 4,5835 0	$\begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 0,4000 \end{bmatrix} * 1,0*e5$	71,0648 2,1711 0	2,1711 51,1627 0	0 0 5,333]
[0 90] <sub>4s</sub>	9,1671	0,3257	0	518,7632	17,3692	0
	0,3257	90,1671	0	17,3692	459,0567	0
	0	0	0,8000]*1,0*e5	0	0	42,6667]
[45 30] s	[1,9973	0,8734	1,1244	[5,1309	3,1944	3,4248]
	0,8734	1,0022	0,7325	3,1944	4,3016	3,0982
	1,1244	0,7325	0,9920	3,4248	3,0982	3,5896]
[45 30] <sub>2s</sub>	[3,9946	1,7469	2,2488	[47,1541	24,4233	28,6915
	1,7469	2,0044	1,4649	24,4233	30,5690	22,1590
	[2,2488	1,4649	1,9841 *1,0*e5	28,6915	22,1590	27,5860
[45 30] <sub>4s</sub>	[7,9892	3,4938	4,4977	[416,9286	188,0321	237,9376]
	3,4938	4,0087	2,9299	[188,0321	219,5654	160,2005
	[4,4977	2,9299	3,9681	[237,9376]	160,2005	231,3300]

[±45 4]	[1,3866 0,9866 0	0,9866 1,3866 0	$\begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 1,1052 \end{bmatrix} * 1,0*e5$	[ 5,1275 3,6483 [-2,5396	3,6483 5,1275 –2,5396	-2,5396 -2,5396 4,0868
[±45 4] s	2,7732 1,9732 0	1,9732 2,7732 0	$\begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 2,2103 \end{bmatrix} * 1,0 * e5$	21,3766 15,2100 2,1768	15,2100 21,3766 2,1768	2,1768 2,1768 17,0381]
[±45 <sub>4</sub> ] <sub>2s</sub>	[5,5464 3,9464 0	3,9464 5,5464 0	$\begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 4,4207 \end{bmatrix} * 1,0 * e5$	[280,2071 199,3737 3,4207	199,3737 280,2071 3,4207	3,4207 3,4207 223,3372]
[0 30] s	[3,4450 0,4209 0,6269	0,4209 0,4597 0,2349	0,6269 0,2349 0,5394 *1,0*e5	[13,5758 0,5543 0,5224	0,5543 1,1369 0,1958	0,5224] 0,1958 0,9495]
[0 30] <sub>2s</sub>	[6,8900 0,8417 1,2537	0,8417 0,9193 0,4698	1,2537 0,4698 1,0789	[100,2363 7,8285 10,4478	7,8285 10,6765 3,9153	10,4478] 3,9153 10,9907]

[0 30] <sub>4s</sub>	[1,3780	0,1683	0,2507	747,4858	84,6915	124,3293
	0,1683	0,1839	0,0940	84,6915	95,6896	46,5922
	0,2507	0,0940	2,1578]*1,0*e6	124,3293	46,5922	109,9890]
[0 60] s	2,4499	0,4209	0,2349	[12,7465	0,5543	0,1958
	0,4209	1,4548	0,6269	0,5543	1,9662	0,5224
	0,2349	0,6269	0,5394]*1,0*e5	0,1958	0,5224	0,9495]
[0 60] <sub>2s</sub>	[4,8998	0,8417	0,4698	[83,6512	7,8285	3,9153
	0,8417	2,9095	1,2537	7,8285	27,2617	10,4478
	[0,4698	1,2537	1,0789	3,9153	10,4478	10,9907]
[0 60] 4s	[9,7995	1,6834	0,9397	[550,1225	84,6915	46,5922
	1,6834	5,8191	2,5075 *1,0*e5	84,6915	293,0528	124,3293
	0,9397	2,5075	2,1578	46,5922	124,3293	109,9890]

Sequência de	Propriedades Mecânicas								
Empilhamento	E <sub>X</sub> (Pa)	$\upsilon_{xy}$	E <sub>y</sub> (Pa)	G <sub>xy</sub> (Pa)	$\eta_{xy,x}$	$\eta_{xy,y}$			
[30,60] s	2,89E+06	0,06445	2,89E+06	1,24E+06	-0,8365	-0,8365			
[0 4] s	2,13E+07	0,2700	1,50E+06	1,00E+06	0	0			
$[\pm 45, \pm 30]_{s}$	3,18E+06	0,1585	4,46E+09	1,30E+06	0	0			
[90 4]s	1,50E+06	0,019	2,13E+07	1,00E+06	0	0			
[0 90] s	1,14E+07	0,1445	1,14E+07	1,00E+06	0	0			
[45 30] s	3,18E+06	0,1018	2,08E+06	1,30E+06	-1,01465	-0,55595			
[ ± 45 4]	2,37E+06	0,1846	2,37E+06	1,35E+06	0	0			
[0 30] s	1,26E+07	0,1445	1,64E+06	1,12E+06	-0,6476	-0,1889			
[0 60] s	1,15E+07	0,18995	2,74E+06	1,12E+06	-0,1889	-0,6476			

# APÊNDICE 9.3 - PROPRIEDADES MECÂNICAS DOS LAMINADOS.

ANEXO A: Análise descritiva das variáveis X1, X2, X3, X4, X5, X6, X7, X8 eX9.



Figura 78: Análise descritiva de X<sub>1</sub>.



Figura 79: Análise descritiva de X<sub>2</sub>.


Figura 80: Análise descritiva de X<sub>3</sub>.



Figura 81: Análise descritiva de X<sub>4</sub>.



Figura 82: Análise descritiva de X<sub>5</sub>.



Figura 83: Análise descritiva de X<sub>6</sub>.



Figura 84: Análise descritiva de X<sub>7</sub>.



Figura 85: Análise descritiva de X<sub>8</sub>.



Figura 86: Análise descritiva de X<sub>9</sub>.

A pesquisa desenvolvida nessa tese possibilitou, até o momento, a elaboração de dois artigos científicos. Nesses trabalhos, o efeito da recuperação angular de *spring-in* e a proposta de nova conceituação do efeito de *spring-back* de compósitos foram discutidos estatisticamente. As modelagens estatísticas desenvolvidas basearam-se em parâmetros que foram criados à partir dos principais fatores influenciadores que foram estudados nessa pesquisa. A principal base utilizada foi a variação do grau de cura através do tempo, combinada com os demais influenciadores físicos e mecânicos abordados.

• Artigo 1: Spring-back behavior on L-shaped composite structures: A statistical analysis of angular recovery as a function of time and residual cure.

Publicado em 21 de junho de 2019 no *Journal* Composites Part A: Applied Science and Manufacturing (ISSN: 1359-835X). Texto completo em anexo. Disponível em: https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1359835X19302404.

• Artigo 2: Application of artificial intelligence models for predicting time-dependent spring-back effect: The L-shape case study.

A ser submetido em breve.

Contents lists available at ScienceDirect

## Composites Part A

journal homepage: www.elsevier.com/locate/compositesa

# Spring-back behavior on L-shaped composite structures: A statistical analysis of angular recovery as a function of time and residual cure

Gláucio C. Pereira<sup>a,\*</sup>, P. LeBoulluec<sup>b</sup>, Wei-Tsen Lu<sup>c</sup>, M.I. Yoshida<sup>d</sup>, Ana P. Alves<sup>e</sup>, Antônio.F. Ávila<sup>f</sup>

<sup>a</sup> Mechanical Engineering Graduate Studies Program, Universidade Federal de Minas Gerais, 6627 Antonio Carlos Avenue, 31270-901 Belo Horizonte, MG, Brazil

<sup>b</sup> College of Engineering, Technology, and Computer Science, Purdue University Fort Wayne, Fort Wayne, IN 46805, USA

<sup>c</sup> Mechanical and Aerospace Engineering Graduate Studies Program, University of Texas at Arlington, Arlington, TX 76019, USA

<sup>d</sup> Chemistry Department, Universidade Federal de Minas Gerais, 6627 Antonio Carlos Avenue, 31270-901 Belo Horizonte, MG, Brazil

<sup>e</sup> Physics Department, Universidade Federal de Minas Gerais, 6627 Antonio Carlos Avenue, 31270-901 Belo Horizonte, MG, Brazil

<sup>f</sup> Mechanical Engineering Department, Universidade Federal de Minas Gerais, 6627 Antonio Carlos Avenue, 31270-901 Belo Horizonte, MG, Brazil

#### ARTICLE INFO

Keywords: Spring-back Spring-in Time-dependency Statistical analysis

#### ABSTRACT

This work investigates the spring-in behavior as a function of time on L-shaped composites. Spring-in represents the angular deformation measured immediately after fabrication of a composite. Over time after fabrication of up to three years, there is an easing back of the spring-in deformation. The main aim of this paper is to reclassify this deformation as spring-back effect, as angular deformation recovered over time. The spring-back effect is measured as a function of time for 27 design of experiments (DOE). We used three different autoclave cooling rates, CR1, CR2, CR3, for an average of 81 samples, and we found that the spring-back effect is approximately 30.0 percent in a period of 30 months. Results also indicate a close connection between the spring-back effect and the cooling rate. Statistical results proved that the degree of cure associated with the cooling rate and with extensional rigidity has a significant effect on spring-back.

#### 1. Introduction

The spring-in effect on curved or angled thermoset composite laminates is a measure of the concave angle of the laminate to become smaller once taken off the mold after an autoclave process. This springin effect is due to deformations generated after cure and the geometry of the tool, as observed by Albert et al. [1]. As presented by Hahn and Pagano [2], in-plane and out-of-plane residual stresses created during the cure process in an autoclave are the result of thermal mismatches between adjacent layers through the thickness. Furthermore, as stated by Wisnom et al. [3], these residual stresses are created by a combination of three major factors: mechanical and chemical thermal shrinkage, thermal induced forces and moments, and laminate geometric conditions, e.g. curvature. It is clear that spring-in effects are related to the residual stresses generated during the curing process in an autoclave. This effect has been analyzed by different approaches. Haghshenas et al. [4] suggested a multi-scale analysis, where the interactions at the fiber-matrix level, ply level and laminate structural level were investigated. Unfortunately, the mechanisms involved

between scale of analysis: micro (fibers –  $\mu$ m), meso (the yarn –  $10^{-1}$  mm) and macro (woven unit cell – mm) are not simple, not well defined and sometimes requires considerable computational time as shown by Bussetta et al. [5]. As described by Darrow and Smith [6], a viable approach is to work at the macroscopic level and consider the laminate as a homogeneous medium. In this research, the idea is to measure the overall composite laminate response by measuring the angular deformation after the autoclave cure. Note that according to the Darrow and Smith [6], the spring-in effect is more evident on flat and thin laminates, but angled or curved laminates are also susceptible to present such geometric variation. In all cases, the temperature gradient and fiber volume fraction are key issues during the autoclave curing process.

Shown by Yoon and Kim [7], the degree of cure, meaning the degree of cross linking of the polymer, affects the physical deformation of a polymer. They also show that a less cured polymer displays a lower modulus of elasticity and a lower heat resistance, or resistance to degradation caused by heat, than a well cured one. So, to produce polymers batches with consistent properties, the degree of cure must be

https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2019.105491

Received 26 February 2019; Received in revised form 23 May 2019; Accepted 19 June 2019 Available online 21 June 2019 1359-835X/ © 2019 Published by Elsevier Ltd.





<sup>\*</sup> Corresponding author. Mechanics of Composites and NanoStructured Materials Laboratory, Universidade Federal de Minas Gerais, 6627 Antonio Carlos Avenue, 31270-901 Belo Horizonte, MG, Brazil.

E-mail address: carleyone@hotmail.com (G.C. Pereira).

uniform. Investigating the influence of curing tools or molds on the stretching and shrinking on the fabrication of composites, Groh et al. [8] analyzed the in-plane and out-of-plane thermal expansion of laminates. Their results indicate that the thermal gradients exist in the width direction of the laminate and are dependent on the volume fraction of the fibers and the elastic and thermal fibers properties. In order to evaluate the polymer degree of cure, several techniques have been applied of which the most used is the Differential Scanning Calorimetry (DSC), as described by Hardis et al. [9]. This technique evaluates the polymer degree of cure by means of the release of heat. The DSC measures the heat involved in a reaction through the curing behavior and quantifies the thermal cure of a composite specimen.

The degree of cure is classified as a thermal cure when it is induced by heat, as described by Acha et al. [10]. To better understand this effect, several studies have investigated the influence of the laminate tool shape on the angular deformation after autoclave curing. Takagaki et al. [11] point out that a larger spring-in effect arises, for L-shaped laminates for example, when longer flanges are accompanied by thicker walled tool producing lower shear stress. Moreover, comparing U and Lshaped structures, a larger deformation is observed in the U structure. Most researchers show that we cannot model the effects of a single U part as the overlapping of two L parts. They found that the internal deformation is independent of the tool thickness and is caused by the mechanical coupling between the tool part and the laminate. As a result, they found that the residual tension produced in the longitudinal direction is not uniform [11]. Grankall et al. [12] proposed a different method to cure composite laminates using concave and convex molds. These types of tooling allow the laminate material to slide against the mold in order to compensate for any deformation. In addition, they placed the prepreg plies on a preheated flat surface to warm them up before curing. The more flexible plies are then laid up on the curved mold to be cured. According to Grankall, this can reduce the effect of angular deformation. The determination of kinetic parameters on the cure process may be obtained by means of thermal analysis using for example a thermally curable sample, as shown by Kamal et al. [13]. Kamal considered the heat capacity either as a constant or displaying a linear dependence as a function of temperature during the cure process. On the other hand, evaluation of the thermal cure as a function of the temperature is difficult because both parameters change simultaneously, as shown by Johnston et al. [14]. They also found that a large difference between the Coefficient of Thermal Expansion (CTE) of the tool and the composite material promotes the spring-in effect.

In order to reduce the spring-in effect on cured laminates composites, Johnston, also proposed an alternative mechanism for laminates manufacturing by means of using a tool with a low CTE against using a tool with a higher CTE. Also, the typical procedures within an autoclave may influence the curing process as observed by Twigg et al. [15]. To cure a composite material, high pressure and high temperature within the autoclave are exerted on the tools and laminate. This high pressure and temperature then causes significant changes in the laminate due to the difference in physical properties between the mold and laminate. In fact, layers adjacent to the tool undergo a greater thermal expansion than the innermost and outer layers (adjacent to a plastic vacuum bag) of the laminate which induces a tensile stress gradient across the thickness of the laminate. Residual stresses result from the non-uniform stress distribution in the sample causing changes in the mechanical properties. This gives rises to a remaining tension trapped in the cured resin, as shown by Zakaria et al. [16]. When the laminate is released from the tool, a resulting flexure is observed which deforms the laminate plies more that are furthest away from the mold.

Studies involving simulation analysis by applying the Finite Element Method (FEM) associated with experimental data of the mechanical angular deformations on laminate have been made by Cinar et al. [17]. Lipcan et al. [18] created an analytical approach that calculates the behavior of orthotropic thermoelastic tension for arbitrary cross sections of the composite structure. The expansion behavior of T-shaped cross-sections was formulated for the first time at different geometric levels taking into account the contribution of the radial filler. Among all these investigations, the interactions between the tool and the composite are modeled as a sliding interface subjected to a constant shear stress.

A major trend in literature suggests that the angular deformation is a result of internal residual stresses of a composite laminate originating from the autoclave curing process. The internal stresses come from three different mechanisms: chemical mechanism, thermo-mechanical mechanism and interaction between the tool and the composite laminate. Also, during the curing cycle, the resin morphology undergoes three different phases which results in a change in the volume fraction that may contribute to internal stresses, as demonstrated by Acha et al. [10]. Acha also found that gradual changes during the transitions among the three curing stages of the laminate resin: viscous, rubbery and vitreous states, can be followed by changes in chemical and physical material properties. As shown by Benavente et al. [19], the thermal incompatibility due to differing CTEs of the polymer matrix and the fibers can also trigger residual stresses. This effect combined with the interaction of the part and the tool contributes significantly to angular deformation. According to Kravechenko et al. [20], the substitution of weak Van der Waals bonds in resin monomers for strong covalent bonds causes the creation of a complex and more rigid molecular network structure. This process causes chemical shrinkage of the resin and increases the density of the material, especially during the constant temperature soak phase, where the laminate absorbs most of the heat required for curing.

The main idea of this work is reclassify the spring-back effect as the recovery on spring-in over time. This effect is supported by means of DSC analysis. For all samples produced, we have done two DSC analyses in one year intervals that indicate the increases in the degree of resin cure. These results proved that after traditional curing in an autoclave, there is residual curing of the resin. This residual cure occurs due to the heat absorption by the surroundings.

There are two main factors that affect the stiffness of the samples. First is the release of locked residual stress which is well known in composite literature. Second is that as the matrix resin cures over time, stiffness increases. We assume that both factors play a major role to produce changes in the residual forces and moments which promote the angular deformations of spring-in and spring-back.

Another goal of this work is to quantify and show the significance of forces and moments on spring-in and spring-back by means of statistical analysis. We assume that the residual degree of resin cure can increase because of structural changes due to the polymerization process that occur during the autoclave cure and remains over time. The non-uniform polymerization of the resin resin causes residual stress as well as changes in the laminate stiffness. This process give rise to different values on forces and moments that develop angular deformation on greater or lesser intensity. This dynamic process could increases or decreases the spring-in effect over time, although generally the springin tends to decrease over a long period. We monitor this behavior over a three year span. For all samples analyzed, final measurements of springin after the three year period are much smaller than the initial measurements.

In sum, the main hypothesis from spring-in prediction over time is based on a parametric study, where variables such as degree of cure, cooling rate, stiffness, thickness, and stacking sequence are evaluated. Those variables are mutual-related and the overall spring-in behavior is a combination of such interrelations. An statistical analysis will be performed to evaluate which mutual correlations are the most important and how they influence the final prediction of spring-in.

#### 1.1. Materials

A 90<sup>0</sup> L-shaped, low carbon, stainless steel tool with a 5.08 cm radius of curvature was manufactured. Fig. 1(a) shows a typical L-shaped tool.



**Fig. 1.** (a) An L-shaped, low carbon stainless steel tool. (b) The three configurations using four plies, eight plies and sixteen plies. (c) Prepreg layup on the mold. (d) Bagging and vacuum setup. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

The composite material studied is *IM7/8552*, a carbon fiber reinforced *epoxy prepeg*. The surfaces of tool were cleaned using a release agent before laying up the *prepreg*.

#### 1.2. Laminate geometric configurations and manufacturing procedures

To evaluate the spring-in and the spring-back effect, a total of 81 samples were fabricated. The samples were prepared using nine different layups as shown in Table 1. To test both thin and thick laminations, samples were made with 4, 8, and 16 plies as shown in Table 1. The thickness of one prepreg ply is 0.127 mm. For families 8 and 9, one ply of composite prepreg consists of a plus and minus angled ply, either 45 or 30 degrees. The total thickness of, for example, a  $\pm$  45<sup>0</sup> ply using this roll is 0.127 mm. Thus, for the family 8 layup  $[\pm 45^0, \pm 30^0]_s$ , the effective number of plies based on equivalent thickness is 4 plies. All layups were built upon the convex L-shaped tool as seen in Fig. 1(c). For each sample, we use three different autoclave cooling rates: 2.78 °C/min, represented by CR1, 5.56 °C/min, CR2, and 11.12 °C/min, CR3. The temperature cycle used in the autoclave is show in Fig. 2, where the 3 cooling rates used are highlighted. When curing samples in the autoclave, 3 samples were run at one time.

 Table 1

 Samples prepared to evaluate the spring-in and spring-back effect.

Families	4 ply layup	8 ply layup	16 ply layup
1	[90 <sup>0</sup> <sub>4</sub> ]	$[90^0_4]_s$	$[90^0_4]_{2s}$
2	$[0^0, 90^0]_s$	$[0^0, 90^0]_{2s}$	$[0^0, 90^0]_{4s}$
3	$[45^0, 30^0]_s$	$[45^0, 30^0]_{2s}$	$[45^0, 30^0]_{4s}$
4	$[30^0, 60^0]_s$	$[30^0, 60^0]_{2s}$	$[30^0, 60^0]_{4s}$
5	$[0^0_4]$	$[0^0_4]_s$	$[0_4^0]_{2s}$
6	$[0^0, 60^0]_s$	$[0^0, 60^0]_{2s}$	$[0^0, 60^0]_{4s}$
7	$[0^0, 30^0]_s$	$[0^0, 30^0]_{2s}$	$[0^0, 30^0]_{4s}$
8	$[\pm 45^0_4]$	$[\pm 45^0_4]_s$	$[\pm 45^0_4]_{2s}$
9	$[\pm 45^0, \pm 30^0]_s$	$[\pm 45^0, \pm 30^0]_{2s}$	$[\pm 45^0, \pm 30^0]_{4s}$



**Fig. 2.** Autoclave temperature cycles with the three different cooling rates used. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

In the specimen preparation, the sample was laid-up and vacuum bagged as illustraded in Fig. 1(c) and (d). Debulking, shown in Fig. 1(d), was applied for 10 min after the ply layup procedure. The curing cycles were keyed in the control box of the autoclave. The actual temperature in the autoclave were recorded and closely matched those as shown in the Fig. 2.

#### 1.3. Data acquisition procedures

In order to better illustrate the spring-in and spring-back effect, the black arrows in Fig. 3(a) show the spring-in effect, defined by the angle,  $\theta_1$ , and the red arrows illustrate the spring-back effect, defined by the angle,  $\theta_2$ . The spring-in effect,  $\theta_1$ , represents the measurement after the fabrication process in which the laminate bends inward after taking it off the mold to an angle less than 90<sup>0</sup> degrees. On the other hand the spring-back effect,  $\theta_2$ , represents a partial recovery of the inward



**Fig. 3.** (a) Illustration of the spring-in angle, represented by the angle  $\theta_1$ , and spring-back represented by the angle  $\theta_2$ . (b) The Digi-Pas DWL-3000 acquiring the directions of flange angles. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

deformation as a function of time after the fabrication process of the samples. Just a few days are necessary to observe the phenomenon of spring-back. A *Digi-Pas DWL-3000 XY*, illustrated in Fig. 3(b), was used to measure the deformed angle for each arm of the L-shaped laminates [17]. Fig. 3(b) displays the acquisition systems placed on the vertical and horizontal axes for all configurations. Each sample's spring-in was measured 20 times on different locations of the flange for both axes.

Fig. 4(a) illustrates the procedures performed to evaluated the degree of cure of each specimen which was performed with a Shimadzu DSC-60, Differential Scanning Calorimetry. The polymer sample was heated by the heaters shown and sensors connected to a computer obtained the energy flow as a function of the temperature. A typical result evaluating the energy flow (mW) as a function of the temperature (°C) for two different data acquisition is shown in Fig. 4(b) and (c). The blue curve represents a 100% cured resin (the heat represented by the cured part,  $\Delta h_{cure}$ , is equal to the total heat of the reaction) and the red curve represents the uncured resin. The area between the blue and red curves is converted to obtain the degree of cure of the composite, represented by ' $\alpha$ '. This is done by taking the difference between of the enthalpy of cured resin,  $\Delta h_{cure}$ , and the uncured resin,  $\Delta h_{uncured}$ , divided by the enthalpy of uncured resin,  $\Delta h_{uncured}$ , as shown in Eq. (1).

$$\alpha = \frac{\Delta h_{cure} - \Delta h_{uncure}}{\Delta h_{uncure}} \tag{1}$$

The degree of cure was taken on the same sample  $[0_4]_s$  at different times as show in Fig. 4(b) and (c). For the sample on 10/04/2017, as shown in



**Fig. 4.** A plot of the Energy Flow (mW) as function of temperature (°C) evaluating the degree of cure of a  $[0_4]_s$  laminate over a period of approximately eight months. (a) Schematic representation of DSC sample processing. (b) On 10/04/2017 the degree of cure obtained was 95.26%. (c) On 04/12/2017 the degree of cure obtained was 99.89%. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

Fig. 4(b), the degree of cure obtained was about 95.3%. The degree of cure obtained approximately eight month after was 99.9%, as shown in Fig. 4(c). This sample was cured in the autoclave on 09/03/2016 with a CR3 cooling rate. If no significant area is detected between the blue and red curve in the plot, the cure can be assumed to be almost complete, as any remaining curing may be out of DSC detection range [21]. The DSC data allowed us to compute the degree of cure of each sample over time and consequently to calculate the mechanical properties evolution over time.

All samples were kept in an insulation chamber in relation to humidity. In addition, all of them were weighed and had their dimensions measured 12 times, month to month, in an interval of one year. It was found that there were no changes in weight or volume during that time. For this reason, moisture absorption was disregarded as a spring-in and spring-back influencer.

#### 1.4. Statistical analysis

To analyze the data, a statistical model was sought to evaluate the spring-in behavior for composites by considering variables including the stacking sequence, cooling rate, and time. The correlation of the degree of curing by DSC to the thickness and sequence of angular stacking of the curved composites was also investigated. The purpose was to establish a direct quantitative relationship between the degree of curing of these specimens and the behavior of the recovery on the spring-in while minimizing the standard error.

The statistical analysis is done in two ways. First, we propose *Model A*, *a Multivariate regression model*, as described in Section 1.4.1, which describe the influence of nine variables such as the degree of cure, and physical and mechanical properties on the spring-in. Next, we propose the *Model B*, *a Temporal longitudinal model*, as shown in Section 1.4.2. *Model B* analyzes the influence of statistical cofactors to predict spring-in response with inputs of forces and moments at each time period in which the spring-in was measured and especially the time initially after curing in the autoclave.

#### 1.4.1. Model A: Multivariate regression model

To find a model that best describes the influence of mechanical and physical parameters on the spring-back effect, a study of the variables involved with material deformation is done. The objective is to determine the best choice of statistical treatment to apply on the data. As can be seen in Table 2, the physical and mechanical factors used in this study are described and the association between them is shown. The correspondence between these quotients and the variables that were used in the construction of this model is included in Table 2.

From the original data, Table 3 shows the Pearson correlation matrix that was calculated with the Pearson correlation test using the *correlation function chart* of the *Performance Analytics tool* found in *R Software, version* 3.5.1[22]. The presence of high correlations between possible covariates in the regression model, such as between  $X_3$  and  $X_8$ ,

#### Table 2

Relationship between mechanical and physical parameters used as variables in the multivariable regression model.

Factors	Unit	Variables
Spring-back	degree	Y
$\Delta$ Spring-in/ $\Delta$ time	degree/days	$X_1$
$\Delta$ Spring-in/cooling rate	degree/°C	$X_2$
∆Degree of cure/thickness	$\Delta\%$ cure/mm	X3
$\Delta Degree of cure/\Delta time$	$\Delta\%$ cure/days	$X_4$
∆Degree of cure/cooling rate	$\Delta\%$ cure/°C	X5
$\Delta Degree of cure/E_x$	$\Delta\%$ cure * m/N	X <sub>6</sub>
$\Delta Degree of cure/E_y$	$\Delta\%$ cure * m/N	X <sub>7</sub>
$\Delta$ Degree of cure/G <sub>xy</sub>	$\Delta\%$ cure * m/N	X <sub>8</sub>
Cooling rate	°C/min	$X_9$

displays a positive and close association as shown in bold in Table 3. According to Dormamn et al. [23], to avoid multicollinearity problems, only one covariate was kept in the analysis and the other was disregarded. In this case, the one that has the highest correlation with the variable response Y is maintained, as shown in the first column of this table. With respect to the variables X<sub>3</sub> and X<sub>8</sub> exemplified, the variable X<sub>3</sub> is maintained because it has a higher correlation with the variable Y, 0.268, than the variable  $X_8$ , which has a correlation with Y of 0.203. The largest value of multicollinearity between the variables X and the variable Y, which in this case was the variable  $X_{3}$ , - 0.346, was highlighted in bold in the first column of the table. Multicollinearity values greater than 0.500 were also highlighted among the X variables, such as 0.588 between  $X_5$  and  $X_8$ . Each bold number is related to two variables. Those variables are strongly related and they will have a large influence into the spring-in prediction. Moreover, the bold "variables" (X<sub>i</sub>-X<sub>i</sub>) have mutual influence into the spring-in model prediction. Bold variables with high values (X<sub>2</sub>-X<sub>1</sub>, X<sub>8</sub>-X<sub>3</sub> and X<sub>8</sub>-X<sub>7</sub>) are the ones with the largest influence into the spring-in prediction. However, variables X8-X5 and X8-X6 cannot be neglected as they will also have influence into our predictions. The most important "mutual-effect" into the spring-in prediction is the X8-X3 variable, which means that combined effect os degree of cure variation over coupling stiffness and degree of cure variation over thickness is the key issue into the spring-in prediction.

#### 1.4.2. Model B: temporal longitudinal

The database is composed of 81 composites samples and the springin has been measured for each of them at ten different times between May 28, 2016 and August 28, 2018. The time in days between these spring-in measurements is shown in the Table 4. The time ' $T_0$ ' is the initial measurement which corresponds to when the sample is taken out of the autoclave, and ' $T_0$ ' is the final time measurement. Additional measurements were taken in September, October and November 2018, but since August 2018, there has been no detectable angular change in the measurements, so only the ten measurements performed between May 28, 2016 and August 28, 2018 are utilized in the statistical analysis. There are also measurements of six covariates taken at the same ten reading times as for the spring-in. These are:  $M_x$ ,  $M_y$ ,  $M_{xy}$ ,  $N_x$ ,  $N_y$  and N<sub>12</sub>, which are forces and moments. The mechanical constants are calculated by composite classical lamination theory [24]. This theory is used to connect the mechanical deformations with the values of the degree of cure with respect to time. The stiffness matrices A and D are calculated with the assumption that the material is orthotropic and symmetrical. Eqs. (2) and (3) are then utilized to find the forces  $\vec{N}$  and moments  $\vec{M}$ . The translational strains and curvatures are determined by the geometric measurements of each sample. All calculations and transformations are made using MatLab Software R2017b. The vectors of the forces  $\vec{N}$  and moments  $\vec{M}$  are defined as,

$$\begin{bmatrix} N_{x} \\ N_{y} \\ N_{xy} \end{bmatrix} = [\mathbf{A}] \begin{bmatrix} \mathbf{e}_{x}^{0} \\ \mathbf{e}_{y}^{0} \\ \mathbf{e}_{xy}^{0} \end{bmatrix}$$
(2)
$$\begin{bmatrix} M_{x} \\ M_{y} \\ M_{xy} \end{bmatrix} = [\mathbf{D}] \begin{bmatrix} \kappa_{x} \\ \kappa_{y} \\ \kappa_{xy} \end{bmatrix}$$
(3)

In the Eqs. (2) and (3),  $\epsilon^0$  represents the mid-plane strains while due to plane stress assumption, stresses in thickness direction are negligible. The variable  $\kappa$  represents the curvature of the composite. After calculating the degree of cure using DSC on distinct dates separated by several months, a simple linear regression was performed to determine the approximate degree of cure on the dates when the spring-in measurements were made. On each date that the degree of cure was taken, such as shown in Fig. 4(b) and (c), we obtained the mechanical constants listed in Table 5. The mechanical constants shown in Table 5

#### Table 3

Pearson correlation matrix obtained from the original data.

	Y	$X_1$	X2	X <sub>3</sub>	X4	X5	X <sub>6</sub>	X <sub>7</sub>	X <sub>8</sub>	$X_9$
Y	1.000									
$X_1$	- 0. 346	1.000								
$X_2$	- 0.288	0.800	1.000							
X <sub>3</sub>	0.268	- 0.229	- 0.253	1.000			Symn	netric		
X <sub>4</sub>	0.180	0.118	0.037	0.724	1.000					
X <sub>5</sub>	0.079	0.083	- 0.170	0.570	0.770	1.000				
X <sub>6</sub>	0.166	- 0.451	- 0.398	0.662	0.349	0.268	1.000			
X7	- 0.028	0.146	0.070	0.747	0.545	0.416	0.171	1.000		
X <sub>8</sub>	0.203	- 0.152	- 0.193	0. 986	0.747	0.588	0.569	0.803	1.000	
$X_9$	- 0.017	0.102	- 0.006	0.211	0.242	0.203	0.162	0.140	0.210	1.000

Table 4

Time in days between spring-in measurements and time coefficients.

Spring-in measurements	Time (days)	Time coefficients
0	0	$T_0$
1	29	$T_1$
2	57	$T_2$
3	261	$T_3$
4	342	$T_4$
5	372	$T_5$
6	403	$T_6$
7	586	$T_7$
8	648	$T_8$
9	850	$T_9$

Table 5

Mechanical constants used in Classical Laminate Theory to obtain stiffness matrices.

Constants	Name
$E_x = E_y = G_{xy} = 0$ $\sigma_{xy} = \sigma_{xy} = 0$ $\sigma_{xy,x} = 0$ $\sigma_{xy,x} = 0$ $\sigma_{xy,y} = 0$	longitudinal modulus tranverse modulus in-plane shear strength major Poissons ratio coefficientes of mutual influence coefficientes of mutual influence

were evaluated based on degree of cure at each spring-in evaluation date. To be able to have a mechanical constant "time dependent" a linear regression based on two DSC analysis was applied.

If a simple linear regression model is fitted, we assume a constant variance for the errors in the model. On the other hand if we have data collected over time, this assumption is fragile and probably broken. In order to resolve this fact and to model the mean of the model, the variance-covariance structure needs to be studied [25]. We use of the maximum likelihood method (usual or restricted) to analyze temporally correlated data in ours multivariable regression models. Generalized marginal models chosen are labeled as V and W. According to Dormamn et al. [23], the labels V and W are generic variables that are used in a comparative way to demonstrate these statistical methods when considering covariance model structures and variance.

Although some statistical methods are not familiar to the composite community, to be able to clarify some "statistical issues", it is important to review some statistical concepts. The flexibility assumptions are to investigate the possibility of not specifying a distribution for Y, the impact is when we misuse W instead of the correct structure V, and the principle of generalized estimation equations. The effect is that the punctual estimation is not vitiated, however, the variance is vitiated but very close to the original if the structure was correct, which in most cases is a reasonable estimator. Therefore, it requires only the correct specification of the mean structure of the response variables, without making any distributional assumptions. Marginal models generate consistent and asymptotically normal estimates for the parameters, even with poor specificity of the variance structure. The possibilities of specifying the structure of variance are: independence (uncorrelated long-term data), composite symmetry (same correlation for all components) [26]. Correlation decreases over time, but is valid only for similar  $\frac{(n(n-1))}{2}$  measured correlations [26,27].

#### 2. Results

#### 2.1. Spring-in and spring-back as a function of time for different thicknesses

This section shows the results obtained of several composites fabricated under different cooling rates, and layups. The spring-in and the spring-back behavior was measured over approximately 30 months. It was found that there were small insignificant angular deformations after November 2018. Fig. 5 displays the spring-in angle for all nine samples variations consisting of 4 plies for the three different cooling rates where one set of blue, gray and red bars are measurements taken from one sample. The blue bars represent the initial spring-in measurement made on May 2016 immediately after samples were taken out of the autoclave. The gray bars represent the intermediate spring-in measurement made on January 2017, 8 months after the initial measurement. The red bars represent the last spring-in measurement taken which was in November 2018, approximately 30 months from the initial measurement. The plots in Fig. 5 labeled (d), (e) and (f) represent the total spring-back percentage, or recovered angular deformation, that has occurred over 30 month period of time for each family. Basically, this is the percentage difference between the blue and red bars. These plots show this percentage difference,  $\% \delta \theta$ , for each family at each cooling rate. The percentage is calculated as follows in Eq. (4) where the modulus of the difference in the spring-in measurements,  $\theta$ , taken in 2018 and 2016, multiplied by 100, is divided by the spring-in measurement in 2016.

$$\%\delta\theta = \frac{|\Delta\theta_{2018} - \Delta\theta_{2016}|}{\Delta\theta_{2016}} \cdot 100 \tag{4}$$

As shown in Fig. 5(a), (b) and (c), the spring-in angle decreases as a function of time. Similar behavior was observed for almost all samples over all three cooling rates. When using the cooling rate rate CR3, a smaller average difference of 16.6% across all families is observed in the recovery of the spring-in angle between the intermediate and final readings than between the initial and intermediate readings where the average recovery is 40.2%. This is despite the longer period of 22 months between the intermediate and final readings compared to 8 months between the initial and intermediate readings. On the other hand, the difference in the recovery of spring-in between the intermediate and final readings is well-marked for the rate CR1 (38.3%). The difference in the readings is a measure of spring-back which is actually a recovery of the spring-in deformation. As show in Fig. 5(d), (e) and (f), the total spring-back effect, over the 30 month period is most pronounced for family 1 over all three cooling rates, always higher than 75.0%. The highest spring-back occurred with family 1 at a CR2 cooling rate at



Fig. 5. The spring-in angular deformation of composites made using four plies for all nine samples variations measured in: May 2016 (blue bar), Jan 2017 (gray bar) and Nov 2018 (red bar). All data is shown for three different cooling rates: (a) CR1 (2.78 °/mim), (b) CR2 (5.56 °/mim), and (c) CR3 (11.12 °C/mim). The standard deviation for all 20 measurements is shown in the plot. Green bars show the spring-back percentage for cooling rates: (d) CR1, (e) CR2 and (f) CR3. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

96.2%. For family 4 has the second highest spring-back, always higher than 50.0% (horizontal dotted lines shown in the figures), and higher for rates 1 and 3 cooling rates.

To evaluate the effect of spring-in and spring-back as a function of time for different thicknesses, the same characterization using samples with eight and sixteen plies was performed as shown in Figs. 6 and 7. Fig. 6 shows the spring-in angle of composites made using eight plies where the spring-in angle is smaller than those of samples made using four plies. A similar conclusion is also described in literature [28]. As shown in Figs. 5–7, there appears to be an inverse proportional relationship between thickness and spring-back. With increasing layers of the composites, the spring-back effect decreases drastically. For 4 ply laminates, the spring-back values of almost all families are close to or greater than 50%. For 8 ply laminates, these values decrease significantly, and for 16 plies, except for family 1 with the CR3 cooling

rate, all families have values lower than 50% when considering springback. For the 8 ply composites in Fig. 6, it should be noted that there were only 2 cases of a family sample that had a spring-back over 50% which occurred with the CR2 cooling rate. It is also noted that families 3, 4 and 8 present the highest values of spring-back, considering all the cooling rates for 8 ply composites.

Fig. 7 shows the spring-in angle of composites made using sixteen plies where the spring-in angles are smaller than the samples made using eight plies. This effect of laminate thickness on the spring-in is expected based on established scaling laws, as predicted by Twigg et al. [29]. Here, we observe that in general the spring-in from the 90<sup>o</sup> composite L-shaped molds becomes smaller after a long period of time after the fabrication process which indicates the spring-back effect. The spring-back effect for these thicker composites is more pronounced for family 4 with the cooling rates CR1 and CR2. For cooling rate CR3, the



**Fig. 6.** The spring-in angular deformation of composites made using eight plies for all nine samples variations measured in: May 2016 (blue bar), Jan 2017 (gray bar) and Nov 2018 (red bar). All data is shown for three different cooling rates: (a) CR1 (2.78 °/mim), (b) CR2 (5.56 °/mim), and (c) CR3 (11.12 °/mim). The standard deviation for all 20 measurements is shown in the plot. Green bars show the spring-back percentage for cooling rates: (d) CR1, (e) CR2 and (f) CR3. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

highest spring-back percentage is found for families 1 which is the only sample of the 16 ply laminates that has a percentage greater than 50%.

In most of the samples within each family, we observe that the angular deformation decreases over time. Although in some families for all cooling rates, CR1, CR2 and CR3, the spring-in angle increases again over time from 2017 to 2018, displaying an anomalous behavior over time. We assume that this anomaly is caused by the molecular rearrangement of the epoxy base structure of the polymer resin together with the release of the residual stresses that were trapped during the autoclaving process. We assume that this anomalous behavior comes from structural changes in resin because it is more frequent for samples with a smaller thickness, as shown in Figs. 5 and 6. For the samples with a larger thickness, sixteen plies, we observe this anomalous behavior occurs only for family #6 on the CR2, as shown in Fig. 7. So, we understand this anomalous behavior as a molecular rearrangement of

resin associated with the release of residual stresses trapped during the autoclaving process. The curing process over time is non-uniform and great relaxation can be achieved when the spring-in effect increases as in the period from 2017 to 2018. These processes alter the magnitude of the forces and moments that are produced over time along with the stiffness changes of the sample. The transition from the uncured to cured resin (which change the average density of the laminate) also contribute to this process since they modify the molecular structure of the composite, also changing its stiffness.

Based on idea of molecular rearrangement another hypothesys can be formulated for the anomoulus results. The molecular rearrangement can be seen as a viscous-behavior of the non-fully cured remaining epoxy resin. This behavior decreases over time as the cure is approach to 100%. This behavior can be altered by the stacking sequence as the fiber spatial distribution can block or allow the viscous-behavior. This



**Fig. 7.** The spring-in angular deformation of composites made using four sixteen for all nine samples variations measured in: May 2016 (blue bar), Jan 2017 (gray bar) and Nov 2018 (red bar). All data is shown for three different cooling rates: (a) CR1 (2.78 °/mim), (b) CR2 (5.56 °/mim), and (c) CR3 (11.12 °/mim). The standard deviation for all 20 measurements is shown in the plot. Green bars show the spring-back percentage for cooling rates: (d) CR1, (e) CR2 and (f) CR3. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

effect is observed in Fig. 5(a) groups #4,  $[30^{\circ}, 60^{\circ}]_{s}$ , and #8,  $[\pm 45_{4}^{\circ}]_{s}$ .

#### 2.2. Model A: multivariate regression model

In order to construct the multivariate regression model, a factorial analysis was performed with the main components to create independent factors. The factorial analysis scores are used as covariates to model the variability of Y, the response variable which is the spring-in. The factorial analysis is shown in Table 6 where two factors are determined. The factors are  $\Gamma_1 = \Gamma_1 (X_1, X_2, X_3, X_4, X_5, X_6, X_7 and X_8)$  and factor  $\Gamma_2 = \Gamma_2 (X_1, X_2, X_3, X_4, X_5, X_6, X_7 and X_8)$ . The two factors can be seen as each variable individual influence into the spring-in prediction. Moreover, the total spring-in prediction is assumed to be a linear combination of each  $\Gamma$  factor. The two factors represent 77.8% of the total variability. The regression analysis displays a very low

Table 6	5				
D14 .	c	 	 -1-1	1	

{esu	lts f	for norma	l variables	by means	of the	multivariate	regression 1	model.
------	-------	-----------	-------------	----------	--------	--------------	--------------	--------

Variable	$\Gamma_1$	$\Gamma_2$	Communality
X1	-0.197	-0.921	0.88
$X_2$	-0,282	-0.850	0.80
X <sub>3</sub>	0.971	-0.036	0.94
$X_4$	0.820	-0.332	0.78
X5	0.721	0.211	0.57
X <sub>6</sub>	0.637	0.468	0.63
X <sub>7</sub>	0.736	-0.371	0.68
X <sub>8</sub>	0.967	-0.059	0.94

commonality on variable  $X_9$  so it is excluded from the factorial analysis, however the original form of  $X_9$  is still included in the statistical model. As shown by the communality on Table 6,  $\Gamma_1$  is significantly influenced

#### Table 7

Results for coefficients obtained with a multivariate regression model and their t-tests.

Factors	Estimate	Error	р
Intercept	1.2382	0.0456	<0.001
$\Gamma_1$	0.1142	0.0478	0.0200
$\Gamma_2$	0.1295	0.0485	0.0090

by the variables  $X_3$ ,  $X_4$ ,  $X_5$ ,  $X_6$ ,  $X_7$  and  $X_8$ . However, factor  $\Gamma_2$  is significantly influenced by variables  $X_1$  and  $X_2$ . The advantage of conducting this factorial analysis is to drop out correlated variables and leave in uncorrelated variables which make the model more simple, statistically correct, and efficient. Eqs. (4) and (5) below show the co-factors used to calculate the coefficients.

$$\Gamma_{1} = -0.048 * X_{1} - 0.068 * X_{2} + 0.235 * X_{3} + 0.198 * X_{4} + 0.174$$
$$* X_{5} + 0.154X_{6} + 0.178 * X_{7} + 0.234 * X_{8}$$
(5)

$$\Gamma_2 = -0.441 * X_1 - 0.407 * X_2 + 0.017 * X_3 - 0.159 * X_4 - 0.101$$

$$X_{5} = 0.24 * X_{6} = 0.178 * X_{7} = 0.028 * X_{8}$$

Table 8	
Descriptive measures after covariate transformations.	

Coefficient	Estimation	Default Error	CI (95%)	P-value
Intercept	- 3.194	0.638	[-4.4449;-1.9428]	< 0.001
$\log M_y$	- 0.254	0.034	[-0.3193;-0.1880]	< 0.001
$\log N_x$	0.970	0.049	[0.8747;1.0661]	0.047
$\log N_{xy}$	0.497	0.056	[0.3872;0.6072]	< 0.001
$Log N_y$	- 0.053	0.031	[-0.0716;-0.0345]	< 0.001
Time Collate [0, 1]	- 0.089	0.031	[-0.1497;-0.0273]	0.005
Time Collate [0, 2]	- 0.112	0.037	[-0.1857;-0.0390]	0.003
Time Collate [0, 3]	- 0.281	0.046	[-0.3710;-0.1908]	< 0.001
Time Collate [0, 4]	- 0.334	0.044	[-0.4213;-0.2471]	< 0.001
Time Collate [0, 5]	- 0.308	0.037	[-0.3810;-0.2357]	< 0.001
Time Collate [0, 6]	- 0.322	0.043	[-0.4072;-0.2375]	< 0.001
Time Collate [0, 7]	- 0.329	0.040	[-0.4065; -0.2517]	< 0.001
Time Collate [0, 8]	- 0.360	0.051	[-0.4611;-0.2595]	< 0.001
Time Collate [0, 9]	- 0.323	0.052	[-0.4241;-0.2221]	< 0.001

A least squares estimation of the parameters is used to propose a linear model. The results of the coefficients and *t-test* are show in **Table 7**. We can observe that the factor  $\Gamma_1$  and the factor  $\Gamma_2$  are significant, considering the probability with an error equal to 5.0%. So, a



(6)

**Fig. 8.** (a) Box-plots for the spring-in variable and all the following covariates taken at each measurement time: (a) spring-in(red), (b)  $\log M_x$ , (c)  $\log M_y$ , (d)  $\log M_{xy}$ , (e)  $\log N_x$ , (f)  $\log N_y$ , (g)  $\log N_{xy}$ . Red represents the spring-in, blue the momentums M, and green the forces N. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

$$Y = 1.238 + 0.114 * \Gamma_1 + 0.129 * \Gamma_2.$$
<sup>(7)</sup>

Another option to linear model, Eq. (7), is a derivation of a nonlinear model based on individual factors  $\Gamma_1$  and  $\Gamma_2$  (see Appendices A and B for derivation). By comparing Figs. 11 and 12 from appendix it seems that  $\Gamma_1$  model can predict spring-in with better accuracy, see equation below:

$$Y = 1.167^{\Gamma_1}.$$
 (8)

Therefore, based on statistical analysis the spring-in prediction can be done by either of the two models, i.e. the linear based on  $\Gamma_1$  and  $\Gamma_2$ (Eq. (7)) or a non-linear model based on  $\Gamma_1$  only (Eq. (8)).

## 2.3. Model B: temporal longitudinal model

Fig. 8, shows box-plots for the spring-in variable and the Log of all covariates calculated at each time measurement. The data distribution in Fig. 8(a) displays the spring-back effect as evidenced by the mean spring-in deformation decreasing over a long period of time after the composite fabrication. The mean spring-in tends to remain constant after time measurement 4 (342 days after the first spring-in measurement). The data distribution for each covariant does not display abrupt changes as shown in Fig. 8(b)–(e). It suggests that the recovery of deformation, or spring-back, may be a signature of influence of time on the degree of cure on composites.

The temporal longitudinal model was adjusted by removing the variable  $\log M_{xy}$ , which had the highest p-value. In this new model, the covariates  $\log M_{xy}$  and  $\log N_{xy}$  remained non-significant, now with p-values of 0.1 and 0.06 respectively. Again, the variable with the highest p-value,  $\log M_{xy}$ , was used to develop the new model. Using the new model, all covariates, including  $\log N_x$ , are significant. The final model is presented in Table 8, with the estimated coefficients and respective confidence intervals for the estimated parameter and p-value, p < 0.05. The Confidence Interval is displayed in Table 8 by heading title, *CI* (95%).

The temporal longitudinal model developed to predict the response spring-in at the initial time and at the other times based on the covariates  $\log M_y$ ,  $\log N_x$ ,  $\log N_y$  and  $\log N_{xy}$  has a confidence level of 95.0%. So, the general equation of the model is defined as:

$$Y = -3.194 - 0.254 * \log(M_y) + 0.970 * \log(N_x) + 0.497$$
  
\*  $\log(N_y) - 0.053 * \log(N_{xy}) - 0.089 * T_1 - 0.112 * T_2 - 0.281$   
\*  $T_3 - 0.334 * T_4 - 0.308 * T_5 - 0.322 * T_6 - 0.329 * T_7 - 0.360$   
\*  $T_8 - 0.323 * T_9.$  (9)

The times coefficients,  $T_1$ ,  $T_2$ ,  $T_3$ ,  $T_4$ ,  $T_5$ ,  $T_6$ ,  $T_7$ ,  $T_8$  and  $T_9$  are estimated by comparing them with the time 0, base category, and with the others, from  $T_1$  to  $T_9$ . Since all coefficients are negative for the time coefficients, we can say that the mean of the response variable *Y* is decreasing over time. As an example, the average  $T_1$ , as compared to  $T_2$ , decreases by 0.089 units with the increase of  $M_y$  and  $N_{xy}$  unit value. On the other hand, there is an increase in the spring-in average with an increase of units in the  $N_x$  and  $N_y$ . So, all results presented suggest that time influences spring-back deformation after the fabrication of composites.

We assume that spring-in occurs because of structural changes due to the polymerization process that occurs during the autoclave process and is recovered over time as spring-back. The reshuffle of molecular structural on matrix resin, due the non-uniform polymerization process, promotes the released of residual strains at the same time that occurs changes on stiffness. This process give rise to different values on forces and moments that develop angular deformation on greater or lesser intensity. This dynamic process could increases or decreases the springin effect over time, although in general grounds the spring- tends to decreases for a long period, we monitory this behavior for three years span. For all samples analyzed the final measurements of spring- after the period three years is smaller than the initial measurements.

Spring-in effect are indeed influenced by many factors including thermal mismatches between adjacent layers, temperature gradients, fiber volume fraction, cooling rate, and so on, which results in residual stress generated during the curing process. Some techniques are applied in order to reduce the spring-in effect [12,14].

In our study, instead of only considering reducing the spring-in effect, we are focusing on quantifying the spring-back effect. We show evidence that the spring-back effect is significant over a three year period of time. Since all other parameters are controlled during the curing process for all specimens, the only factors which induce the spring-back effect are the stacking sequence, thickness, and time after the autoclave cure, which are selected and presented in the statistical analysis.

In sum, the spring-in over time can be seen as a viscous-behavior based on uncured remain resin trying to go through the stacking sequence of fibers. This viscous-behavior seems to be influenced mainly by mutual-correlated variables, e.g.  $\Delta$  degree of cure/coupling stiffness (X<sub>8</sub>),  $\Delta$  degree of cure/thickness (X<sub>3</sub>) and  $\Delta$  degree of cure/E<sub>y</sub> (X<sub>7</sub>). Moreover, this viscous-behavior is decreasing over time as the degree of cure approaches 100%. Finally, the viscous-behavior can be seen as molecular-mobility based on environmental effects, such as heat absorption from environment temperature variation.

#### 3. Conclusions

This work analyzes the influence of a residual cure effect to recover angular deformation in different L-shaped composite layups. We observed that time is an extremely important factor in this process, since the absorption of heat is necessary and is a determinant factor for residual cure to occur. Also we observe that the spring-back effect is more pronounced on thinner composites. The typical behavior observed on recovery of spring-in deformation is called spring-back and is shown to be more significant for the stacking sequence of four plies compared to the eight and sixteen ply laminates. We evaluated the influence on angular deformation due to time, thickness and different layups of composites. All results indicate that the cure after the standard autoclave manufacturing process is never complete. The effect of springback is significant over approximately a 30 month span. The angular recovery observed in composite deformation is most prominent in the first 8 months after autoclave fabrication. The uncured portion of the resin is subject to post-cure heat absorption which causes residual stresses within the composite promoting structural deformation of the samples.

This phenomenon produces forces and moments that cause an elastic recovery, the so-called spring-back effect, causing the final spring-in of the part to be smaller than initially measured. To describe this phenomenon we proposed a mathematical model to predict the fraction of recovery, Y, in time by means of two different methods. First, we proposed a model for the spring-in with respect to time as a function of a set of variables  $X_1, X_2, X_3, X_4, X_5, X_6, X_7, X_8$ , and  $X_9$ . This set of variables displays a strong dependence with the cooling rate, time, thickness, degree of cure and the mechanical and physical properties of the composites. To quantify the influence of the mechanical deformation on spring-back, we proposed a model by means of statistical analysis that displays a large dependence with the physical and engineering factors related to the degree of curing of the material.

#### **Declaration of Competing Interest**

The authors declared that there is no conflict of interest.

#### Acknowledgments

The authors would like to thank the Graduate Department in Mechanical Engineering at UFMG where this research work was developed. This research was supported mostly by Coordination for the Improvement of Higher Education Personnel (CAPES) under Grant No. 99999.006603/2015-07, and in part by the Brazilian Research Council (CNPq) under Grant No. 147384/2016-8. Much appreciation goes to

the University of Texas at Arlington (UTA) where the manufacturing and measurement of laminate samples were made. All our gratitude goes to Doctor Wen S. Chan (in memorian), Glaucio C. Pereira's former advisor in his Internship term at UTA.

## Appendix A. Model A – multivariate regression model

The multivariate regression model can be done in two ways, using a normal approach considering all the variables ( $X_1$  through  $X_8$ ) or using a corrected approach using only those variables which are significant for each factor,  $\Gamma_1$  ( $X_1$  through  $X_8$ ) and  $\Gamma_2$  ( $X_1$  and  $X_2$ ). These two forms of analysis are used in this work to evaluate the accuracy of the models. The Fig. 9 displays the data scatter for the factor  $\Gamma_1$  and  $\Gamma_2$  scores using normal and corrected variables as a function of the response variable Y. The lack of a linear relationship is evident with factor  $\Gamma_2$  as shown by the Fig. 9 since the distribution of data is heterogeneous in both the normal and corrected plots.



Fig. 9. Plots of the smoothed dispersion between factors  $\Gamma_1$ ,  $\Gamma_2$  and variable response scores Y (a) for normal, and (b) corrected data. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

The typical residual analysis to support the hypothesis of normality for the model is shown in Fig. 10[30,31]. This residual analysis is used in statistics when a linear regression model is not available for the data [32]. In order to assess an appropriated model to describe the behavior of this system, a residual analysis is conducted. The Q-Q (*quantile-quantile*) plot in statistics represents probability distributions. The Q-Q Plot displays the exponential data *quantiles* as a function of normal theoretical *quantiles* as shown in Fig. 10(a). Also, the data is analyzed with a residual histogram that displays the frequency as a function of the residuals as shown in Fig. 10(b). In order to check the accuracy of the model, the scatter of the standardized residuals as a function of the fitted values is evaluated as shown in Fig. 10(c), as well as the order as a function of the residual shown in Fig. 10(d).



**Fig. 10.** (a) Q-Q Plot, displaying the *quantiles* as a function of normal theoretical *quantiles*. (b) Residual histogram displaying the frequency as a function of the residuals. (c) Standardized residuals versus fitted values. (d) Order versus the residuals. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

A Q-Q Plot to support the hypothesis to use the factor  $\Gamma_1$  is shown in Fig. 11(a). The residual histogram for  $\Gamma_1$  has a weighed tail as shown in Fig. 11(b). The standardized residuals versus fitted values plot is shown in Fig. 11(c). This plot displays a point distant from the others in the upper right hand corner of the plot. When this point was excluded, all coefficients are no longer significant so it was decided to keep this point. The plot does not give strong evidence to reject the error independence hypothesis.



**Fig. 11.** Residual analysis to support the hypothesis of normality of the model for the factor  $\Gamma_1$ . (a) Q-Q Plot displaying the exponential data *quantiles* as a function of normal theoretical *quantiles*. (b) Residual histogram displaying the frequency as a function of the residuals. (c) Standardized residuals versus fitted values. (d) Order versus the residuals. (e) The data of the response variable Y as a function of factor  $\Gamma_1$  with the respective equation fit. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

The scores are calculated from Table 7, without considering the corrected factor, since no significant differences were observed. The response variable Y as a function of the factor  $\Gamma_1$ , has a nonlinear relationship, as shown in Fig. 11(e). Here, the nonlinear model  $Y = 1.167^{\Gamma_1}$  is used to fit the data, with a standard error of 6.34% [30,33].

In order to check the hardiness of the factor  $\Gamma_2$ , the same residual analysis is performed. Fig. 12(a) displays how significant the nonlinear models results are. Based on Fig. 12(b), the normality hypothesis for model errors seems more appropriate than  $\Gamma_1$  based on Fig. 11(b), although there is a large deviation in the distribution tail. The standard residuals versus adjusted values plot is shown in Fig. 12(c). The plot of order versus residuals shown in Fig. 12(d), does not reject the hypothesis of independence and uniform variance of the model errors. In a similar way, for the response variable Y as a function of  $\Gamma_2$  as shown in Fig. 12(e), equation  $Y = 1.212^{\Gamma_2}$  is used to fit the data with a standard error of 4.20%.



**Fig. 12.** Residual analysis to support the hypothesis of normality of the model for factor  $\Gamma_2$ . (a) Q-Q Plot, displaying the exponential data *quantiles* as a function of normal theoretical *quantiles*. (b) Residual histogram displaying the frequency as a function of the residuals. (c) Standardized residuals versus fitted values. (d) Order versus the residuals. (e) The data of the response variable Y as a function of factor  $\Gamma_2$  with the respective equation fit. (For interpretation of the references to color in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

### Appendix B. Model B – temporal longitudinal model

The variables, except the spring-in represented by response variable *Y*, have their values distributed over a very large interval and their respective deviations are high. In the case of  $M_{xy}$ , for example, its deviation is approximately fifty-seven thousand units. For this reason, to the construction of the model, a logarithmic function was applied to the covariables in order to reduce the scale of their values. The descriptive measures of the transformed covariates are found in Table 9. The standard deviation is represented by the symbol 'Std' in Table 9.

 Table 9

 Descriptive measurements after covariate transformations.

Variable	Minimum	First	Median	Average	Third	Maximum	Std
$\log M_x$	- 0.147	2.516	3.974	3.913	5.887	6.839	1.835
$\log M_y$	- 1.520	0.787	2.080	2.072	3.202	5.326	2.068
$\log M_{xy}$	- 1.074	1.099	1.643	2.030	2.570	5.506	1.450
$\log N_x$	5.031	10.364	11.049	10.803	11.652	12.462	1.233
$\log N_y$	3.722	8.039	9.254	9.189	10.359	12.165	1.590
Log N <sub>xy</sub>	0.000	0.000	0.000	4.260	9.493	11.421	4.804

#### References

- Albert C, Fernlund G. Spring-in and warpage of angled composite laminates. Compos Sci Technol 2002;62(14):1895–912. https://doi.org/10.1016/S0266-3538(02)00105-7.
- [2] Hahn H, Pagano N. Curing stresses in composite laminates. J Compos Mater 1975;9(1):91–106. https://doi.org/10.1177/002199837500900110.
- [3] Wisnom M, Gigliotti M, Ersoy N, Campbell M, Potter K. Mechanisms generating residual stresses and distortion during manufacture of polymer-matrix composite structures. Compos A: Appl Sci Manuf 2006;37(4):522–9. https://doi.org/10.1016/ j.compositesa.2005.05.019.
- [4] Haghshenas SM, Vaziri R, Poursartip A. Integration of resin flow and stress development in process modelling of composites: part i–isotropic formulation. J Compos Mater 2018:3137–55. https://doi.org/10.1177/0021998318762295.
- [5] Bussetta P, Correia N. Numerical forming of continuous fibre reinforced composite material: a review. Compos A: Appl Sci Manuf 2018;113:12–31. https://doi.org/10. 1016/j.compositesa.2018.07.010.
- [6] Darrow Jr DA, Smith LV. Isolating components of processing induced warpage in laminated composites. J Compos Mater 2002;36(21):2407–19. https://doi.org/10. 1177/0021998302036021784.
- [7] Yoon K, Kim J-S. Effect of thermal deformation and chemical shrinkage on the process induced distortion of carbon/epoxy curved laminates. J Compos Mater 2001;35(3):253–63. https://doi.org/10.1177/002199801772662244.
- [8] Groh F, Kappel E, Hühne C, Brymerski W. Investigation of fast curing epoxy resins regarding process induced distortions of fibre reinforced composites. Compos Struct 2019;207:923–34. https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2018.09.003.
- [9] Hardis R, Jessop JL, Peters FE, Kessler MR. Cure kinetics characterization and monitoring of an epoxy resin using DSC, Raman spectroscopy, and DEA. Compos A: Appl Sci Manuf 2013;49:100–8. https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2013.01. 021.
- [10] Acha BA, Carlsson LA. Evaluation of cure state of vinylester resins. J Appl Polym Sci 2013;127(6):4777–84. https://doi.org/10.1002/app.38025.
- [11] Takagaki K, Minakuchi S, Takeda N. Process-induced strain and distortion in curved composites. Part ii: parametric study and application. Compos A: Appl Sci Manuf 2017;103:219–29. https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2017.09.019.
- [12] Grankäll T, Hallander P, Åkermo M. Geometric compensation of convex forming tools for successful final processing in concave cure tools–an experimental study. Compos A: Appl Sci Manuf 2019;116:187–96. https://doi.org/10.1016/j. compositesa.2018.10.030.
- [13] Kamal M, Sourour S. Kinetics and thermal characterization of thermoset cure. Polym Eng Sci 1973;13(1):59–64. https://doi.org/10.1002/pen.760130110.
- [14] Johnston A, Vaziri R, Poursartip A. A plane strain model for process-induced deformation of laminated composite structures. J Compos Mater 2001;35(16):1435–69. https://doi.org/10.1106/YXEA-5MH9-76J5-BACK.
- [15] Twigg G, Poursartip A, Fernlund G. Tool-part interaction in composites processing. Part i: experimental investigation and analytical model. Compos A: Appl Sci Manuf 2004;35(1):121–33. https://doi.org/10.1016/S1359-835X(03)00131-3.
- [16] Zakaria M, Aminanda Y, Rashidi S, Sah MM. Spring-back of thick uni-directional carbon fibre reinforced composite laminate for aircraft structure application. J Phys: Conf Ser 2018;1005(1):012003. https://doi.org/10.1088/1742-6596/1005/ 1/012003.

- [17] Çınar K, Öztürk UE, Ersoy N, Wisnom MR. Modelling manufacturing deformations in corner sections made of composite materials. J Compos Mater 2014;48(7):799–813. https://doi.org/10.1177/0021998313477896.
- [18] Lipcan M, Balvers JM, Hartmann MP. Thermal response of frame-like composite structures to analytically assess manufacturing distortion. Compos A: Appl Sci Manuf 2018;107:399–408. https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2018.01.012.
- [19] Benavente M, Marcin L, Courtois A, Lévesque M, Ruiz E. Numerical analysis of viscoelastic process-induced residual distortions during manufacturing and postcuring. Compos A: Appl Sci Manuf 2018;107:205–16. https://doi.org/10.1016/j. compositesa.2018.01.005.
- [20] Kravchenko OG, Kravchenko SG, Pipes RB. Cure history dependence of residual deformation in a thermosetting laminate. Compos A: Appl Sci Manuf 2017;99:186–97. https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2017.04.006.
- [21] Horie K, Otagawa A, Muraoka M, Mita I. Calorimetric investigation of polymerization reactions. V. Crosslinked copolymerization of methyl methacrylate with ethylene dimethacrylate. J Polym Sci Polym Chem Ed 1975;13(2):445–54. https:// doi.org/10.1002/pol.1975.170130217.
- [22] Peterson BG, Carl P, Boudt K, Bennett R, Ulrich J, Zivot E, et al. Performanceanalytics: econometric tools for performance and risk analysis. R Package Version 2014;1(3541):107.
- [23] Dormann CF, McPherson JM, Araújo MB, Bivand R, Bolliger J, Carl G, et al. Methods to account for spatial autocorrelation in the analysis of species distributional data: a review. Ecography 2007;30(5):609–28. https://doi.org/10.1111/j. 2007.0906-7590.05171.x.
- [24] Reddy J, Miravete A. 1st ed. Practical analysis of composite laminates vol. 1. CRC Press; 2018.
- [25] Box GE, Jenkins GM, Reinsel GC, Ljung GM. Time series analysis: forecasting and control. 5th ed. John Wiley & Sons; 2015.
- [26] Herring AH. Applied longitudinal analysis, by Garrett M. Fitzmaurice, Nan M. Laird, and James H. Ware. John Wiley & Sons; 2011. 740 p. (2013). Isbn 978-0-470-38027-7.
- [27] Palmgren J. 3. Analysis of longitudinal data (2nd edn). P.J. Diggle, P. Heagarty, K.-Y. Liang and S.L. Zeger, Oxford University Press, Oxford, 2002. No. of pages: xi + 379. Stat Med 2004;23(21):3399–401.
- [28] Kappel E, Stefaniak D, Hühne C. Process distortions in prepreg manufacturing-an experimental study on cfrp l-profiles. Compos Struct 2013;106:615–25. https://doi. org/10.1016/j.compstruct.2013.07.020.
- [29] Twigg G, Poursartip A, Fernlund G. Tool-part interaction in composites processing. Part ii: numerical modelling. Compos A: Appl Sci Manuf 2004;35(1):135–41. https://doi.org/10.1016/S1359-835X(03)00132-5.
- [30] Holst KK. Model diagnostics based on cumulative residuals: The r-package gof, arXiv preprint arXiv: 1507.01173.
- [31] Lin D, Wei L, Ying Z. Model-checking techniques based on cumulative residuals. Biometrics 2002;58(1):1–12. https://doi.org/10.1111/j.0006-341X.2002.00001.x.
- [32] Ghasemi A, Zahediasl S. Normality tests for statistical analysis: a guide for nonstatisticians. Int J Endocrinol Metab 2012;10(2):486. https://doi.org/10.5812/ ijem.3505.
- [33] Fang X, Chan K-S. Additive models with spatio-temporal data. Environ Ecol Stat 2015;22(1):61–86. https://doi.org/10.1007/s10651-014-0283-6.

## Application of artificial intelligence models for predicting time-dependent spring-back effect: The L-shape case study

Gláucio C. Pereira $^{a,*},$  M. I. Yoshida $^b,$  P. LeBoulluec $^c,$  Wei-Tsen Lu $^d,$  Ana P. Alves $^e,$  Antônio F. Ávila $^f$ 

 $^{a}$  Mechanical Engineering Graduate Studies Program, Universidade Federal de Minas

Gerais, 6627 Antonio Carlos Avenue, 31270-901 Belo Horizonte, MG - Brazil. <sup>b</sup> Chemistry Department, Universidade Federal de Minas Gerais, 6627 Antonio Carlos

Avenue, 31270 – 901 Belo Horizonte, MG - Brazil.

<sup>c</sup> College of Engineering, Technology, and Computer Science, Purdue University Fort Wayne, Fort Wayne, Indiana 46805 - USA.

<sup>d</sup> Mechanical and Aerospace Engineering Graduate Studies Program, University of Texas at Arlington, Arlington, Texas 76019 - USA.

<sup>e</sup> Physics Department, Universidade Federal de Minas Gerais, 6627 Antonio Carlos Avenue, 31270 – 901 Belo Horizonte, MG - Brazil.

<sup>f</sup> Mechanical Engineering Department, Universidade Federal de Minas Gerais, 6627 Antonio Carlos Avenue, 31270 – 901 Belo Horizonte, MG- Brazil.

### Abstract

The role of forces and moments in the spring-back effect in L-shaped carbonepoxy composites are investigated. Statistical models and artificial intelligence were used to prove the significance of these physical quantities in the angular deformation of these composites. We follow the spring-in deformation as a function of time three years span, and recently we reclassify the recovery on angular deformation due to residual cure as spring-back. This angular deformation measured for different configurations tends to stabilize after approximately three years after the composite fabrication. The variation on the angular deformation displays direct dependence with the residual curing process for the matrix resin of each specimen. Thirteen angular deformation were measured 3 years span. We calculated the components of forces and moments indirectly

<sup>\*</sup>Corresponding author: Mechanics of Composites and NanoStructured Materials Laboratory , Universidade Federal de Minas Gerais, 6627 Antonio Carlos Avenue, 31270-901 Belo Horizonte, MG - Brazil.

E-mail address: carleyone@hotmail.com

through the Classical Laminate Theory for each composite configuration. The Generalized Additive Models (GAM) evaluate the significance of the forces and moments on spring-back effect. Their output results identify the linear and nonlinear cofactors role as spring-back influencers. The Random Forest model ranked the influence of forces and moments in spring-back deformation. Both statistical models are complementary, GAM predicts the impact of cofactors with accuracy close to 90%, whereas Randon Forest model explains the angular deformation in the mean values with accuracy greater than 91%. *Keywords:* Spring-back, Artificial intelligence, Statistical

analysis, Degree of cure, Time-dependency.

## 1. Introduction

According to D'Elia et al. [1], composite materials field with specific characteristics of response to certain physical parameters such as heat, electricity and high voltage loads has gained prominence in recent years. On the other hand, a large effort has been made to predict the behavior of this material over a long period of time under different mechanical and chemistry cure conditions. The time period used on predictive models is consistent with the material life and has been widely investigated for different engineering applications, predicting the behavior of this type of material over a considerable period of time is con-

- <sup>10</sup> sistent with to its useful life deserves importance. Naveen et al. [2] investigated polymers with different electronic and conductivity properties as sensors. So, in general grounds all these authors point out that composite materials constitute an important class of new and promising structures with several applications in engineering, new technology and medicine. Some of these works [2], investigated
- <sup>15</sup> how composite materials can act as electrochemical sensors. In other words, they investigates how material structures could convert chemical ratios into its matrix into electrical signals exhibiting specific electrical properties such as changes in electric current, potential and conductivity that these samples were subjected to. As mentioned by Mehra et al. [3], the diameter and the alignment of the

- reinforcing carbon fibers of the polymer matrix significantly affect the thermal conductivity of composites. These authors showed that with the 62% reduction in the diameter of these fibers promotes an increase on 73% of its thermal conductivity. Carley et al. [4] have shown that the introduction of dispersed carbon nanotubes into the polymer matrix of composite fibers of carbon signifi-
- <sup>25</sup> cantly increase their strength and stiffness. There was an increase of about 85% in the stress peaks that these samples could withstand before breaking when subjected to tensile tests. These carbon structures would be responsible for increasing the cohesion of the polymer matrix next to the carbon fiber fabric, thereby increasing the strength of the composite. In this work, a large effort join
- <sup>30</sup> experimental and computational data to investigated the behavior of L-shaped composites with polymer matrix subjected to a residual cure after the standard autoclaving process was made, showing how structural changes occur in their geometry over a period of approximately three years span.

In literature, it has been shown that the spring-in effect results from residual stresses governed by three main mechanisms: thermally induced mechanical and chemical shrinkage, thermally induced force and moment loadings, and the curvature of the laminate. According to Groh [5], the residual stresses come from the shrinkage of the polymer resin matrix. In contrast the volume and morphology of the carbon fibers remain virtually constant during the entire

- <sup>40</sup> curing process. These differences in the volumes of the resin and of the carbon fibers reinforcement before and after the curing process promote the existence of these tensions. Also, the non-uniform distribution of the resin along the laminate is a generator of residual stresses since the curved parts of a laminate structure tend to have a lower amount of resin compared to non-curved parts.
- <sup>45</sup> Horgberg et al. [6] investigated the influence of the thickness, mold characteristics, and mechanical properties (obtained using classical lamination theory) on the spring-in effect of the laminate. It was found that all three are determinant factors that induce the angular deformation of L-shaped laminates. This research was carried out experimentally and analyzed by finite element simulations. Horgberg showed that there is a strong dependence of the spring-in spring-in spring-in spring-in spring-in spring-in the spring-in spring-in the spring-in

effect intensity with the thickness of the laminate and a lesser dependence on the shape of the mold. However, the most important and determinant factor for this deformation is the bending stiffness of the laminate.

- Bellini [7] found that residual stresses are caused by thermomechanical and thermochemical effects in the curing process in models of 'L' and 'U' curved composites. Bellini concluded from his results that the effect of the stacking sequence is more relevant to produce spring-in effect than other factors, such as the laminate thickness or mold shape. Corrado et al. [8] showed that residual stresses can also be induced during the curing process due to anisotropic charac-
- teristics from the resin along with the high temperature and pressure to which the laminate is subjected in the autoclave curing process. After experimental tests and numerical simulation runs, these authors were able to analyze how a T-shaped mold can be used to decrease the spring-in effect, where both sides of the mold were used for placement of the curved laminates. This approach
- <sup>65</sup> successfully predicted the spring-in effect. Ding et al. [9] proposed an analytical model where they analyzed the non-linear strain of laminates produced with unidirectional or cross-ply stacking sequences and curved molds of Invar with two different radi. These authors concluded, based on plane stress conditions, that a larger mold radius causes the spring-in effect to be smaller, and that the
- <sup>70</sup> angular deformation is more pronounced in cross-ply composites than in unidirectional specimens. Shah et al. [10] investigated the influence of mold material due to the difference between the coefficient of thermal expansion (CTE) between the mold and the resin and the laminate thickness due to rigidity. The stacking sequence display a smaller effect. As shown by Benavente et al. [11],
- <sup>75</sup> the thermal effects due to different CTEs of the polymer matrix and the fibers can also trigger residual stresses. The residual stresses combined with the interaction between the part and the tool can also contribute significantly to the angular deformation. Grankall et al [12] proposed a different method to cure composite laminates using concave and convex molds. These types of tooling
- allow the laminate material to slide against the mold in order to compensate for any deformation. Moreover, they placed the prepreg plies on a preheated

surface to warm them up before curing. The more flexible plies were then laid up on the curved mold to be cured. According to Grankall, this procedure can reduce the effect of angular deformation.

- In order to better understand the influence of the thermal and chemical variables in the spring-in effect, Rohwen et al. [13] developed and validated a semianalytical model. They concluded that this effect is mainly caused by the different contractions and thermal expansions of the laminate material, combined with the chemical shrinkage between the direction of the fibers and through the
- <sup>90</sup> thickness caused by the autoclave manufacturing process. Also, Rohwen showed that on the curved parts of the samples, the reduction of the thickness in relation to the other parts of the laminate leads to an increase of the curvature.

As reported in literature there is a mismatch in the directions of thermal expansion due to the CTEs between the plies of the laminate and also between <sup>95</sup> the laminate and the mold [14]. Stefaniac et al. [14] showed that the spring-in effect is mainly due to the anisotropy in thermal and cure shrinkage of the laminate resulting in a difference between the through-the-thickness and in-plane strains, which is dominant on curved sections. The warpage is predominantly due to the bending moments induced by tool-part interaction as a result of the

difference between through-the-thickness and in-plane stresses affecting the initial radius of curvature of the laminate. Twig et al. [15] also investigated the effect of CTE mismatch between the mold and laminate as a cause of spring-in effect. Their results show that a shear interaction between the tool and the curing part along its interfaces induces residual tensions in the laminate which lead to a deformation of the sample [15].

Kappel [16] proved a linear compensation assembly in the mold that drastically reduced the angular deformation effect after the curing process. Three molds with distinct geometry were produced with the required compensation. These molds were slightly more concave and led to a smaller angular deformation at the end of the autoclave cure process.

110

The thermochemical parameters during the gelation phase such as the temperature dependent viscoelastic material response and the cure kinetics of the resin are complicated mechanisms that have been challenging for researchers [15]. In order to have a better control on the fabrication process, analytical tools have been developed in limited, explicit conditions and configurations to include different built-in assumptions and require specific process related data [15]. Loos and Springer [17] used a computational model considering factors such as the temperature of the autoclave cycle, the degree of curing of the resin, and the resin's viscosity. A parameterized study was also performed in order

- to illustrate how the computer code in the model can be used to determine the appropriate cure cycle for a given application, resulting in a composite that is uniformly cured, has a low percentage of voids in the matrix, and is cured in a shorter time interval. Braga et al. [18] and Radford et al. [19] developed a cure simulation analysis coupled to a laminated plate theory model to study the residual stress on thick thermosetting composites, including effects such as warpage, initiated matrix cracks and delamination. They concluded that the effects of cure kinetics and changes in specific volume of the resin during cure and cool down were significant factors in ascertaining residual stresses.
- Darrow and Smith [20] have studied some factors that also contribute significantly to the angular deformation of curved composites, such as thickness, cure shrinkage, mold expansion, and fiber volume fraction gradients. Using these factors, they made a predictive finite element model. According to the numerical results, the spring-in was dominated by fiber volume fraction gradients and mold stretching effects for thin (< 2.0 mm) sections of the laminate, whereas for
- thicker parts (> 2.0 mm), angular deformation was more influenced by thickness cure shrinkage. Hubert et al. [21] made a finite element simulation to analyze the angular deformation of curved composites reinforced by carbon fibers. They found that the fiber bed shear modulus significantly affects the compaction effect on the curved sections of the samples. While the viscosity of the resin and
  fiber bed permeability affects the rate of compaction of the laminate.

The influence of stacking sequences on spring-in has been widely studied in the literature. Darrow and Smith [20] shown that there is less than a  $0.1^{0}$ impact on spring-in when changing the ply orientation from  $0^{0}$  to  $45^{0}$ . Wang et al. [22] used a generic algorithm to optimize the spring-in angle by varying the stacking sequences based on Kollar's analytical model [23]. The optimization was performed based on a constant change in temperature, specific tool radius, and material properties at room temperature. The optimized angles in the stacking sequences consisted of  $0^0$ ,  $45^0$  and  $90^0$ . The results obtained show that an increase in laminate thickness dominates over other spring-in mechanisms.

So, the spring-in is usually less pronounced in thicker laminates. Kollar [23] shows by means of an analytical model that thickening has a significant effect under constant change in temperature through-the-thickness but not under linear change in temperature through-the-thickness. Twigg et al. [15] investigated the effect of 4-ply, 8-ply and 16-ply laminates on the interfacial shear stress distribution between the tool and specimen. Their model for the interfacial shear

<sup>55</sup> tribution between the tool and specimen. Their model for the interfacial shear between the tool and the specimen show that the maximum warpage decrease with increasing thickness.

On a previous work, we have shown the recovery on the spring-in deformation during three years span [24]. In order to better understand spring-in deformation over time, we evaluated by means of the statistical analysis the influence of forces and moments to yield it. The results obtained point out that the stacking sequence, thickness, and autoclave cooling rates are key parameters on the spring-in effect and significantly influence the degree of cure of the composites produced. The heat absorption process continued in the laminates even after they were removed from the autoclave, and until the total cure occurred. The incomplete cure produced forces and moments over time due to the absorption of heat from the surroundings by the resin. These physical quantities are extremely relevant in the process of the angular deformation of these samples.

The main aim of this manuscript is to quantify and show the significance of forces and moments on spring-in and spring-back by means of statistical analysis. We assume that the residual degree of resin cure can increase because of structural changes due to the polymerization process that occur during the autoclave cure and remains over time. The non-uniform polymerization of the resin causes residual stress as well as changes in the laminate stiffness. This process give rise to different values on forces and moments that develop angular deformation on greater or lesser intensity. This dynamic process could increases or decreases the spring-in effect over time, although generally the spring-in tends to decrease over a long period, spring-back. We monitor this behavior over a three year span. For all samples analyzed, final measurements of spring-in after the three year period are much smaller than the initial measurements.

According to Lunetta et al. [25], artificial intelligence techniques like Random Forest statistical analysis has become very popular and widely used within the past few years. This tool proved to be extremely suitable in distinct scientific areas, such as bioinformatics, social sciences and engineering [26]. The Random

- Forest modeling enables predictive accuracy and is applicable to problems with variable sizing, as well as with highly correlated variables [26]. Bureau et al. [27] have shown that this artificial intelligence instrument identifies the relevant predictor variables rather than just predicting the response to a particular mathematical model. In this work, Random Forest statistical analysis is used in
- <sup>190</sup> a way that tooling can "learn" how the temporal forces and moments influence and have importance in explaining the spring-back effect, and then to predict how this mechanism works. This exploratory study opens an opportunity for extension of the aspects discussed in this research.

## 2. Experimental

## 195 2.1. Materials

## 2.1.1. Laminate geometric configurations and manufacturing procedures

To evaluate the spring-in and the spring-back effect, a total of 81 samples were fabricated. The samples were prepared using nine different layups as shown in Table 1, to test both thin and thick laminations, samples were made with

4, 8, and 16 plies. The thickness of one prepreg ply is 0.127 mm. For families 8 and 9, one ply of composite prepreg consists of a plus and minus angled ply, either 45 or 30 degrees. The total thickness of, for example, a  $\pm 45^{0}$  ply using this roll is 0.127 mm. Thus, for the family 8 layup [ $\pm 45_{4}^{0}$ ] and family 9 layup [±45<sup>0</sup>, ±30<sup>0</sup>]<sub>s</sub>, the effective number of plies based on equivalent thickness is 4
<sup>205</sup> plies. All layups were built upon the convex L-shaped tool as seen in Fig.1(c). For each sample, we use three different autoclave cooling rates (CR#) : CR1 used 2.78 °C/min (5.00 °F/min), CR2 used 5.56 °C/min (10.00 °F/min), and CR3 used 11.12 °C/min (20.00 °F/min).

Families	4 ply layup	8 ply layup	16 ply layup
1	$[90^0_4]$	$[90^0_4]_s$	$[90^0_4]_{2s}$
2	$[0^0, 90^0]_s$	$[0^0, 90^0]_{2s}$	$[0^0, 90^0]_{4s}$
3	$[45^0, 30^0]_s$	$[45^0, 30^0]_{2s}$	$[45^0, 30^0]_{4s}$
4	$[30^0, 60^0]_s$	$[30^0, 60^0]_{2s}$	$[30^0, 60^0]_{4s}$
5	$[0^{0}_{4}]$	$[0^0_4]_s$	$[0^0_4]_{2s}$
6	$[0^0, 60^0]_s$	$[0^0, 60^0]_{2s}$	$[0^0, 60^0]_{4s}$
7	$[0^0, 30^0]_s$	$[0^0, 30^0]_{2s}$	$[0^0, 30^0]_{4s}$
8	$[\pm 45^0_4]$	$[\pm 45^{0}_{4}]_{s}$	$[\pm 45^0_4]_{2s}$
9	$[\pm 45^0, \pm 30^0]_s$	$[\pm 45^0, \pm 30^0]_{2s}$	$[\pm 45^0, \pm 30^0]_{4s}$

Table 1: Samples prepared to evaluate the spring-in and spring-back effect.

In the specimen fabrication, the sample was laid-up and vacuum bagged. <sup>210</sup> Debulking, was applied for 10 minutes after the ply layup procedure. The curing cycles were keyed in the control box of the autoclave.

## 2.1.2. Spring-In and Spring-Back Angle Measurement

The difference of the angle measured between two arms of the L-shape laminate is used to quantify the spring-in effect, as shown in Fig.1(a) and (b). A Digi-Pas DWL-3000 XY as shown in Fig.1(c) and (d) is used to measure the deformed angle of each arm of the L-shaped laminates. It should be mentioned that angle measurement using the Digi-Pas DWL-3000 XY has a 0.01 degree accuracy. The sum of the deformed angles of each arm is the total deformed angle.

This angle is the spring-in effect of the L-shaped laminates. Each sample's spring-in was measured 20 times on different locations of the flange for both axes. For each laminate, ten measurements were performed over the time of the residual curing process to verify how the spring-in effect varies with time





Figure 1: (a) Spring-in effect measurement immediately after autoclave cure. (b) Spring-back effect measured after at least one month after autoclave cure. Experimental set up used to measured the Spring-in deformation on (c) horizontal and (d) vertical directions.

with the aim of associate the spring-in effect with the degree of resin cure. Subsequently, three more experiments were performed with 30-day intervals to 225 ensure no more angular changes occured in the spring-in effect. No change in angular measurements was observed in these last three measurements.

The main objective of this work is to study the behavior of the angular deformation of curved composites after a long time of the curing process in the autoclave. Therefore, the first spring-in measurement was used as a reference, 230 initial measurement of the deformation and the other nine angular measurements were then subtracted from this initial measurement to determine the angular recovery effect of the samples, ie only the spring-back effect, as show on Table 2.

All fabricated specimens produced for this paper are summarized in Table 3 for CR1, Table 4 for CR2, and Table 5 for CR3. These tables include the initial spring-in measured,  $\Delta \theta_i$ , the final spring-in measured,  $\Delta \theta_f$ , with corresponding standard deviations,  $S_{\Delta \theta}$ .

All samples were kept in an insulation chamber in relation to humidity. In addition all of them were weighed and had their dimensions measured 12 times, month to month, in an interval of one year. It was found that there were no changes in weight or volume during that time. For this reason, moisture absorption was disregarded as a spring-in and spring-back influencer.

## 2.1.3. Obtaining the degree of cure

Fig.2 illustrates the procedures performed to evaluated the degree of cure of each specimen which was performed with a Shimadzu DSC-60. A typical result evaluating the energy flow (mW) as a function of the temperature (<sup>0</sup>C) is shown . The blue curve represents a 100% cured resin and the red curve (for a less cured polymer ), or the black curve (for a more cured polymer), represents the uncured resin. The area between the red or black curves and the corresponding blue curves is converted to obtain the degree of cure of the composite, represented by ' $\alpha$ '. This is done by taking the difference between of the enthalpy of cured resin,  $\Delta h_{cure}$ , and the uncured resin,  $\Delta h_{uncured}$ , divided by the enthalpy of uncured resin,  $\Delta h_{uncured}$ , as shown in Eq.1.

255

$$\alpha = \frac{\Delta h_{cure} - \Delta h_{uncure}}{\Delta h_{uncure}} \tag{1}$$

## 2.1.4. Obtaining the forces and the moments

260

After calculating the degree of cure on two distinct dates, separated approximately by one year using DSC, a simple linear regression was performed to determine the approximate degree of cure on the dates when the spring-back measurements were made, as shown in Table 2. From this result, the mechanical constants, as shown in Table 6, that had been previously calculated by classi-

cal composite laminating theory [28] are updated to correspond to the residual curing process over time. Thereafter, the stiffness matrices A and D are calculated considering that composite laminates are orthotropic and symmetrical. The respective angular layer orientations and respective transformations calculated in the direction of the fibers were taken into account. Then, using these matrices, the forces (N) and moments (M) are then obtained, all calculations and transformations were made using MatLab Software R2017b. The force  $\vec{N}$ 

$$\begin{bmatrix} N_{x} \\ N_{y} \\ N_{xy} \end{bmatrix} = [\mathbf{A}] \begin{bmatrix} \epsilon_{x}^{0} \\ \epsilon_{y}^{0} \\ \epsilon_{xy}^{0} \end{bmatrix}$$
(2)
$$\begin{bmatrix} M_{x} \\ M_{y} \\ M_{xy} \end{bmatrix} = [\mathbf{D}] \begin{bmatrix} \kappa_{x} \\ \kappa_{y} \\ \kappa_{xy} \end{bmatrix}$$
(3)

- 275
- In the equations 2 and 3,  $\epsilon^0$  represents the mid-plane strains while due to plane stress assumption, stresses in thickness direction are negligible. The variable  $\kappa$  represents the curvature of the composite. The flowchart in Fig.3 shows a summary of the whole process.

## 2.2. Statistical analysis and Artificial intelligence

280 2.2.1. Generalized Additive Model (GAM)

and moment  $\vec{M}$  are defined as,

Regression modeling was used to test the prediction of the Y (representing spring-back) and X (representing forces an moments) variables in different spring-back measurements. Thus, a database was constructed consisting of 9 measurements of Y on different dates of different years (2016, 2017 and 2018)

Spring-back measurements	Date	Time (days)	Time (months)
1	26/06/2016	0	0.00
2	13/08/2016	28	0.93
3	16/01/2017	232	7.73
4	07/04/2017	313	10.43
5	07/05/2017	343	11.43
6	07/06/2017	374	12.46
7	07/12/2017	557	18.57
8	07/02/2018	619	20.63
9	28/08/2018	821	27.37

Table 2: Date and time in days and months between spring-back measurements.



Figure 2: A plot of the Energy Flow (mW) as function of temperature  $(^{0}C)$  evaluating the degree of cure of a less cured polymer (red curve) and more cured polymer (black curve).
ID	Layup	${ m Thickness(plies)(mm)}$	$\Delta \theta_i(^0)$	$S_{\Delta\theta}(^0)$	$\Delta \theta_f(^0)$	$S_{\Delta\theta}(^0)$
S1	$[0^0, 60^0]_s$	1.53(4)	1.900	0.010	1.200	0.040
S2	$[0^0, 60^0]_{2s}$	3.00(8)	1.370	0.020	1.104	0.006
S3	$[0^0, 60^0]_{4s}$	6.04(16)	1.470	0.010	1.280	0.024
S4	$[0^0, 30^0]_s$	1.55(4)	2.060	0.030	1.243	0.013
S5	$[0^0, 30^0]_{2s}$	3.02(8)	1.615	0.025	1.135	0.021
S6	$[0^0, 30^0]_{4s}$	6.11(16)	1.390	0.020	1.180	0.024
S7	$[30^0, 60^0]_s$	1.53(4)	1.490	0.010	0.408	0.013
S8	$[30^0, 60^0]_{2s}$	3.05(8)	1.700	0.010	0.975	0.025
$\mathbf{S9}$	$[30^0, 60^0]_{4s}$	5.94(16)	1.295	0.035	0.775	0.025
S10	$[0^0, 90^0]_s$	1.54(4)	1.660	0.040	0.804	0.006
S11	$[0^0, 90^0]_{2s}$	3.13(8)	1.320	0.070	1.270	0.042
S12	$[0^0, 90^0]_{4s}$	6.24(16)	1.355	0.008	1.220	0.030
S13	$[45^0, 30^0]_s$	1.54(4)	1.495	0.005	1.083	0.042
S14	$[45^0, 30^0]_{2s}$	3.02(8)	1.635	0.025	0.970	0.032
S15	$[45^0, 30^0]_{4s}$	5.96(16)	1.535	0.015	1.223	0.025
S16	$[\pm 45^0, \pm 30^0]_s$	1.59(4)	6.165	0.195	2.810	0.126
S17	$[\pm 45^0, \pm 30^0]_{2s}$	3.05(8)	2.795	0.005	2.090	0.045
S18	$[\pm 45^0, \pm 30^0]_{4s}$	6.05(16)	2.185	0.025	2.025	0.025
S19	$[90^0_4]$	1.56(4)	0.990	0.030	0.254	0.006
S20	$[90^0_4]_s$	3.00(8)	0.960	0.010	1.120	0.024
S21	$[90^0_4]_{2s}$	5.99(16)	1.060	0.080	0.865	0.021
S22	$[\pm 45^0_4]$	1.61(4)	3.055	0.045	1.818	0.032
S23	$[\pm 45^0_4]_s$	3.04(8)	2.025	0.055	1.438	0.041
S24	$[\pm 45^0_4]_{2s}$	5.99(16)	1.775	0.005	1.325	0.025
S25	$[0^0_4]$	1.60(4)	1.860	0.060	1.448	0.033
S26	$[0^0_4]_s$	3.16(8)	1.425	0.005	1.260	0.016
S27	$[0^0_4]_{2s}$	6.57(16)	1.220	0.030	1.025	0.025

Table 3: Initial and final spring-in measurements to CR1.

- and six X variables which are the predictive at each date ( $M_x$ ,  $M_y$ ,  $M_{xy}$ ,  $N_x$ ,  $N_y$ ,  $N_{xy}$ ). Prior to the construction of the temporal database models, all X variables that are integrated into the final models were submitted in the Pearson correlation test using the *chart.Correlation* function of the *PerformanceAnalytics* package in R software [29]. The Pearson correlation test checks
- the correlation between the Y and X variables and between X and other X variables. High correlation between the Y and X variables is desired. However, if the correlation between X and other X variables is high, for example above 0.70 or smaller than -0.70 then there are serious multicollinearity issues in the data

ID	Layup	Thickness(plies)(mm)	$\Delta \theta_i(^0)$	$S_{\Delta\theta}(^0)$	$\Delta \theta_f(^0)$	$S_{\Delta\theta}(^0)$
S28	$[0^0, 60^0]_s$	1.52(4)	2.465	0.015	1.260	0.047
S29	$[0^0, 60^0]_{2s}$	3.02(8)	2.825	0.025	1.425	0.025
S30	$[0^0, 60^0]_{4s}$	5.99(16)	1.710	0.010	1.400	0.025
S31	$[0^0, 30^0]_s$	1.54(4)	1.245	0.005	0.872	0.033
S32	$[0^0, 30^0]_{2s}$	3.06(8)	1.530	0.020	1.085	0.021
S33	$[0^0, 30^0]_{4s}$	6.06(16)	1.320	0.021	1.108	0.042
S34	$[30^0, 60^0]_s$	1.54(4)	2.175	0.005	1.028	0.047
S35	$[30^0, 60^0]_{2s}$	3.40(8)	0.710	0.020	0.253	0.005
S36	$[30^0, 60^0]_{4s}$	6.01(16)	1.890	0.020	1.030	0.024
S37	$[0^0, 90^0]_s$	1.56(4)	1.770	0.020	1.090	0.016
S38	$[0^0, 90^0]_{2s}$	3.05(8)	1.395	0.035	1.180	0.036
S39	$[0^0, 90^0]_{4s}$	6.09(16)	1.315	0.015	1.275	0.025
S40	$[45^0, 30^0]_s$	1.64(4)	1.700	0.020	1.440	0.015
S41	$[45^0, 30^0]_{2s}$	3.05(8)	1.700	0.030	0.912	0.031
S42	$[45^0, 30^0]_{4s}$	6.10(16)	1.240	0.050	0.865	0.021
S43	$[\pm 45^0, \pm 30^0]_s$	1.57(4)	5.060	0.150	3.000	0.050
S44	$[\pm 45^0, \pm 30^0]_{2s}$	3.02(8)	2.605	0.045	2.155	0.008
S45	$[\pm 45^0, \pm 30^0]_{4s}$	6.08(16)	2.010	0.030	1.840	0.072
S46	$[90^0_4]$	1.52(4)	1.005	0.015	0.094	0.005
S47	$[90^0_4]_s$	3.00(8)	0.940	0.010	0.364	0.017
S48	$[90^0_4]_{2s}$	6.29(16)	0.945	0.035	0.627	0.025
S49	$[\pm 45^0_4]$	1.57(4)	3.125	0.155	1.555	0.036
S50	$[\pm 45^0_4]_s$	3.04(8)	2.450	0.010	1.395	0.036
S51	$[\pm 45^0_4]_{2s}$	6.14(16)	1.875	0.095	1.330	0.024
S52	$[0^{0}_{4}]$	1.61(4)	1.630	0.080	1.210	0.016
S53	$[0^0_4]_s$	3.22(8)	1.515	0.005	1.290	0.016
S54	$[0^0_4]_{2s}$	6.56(16)	1.165	0.030	1.120	0.026

Table 4: Initial and final spring-in measurements to CR2.

and the model should not be used [30].

295

As a pre-test, linearity tests between the Y and X variables were conducted using the Komolgorov-Smirnov and Cramér-Von-Mises tests [30] using the *cums* function of the *gof* 3.5.1 [31]. The linearity tests for each model were made by applying an LM model with the same variables Y and X that entered the GAM models. If p-values of the two tests were smaller than 0.05 in some X, then their

relation with Y would be non-linear. For all tested relationships between the Y and X of all models, the relations were found to be linear. On the other hand, nonlinear relationships of most of the X with the Y measured in their respective

ID	Layup	Thickness(plies)(mm)	$\Delta  heta_i(^0)$	$S_{\Delta\theta}(^0)$	$\Delta \theta_f(^0)$	$S_{\Delta\theta}(^0)$
S55	$[0^0, 60^0]_s$	1.57(4)	2.015	0.005	1.448	0.043
S56	$[0^0, 60^0]_{2s}$	3.07(8)	1.415	0.015	1.128	0.017
S57	$[0^0, 60^0]_{4s}$	6.21(16)	1.475	0.050	1.440	0.025
S58	$[0^0, 30^0]_s$	1.56(4)	1.925	0.075	1.163	0.019
S59	$[0^0, 30^0]_{2s}$	3.09(8)	1.875	0.005	1.252	0.003
S60	$[0^0, 30^0]_{4s}$	6.15(16)	1.110	0.010	0.920	0.036
S61	$[30^0, 60^0]_s$	1.56(4)	2.270	0.010	0.313	0.015
S62	$[30^0, 60^0]_{2s}$	3.05(8)	1.670	0.040	0.997	0.004
S63	$[30^0, 60^0]_{4s}$	6.78(16)	1.645	0.005	0.942	0.038
S64	$[0^0, 90^0]_s$	1.56(4)	1.710	0.010	1.260	0.016
S65	$[0^0, 90^0]_{2s}$	3.02(8)	1.440	0.020	1.250	0.025
S66	$[0^0, 90^0]_{4s}$	6.08(16)	1.395	0.020	1.140	0.009
S67	$[45^0, 30^0]_s$	1.53(4)	1.670	0.010	1.270	0.024
S68	$[45^0, 30^0]_{2s}$	2.98(8)	1.655	0.045	1.043	0.025
S69	$[45^0, 30^0]_{4s}$	5.92(16)	1.455	0.025	0.970	0.024
S70	$[\pm 45^0, \pm 30^0]_s$	1.56(4)	5.920	0.150	3.603	0.162
S71	$[\pm 45^0, \pm 30^0]_{2s}$	3.05(8)	3.470	0.040	2.438	0.037
S72	$[\pm 45^0, \pm 30^0]_{4s}$	6.04(16)	1.790	0.040	1.752	0.004
S73	$[90^0_4]$	1.54(4)	1.280	0.030	0.049	0.003
S74	$[90^0_4]_s$	2.99(8)	0.430	0.010	0.390	0.016
S75	$[90^0_4]_{2s}$	6.08(16)	0.865	0.015	0.500	0.010
S76	$[\pm 45^0_4]$	1.57(4)	2.920	0.020	1.455	0.036
S77	$[\pm 45^0_4]_s$	3.07(8)	2.860	0.050	1.595	0.038
S78	$[\pm 45^0_4]_{2s}$	6.08(16)	2.090	0.090	1.450	0.040
S79	$[0^{0}_{4}]$	1.62(4)	1.460	0.060	1.245	0.009
S80	$[0^0_4]_s$	3.19(8)	1.535	0.055	1.355	0.036
S81	$[0^0_4]_{2s}$	6.58(16)	1.235	0.015	1.175	0.021

Table 5: Initial and final spring-in measurements to CR3.

dates were evidenced. Thus, we applied a generalized additive model (GAM). This model is a robust solution when the relationships are complex between

305

variables and can not be modeled using simple linear functions [32]. GAM uses smooth functions that allow the linear predictor to be attenuated in order to adjust to a nonlinear relationship with the response variable [33]. In addition, the GAM model allows generalizations of error distribution of any family belonging to the exponential probability distribution (eg Gaussian, Poisson, Binomial) [34]. In the GAM models of the present work, the error distribution considered

<sup>310</sup> [34]. In the GAM models of the present work, the error distribution considered was Gaussian because of the continuous nature of the data. Another reason for

Constants	Name
E <sub>x</sub>	longitudinal modulus
$\mathrm{E}_y$	tranverse modulus
$G_{xy}$	in-plane shear strength
$\upsilon_{xy}$	major Poisson's ratio
$\eta_{xy,x}$	coefficients of mutual influence
$\eta_{xy,y}$	coefficients of mutual influence

Table 6: Mechanical constants used in Classical Laminate Theory to obtain stiffness matrices.

using GAM is its additive flexibility to better control temporal autocorrelation effects [35].

The GAM models, one for each of the spring-back measurements shown in Table 5, were run using the *gam* function of the *mgcv* package [36] in R version 3.5.1 software [37]. In each GAM model, the concurrency among the predictive variables was verified using the *concurvity* function of the *mgcv* package. Concurrency can be seen as a generalization of co-linearity and may cause similar problems of overlap due to statistical overlap between the predictive variables in their contributions to the response variable [36]. Thus, the concurrency shown in values of 0 indicates no bias and a value of 1 indicates total lack of identifiability of the actual contribution of each predictor [36]. Of the 9 GAM models, eight showed values of concurrence between 0 and 1, thus maintaining all their predictions listed initially. Only one model presented a variable with precisely

the same concurrency and this was removed from the model. In addition, the corAR1 structure of the nlme package was added to GAM models, which is related to the first-order correlation structure and one of the most widely used due to its robust control of model biases with time dependent variables [38]. The temporal correlation between the residuals of a model can send the compu-

tation of its parameters, providing unreliable p-values and the structure corAR1 controls this bias of temporal auto-correlation of variables coming from different measurements [38]. The adjustment of the residuals of the GAM models was



Figure 3: Flowchart for the process of obtaining the forces (N) and moments (M) from the degree of cure and angular deformation of the samples.

verified mainly observing the symmetry in the frequency distribution of the raw residuals in the graphic Histogram of Residuals that is included among the diagnostic graphs of adjustment of the model. All analyzes described above were conducted in software R version 3.5.1 [37].

### 2.2.2. Random Forest Statistical Analysis

335

A Random Forest regression model was used by the decision tree to test the prediction of the final Y (2018), considered stationary, from 60 predictive X variables of different dates in different years (2016, 2017 and 2018). These 60 predictive variables were also selected after having checked their levels of multicollinearity using Pearson's coefficients using the *chart.Correlation* function of the *PerformanceAnalytics* package [39]. It was also assumed as a criterion of high and not acceptable multicollinearity for those with coefficients greater than

 $_{345}$  0.70 or less than -0.70, avoiding overlapping and masking of the real linear contribution of each variable X to the prediction of Y [40]. Thus, all 60 predictive variables used here had coefficients below the mentioned critic, and are therefore acceptable in the same model. The Random Forest model is a supervised learning technique that generates multiple models from a set of training data on

- the given data and then simply combines its output rules (predictive variables), thus generating a robust, high-performance model that corrects overestimating (overfitting) and balancing inequalities in variance [41]. This model improves the predictive power from decision trees, reducing their variances from the calculation of their means. The decision tree is a type of modeling that operates
- <sup>355</sup> with gain of information in each node, classifying data points with greater increment of information in each one of the nodes. When all nodes are depleted as to their ratings on information gain, the model achieves its optimum performance result. The Random Forest model is considered in several cases the most robust approach in terms of decision trees [41]. It does not select all the data points on
- the nodes in each of the decision trees as several other models do, but instead it collects the data points and variables randomly in each tree created, removing bias. In its results, Random Forest provides percent explanation of the variance of Y from the whole set of predictive considered and also the average residual error of the predictions from an approach called *Out of Bag Error Estimation*
- (OBB), a robust and efficient method of adjustment and estimation of errors [41]. In addition, Random Forest is a good performance model for temporal data, especially from short- and medium-term time measurements [42]. The Random Forest model was computed using the *random Forest function* of the packet of the same name [43] in *software R* version 3.5.2 [37], using 500 decision trees and 40 predictive variables per node.

The modeling was constructed under 70% (train set in the specific nomenclature) of the samples of the variables in the database, in order to compare the performance against the prediction set by the validation set in the specific nomenclature, respectively. The number of predictors per node (18) was obtained using the *tuneRF* function of the *Random Forest packet*, which points out from how many predictors the prediction error of the model is reduced.

375

To verify the predictive accuracy of the model we adopted some post-diagnoses. First, the Mean Squared Error (MSE) was computed in relation to the number of variables used in each node of the decision tree, considering all 60 predictors

- per node. The MSE was computed in relation to the number of predictions considered per node for the test database (Test or validation set in the specific nomenclature) for the remaining 30% of the data and for the train set data with all the adjusted trees through the *Out of Bag Error Estimation (OBB)*. The predictive accuracy of our Random Forest was estimated by adjusting linear
- <sup>385</sup> function (LM) for the model conducted on the validation data (validation set, 30% of the data) and demonstrated by the  $R^2$  value. Additionally, using the *rfcv* function of the *Random Forest package*, we computed a cross-validation test for model performance with a sequentially reduced number of predictors (ranked by their importance) [44].
- The contribution of each predictive variable to model prediction was computed using the importance function of the *randomForest package*, listing the results in descending order, the most important variables being those with the highest values demonstrated in the two methods of importance estimation, *Out* of Bag Error Estimation (OBB). The significance of the mechanical cofactors
- <sup>395</sup> are ranked by means of random forest predictive variables importance. In order to identify the major influencer among all cofactors we calculated by means of a *macros* in Kaleida Graph Software (Synergy Software, Essex Junction, VT, USA), the first derivative for the data yielding a new curve. The new curve obtained on first derivative display an abrupt change for a major influencer co-
- <sup>400</sup> factor. The points which displays an abrupt increase on first derivative will be used to classify in Random Forest analysis the major influencer cofactors on spring-back deformation.

# 2.2.3. Randon forest Pre-diagnosis

Using the *tuneRF* function, we found that the optimal number of predictors per node in the Random Forest decision trees was 18. That is, the errors calculated by the *Out of Bag Estimation*,  $OBB_{Error}$ , decreases from 18 predictors, as show in Fig.4. Thus, we adopted 18 as the number of predictors per node  $(M_{try})$  in our model.



Figure 4: Error estimation for the prediction of the dependent variable from the *Out of Bag Error Estimation (OBB)* approach to the number of predictors per node.

### 3. Results

415

420

#### 410 3.1. Forces and moments as spring-in influencers

This section shows how the mean values of the residual moments and forces are distributed to each of the families listed in the Table 1, for the cooling rate 2 (CR2), This cooling rate was chosen to illustrate the distribution of the forces and moments along the families, since all the cooling rates, CR1, CR2 and CR3, resulted in the same distribution of these physical quantities. To compare the forces and moments, figure 5 are made, which split up the laminate families with respect to the number of plies in each laminate. Thus, Fig.5 consist of nine laminates with 4, 8, and 16 plies respectively. The moments and forces shown in the bar charts are the absolute value averages from the 10 periods that angular measurements were taken and forces and moments, normalized by

the thickness of the samples, were calculated during the spring-in effect over a period of three years. The standard deviation is also shown above each bar. The

blue bars represent the mean of the moments  $M_x$ , the red bars  $M_y$  and green bars  $M_{xy}$ . The black bars represent the mean of the normal forces  $N_x$ , gray bars

 $N_{y}$ , and orange bars  $N_{xy}$ . Normal forces and bending moments are shown in the X and Y-direction and shear force in the XY direction and twisting moment in the XY direction as shown in Fig.3. The x-direction is in the longitudinal direction of the flanges of the L-shaped specimens.

In Fig.5 the distribution of the forces in relation to the nine families has similar behavior, but with a significant increase in the magnitude in relation to the laminate thickness. The values of these forces and moments in the Y and XY directions are small when compared to the forces and moments in the X direction,  $M_x$  and  $N_x$ .

Although the values of the moments and forces were normalized by the <sup>435</sup> thickness in all the samples, by observing Fig.5 it is also concluded that for all the families, there is a relatively homogeneous behavior with respect to the extremely pronounced increase of the moments in absolute values by increasing the thickness of the samples from 4 to 8 layers (+261%), and an increase of 297% by increasing the thickness from 8 to 16 layers. Regarding the overall

- <sup>440</sup> behavior of the forces, there is also a increase with thicker laminates, but less significant than that of the moments. A 65% increase is observed in doubling the thickness of the samples from 4 to 8 layers, and a 91% increase of the 8 layer samples compared to the 16 samples. This behavior is due to the increase in the stiffness of the samples following the increase of the thickness. As samples
- <sup>445</sup> become more rigid, the value of forces and moments needed to cause similar deformation becomes significantly larger.

As can be seen from Fig.5, that families 1, 2 and 9 exhibited higher values for forces and moments and families 1, 2, 6 and 9 exhibited higher values for forces. These same families, as described by Tables 3, 4 and 5, also showed a large reduction of the spring-in angular values in the time period studied. This fact

450 reduction of the spring-in angular values in the time period studied. This fact evidences a direct relationship between forces and moments with spring-back, that is, reduction of spring-in over time.

It is assumed that spring-in occurs because of structural changes due to the

polymerization process that occurs during the autoclave process and is recovered

- <sup>455</sup> over time as spring-back. The rearrangement of molecular structural on matrix resin, due the non-uniform polymerization process, promotes the released of residual strains at the same time that occurs changes on stiffness. This process gives rise to different values on forces and moments that develop angular deformation on greater or lesser intensity. This dynamic process could decreases
- the spring-in effect over time. For all samples analyzed the final measurements of spring- after the period three years is smaller than the initial measurements. In sum, the spring-in over time can be seen as a "viscous-behavior" based on uncured remain resin trying to go through the stacking sequence of fibers. This viscous-behavior seems to be influenced mainly by degree of cure, thickness and
- the time elapsed after withdrawal of samples from the autoclave. This viscousbehavior can be seen as "molecular-mobility" based on environmental effects, such as heat absorption from environment temperature variation.

# 3.2. Statistical analysis / Artificial intelligence

GAM and Random Forest provide the significance of forces and moments cofactors on spring-back effect. GAM classify the linear and non-linear dependence of those cofactors on spring-back. The output results from GAM model display the major dependence of each mechanical cofactor on temporal angular deformation. Additionally, the Random Forest model works with all mechanical cofactors together and ranked them by importance over three years span.

The best GAM model, #4, and the Random Forest analysis detect among all linear cofactors, that the mechanical component,  $N_x$ , plays the main role on spring-back effect. All these statistical results will be detailed in the sections 3.2.1 and 3.2.4.

### 3.2.1. Generalized Additive Models (GAM) analysis

480 3.2.2. GAM models produced

Table 7 and Table 8 list the 9 Generalized Additive Models (GAM) which were obtained for each spring-back measurement with its respective X-cofactors.



Figure 5: Average moments and forces calculated indirectly by classical lamination theory for all composites arrangements using different cooling rates for 4, 8 and 16 ply composites. The average for the moment components such as  $M_x$ ,  $M_y$  and  $M_{xy}$  is shown in (a), (b) and (c) respectively. The average for the force components such as  $N_x$ ,  $N_y$  and  $N_{xy}$  is shown in (d), (e) and (f).

In these tables an ANOVA statistical analysis was performed using R software on each of GAM model. The values of the angular coefficients of the cofactors X

- ( Coef. value) are explained when a linear relation between the spring-in (variable Y) and the influence of this cofactor can be positive representing a positive sloped line or negative representing a negative solped line, when this relationship exists, the respective variable is shown in the column cofactors. If it was found that the relation of the cofactor with the variable response Y is nonlinear,
- then an "s ()" argument is applied in the model formula. The argument "s()", for example, below  $s(M_x)$ , means a smooth function that adjusts and attenuates the nonlinear angulation of a curve. In the Approximate significance of smooth column it is shown the importance of these cofactors in which the smooth function was applied, when the values are less than 0.05 means that these cofactors
- <sup>495</sup> are significant to explain the Y variable according to the statistical ANOVA p-test. The factor F represents an auxiliary statistical variable to compare the importance of two cofactors in which the p-value was identical. The higher this factor F, the more important is the variable relative to another with the same p-value. For example, considering the two variables  $s(M_y)$  and  $s(N_y)$  with the same value of p-value in GAM model 5 of Table 7. Since the value of F is 14.252 for  $s(N_y)$ , it is more important in the explanation of spring-in than the variable  $s(M_y)$  which has a p-value of 12.271.

Observing all models present in these two tables, it is observed that for all of them, most of the cofactors have a non-linear relation with the variable response Y (spring-back). In all models the nonlinear variables in which the smooth function was applied are significant to explain the spring-in effect, except for the variable  $M_{xy}$  in model 1, the  $N_{xy}$  variable of model 4 and  $N_{xy}$  of model 5 and 6.

3.2.3. Diagnosis of adjustments and residuals

The ANOVA analysis obtained from all nine GAM models proposed yields the  $R^2$  adjusted, and deviance explained, as shown in Fig.6. These results point out that the GAM model 4 displays the best forces and moments accuracy, reach-

GAM Model	Coef. Value	Cofators	Approximate significance of smooth		
			Valor F	p-value	
	0.0635213	intercept			
	-0.0003740	$M_x$			
1		$s(M_y)$	0.490	0.0151*	
		$s(M_{xy})$	0.177	0.0981.	
		$s(N_y)$	25.546	$< 2e^{-16} * **$	
	-0.1444	Intercept			
	$-1.780e^{-04}$	$M_x$			
2	$8.754e^{-04}$	$M_y$			
	$2.9131e^{-06}$	$N_{xy}$			
		$s(N_x)$	4.178	$7.14e^{-08} * **$	
		$\mathrm{s}(\mathrm{N}_y)$	1.067	0.00386 * *	
	-0.44333	Intercept			
		$s(M_y)$	5.276	$1.19e^{-08} * **$	
3		$s(N_x)$	1.676	0.000151 * **	
		$\mathrm{s}(\mathrm{N}_y)$	9.007	$1.25e^{-14} * **$	
		$s(N_{xy})$	0.000	0.900947 * *	
	-0.41150	Intercept			
	$4.885e^{-06}$	$N_x$			
4		$s(M_y)$	17.673	$< 2e^{-16} * **$	
		$\mathrm{s}(\mathrm{N}_y)$	24.408	$< 2e^{-16} * **$	
		$s(N_{xy})$	0.461	0.0217*	
	0.49130	Intercept			
		$\mathrm{s}(\mathrm{M}_y)$	12.271	$< 2e^{-16} * **$	
5		$s(N_x)$	0.765	0.00575 * *	
		$\mathrm{s}(\mathrm{N}_y)$	14.252	$< 2e^{-16} * **$	
		$s(N_{xy})$	0.000	0.56384	

Table 7: GAM models from 1 to 5.

Significance codes:  $0^{'***'} \ 0.001^{'**'} \ 0.01^{'*'} \ 0.05^{'.'} \ 0.1^{''} \ 1$ 

GAM Model	Coef. Value	Cofators	Approximate significance of smooth		
			Valor F	p-value	
	0.4327	Intercept			
	$5.052e^{-16}$	$N_x$			
6		$s(M_y)$	10.830	$< 2e^{-16} * **$	
		$s(N_y)$	13.230	$< 2e^{-16} * **$	
		$s(N_{xy})$	0.160	0.107	
	0.4737	Intercept			
	$-3.058e^{-06}$	$N_{xy}$			
7	$7.804e^{-06}$	$N_{xy}$			
		$\mathrm{s}(\mathrm{M}_y)$	18.550	$< 2e^{-16} * **$	
		$s(N_y)$	14.80	$< 2e^{-16} * **$	
	0.5033	Intercept			
	$2.977e^{-06}$	$\mathrm{N}_x$			
8	$5.754e^{-06}$	$N_{xy}$			
		$s(N_y)$	13.890	$< 2e^{-16} * **$	
		$s(M_y)$	12.580	$< 2e^{-16} * **$	
	0.5033	Intercept			
	$3.040e^{-06}$	$N_x$			
9	$5.580e^{-06}$	$N_{xy}$			
		$\mathrm{s}(\mathrm{M}_y)$	12.530	$< 2e^{-16} * **$	
		$s(N_y)$	14.03	$< 2e^{-16} * **$	

Table 8: GAM models from 6 to 9.

Significance codes:  $0^{'***'} 0.001^{'**'} 0.01^{'*'} 0.05^{'.'} 0.1^{''} 1$ 

ing 90%, to explain spring-back effect. The divergence observed on accuracy for the others GAM models could be promoted due the structural changes on resin

<sup>515</sup> polymerization process. Residual curing process yields structural changes on the matrix of the samples that will promotes increases on its stiffness. The increases accuracy of the GAM statistical analysis displayed as from model 5, as shown in Fig.6, may be a signature that uncured resin percentage reduction.

The linear cofactors influence will play the main role on the spring-in effect according GAM analysis. As can be seen on Table 7, for the model 4 the force component,  $N_x$ , displays a linear coefficient cofactor as  $4.885e^{-06}$ . The same typical behavior will be shown on the mechanical analysis.

Fig.7(a) shows the points relatively dispersed along a straight oblique line, showing the efficiency of the model by its residues. Fig.7(b) shows the relationship between the linear predictors and the residuals, demonstrating that the relationship between the cofactors and the variable response is practically non-linear, as was previously verified by the smooth function. Fig.7(c) shows the Histogram of Residuals, bar values displays almost a Gaussian distribution. Therefore, this typical behavior on distribution insure an optimized descriptive residual analysis. In order to evaluated the predictive values accuracy Fig.7(d) shows an accumulation tendency of values overlapped on an imaginary line, most of them cover a range from -2.0 to 0.0.

Fig.7(e) also illustrates the adjustment fit of GAM model 4 through its residuals. Since the vertical black lines fall within the blue dashes horizontal
lines, more adjusted the model will be. In this case, the residual adjustments are very good, as evidenced by the ACF (Auto Correlation Function).

### 3.2.4. Random Forest Statistical Analysis

A Random Forest model, with 500 decision trees and 10 predictive trees per node, conducted over 70% of the data (train set) yielded a predictive power by the set of 60 predictors inserted in the model of 79.0% of explanation of the variance of the behavior of the dependent variable. That is, the prediction of its model is reasonable in explaining the variance of the Y by 60 X.



Figure 6:  $R^2$  adjusted and Deviance explained as a function of nine GAM models. Model 4 has a better among accuracy of prediction of all statistical models.



Figure 7: Plots of (a) the deviance residuals as a function of theoretical quantities, (b) residuals as a function of linear predictor, (c) frequency as a function of residuals, (d) the response as a function of fitted values, (e) A plot of the Auto correlation Function (ACF) as a function of Lag for model 4 shows that the residual adjustment are in good agreement with the predictors factors. All data for GAM model 4.

In order to show the Random Forest predictive variables importance, Mean squared error-MSE were used. Fig.8(a) ranked the mechanical cofactors influ-<sup>545</sup> ence.

The MSE cofactors values increases and than reaches a saturation value, as shown Fig.8(a). In general grounds a highest MSE value displays the most cofactor significance to predicts the spring-back effect. In order to point out the most significant mechanical cofactor we obtain the derivative curve from MSE data yielding a new curve, as shown in Fig.8(b). The highest value on the derivative function was obtained for the cofactor  $N_x$  28/08/2018. It was observed an abrupt change close to this mechanical cofactor, as shown in Fig.8(b). Usually the derivative function is obtained to identity a transition in this system, in this typical case the derivative function shows the mechanical parameter which dis-

plays the most predict influence to predicts the spring-back effect among all the others. So, the result obtained by means of Random Forest IncMSE derivative function model point out the  $N_x$  cofactor as the most significant mechanical to predicts the spring-back effect. This result is in completely agreement with the mechanical measurements results, as shown in Fig.5, and with the GAM statistical analysis, as shown by table 7.

Our Random Forest model showed error stabilization from 100 decision trees, Fig.9 (a), confirming that the used pattern of 500 trees is sufficient for the

predictive accuracy of the model.

The average frame error (MSE) was lower than 10 predicted per tree node, Fig.9(b), mainly for the OBB (Out of bag estimation error) computed for the train set (70% of the data). The errors in the test set (30% of the data) showed similar trends, however, with slightly more pronounced oscillations. In general, the errors computed in both cases (train and test set) are shown by the *tuneRF* function, that is, that 10 predictions per node were in fact an optimal number to reduce prediction errors in the case of the present model.

The predictive power of our Random Forest was good as demonstrated by the validation set. Even if the prediction of the main model based on the train set (70% of the data) that generated the above results and the predictive



Figure 8: (a) The plot displays the significance of the cofactors as a function of increase (Inc) MSE. The significance of predictive variables used in the model was obtained by means of mean squared error. (b) Derivative of IncMse for all cofactors.



Figure 9: (a) A plot of the error as a function of the number of trees used on Random Forest model. It displays that close to 500 trees the the error estimation obtained by the prediction on the model goes to a stabilization value approximately 0.04, as shown by the highlighted area. (b) Mean square error estimate (MSE) in relation to the number of predictions considered per node, computed via OBB (Out of Bag Error Estimation) for the train set in comparison to the test / validation set.

importance was 79.0% was reasonable, the predictive power of the test bank <sup>575</sup> was good, with the value of  $R^2 = 0.7897$ . That is, based on this result of the validation set using 30% of the data you can say that the results described for Random Forest via train set above, such as the importance of the predictive ones, can be considered reliable and of relatively good predictive power.

The predictive power for the model based on the training dataset by the  $R^2$ adjusted via linear model (LM), in the case of the trainSet, yileds  $R^2 = 0.92$ which showed an excellent prediction.

Finally, we further mention the results of a cross-validation test to measure how the minimum number (1) to the maximum (61) of predictive cofactors in the model influences prediction errors. The cross-validation result showed that increasing the number of predictors to the inclusion of four predictors in the model increases the prediction error, but that from 8 predictors to the maximum of them the error becomes more stable. This makes sense compared to the results of the other diagnoses above which showed that the errors are more stabilized from 10 predictive cofactors per tree node.

### 590 4. Conclusions

The influence of forces and moments on different spring-back time measurements proved to be significant in producing angular deformation after the curing process of the composites in the autoclave. These angular deformation decreases over a period of time, approximately 3 years until the deformation stabilizes, following the residual curing process. Within this time the resin absorbs heat from the environment until the curing process is complete. This residual curing process over time causes these forces and moments which are decisive for springback happened. Statistical models were produced that proved the significance of the forces (N) and moments (M) to explain mathematically the angular changes of the samples over time.

It has been shown, through statistical modeling and artificial intelligence significance testing, the values of  $M_x$  and  $N_x$  are always most relevant for the angular deformation effect. The influence and importance of the forces and moments was attested by the GAM model. It was found that 80% of the co-

- variable forces and moments (especially those in which the smooth function was applied) has a significance level of 95% for the explanation of the variable spring- in on each of the ten time dates that the measurements were taken (pvalue of Approximate significance of smooth on Tables 7 and 8). In Fig. 8, this influence has also been proven, where forces and moments are ranked in order
- of importance in explaining the spring-in effect for each of the covariates forces and moments made through Random Forest modeling. In models 1, 2, 4, 6, 7, 8 and 9 the linear relationships between these forces and moments with the variable spring-back response were direct and has been calculated successfully. The quantification of the mathematical importance of each one of these linear
- factors can be verified by the coefficients of these variables as also shown in Tables 7 and 8. Through these models that were produced, it can be concluded that the efficiency of explanation of forces and moments grows with the passage of time. This fact can also be seen in Tables 7 and 8 where the p-values approach zero in those statistical modeling with the passage of time accompanying
- <sup>620</sup> the evolution of the degree of cure of the samples by the curing residual process. With the passage of time after the autoclaving process, the capacity of the cofactors, moments and forces, to explain the variable response, spring-back, increases. These cofactors showed a strong dependence on degree of cure, and physical and mechanical properties of the material as stacking sequence of the
- laminates. For example, taking into account the stacking sequence of the composites as shown in Fig.5 (a) and (b) where the values found for the moments in relation to family 9, the highest value, and the family 7 the lower value are 1398% larger, for the values of the forces to these same families, a difference was 3058%.

# 630 5. Acknowledgments

The authors would like to thank the Graduate Department in Mechanical Engineering at UFMG where this research work was developed. This research was supported mostly by Coordination for the Improvement of Higher Education Personnel (CAPES) under grant number 99999.006603/2015-07, and in part by

the Brazilian Research Council (CNPq) under grant number 147384/2016 – 8. Much appreciation goes to the University of Texas at Arlington (UTA) where the manufacturing and measurement of laminate samples were made. All our gratitude goes to Doctor Wen S. Chan (in memorian), Glaucio C. Pereira's former advisor in his Internship term at UTA.

640

#### References

- E. D'Elia, H. S. Ahmed, E. Feilden, E. Saiz, Electrically-responsive graphene-based shape-memory composites, Applied Materials Today 15 (2019) 185–191. doi:/10.1016/j.apmt.2018.12.018.
- [2] M. H. Naveen, N. G. Gurudatt, Y.-B. Shim, Applications of conducting polymer composites to electrochemical sensors: a review, Applied materials today 9 (2017) 419–433. doi:/10.1016/j.apmt.2017.09.001.
  - [3] N. Mehra, L. Mu, T. Ji, X. Yang, J. Kong, J. Gu, J. Zhu, Thermal transport in polymeric materials and across composite interfaces, Applied Materials Today 12 (2018) 92–130. doi:/10.1016/j.apmt.2018.04.004.
  - [4] G. Carley, V. Geraldo, S. d. Oliveira, A. F. Avila, Nano-engineered composites: interlayer carbon nanotubes effect, Materials Research 16 (3) (2013) 628–634. doi:/10.1590/S1516-14392013005000034.
- [5] F. Groh, E. Kappel, C. Hühne, W. Brymerski, Investigation of
   fast curing epoxy resins regarding process induced distortions of fi-

bre reinforced composites, Composite Structures 207 (2019) 923-934. doi:/10.1016/j.compstruct.2018.09.003.

- Åkermo, [6] E. Hörberg, Т. Nyman, М. S. Hallström, Thickon spring-in of prepreg composite ness effect l-profiles-an experimental study. Composite Structures 209(2019)499 - 507.doi:/10.1016/j.compstruct.2018.10.090.
- [7] C. Bellini, L. Sorrentino, Analysis of cure induced deformation of cfrp u-shaped laminates, Composite Structures 197 (2018) 1-9. doi:/10.1016/j.compstruct.2018.05.038.

[8] A. Corrado, W. Polini, L. Sorrentino, C. Bellini, Geometrical deviation analysis of cfrp thin laminate assemblies: Numerical and experimental results, Composites Science and Technology 168 (2018) 1–11. doi:/10.1016/j.compscitech.2018.09.003.

- [9] A. Ding, J. Wang, A. Ni, S. Li, A new analytical solution for cure-induced spring-in of l-shaped composite parts, Composites Science and Technology 171 (2019) 1–12. doi:/10.1016/j.compscitech.2018.12.004.
- [10] D. B. Shah, K. Patel, A. I. Patel, V. Pariyal, S. J. Joshi, Experimental investigation on spring-back deformation during autoclave curing of parabolic antenna reflectors, Composites Part A: Applied Science and Manufacturing
- 675

670

- 115 (2018) 134-146. doi:/10.1016/j.compositesa.2018.09.017.
- [11] M. Benavente, L. Marcin, A. Courtois, M. Lévesque, E. Ruiz, Numerical analysis of viscoelastic process-induced residual distortions during manufacturing and post-curing, Composites Part A: Applied Science and Manufacturing 107 (2018) 205–216. doi:/10.1016/j.compositesa.2018.01.005.
- [12] T. Grankäll, P. Hallander, M. Åkermo, Geometric compensation of convex forming tools for successful final processing in concave cure tools-an experimental study, Composites Part A: Applied Science and Manufacturing 116 (2019) 187–196. doi:/10.1016/j.compositesa.2018.10.030.
  - 37

- [13] K. Rohwer, E. Kappel, D. Stefaniak, T. Wille, Spring-in
- 685
- and warpage—progress in simulating manufacturing aspects, Mechanics of Composite Materials 49 (2) (2013) 193–200. doi:/10.1007/s11029-013-9335-5.
- [14] D. Stefaniak, E. Kappel, T. Spröwitz, C. Hühne, Experimental identification of process parameters inducing warpage of autoclave-processed cfrp
- 690

- parts, Composites Part A: Applied Science and Manufacturing 43 (7) (2012) 1081–1091. doi:/10.1016/j.compositesa.2012.02.013.
- [15] G. Twigg, A. Poursartip, G. Fernlund, Tool-part interaction in composites processing. part i: experimental investigation and analytical model, Composites Part A: Applied Science and Manufacturing 35 (1) (2004) 121–133. doi:/10.1016/S1359-835X(03)00131-3.
- [16] E. Kappel, Compensating process-induced distortions of composite structures: A short communication, Composite Structures 192 (2018) 67-71. doi:/10.1016/j.compstruct.2018.02.059.
- [17] A. C. Loos, G. S. Springer, Curing of epoxy matrix composites, Journal of composite materials 17 (2) (1983) 135–169.
- [18] R. R. Braga, R. Y. Ballester, J. L. Ferracane, Factors involved in the development of polymerization shrinkage stress in resincomposites: a systematic review, Dental materials 21 (10) (2005) 962–970. doi:/10.1016/j.dental.2005.04.018.
- [19] D. W. Radford, Cure shrinkage induced warpage in flat uni-axial composites, Journal of Composites, Technology and Research 15 (4) (1993) 290-296. doi:/10.1520/CTR10381J.
  - [20] D. A. Darrow Jr, L. V. Smith, Isolating components of processing induced warpage in laminated composites, Journal of composite materials 36 (21)
- (2002) 2407-2419. doi:/10.1177/0021998302036021784.

- [21] P. Hubert, R. Vaziri, A. Poursartip, A two-dimensional flow model for the process simulation of complex shape composite laminates, International Journal for Numerical Methods in Engineering 44 (1) (1999) 1–26.
- B. Wang, C. Tho, M. Henson, B. Wang, C. Tho, M. Henson, Minimization
   of spring-in in composite angle components by genetic algorithm, in: 38th
   Structures, Structural Dynamics, and Materials Conference, 1997, p. 1338.
   doi:/10.2514/6.1997-1338.
  - [23] L. P. Kollår, Approximate analysis of the temperature induced stresses and deformations of composite shells, Journal of Composite Materials 28 (5) (1994) 392–414.
  - [24] G. C. Pereira, P. LeBoulluec, W. T. Lu, M. I. Yoshida, A. P. Alves, A. F. Ávila, Spring-back behavior on l-shaped composite structures: a statistical analysis of angular recovery as a function of time and residual cure, Composites Part A: Applied Science and Manufacturing (2019) 105491.doi:/10.1016/j.compositesa.2019.105491.
  - [25] K. L. Lunetta, L. B. Hayward, J. Segal, P. Van Eerdewegh, Screening largescale association study data: exploiting interactions using random forests, BMC genetics 5 (1) (2004) 32. doi:10.1186/1471-2156-5-32.
  - [26] Y. Qi, Z. Bar-Joseph, J. Klein-Seetharaman, Evaluation of different bio-

735

720

- logical data and computational classification methods for use in protein interaction prediction, Proteins: Structure, Function, and Bioinformatics 63 (3) (2006) 490-500. doi:10.1002/prot.20865.
- [27] A. Bureau, J. Dupuis, K. Falls, K. L. Lunetta, B. Hayward, T. P. Keith, P. Van Eerdewegh, Identifying snps predictive of phenotype using random forests, Genetic Epidemiology: The Official Publication of the International Genetic Epidemiology Society 28 (2) (2005) 171–182. doi:10.1002/gepi.20041.
  - 39

- [28] J. Reddy, A. Miravete, Practical Analysis of Composite Laminates, 1st Edition, Vol. 1, CRC Press, 1995. doi:/10.1201/9780203742594.
- <sup>740</sup> [29] G. N. Boshnakov, Brief guide to r package cvar, performance analytics: Econometric tools for performance and risk analysis. r package version 1.5.2. https://cran.r-project.org/package=performanceanalytics.
  - [30] D. L. Wei. Ζ. Ying, Model-checking techniques Lin. based cumulative residuals. 58(2002)1 - 12.on Biometrics (1)doi:/10.1111/j.0006-341X.2002.00001.x.
  - [31] K. K. Holst, M. K. K. Holst, Package 'gof': Model-diagnostics based on cumulative residuals. r package version 0.9.1.
  - [32] T. J. Hastie, Generalized additive models, in: Statistical models in S, Routledge, 2017, pp. 249–307.
- <sup>750</sup> [33] X. Lin, D. Zhang, Inference in generalized additive mixed modelsby using smoothing splines, Journal of the royal statistical society: Series b (statistical methodology) 61 (2) (1999) 381–400. doi:/10.1111/1467-9868.00183.
  - [34] S. Wood, Generalized additive models: An introduction with r.,(chapman and hall: Crc press, boca raton, fl.).
  - [35] X. Fang, K.-S. Chan, Additive models with spatio-temporal data, Environmental and ecological statistics 22 (1) (2015) 61-86.
     doi:/10.1007/s10182-017-0309-0.
- [36] S. N. Wood, Fast stable restricted maximum likelihood and marginal like lihood estimation of semiparametric generalized linear models, Journal of the Royal Statistical Society: Series B (Statistical Methodology) 73 (1) (2011) 3–36. doi:/10.1111/j.1467-9868.2010.00749.x.
  - [37] R: A Language and Environment for Statistical Computing, Vienna, Austria, ISBN 3-900051-07-0 (2018).
- <sup>765</sup> URL http://www.R-project.org

- [38] A. Zuur, E. N. Ieno, N. Walker, A. A. Saveliev, G. M. Smith, Mixed effects models and extensions in ecology with R, Springer Science & Business Media, 2009.
- [39] B. G. Peterson, P. Carl, K. Boudt, R. Bennett, J. Ulrich, E. Zivot, M. Lestel, K. Balkissoon, D. Wuertz, Performanceanalytics: Econometric tools for performance and risk analysis, R package version 1 (3541) (2014) 107.
- [40] C. F. Dormann, J. Elith, S. Bacher, C. Buchmann, G. Carl, G. Carré, J. R. G. Marquéz, B. Gruber, B. Lafourcade, P. J. Leitão, et al., Collinearity: a review of methods to deal with it and a simulation study evaluating their performance, Ecography 36 (1) (2013) 27–46. doi:/10.1111/j.1600-0587.2012.07348.x.
- [41] L. Breiman, Random forests, Machine learning 45 (1) (2001) 5–32.
   doi:/10.1023/A:1010933404324.
- [42] H. Tyralis, G. Papacharalampous, Variable selection in time series forecasting using random forests, Algorithms 10 (4) (2017) 114. doi:/10.3390/a10040114.
  - [43] A. Liaw, M. Wiener, et al., Classification and regression by randomforest, R news 2 (3) (2002) 18–22.
- [44] V. Svetnik, A. Liaw, C. Tong, T. Wang, Application of breiman's ran dom forest to modeling structure-activity relationships of pharmaceuti cal molecules, in: International Workshop on Multiple Classifier Systems,
   Springer, 2004, pp. 334–343. doi:/10.1007/978-3-540-25966-4\_33.

775