UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉTUDE EXPÉRIMENTALE DE LA POROSITÉ DES RENFORTS FIBREUX UTILISÉS DANS LES MATÉRIAUX COMPOSITES

BELINY BONNARD

DÉPARTEMENT DE GÉNIE MÉCANIQUE

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION

DU DIPLÔME DE MAÎTRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES

(GÉNIE AÉROSPATIAL)

DÉCEMBRE 2016

© Beliny Bonnard, 2016.

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Ce mémoire intitulé :

ÉTUDE EXPÉRIMENTALE DE LA POROSITÉ DES RENFORTS FIBREUX UTILISÉS DANS LES MATÉRIAUX COMPOSITES

présenté par : BONNARD Beliny

en vue de l'obtention du diplôme de : Maîtrise ès sciences appliquées

a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de :

Mme VILLEMURE Isabelle, Ph. D., présidente

M. TROCHU François, Ph. D., membre et directeur de recherche

M. BRAILOVSKI Vladimir, Ph. D., membre

DÉDICACE

À la mémoire de Mama,

Elle qui disait toujours que je deviendrai ingénieur depuis mon enfance.

À Dada qui m'a appuyé sans relâche et qui a toujours cru en moi,

Je ne ménage pas ma peine pour sa fierté.

À Ravo pour ses encouragements et sa grande patience,

Lui qui me façonne chaque jour pour que je devienne meilleur.

À Nancy qui a toujours vu en moi un modèle,

Je travaille continuellement pour être digne de son admiration.

REMERCIEMENTS

Je tiens à exprimer ma sincère reconnaissance à mon directeur de recherche, le professeur François Trochu, pour m'avoir accueillie au sein de son équipe et m'avoir donné toute sa confiance pour conduire ce projet de maîtrise. Il a toujours été de bon conseil et travailler sous sa supervision m'a permis d'acquérir des qualités scientifiques et humaines précieuses.

Je souhaite particulièrement remercier Philippe Causse pour sa grande contribution dans mon projet et sa disponibilité. J'ai particulièrement apprécié ses nombreuses remarques pertinentes et nos échanges toujours fructueux.

J'aimerais remercier les stagiaires avec qui j'ai eu la chance de collaborer et qui ont contribué à l'accomplissement de ce travail : Katrin Kenzlers, Anaïs Auteserres et Samuel Ste-Marie. Mes remerciements vont également à tous les membres de l'équipe et les collègues qui ont travaillé avec moi : Christian-Charles Martel, Anna Madra, Grégory Martinez, Jérôme Tixier, Wei Huang, Christophe Ravey, Alexandre Moreau, Mohammad Karaki et Nicola Vernet.

J'ai également eu la chance de côtoyer et partager mon quotidien avec des chercheurs et des étudiants dynamiques que je tiens à saluer : Catherine Billotte, Roland Fotsing, Sahar Nouri, Isabelle Ortega, Maria Benavente, Alice Courtois, Joffrey Renaud, Alessandro Scola, Hubert Courteau-Godmaire et Cédric Pupin.

Enfin, je remercie affectueusement les membres de ma famille pour leur soutien et leur amour en abondance.

RÉSUMÉ

Les renforts fibreux utilisés dans la fabrication de matériaux composites sont des matériaux poreux de structure complexe à cause des interstices entre les filaments dans un toron, qualifiés de micropores, et les espaces entre les torons, appelés mésopores. Cette double échelle de porosité exerce une grande influence sur l'étape la plus importante des procédés de fabrication par moulage liquide ou « *Liquid Composite Molding* » (LCM) : l'injection de résine dans le renfort. En effet, deux types d'écoulements se font concurrence lors de cette étape : l'*écoulement capillaire* dans les micropores et l'*écoulement visqueux* dans les mésopores. La qualité de l'injection va déterminer la qualité de la pièce finale. Ainsi, une meilleure connaissance de la taille des pores dans les renforts fibreux peut contribuer, entre autres, à améliorer la compréhension des modes d'écoulement de la résine et des facteurs qui entrainent des défauts dans les pièces.

Les études portant sur la mesure de la taille des pores dans les renforts fibreux ont principalement utilisé des méthodes par analyse d'image faisant intervenir des essais coûteux par microtomographie aux rayons-X ou encore l'utilisation de microscopes sur des spécimens composites. Dans ce travail, une méthode simple de mesure de la taille des pores, qui a fait ses preuves pour les matériaux poreux à une seule échelle de porosité, est pour la première fois appliquée aux renforts fibreux. L'objectif de ce projet est d'évaluer la capacité de la *porométrie par drainage d'un liquide mouillant* à caractériser la double échelle de porosité des renforts fibreux. Cette méthode est fondée sur la notion de pression capillaire. Un échantillon initialement imbibé de liquide mouillant est drainé petit à petit en appliquant une pression d'air à travers une de ses faces. Le débit obtenu lors de ce premier essai est comparé à celui d'un deuxième impliquant les mêmes valeurs de pression, mais cette fois-ci avec un échantillon sec. Ceci permet d'évaluer la distribution de la taille des pores qui représente la porosité effective à l'écoulement de l'échantillon. L'équation de Laplace-Young utilisée pour les calculs impose l'utilisation d'une hypothèse simplificatrice fondée sur un modèle de pores cylindriques.

Le poromètre 3Gz de Quantachrome a été utilisé pour réaliser les expériences de porométrie par drainage d'un liquide mouillant. Deux types de mesure ont été pris en considération : d'une part, la mesure à travers l'épaisseur, qui est la plus utilisée et la plus simple pour caractériser les matériaux poreux, et d'autre part, la mesure planaire, qui est plus représentative de l'écoulement de résine dans le renfort fibreux lors des procédés d'injection par LCM. Des mesures de porométrie

dans différentes directions de l'espace sont en effet requises afin de caractériser le comportement anisotrope des renforts fibreux. À cette fin, des premiers essais ont été effectués avec les porte-échantillons standards fournis par Quantachrome pour les mesures à travers l'épaisseur et dans le plan. Ces montages ont permis de mieux comprendre le fonctionnement du poromètre et d'obtenir des résultats préliminaires démontrant le potentiel de la méthode par drainage d'un liquide mouillant. Toutefois, ils ne sont pas tout à fait adaptés au cas des renforts fibreux car ils ne permettent pas de contrôler le taux de fibres. En effet, la taille des pores dépend de la compaction de l'échantillon. Un nouveau montage à travers l'épaisseur ainsi qu'un porte-échantillon pour réaliser des mesures dans le plan ont alors été conçus.

La distribution de la taille des pores obtenue pour les renforts fibreux présente deux pics indiquant la taille moyenne des micropores et des mésopores. De plus, les résultats des mesures à travers l'épaisseur sont différents de ceux dans le plan, montrant que la porosité effective à l'écoulement dépend de la direction de l'écoulement qui permet d'expulser le liquide de l'échantillon. La distribution de la taille des pores dépend également de l'architecture du renfort. Par ailleurs, la compaction du renfort a été traduit en termes de taux de fibres dans les mesures pour être le plus fidèle possible aux procédés de fabrication par LCM. Les essais effectués à travers l'épaisseur montrent que lorsque le taux de fibres augmente, la taille moyenne des micropores et des mésopores diminue. Le travail mené dans ce mémoire permet de conclure que la porométrie par drainage d'un liquide mouillant est une méthode prometteuse pour caractériser la double échelle de porosité des renforts fibreux à travers l'épaisseur et dans le plan.

ABSTRACT

Fabric reinforcements used in composite materials can be considered as complex porous media because of the open spaces between the fibers in a bundle and between the woven bundles. These spaces are commonly referred to as microscopic and mesoscopic pores. This double-scale porosity is of high importance during the injection stage of *Liquid Composite Molding* (LCM) processes. The quality of the final part is mainly determined by the resin flow through the competition between *viscous forces* in the mesopores and *capillary forces* in the micropores. Consequently, the characterisation of the pore size distribution in engineering textiles can contribute to a better understanding of flow patterns and assist in predicting defects.

Recent studies about the pore size distribution in fibrous reinforcements essentially focused on image analysis of injected specimen. Expensive X-ray microtomography characterization or statistical image analysis took by a microscope are often used to characterize the fibrous structure. In this study, a relatively simple characterization technique widely used to study simple scale porous media is for the first time applied to engineering textiles. The main objective of the work is to demonstrate the potential of *capillary flow porometry* to quantify the dual scale pore size distribution of anisotropic fibrous reinforcements. This technique is based on the concept of capillary pressure. An increasing air pressure is applied on one side of a wet sample that has been initially soaked with a wetting liquid in order to fill out all the pores. During this run, the wetting liquid is expelled stepwise from the sample. The flow passing through the sample during this first run is compared to the one during a second run with a dry sample in order to assess the pore size distribution. The calculations involve the use of Laplace-Young equation, which relates the air pressure to the pore diameter assuming a cylindrical pore model.

Through-thickness and in-plane measurements have been carried out using the 3Gz porometer of Quantachrome. Through-thickness measurement is the most widely used and easiest way to characterize porous materials by capillary flow porometry. Nevertheless, most of LCM injections are carried out in the in-plane direction. Accordingly, the manufacturing processes justify the need of in-plane measurements in addition to through-thickness measurement. To begin with, standard sample holders for through-thickness and in-plane measurements have been used to get used to the porometer and obtain preliminary results. This first step allowed validating the potential of capillary flow porometry. However, these sample holders were not perfectly adapted to the case of

compressible fibrous reinforcements because of the lack of control on the fiber volume fraction. As a consequence, a new configuration for through-thickness measurement has been set up, and a custom in-plane sample holder was devised.

Both sample holders enabled the measurement of the average microscopic and mesoscopic pore sizes. The results showed that the pore distribution depends on the direction of measurement and on the textile architecture. Through-thickness measurements also confirmed that an increase in the fiber volume fraction results in a reduction of the measured pore size. Hence, this demonstrated that capillary flow porometry allows characterizing anisotropic porous media with double-scale porosity.

TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE III

REMERCIEMENTS IV

RÉSUMÉ V

ABSTRACT VII

TABLE DES MATIÈRES IX

LISTE DES TABLEAUX XIII

LISTE DES FIGURES XIV

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS XXI

LISTE DES ANNEXES XXII

CHAPITRE 1 INTRODUCTION 1

1.1 Domaine d'étude 2

1.1.1 Matériaux composites 2

1.1.2 Fabrication par moulage liquide ou « *Liquid Composite Molding* » 6

1.2 Problématique 7

1.2.1 Caractéristiques des renforts fibreux étudiés 8

1.2.2 Méthodes de caractérisation de la porosité des renforts fibreux 11

1.3 Description du sujet et organisation générale du mémoire 13

CHAPITRE 2 REVUE DE LITTÉRATURE 16

2.1 Équation de Laplace-Young 16

2.1.1 Liquide mouillant 16

2.1.2 Liquide non mouillant 18

2.2 Porométrie par drainage d'un liquide mouillant 18

2.2.1 Acquisition des données expérimentales 18

2.2.2 Traitement des données expérimentales 20
2.2.3 Avantages et inconvénients 22
2.3 Porométrie à deux liquides 23
2.4 Porométrie par intrusion de mercure 25
2.5 Synthèse sur les méthodes de mesure par porométrie 26
CHAPITRE 3 APPAREILS DE MESURE DE LA TAILLE DES PORES PAR DRAINAGE D'UN LIQUIDE MOUILLANT 28
3.1 Autoporosimètre TRI 28
3.2 Poromètre PMI 32
3.3 Poromètre Quantachrome 37
3.3.1 Description de l'appareil 37
3.3.2 Description des porte-échantillons pour la mesure à travers l'épaisseur 39
3.3.3 Description du porte-échantillon pour la mesure dans le plan 40
3.4 Synthèse 42
CHAPITRE 4 ARTICLE 1 : EXPERIMENTAL CHARACTERIZATION OF THE PORE SIZE DISTRIBUTION IN FIBROUS REINFORCEMENTS OF COMPOSITE MATERIALS 44
4.1 Abstract 44
4.2 Introduction 45
4.3 Materials and methods 47
4.3.1 Apparatus 47
4.3.2 Materials tested 49
4.3.3 Test methodology 50
4.3.4 Interpolation of raw experimental data 51
4.3.5 Post-treatment analyses 53
4.4 Results and discussion 56

4.4.1 Repeatability of the measurements 56
4.4.2 Influence of textile architecture 58
4.4.3 Influence of fiber type 60
4.4.4 Influence of the number of plies 60
4.5 Conclusion 63
4.6 Acknowledgement 64
4.7 References 64
4.8 Appendix – Dual kriging 67
CHAPITRE 5 CARACTÉRISATION DE LA TAILLE DES PORES DES RENFORTS FIBREUX À TRAVERS L'ÉPAISSEUR 70
5.1 Présentation du nouveau montage 70
5.2 Les grilles de support 71
5.2.1 Taille des perforations et disposition dans le porte-échantillon 72
5.2.2 Influence de la grille supérieure 73
5.3 Comparaison des deux montages pour mesure à travers l'épaisseur 74
5.4 Résultats 75
5.4.1 Influence du nombre de plis 76
5.4.2 Influence du taux de fibres sur la taille des pores 79
5.5 Synthèse 82
CHAPITRE 6 CARACTÉRISATION POROMÉTRIQUE DES RENFORTS FIBREUX PAR MESURE PLANAIRE 83
6.1 Mesures avec un écoulement radial à travers un échantillon circulaire 83
6.1.1 Description de l'expérience 83
6.1.2 Résultats pour un renfort en carbone de Sigmatex 84
6.1.3 Synthèse sur les mesures avec écoulement radial à travers un échantillon circulaire 87

6.2 Mesures directionnelles avec un échantillon en forme de D 87
6.2.1 Description du montage 88
6.2.2 Résultats pour un renfort en carbone Sigmatex 89
6.2.3 Synthèse sur les mesures directionnelles avec un échantillon en forme de « D » 91
6.3 Mesures directionnelles avec un porte-échantillon personnalisé 92
6.3.1 Description du montage 92
6.3.2 Résultats pour un renfort en carbone Sigmatex 93
6.3.3 Comparaison avec les résultats obtenus dans à travers l'épaisseur 96
6.3.4 Synthèse sur les mesures avec un porte-échantillon personnalisé 97
6.4 Synthèse de l'étude préliminaire dans le plan 97
CHAPITRE 7 DISCUSSION GÉNÉRALE 99
7.1 Limitations dues aux capteurs 99
7.1.1 Capteur de pression 99
7.1.2 Capteur de débit 100
7.2 Influence du parcours de l'air 100
7.3 Influence du temps d'application de la pression 101
7.4 Vérification du drainage complet de l'échantillon 102
7.5 Améliorations possibles du programme Python 104
CHAPITRE 8 CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS 105
LISTE DES RÉFÉRENCES 106
ANNEXES 112

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 3.1 : Influence de la compression sur le diamètre maximal des pores dans un échantillon de séparateur de batterie Hovosorb; mesure dans le plan (Jena & Gupta, 1999).....36

Table 4.1 : Details about the fabric used for the measurements 50

Tableau 5.1 : Détails des essais avec différents nombre de plis 76

Tableau D1 : Fonctions d'usage du porte-échantillon 125

Tableau D2 : Fonctions d'adaptation du porte-échantillon.....126

LISTE DES FIGURES

Figure 1.1 : Exemple de renfort piqué 2D.....3

Figure 1.2 : Exemples des trois architectures de base des renforts tissés 4

Figure 1.3 : Exemple de préforme de renforts piqués 3D (Ferreira, Graciani, & París, 2014).....5

Figure 1.4 : Architecture de base des renforts tissés 3D (Potluri, P., Hogg, Arshad, Jetavat, & Jamshidi, 2012) 6

Figure 1.5 : Principe du moulage liquide : (1) préformage du renfort; (2) drapage du renfort dans le moule; (3) injection de la résine; (4) consolidation et polymérisation; (5) démoulage 7

Figure 1.6 : Double échelle de porosité des renforts fibreux 8

Figure 1.7 : Formation de microvides et mésovides dans un renfort à double échelle de porosité : (a) Écoulement à l'échelle microscopique entre les filaments d'une mèche; (b) Écoulement à l'échelle mésoscopique entre les mèches (Leclerc & Ruiz, 2008) 9

Figure 1.8 : Influence du taux de fibres sur la taille des pores.....11

Figure 1.9 : Observation au microscope d'un échantillon de composite renforcé avec un renfort 3D interlock représenté en noir (Vernet & Trochu, 2016).....12

Figure 1.10 : Observation d'un toron de fibres par microtomographie aux rayons X (Vilà et al., 2015).....12

Figure 2.1 : Schéma montrant un tube capillaire plongé dans un liquide 17

Figure 2.2 : Influence de la mouillabilité d'une surface par un liquide sur l'angle de contact θ ...18

Figure 2.3 : Mesures expérimentales obtenues lors d'un essai de porométrie par drainage d'un liquide mouillant avec une membrane 19

Figure 2.4 : Courbes de distribution cumulative de la taille des pores d'un échantillon de membrane : (a) en fonction de la pression appliquée; (b) en fonction de la taille des pores .20

Figure 2.5 : Exemple d'interprétation de la courbe cumulative en fonction de la taille des pores.21

Figure 2.6 : Distribution différentielle de la taille des pores d'un échantillon de membrane.....21

Figure 2.7 : Exemples de filtres tissés étudiés par Lydon et al. (2004) 22

Figure 2.8 : Diamètre des pores mesuré par la méthode de drainage par un liquide mouillant 23

Figure 2.9 : Principe de la porométrie à deux liquides (Ellouze et al., 2015) 24

Figure 2.10 : Résultat typique d'une mesure par porométrie liquide-liquide avec un échantillon de membrane d'ultrafiltration commerciale UF-PES-100 (Calvo et al., 2011) 25

Figure 2.11 : Pénétromètre (Daïan, 2007) 26

Figure 3.1 : Principe de l'autoporosimètre TRI (Miller & Tyomkin, 1994) 28

Figure 3.2 : Distribution bimodale typique du volume des pores pour des renforts fibreux tissés; mesures à travers l'épaisseur (Miller & Tyomkin, 1994) 29

Figure 3.3 : Méthode pour contrôler le taux de compression des échantillons (Miller & Tyomkin, 1994) 30

Figure 3.4 : Influence de la compression sur la distribution du volume des pores pour des matériaux à une échelle de porosité : (a) volume cumulatif des pores pour des épaisseurs différentes; (b) effet de la compression sur le rayon des pores à des taux cumulatifs de volume des pores différents (Miller & Tyomkin, 1994) 31

Figure 3.5 : Montage du poromètre PMI pour la mesure à travers l'épaisseur (Jena & Gupta, 2000) 32

Figure 3.6 : Montage du poromètre PMI pour la mesure planaire (Jena & Gupta, 2000) 33

Figure 3.7 : Vue au MEB du séparateur de batterie Hovosorb (Jena & Gupta, 1999) 33

Figure 3.8 : Distribution de débit d'air en fonction du diamètre moyen des pores pour le séparateur de batterie Hovosorb : (a) dans le plan; (b) à travers l'épaisseur (Jena & Gupta, 1999) 35

Figure 3.9 : Variation du rapport des diamètres au point bulle avec et sans compression en fonction du carré de la pression appliquée pour le séparateur de batterie Hovosorb (Jena & Gupta, 1999) 37

Figure 3.10 : Les deux modules du poromètre Quantachrome 3G 38

Figure 3.11 : Vue schématique en coupe du porte-échantillon de 25 mm de diamètre pour la mesure à travers l'épaisseur 39

Figure 3.12 : Déformation de l'échantillon de renfort fibreux dans le porte-échantillon pour réaliser une mesure à travers l'épaisseur.....40

Figure 3.13 : Vue schématique en coupe du porte-échantillon de 25 mm de diamètre pour les mesures planaires 41

Figure 3.14 : Schéma d'écoulement dans le plan pour un échantillon de séparateur de batterie Hovosorb à structure fibreuse (Jena & Gupta, 1999).....41

Figure 4.1 : Quantachrome 3Gz porometer with sample holder for through-thickness measurements 48

Figure 4.2 : Schematic view of the layout inside the sample holder for through-thickness measurements.....48

Figure 4.3 : Fibrous reinforcement characterized during the experimental program: (a) woven carbon (Sigmatex SC6221270); (b) woven glass (Texonic L1402197); (c) NCF carbon (SGL HPT 410 C45); (d) NCF glass (Vectorply E-TLX-2200-10).....49

Figure 4.4 : Typical capillary flow experiment with a glass NCF specimen 51

Figure 4.5 : Kriging smoothing function applied to the raw data measured by the porometer during a typical experiment with a glass NCF sample 53

Figure 4.6 : Examples of limiting diameters during capillary flow porometry [32].....54

Figure 4.7 : Typical cumulative flow curve as a function of pore diameter for a glass NCF sample 55

Figure 4.8 : Pore size distribution resulting from prost-treatment of the porometry data with a glass NCF sample.....55

Figure 4.9 : Repetition of the capillary flow measurement for the glass NCF reinforcement.....57

Figure 4.10 : Comparison of the pore size distributions from three measurements with the glass NCF reinforcement.....57

Figure 4.11 : Average pore size distribution resulting from three measurements with the glass NCF (standard deviations are indicated for peak locations and intensity) 58

Figure 4.12 : Influence of textile architecture for glass reinforcements. 59

Figure 4.13 : Influence of textile architecture for carbon reinforcements.....59

Figure 4.14 : Comparison of the pore size distributions in NCF fabrics made of different fiber materials 60

Figure 4.15 : Capillary flow porometry experiment with 2 plies of woven carbon showing crossing of the wet and dry runs.....61

Figure 4.16 : Influence of the number of plies on porometry measurement with a woven carbon fabric.....62

Figure 4.17 : Influence of the number of plies on the pore size distribution detected in a woven carbon fabric.....62

Figure 5.1 : Vue en coupe et éclatée du porte-échantillon universel de 50 mm de diamètre pour mesure à travers l'épaisseur dans la nouvelle configuration qui permet de fixer le taux de fibres.....71

Figure 5.2 : Grille fine de 0,2 mm d'épaisseur : (a) vue de dessus; (b) vue de dessous 72

Figure 5.3 : Vue de profil schématique de la grille fine de 0,2 mm d'épaisseur 73

Figure 5.4 : Vérification de l'influence de la grille supérieure lors d'un essai de porométrie à travers l'épaisseur (renfort Vectorply) : (a) 2 plis; (b) 3 plis 73

Figure 5.5 : Représentation schématique montrant l'équivalence entre le porte-échantillon de 25 mm de diamètre et le porte-échantillon universel avec un insert perforé en caoutchouc 74

Figure 5.6 : Essais à vide dans le porte échantillon standard de 25 mm de diamètre et dans le porte-échantillon universel avec des inserts perforés en caoutchouc 75

Figure 5.7 : Influence du nombre de plis lors d'un essai porométrique à travers l'épaisseur avec contrôle du taux de fibres (renfort Vectorply) 77

Figure 5.8 : Distribution de la taille des pores pour 1 pli de renfort Vectorply 77

Figure 5.9 : Distribution de la taille des pores montrant l'influence du nombre de plis pour des taux de fibres proches. Renfort Vectorply 78

Figure 5.10 : Influence du nombre de plis sur la taille moyenne des pores avec un taux de fibres estimé entre 36 % et 39 % (renfort Vectorply) 79

Figure 5.11 : Influence du taux de fibres sur la caractérisation à travers l'épaisseur (essais réalisés avec 3 plis de renfort Vectorply) 80

Figure 5.12 : Distribution de la taille des pores montrant l'influence du taux de fibres pour 3 plis de renfort Vectorply 80

Figure 5.13 : Influence du taux de fibres sur la taille des pores pour 3 plis de renfort Vectorply 81

Figure 6.1 : Échantillon circulaire pour la mesure planaire par écoulement radial 84

Figure 6.2 : Exemple de caractérisation du renfort de Sigmatex par mesure planaire pour un écoulement radial 85

Figure 6.3 : Répétition de la mesure planaire par écoulement radial pour trois échantillons de renfort Sigmatex 86

Figure 6.4 : Distribution de la taille des pores pour trois échantillons de renfort Sigmatex (mesure dans le plan avec écoulement radial) 87

Figure 6.5 : Schéma de configuration de l'échantillon en D pour mesure planaire : à gauche vue de dessus; à droite vue en coupe 88

Figure 6.6 : Vue schématique en coupe de la configuration du porte-échantillon de 25 mm de diamètre pour des mesures planaires directionnelles 89

Figure 6.7 : Exemple de caractérisation du renfort Sigmatex par mesure planaire avec un échantillon en forme de D (sens chaîne) 90

Figure 6.8 : Répétition de la mesure planaire avec un échantillon en forme de D pour le renfort Sigmatex (sens chaîne) 90

Figure 6.9 : Distribution de la taille des pores pour trois échantillons de renfort Sigmatex (mesure dans le plan avec un échantillon en forme de D dans le sens chaîne) 91

Figure 6.10 : Vue éclatée du nouveau porte-échantillon personnalisé pour la mesure planaire 93

Figure 6.11 : Résultats typiques obtenus avec le nouveau porte-échantillon planaire pour le renfort Sigmatex : (a) trois plis de renfort; (b) cinq plis de renfort 94

Figure 6.12 : Répétition des essais de caractérisation avec le nouveau dispositif planaire pour un échantillon de Sigmatex : (a) trois plis de renfort; (b) cinq plis de renfort 94

Figure 6.13 : Distribution de la taille des pores obtenue avec le nouveau dispositif planaire pour 3 essais avec un échantillon de renfort Sigmatex : (3) trois plis de renfort; (b) cinq plis de renfort 95

Figure 6.14 : Courbes de distribution de la taille des pores moyenne avec un échantillon de renfort Sigmatex.....96

Figure 6.15 : Comparaison des mesures à travers l'épaisseur avec contrôle de taux de fibres et dans le plan pour le renfort Sigmatex.....97

Figure 7.1 : Exemple de courbes montrant que le changement de capteur de pression introduit du bruit (renfort L1402197 de Texonic) 99

Figure 7.2 : Vérification du drainage de l'échantillon avec un échantillon de renfort Vectorply (mesure à travers l'épaisseur avec le porte-échantillon universel) 102

Figure A.1 : Exemple montrant la différence entre la pression réelle et la pression de consigne lors d'un essai avec les paramètres de contrôle par défaut pour le renfort Sigmatex 113

Figure A.2 : Exemple montrant le respect de la pression de consigne lors d'un essai avec les paramètres de contrôle modifiés pour le renfort Sigmatex 115

Figure B.1 : Influence de la différence entre la pression réelle et la pression de consigne sur la courbe mouillée pour un échantillon de renfort Sigmatex 117

Figure B.2 : Influence du lissage de la courbe mouillée par le logiciel 3GWin pour un échantillon de renfort Sigmatex 118

Figure B.3 : Exemple de distribution montrant les 100 points calculés par le logiciel 3GWin et des sauts pour un échantillon de renfort Sigmatex.....118

Figure C.1 : Échantillon de métal fritté.....121

Figure C.2 : Répétabilité des essais effectués avec l'échantillon de métal fritté. (a) Débit en fonction de la pression. (b) Distribution de la taille des pores 121

Figure C.3 : Comparaison des résultats obtenus à l'aide de deux liquides mouillants (mesures à travers l'épaisseur pour un échantillon de métal fritté).....122

Figure C.4 : Comparaison des distributions obtenus à l'aide de deux liquides mouillants (mesures à travers l'épaisseur pour un échantillon de métal fritté) 123

Figure D.1 : Vue de face du porte-échantillon monté sur le module 127

Figure D.2 : Les éléments métalliques du nouveau porte-échantillon pour mesure dans le plan 128

Figure D.3 : Coupe du porte-échantillon montrant les goupilles 129

Figure D.4 : Les 7 sous-ensembles de pièces pour l'analyse par éléments finis..... 131

Figure D.5 : Contraintes équivalentes de Von Mises dans le haut du porte-échantillon (valeurs de la légende en MPa) 132

Figure D.6 : Déformations des pièces du porte-échantillon (valeurs de la légende en mm) 132

Figure D.7 : Écartement du haut du porte-échantillon par rapport à la cale (valeurs de la légende en mm) 133

LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

CFP	*« Capillary Flow Porometry »*
d	Diamètre du cylindre capillaire ou du pore (m ou µm)
g	Accélération de la gravité ($m.s^{-2}$)
h	Hauteur du cylindre capillaire (m)
LCM	*« Liquid Composite Molding »*
RTM	*« Resin Transfer Molding »*
VARI	« *Vacuum Assisted Resin Infusion* »
VARTM	« *Vacuum Assisted Resin Transfer Molding* »
V_f	Taux de fibres (%)
γ	Tension de surface du liquide ($N.m^{-1}$)
ε	Déformation (%)
ρ	Masse volumique du liquide ($kg.m^{-3}$)
σ_P	Contrainte de pression (kPa)
θ	Angle de contact entre un liquide et une surface

LISTE DES ANNEXES

Annexe A – Réglages des paramètres de contrôle dans le logiciel 3GWIN V1.00 112

Annexe B – Difficultés rencontrées dans le post-traitement avec le logicieL 3GWIN 116

Annexe C – Comparaison de liquides mouillants avec un échantillon de métal fritté.....120

Annexe D – Conception du porte-échantillon pour mesure planaire 124

CHAPITRE 1 INTRODUCTION

Les matériaux composites sont le résultat de la combinaison de deux phases : le renfort fibreux et la matrice, dont les proportions confèrent à la pièce finale les propriétés visées. Plusieurs procédés de fabrication existent pour combiner le renfort avec la matrice. Ceux-ci dépendent de la géométrie et des contraintes particulières auxquelles les pièces doivent se conformer. Le procédé sur lequel est orienté le présent travail est l'injection en moule rigide ou « *Resin Transfer Molding* » (RTM) qui fait partie de la famille des procédés d'injection sur renforts appelés « *Liquid Composite Molding* » (LCM). Dans ce procédé, les renforts fibreux secs sont découpés, puis déposés dans un moule rigide. Le moule dispose d'un port d'entrée de la résine qui est injectée afin d'imprégner le renfort. Une fois le renfort totalement imprégné et l'injection terminée, la pièce est laissée dans le moule pour qu'elle puisse solidifier; c'est la phase de polymérisation de la résine ou cuisson. Lorsque la pièce est polymérisée, elle est retirée du moule.

L'optimisation de cette technologie demande une maîtrise du cycle de production et donc un choix adéquat des paramètres de fabrication. Une des étapes les plus importantes lors d'un procédé de fabrication par LCM est l'injection de la résine à travers le renfort fibreux. Cette phase d'injection fait l'objet de nombreuses recherches qui impliquent par exemple l'étude de la vitesse d'injection (Leclerc & Ruiz, 2008), de la perméabilité du renfort (Ngo & Tamma, 1999), mais aussi la simulation numérique de l'injection (Trochu, Gauvin, & Zhang, 1992). Les études sur la vitesse du front de résine dans le moule ont permis de mettre en évidence l'existence d'une plage optimale de vitesse d'injection pour laquelle l'apparition de défauts dans les pièces est minimisée (LeBel, Fanaei, Ruiz, & Trochu, 2014; Leclerc & Ruiz, 2008). En effet, la vitesse d'injection de la résine détermine les propriétés finales du composite : trop élevée, il risque de se former des vides ou des bulles d'air dans la pièce; trop lente, la résine peut de se solidifier avant la fin de l'injection. La vitesse d'injection dépend de la perméabilité des renforts fibreux, qui est elle-même fonction de la taille des pores. Ainsi, l'estimation de la distribution des pores dans les renforts fibreux revêt une grande importance dans l'étude du remplissage des moules et l'analyse des défauts de type « porosités résiduelles » après l'injection de la résine.

Dans ce mémoire, une méthode de caractérisation de la taille des pores appelée porométrie par drainage d'un liquide mouillant sera appliquée aux renforts fibreux utilisés dans la fabrication des matériaux composites. Ces renforts sont principalement composés de fibres de carbone ou de verre

regroupées en torons puis tissées ou piquées; et sont en fait des matériaux poreux de structure complexe. La première partie de l'introduction présente le domaine d'étude et les principaux renforts utilisés dans la fabrication des composites par injection. Ensuite, la problématique du projet, les objectifs et l'organisation du mémoire sont décrits dans les deuxième et troisième parties.

1.1 Domaine d'étude

1.1.1 Matériaux composites

Le terme « matériaux composites » désigne un arrangement de fibres d'un matériau résistant qui sont ou non continues, et contenues dans une matrice ayant une résistance mécanique plus faible (Gay, 1991). Le rôle principal de la matrice est de transmettre les efforts mécaniques aux renforts et de donner la forme au produit final. La majorité des matrices utilisées dans l'industrie sont de nature polymérique (thermoplastique ou thermodurcissable), minérale (céramique par exemple) ou métallique (alliage d'aluminium ou de titane par exemple).

Les renforts confèrent la résistance mécanique au matériau. Ceux utilisés dans les composites à haute performance à matrice polymérique sont constitués de fibres continues. Dans d'autres applications, des billes pleines ou creuses, ou des poudres peuvent également servir de renfort. Les fibres peuvent être classées selon plusieurs catégories. Suivant leur nature, il existe des fibres de verre, d'aramide ou de kevlar (matériaux connus pour leur légèreté), de carbone, qui ont un module d'élasticité élevé, de bore ou encore de carbure de silicium, etc… D'un point de vue géométrique, les renforts fibreux peuvent être divisés en deux grandes familles : les fibres courtes et les fibres longues. Les fibres courtes sont de quelques centimètres à quelques fractions de millimètres. Elles sont utilisées principalement pour des applications non structurelles. Elles peuvent être sous forme de mats ou de feutre par exemple. Les fibres longues peuvent avoir des longueurs allant jusqu'à plusieurs mètres. Les propriétés de la pièce finale dépendent de l'orientation et de la disposition de ces fibres ainsi que de leur disposition. Usuellement, les fibres longues sont rassemblées en mèches ou torons, qui sont eux-mêmes regroupés d'une manière ordonnée afin d'obtenir un réseau fibreux plus ou moins complexe. L'assemblage des fibres qui constituent le renfort peut être unidirectionnel (UD ou 1D), bidimensionnel (2D) ou tridimensionnel (3D). Les fibres unidirectionnelles sont orientées dans une même direction dans l'espace. Les renforts 2D incluent

les préformes tissées, et non tissées comme les feutres ou les mats. Un renfort 3D comprend des fibres orientées suivant les trois directions de l'espace.

1.1.1.1 Renforts 2D

Selon la technique de fabrication utilisée, les renforts peuvent être classés en différentes catégories : les renforts tissés, tressés, collés ou tricotés. Les deux classes abordées dans ce travail seront introduites plus en détail, soit les renforts piqués et les renforts tissés.

Renforts piqués 2D

Le piquage consiste à insérer un fil sur chaque mèche, le long de chaque mèche ou perpendiculairement au sens des mèches afin de relier plusieurs plis de renforts unidirectionnels. Les renforts obtenus possèdent d'excellentes propriétés mécaniques dans le sens des mèches car celles-ci ne présentent pas d'ondulation. L'appellation *Non-Crimp Fabric* ou NCF sera utilisée dans la suite de ce mémoire pour désigner ces renforts. Ce type de renfort est par exemple utilisé dans la fabrication de guidons de vélo ou de pales d'éoliennes.

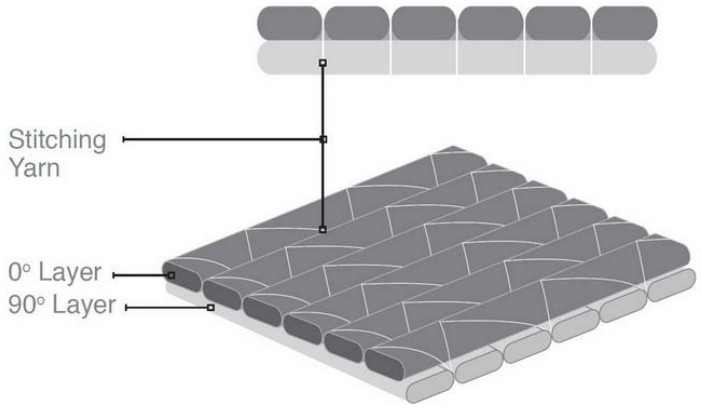


Figure 1.1 : Exemple de renfort piqué 2D[1]

Renforts tissés 2D

Il existe un grand nombre de tissus possibles pour les renforts qui peuvent être reliés à trois architectures de base : la toile, le sergé $n \times m$ et le satin n.

[1] DEVOLD AMT, 2015.

- La toile ou taffetas est le tissage le plus simple, puisque chaque mèche de chaîne passe alternativement au-dessus et en-dessous de chaque mèche de trame. Les propriétés dans les deux sens de tissage sont donc relativement similaires. La toile est un tissu stable qui reste toutefois difficile à draper à cause de l'étroit entrelacement des mèches.
- Pour un sergé $n \times m$, le fil de trame passe au-dessus de m fils de chaîne et chaque fil de chaîne passe sur n fils trames. Cette architecture est aussi appelée patron diagonal. Les propriétés vont naturellement dépendre de l'orientation du patron, puisque le tissage n'est pas symétrique. Ce patron se drape assez bien, mais la cohésion du tissu est moins importante comparée à la toile. Le renfort cisaille donc plus facilement et sa résistance à l'impact diminue.
- Pour le satin *n*, chaque mèche de trame passe par-dessus *n-1* mèches de chaîne. Cette architecture se drape facilement et possède de bonnes propriétés mécaniques.

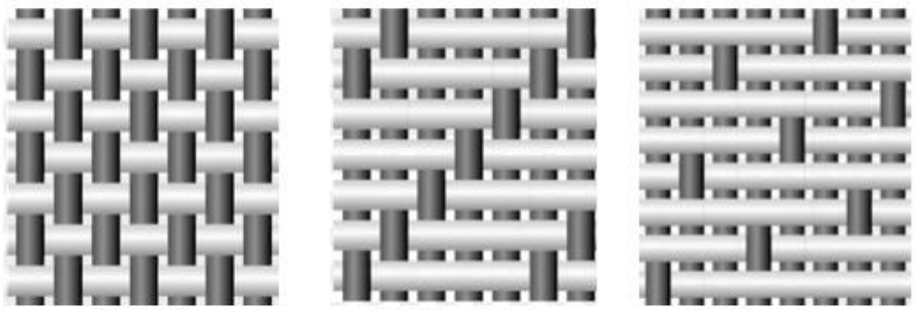


Figure 1.2 : Exemples des trois architectures de base des renforts tissés

1.1.1.2 Renforts 3D

Dépendant de l'application et des propriétés de la pièce désirée, un empilement de renforts 2D ou tout simplement un renfort 3D peut être utilisé. Une description des renforts 3D qui sont étudiés dans ce mémoire sera effectuée dans cette partie.

Renforts piqués 3D

Généralement, les renforts piqués sont présentés sous la forme de superposition de plis (Figure 1.3) orientés de façon à optimiser la résistance dans une direction donnée. Une mèche est ensuite insérée

par une machine spécialisée pour tenir l'ensemble et éviter la délamination. Ils peuvent être utilisés par exemple pour fabriquer certains panneaux auto-raidis ou encore les cloisons de pressurisation d'un avion.

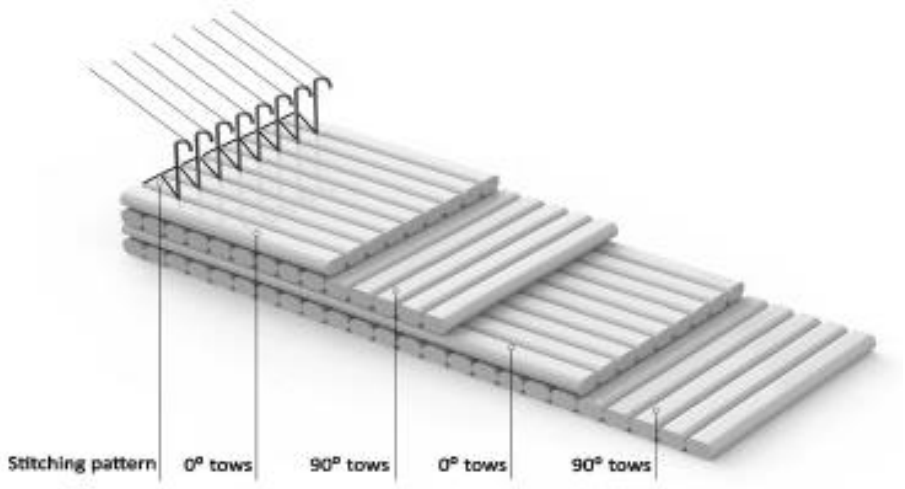


Figure 1.3 : Exemple de préforme de renforts piqués 3D (Ferreira, Graciani, & París, 2014)

Renforts tissés 3D

Tout comme les renforts 2D, il existe une grande variété de tissages 3D, mais ils peuvent être regroupés en trois grandes familles : les orthogonaux, les multiaxiaux et les interlocks multicouches.

- Les mèches pour la famille orthogonale sont tissées perpendiculairement dans les trois directions de l'espace. Ainsi, ce type de tissu présente une excellente résistance à la délamination, mais de moins bonnes propriétés en traction.
- Les renforts 3D multiaxiaux sont tissés avec des mèches faisant un certain angle à travers l'épaisseur. Une coupe de ces renforts permet d'observer que les mèches de chaîne forment une grille en forme de X qui enveloppent les mèches en trame. Ainsi, ils possèdent de meilleures propriétés dans le plan que dans le sens orthogonal.
- L'interlock multicouches est un tissage qui permet à une mèche orientée dans une direction de chaîne ou de trame de tenir plusieurs autres mèches orientées dans la direction perpendiculaire au plan. Ce type de renfort présente d'excellentes propriétés mécaniques dans le plan et une bonne résistance à la délamination.

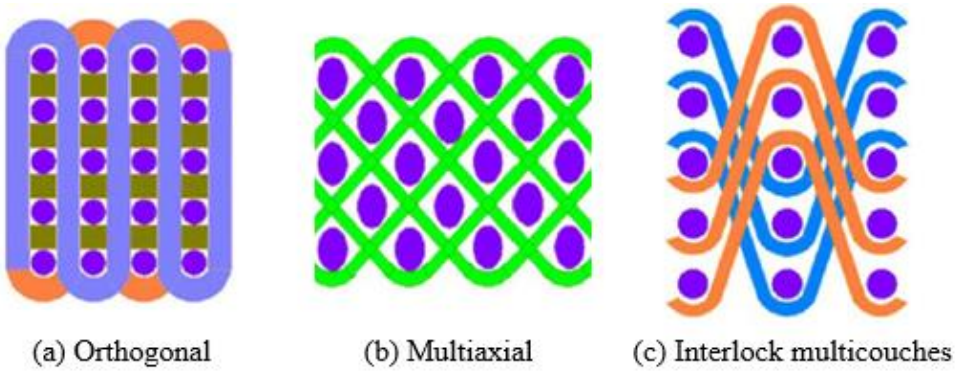


Figure 1.4 : Architecture de base des renforts tissés 3D (Potluri, P., Hogg, Arshad, Jetavat, & Jamshidi, 2012)

1.1.2 Fabrication par moulage liquide ou « *Liquid Composite Molding* »

Contrairement aux alliages métalliques dont les traitements thermiques peuvent contribuer à attribuer certaines propriétés au matériau, il n'est pas possible de modifier la structure d'un matériau composite une fois qu'il a été fabriqué. Le procédé de fabrication revêt donc une grande importance. La structure des pores dans les renforts fibreux joue un rôle primordial dans la mise en forme des composites par des procédés de fabrication par moulage liquide appelés « *Liquid Composite Molding* » (LCM). Ce type de procédé donne des pièces qui répondent aux critères de performance des pièces structurelles.

Ces procédés consistent à injecter ou infuser une résine thermodurcissable réactive dans un moule où les couches de renfort ont été préalablement disposées. Une fois la phase d'imprégnation terminée, la polymérisation de la résine se fait pendant la « cuisson ». La cuisson consiste à laisser le moule à une certaine température jusqu'à réticulation complète du polymère. Les procédés de moulage varient en fonction de plusieurs facteurs comme la forme et la nature du moule (moule ouvert ou fermé), le type de renfort utilisé ou l'environnement dans lequel la résine polymérise. Toutefois, ils présentent les mêmes principes exposés à la Figure 1.5.

Deux principaux types de procédés de formage liquide existent : le moulage par injection de résine ou « *Resin Transfer Molding* » (RTM) et le moulage sous vide avec plusieurs appellations variées en anglais comme le « *Vacuum Assisted Resin Tranfer Molding* » (VARTM) ou le « *Vacuum*

Assisted Resin Infusion » (VARI). Le choix du procédé dépend de l'application, du coût de fabrication, du volume de production, mais également de la qualité de la finition requise.

Le procédé de formage liquide étudié par la Chaire sur les Composites à Haute Performance (CCHP) est le moulage par injection de résine. La majorité des renforts fibreux utilisés durant un procédé de fabrication par RTM sont des renforts structurés 2D ou 3D. La nature du renfort fibreux choisi confère des propriétés particulières à la pièce finale, mais de par ses caractéristiques physiques, le renfort fibreux rend l'étape de l'injection plus complexe.

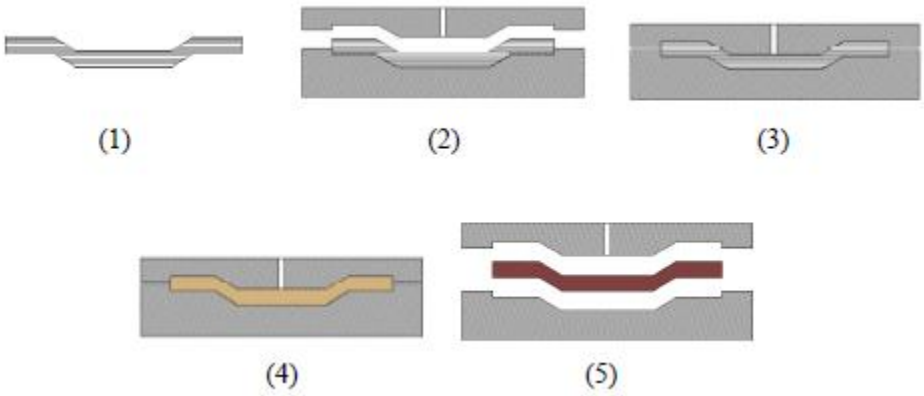


Figure 1.5 : Principe du moulage liquide : (1) préformage du renfort; (2) drapage du renfort dans le moule; (3) injection de la résine; (4) consolidation et polymérisation; (5) démoulage

1.2 Problématique

L'étude de la taille des pores dans les renforts fibreux soulève plusieurs points critiques du fait des caractéristiques physiques des renforts et de leurs architectures. De plus, le choix de la méthode de caractérisation de la taille des pores doit se faire de telle sorte qu'elle puisse s'adapter à ce contexte particulier. Cette section commence par la description des caractéristiques particulières des renforts qui doivent être prises en compte dans l'analyse porométrique comme la double échelle de porosité, l'anisotropie et la compression du renfort. Ensuite, les différentes méthodes utilisées pour caractériser la taille des pores des renforts fibreux sont présentées.

1.2.1 Caractéristiques des renforts fibreux étudiés

Renforts à double échelle de porosité

Il existe un grand nombre de milieux poreux différents. Dans le cas des roches comme le sable par exemple, le milieu poreux est dit granulaire et la taille des pores est décrite par une seule échelle de porosité au moyen d'une distribution statistique de granulométrie. En général, les pores peuvent être classés selon leur géométrie : les pores ouverts qui sont débouchant et permettent l'écoulement d'un fluide, les pores borgnes ou de surface et enfin les pores fermés qui sont complètement inaccessibles. La plupart du temps, les pores rencontrés possèdent une structure complexe. Leur modélisation nécessite une approximation par des considérations géométriques simples. Ainsi, pour caractériser un milieu poreux, il faut se fixer une échelle de mesure par convention et formuler une hypothèse sur la forme générale des pores.

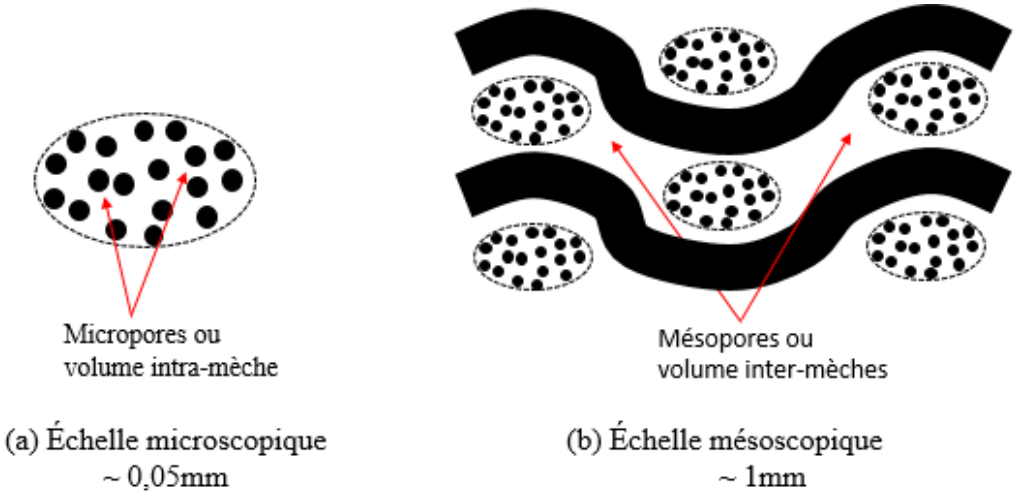


Figure 1.6 : Double échelle de porosité des renforts fibreux

Les renforts fibreux utilisés dans la fabrication des matériaux composites peuvent également être considérés comme des milieux poreux. Comme le renfort est composé de mèches tissées ou piquées qui sont elles-mêmes composés de filaments, deux échelles de porosité sont rencontrées. Les volumes entre les mèches du tissu visibles à l'échelle mésoscopique sont appelés mésopores (Figure 1.6b). À l'échelle microscopique, des espaces existent entre les filaments des mèches; ce sont les microspores (Figure 1.6a). Dans certains types de renforts, des pores de l'ordre du millimètre ou plus sont visibles à l'œil nu (échelle macroscopique). Dans ce cas, les pores seront

appelés macropores. Pour caractériser les porosités dans les renforts fibreux, il est nécessaire de faire une approximation en simplifiant la forme des pores à cause leur grande complexité. Le choix de cette approximation est primordial pour que l'étude de la porosité des renforts fibreux reste à la fois simple et représentative de la réalité.

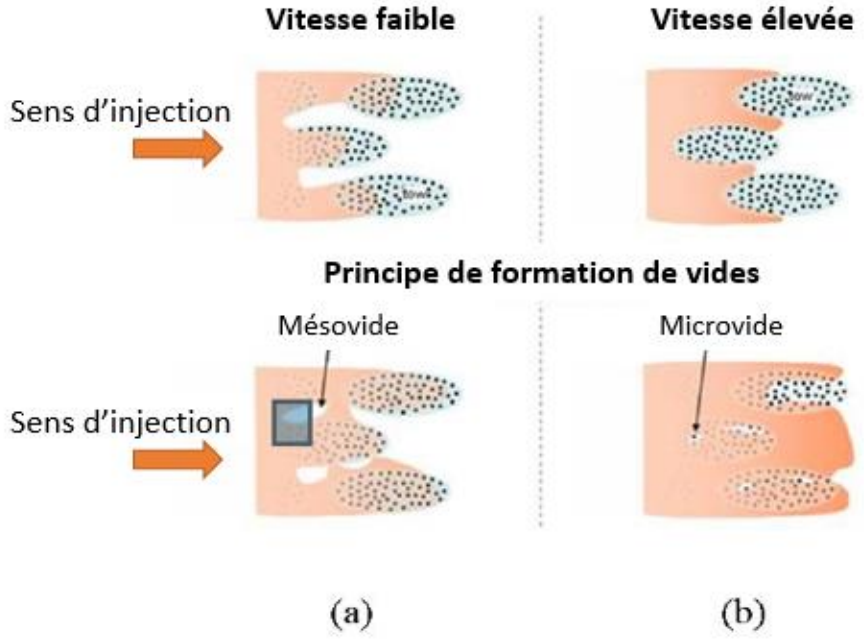


Figure 1.7 : Formation de microvides et mésovides dans un renfort à double échelle de porosité : (a) Écoulement à l'échelle microscopique entre les filaments d'une mèche; (b) Écoulement à l'échelle mésoscopique entre les mèches (Leclerc & Ruiz, 2008)

L'évaluation de la taille et la répartition statistique des pores représentent des enjeux significatifs pour maîtriser les procédés de fabrication ainsi que la qualité de la pièce finale. Par exemple, l'apparition de vides dépend de plusieurs facteurs liés au renfort, entre autres, de la distribution hétérogène de la taille des pores qui exerce une influence sur l'écoulement. En effet, lors de l'injection de résine à travers un renfort fibreux, il existe deux types d'écoulement : un écoulement dominé par les forces capillaires dans les mèches et un écoulement visqueux entre les mèches. Une vitesse d'imprégnation trop faible privilégie l'écoulement capillaire à l'intérieur d'une mèche. Ceci entraîne un retard d'écoulement entre les mèches et l'apparition de mésovides (voir Figure 1.7a). Par contre, lorsque la vitesse d'imprégnation est trop élevée, l'écoulement visqueux entre les mèches devient prépondérant. Ceci entraîne un retard d'écoulement entre les filaments des mèches

et la création de microvides (voir Figure 1.7b). En particulier, l'écoulement capillaire à travers les mèches est plus susceptible d'entrainer des emprisonnements d'air que l'écoulement visqueux entre les mèches à cause des changements de forme des ménisques et de la variabilité des espaces inter-filaments à l'intérieur des mèches (LeBel et al., 2014). En résumé, les paramètres d'injection qui minimisent la formation des vides dépendent de la distribution statistique de la taille des pores dans le renfort.

Anisotropie du renfort et direction de caractérisation

Plusieurs facteurs font que les propriétés des renforts fibreux dépendent de la direction. On peut citer l'architecture du renfort tel que décrit dans la section 1.1.1. De plus, même si l'architecture du renfort est symétrique, une différence entre le nombre de filaments des mèches de chaîne et de trame peut rendre le matériau anisotrope. Caractériser les propriétés d'un renfort selon différentes directions revêt donc une importance pour une grande étendue d'applications.

La méthode de caractérisation par drainage d'un liquide mouillant permet de mesurer le débit d'air traversant l'échantillon de renfort dans une direction donnée. Par conséquent, la porosité mesurée par cette méthode est une porosité effective à l'écoulement et non une porosité dans le sens global du terme. Par exemple, les expériences de Jena et Gupta (1999) utilisant la méthode de porométrie par drainage d'un liquide mouillant montrent que pour un échantillon de séparateur de batterie fibreux, le débit mesuré dans une direction radiale parallèle au plan est différent de celui mesuré à travers l'épaisseur. Ainsi, une caractérisation convenable de la taille des pores des renforts fibreux par drainage d'un liquide mouillant doit être réalisée au moins selon trois directions spatiales : à travers son épaisseur, dans le sens chaîne et dans le sens trame. Une telle caractérisation directionnelle apportera des éléments d'information importants afin de prédire des propriétés anisotropes des renforts fibreux comme la perméabilité ou la conductivité thermique.

Influence de la compression

Lors de la fabrication des matériaux composites, un ou plusieurs plis de renfort orientés dans différentes directions sont utilisés afin d'attribuer au matériau final les propriétés requises dans le cahier des charges. Chaque pli est alors soumis à des tensions dans le plan, à des forces de cisaillement, à des compressions transverses ainsi qu'à des efforts de flexion. Ces contraintes ont un impact direct sur la compaction des mèches. La géométrie résultante des mèches ainsi que le

taux volumique de fibres ont une influence sur l'écoulement de la résine dans les procédés de fabrication par moulage liquide et sur les propriétés mécaniques de la pièce finale (Potluri, Prasad, Ramgulam, Chilo, & Arshad, 2012). Tel qu'illustré dans le schéma de la Figure 1.8, la compaction du renfort influence la taille des pores : plus le renfort est comprimé, plus les pores se referment. La caractérisation de la taille des pores dans un renfort doit ainsi prendre en compte l'effet de sa consolidation par compression.

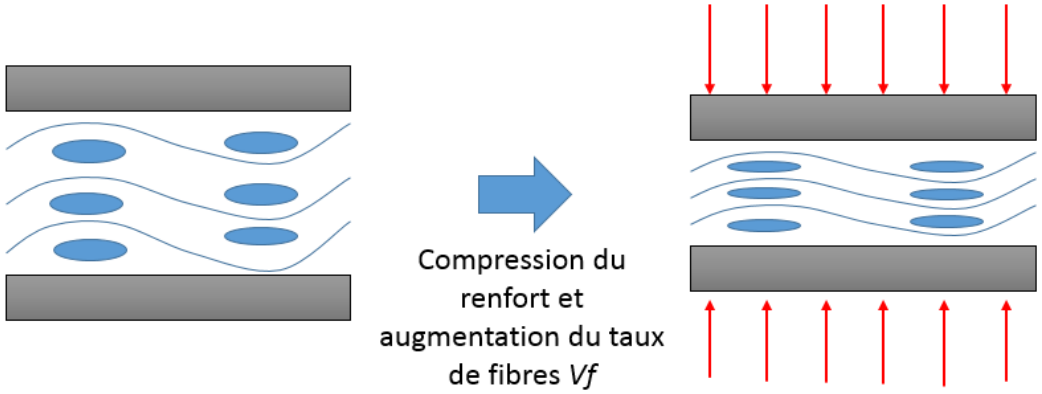


Figure 1.8 : Influence du taux de fibres sur la taille des pores

1.2.2 Méthodes de caractérisation de la porosité des renforts fibreux

Différentes méthodes d'évaluation des deux échelles de porosité dans les renforts fibreux sont rencontrées dans la littérature. Par exemple, Vernet et Trochu (2016) ont fait une analyse de la distribution de la taille des mésopores de cinq renforts 3D interlock par microscopie dans le but de valider un modèle prédictif de perméabilité. Ils ont coupé des échantillons de composite renforcés respectivement avec cinq différents renforts dans les deux directions : chaîne et trame. Ces échantillons ont été d'abord polis puis observés à l'aide d'un microscope. Un exemple de résultat observé pour un échantillon est montré à la Figure 1.9. Les mésopores, représentés en blanc, sont visibles car ils contrastent avec la couleur foncée des renforts. La géométrie des mésopores est par la suite approximée afin de calculer leurs dimensions et d'établir une distribution. Bien que cette méthode ait permis d'évaluer la distribution de taille moyenne des mésopores dans les renforts 3D interlock étudiés, elle requiert vraiment beaucoup de temps pour la préparation des échantillons comme le polissage et le nombre d'essais nécessaires. Pour chaque type de renfort, six échantillons sont nécessaires pour faire les observations dans le sens chaîne, puis six autres dans le sens trame.

De plus, le post-traitement reste difficile car il faut rassembler les résultats pour chaque échantillon observé et approximer la géométrie de chaque mésopore parmi la centaine observée dans un échantillon. Cette méthode ne permet pas d'évaluer une distribution de la taille des micropores puisqu'ils ne sont pas visibles sur les images observées au microscope.

La microtomographie aux rayons X peut fournir une méthode précise pour évaluer la distribution de taille des micropores (Vilà et al., 2015) et/ou des mésopores (Madra, Hajj, & Benzeggagh, 2014) selon la résolution de l'appareil. L'image de la Figure 1.10 montre, par exemple, bien distinctement les filaments d'un toron en gris clair. Il est possible d'évaluer l'espace entre les filaments par analyse d'image et ainsi obtenir le volume des micropores. Cette méthode reste toutefois coûteuse, et la taille des échantillons limitée.

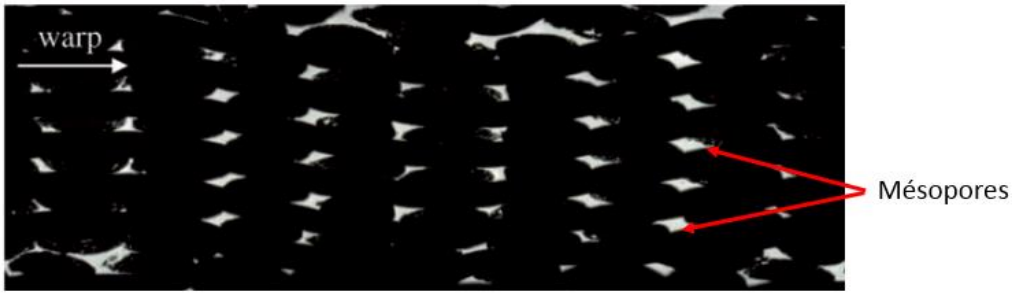


Figure 1.9 : Observation au microscope d'un échantillon de composite renforcé avec un renfort 3D interlock représenté en noir (Vernet & Trochu, 2016)

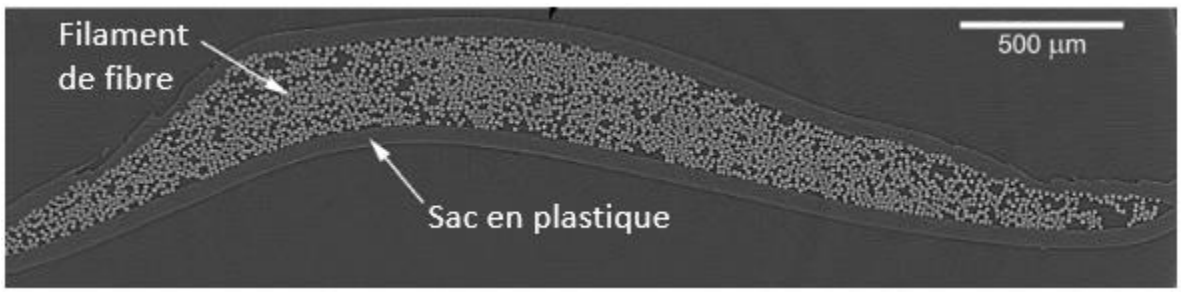


Figure 1.10 : Observation d'un toron de fibres par microtomographie aux rayons X (Vilà et al., 2015)

La motivation de ce mémoire est donc de développer une méthode simple et rapide pour caractériser la taille des pores dans les renforts fibreux. Les deux méthodes présentées, soit la microscopie et la microtomographie, requièrent l'utilisation de pièces composites déjà fabriquées pour évaluer la taille des pores dans les renforts fibreux. L'utilisation d'une méthode pour caractériser la taille des pores directement sur le renfort sans passer par l'étape de fabrication permet de diminuer les coûts et raccourcit les délais.

1.3 Description du sujet et organisation générale du mémoire

Le présent travail consiste à réaliser une étude expérimentale de la taille des pores des renforts fibreux utilisés dans la fabrication des matériaux composites fondée sur la porométrie par drainage d'un liquide mouillant ou porométrie par écoulement capillaire. La problématique présentée au paragraphe précédent montre la pertinence de l'utilisation de la porométrie par drainage d'un liquide mouillant pour caractériser la taille des pores dans les renforts fibreux. Cette méthode est largement utilisée pour des matériaux non-compressibles ou légèrement compressibles à une échelle de porosité comme les membranes, les filtres, le papier, la céramique, etc. Dans ce mémoire, elle sera appliquée pour la première fois à des milieux poreux compressibles, anisotropes et à double échelle de porosité. L'équipement utilisé pour effectuer les essais de porométrie par drainage d'un liquide mouillant est un poromètre de la compagnie Quantachrome Instruments. Bien que les pores des renforts fibreux soient à structure complexe, un modèle équivalent de pores cylindriques est supposé lors du post-traitement des données.

Hypothèses

Suite aux différents points mentionnés dans le paragraphe 1.2, les trois hypothèses suivantes sont formulées pour ce projet de recherche :

- Deux types de pores sont mesurés par le poromètre dans un renfort fibreux : les mésopores et les micropores.
- Les mesures réalisées selon différentes directions de l'espace (à travers l'épaisseur et dans différentes directions planaires) donnent des distributions différentes de la taille des pores, étant donné l'anisotropie des renforts.
- La compaction influence la distribution de la taille des pores.

Ces hypothèses seront vérifiées à travers les étapes du présent travail.

Objectifs

L'objectif principal de ce projet de maîtrise est d'évaluer la capacité de la porométrie par drainage d'un liquide mouillant à caractériser la double échelle de porosité des renforts fibreux utilisés dans la fabrication des matériaux composites. Ceci signifie obtenir des données expérimentales sur la distribution de la taille des pores des renforts fibreux en carbone et en verre.

L'objectif général se décline en six objectifs spécifiques :

- Maîtriser le fonctionnement du poromètre ainsi que le logiciel d'acquisition des données expérimentales qui l'accompagne : il s'agit ici de comprendre l'influence des paramètres de contrôle sur les mesures et la signification des données obtenues.
- Effectuer des mesures à travers l'épaisseur : ceci comprend la conception d'un montage à insérer dans les porte-échantillons existants afin de fixer le taux de compaction des renforts.
- Effectuer des mesures dans différentes directions planaires : à cette fin, un porte-échantillon adapté doit être conçu et fabriqué pour réaliser des mesures avec le poromètre existant.
- Évaluer l'influence de l'architecture du renfort.
- Évaluer l'influence de la direction de mesure.
- Évaluer l'influence du taux de compaction du renfort.

Organisation du mémoire

Le **Chapitre 2** présente le principe général de la mesure de la taille des pores par la méthode de drainage d'un liquide mouillant ainsi que les différentes méthodes de mesure reposant sur ce principe.

Le **Chapitre 3** présente différents appareils ayant existé ou toujours disponibles pour mesurer la taille des pores par drainage d'un liquide mouillant ainsi que certaines expériences réalisées.

Le **Chapitre 4** expose sous la forme d'un article de revue scientifique les résultats d'expériences préliminaires de mesure porométrique à travers l'épaisseur effectuées avec l'appareil Quantachrome 3Gz Porometer et un porte-échantillon standard.

Le **Chapitre 5** porte sur les résultats obtenus pour les mesures à travers l'épaisseur effectuées avec l'appareil Quantachrome 3Gz Porometer et un montage personnalisé inséré dans un porte-échantillon standard. Ce montage permet de fixer l'épaisseur de l'échantillon et de contrôler le taux de fibres.

Le **Chapitre 6** décrit les étapes ayant mené à la conception d'un nouveau porte-échantillon pour mesurer la distribution planaire des pores des renforts fibreux utilisés pour la fabrication de matériaux composites ainsi que les résultats des mesures effectuées avec l'appareil Quantachrome 3Gz Porometer.

Le **Chapitre 7** présente une brève discussion générale sur les méthodes utilisées, les résultats obtenus et les difficultés rencontrées durant les essais avec des recommandations pour la suite du travail.

CHAPITRE 2 REVUE DE LITTÉRATURE

Les milieux poreux peuvent être de nature très variée et plusieurs approches expérimentales existent pour les caractériser. L'étude du comportement des matériaux fibreux comme matériaux poreux est souvent inspirée des méthodes issues de la mécanique des sols. Par exemple, les modèles de consolidation des sols de Terzaghi (1943) et Biot (1941) ont été appliqués à l'étude de la compaction des renforts dans les procédés de fabrication des composites (Vilà, Gonzalez, & Llorca, 2014). Les études sur l'extraction du pétrole, la mécanique des sols, la caractérisation des membranes de filtration ou des géotextiles constituent des exemples d'application des techniques d'analyse des milieux poreux. Cette dernière se fait de différentes façons, soit en déterminant la distribution de la taille ou de la surface des pores, ou encore en considérant le volume total des pores et leurs formes.

Ce chapitre présente les méthodes de caractérisation par porométrie les plus souvent utilisées. Ces méthodes sont fondées sur le même principe : supposer un milieu poreux équivalent comprenant des pores cylindriques considérés comme des tubes capillaires afin d'appliquer l'équation de Laplace-Young. Les notions théoriques sur lesquelles reposent la porométrie capillaire sont d'abord présentées au début du chapitre. Par la suite, les raisons du choix de la méthode de drainage d'un liquide mouillant sont exposées.

2.1 Équation de Laplace-Young

L'équation de Laplace-Young constitue la base mathématique de la plupart des méthodes de caractérisation de la taille des pores. Le modèle est fondé sur la montée d'un liquide dans un tube capillaire cylindrique. Une distinction est faite entre liquide mouillant et non mouillant.

2.1.1 Liquide mouillant

Lorsqu'un tube capillaire est mis au contact avec un liquide mouillant, l'énergie libre d'interface solide/air devient plus grande que l'énergie libre d'interface solide/liquide (Jena & Gupta, 1999). Pour diminuer l'énergie libre du système, les pores se remplissent de liquide. Il existe alors un angle de contact entre le liquide et la surface du tube capillaire comme le montre la Figure 2.1. L'équilibre entre les forces capillaires et la force de gravité s'écrit alors :

$$\pi d \gamma \cos\theta = \pi \left(\frac{d}{2}\right)^2 h \rho g \qquad (2.1)$$

où d est le diamètre du cylindre (ou modèle de pore équivalent), h la hauteur du cylindre remplie de liquide, γ la tension de surface du liquide, ρ la masse volumique du liquide, θ l'angle de contact entre le liquide et la surface du cylindre et g la constante de la pesanteur.

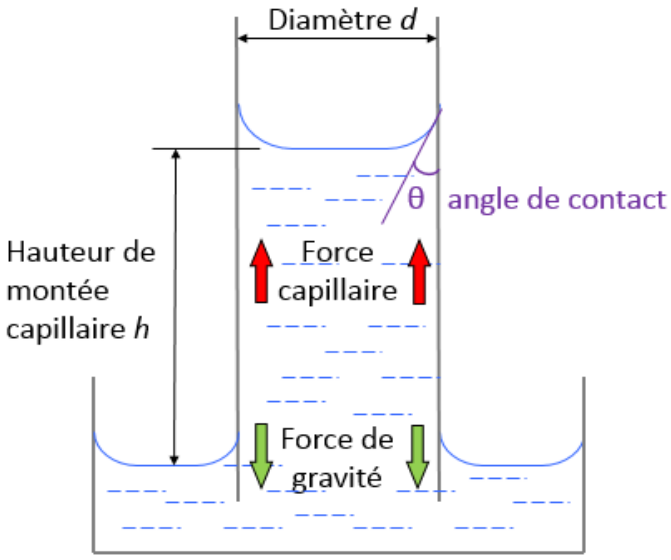


Figure 2.1 : Schéma montrant un tube capillaire plongé dans un liquide

La pression capillaire P est égale au poids par unité d'aire de la colonne de liquide dans le tube capillaire, soit $P = h\rho g$. L'équation (2.1) devient :

$$Pd = 4\gamma \cos\theta \qquad (2.2)$$

L'équation (2.2) constitue l'*équation de Laplace-Young* pour un liquide mouillant. Cette équation relie la pression capillaire P avec le diamètre du tube capillaire (Ghazanfari, Rashtchian, Kharrat, & Vossoughi, 2007; Miller & Tyomkin, 1994; Shigidi, 2014). Le terme en cosinus peut être simplifié lorsque le liquide utilisé est parfaitement mouillant tel qu'illustré à la Figure 2.2a. Dans ce cas, l'équation (2.2) prend la forme suivante :

$$d = \frac{4\gamma}{P} \qquad (2.3)$$

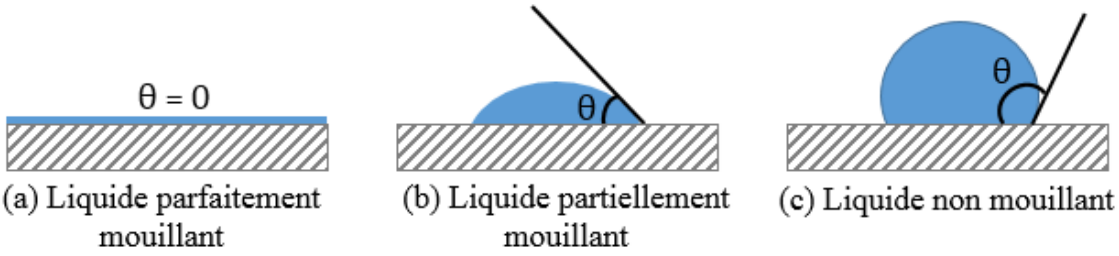


Figure 2.2 : Influence de la mouillabilité d'une surface par un liquide sur l'angle de contact θ

2.1.2 Liquide non mouillant

Dans le cas d'un liquide non mouillant, l'énergie libre de l'interface liquide/solide est plus élevée que l'énergie libre de l'interface solide/gaz. Le liquide a un angle de contact supérieur à 90° (voir Figure 2.2c) et ne pénètre pas spontanément dans le tube capillaire. La pression *P* nécessaire pour faire pénétrer le liquide non mouillant dans le tube capillaire s'écrit alors :

$$P = -\frac{4\gamma \cos\theta}{d} \qquad (2.4)$$

L'équation (2.4) est la même que l'équation (2.2) à un signe près pour montrer l'intrusion du liquide non mouillant au lieu du drainage. Indépendamment du signe, l'équation de Laplace-Young met en évidence que le diamètre d'un pore cylindrique est inversement proportionnel à la pression appliquée pour évacuer le liquide.

2.2 Porométrie par drainage d'un liquide mouillant

La porométrie par drainage d'un liquide mouillant est aussi appelée porométrie par écoulement capillaire. Le principe de cette méthode s'établit comme suit : l'échantillon est initialement complétement imbibé par un liquide mouillant afin de remplir les pores. Une pression croissante est ensuite appliquée sur l'échantillon mouillé pour le drainer : la pression évacue progressivement le liquide des pores.

2.2.1 Acquisition des données expérimentales

Il existe différentes manières pour procéder à l'acquisition des données expérimentales. Une première façon consiste à mesurer la masse de liquide expulsée en fonction de la pression. Un autre

moyen consiste à tracer deux fois le débit d'air passant à travers l'échantillon en fonction de la pression appliquée : une première fois lorsque l'échantillon est initialement imbibé de liquide (courbe mouillée) et une deuxième fois quand l'échantillon a été complètement vidé de liquide (courbe sèche). Un exemple typique de ces courbes pour un échantillon de membrane utilisé pour calibrer l'appareil est représenté à la Figure 2.3. Au tout début de la première mesure, l'air ne peut pas passer à travers l'échantillon car la pression est trop faible et aucun pore n'est vidé. Cette étape correspond au palier où le débit de la courbe mouillée est nul sur la Figure 2.3. Ensuite, lorsque la pression augmente, un premier niveau de pore se vide correspondant aux pores de plus grand diamètre : ce point de la courbe mouillée est appelé « *point bulle* ». La porométrie par drainage d'un liquide mouillant suit donc l'équation de Laplace-Young (2.2) : les pores de plus grand diamètre sont vidés par les pressions les plus faibles. Plus la pression augmente, plus des pores de petit diamètre sont drainés. Une fois que tous les pores ont été vidés, le débit d'air augmente sans qu'aucun nouveau pore ne soit détecté. La deuxième mesure correspondant à la courbe sèche commence avec un débit positif car l'air passe immédiatement à travers les pores vidés lors de la première mesure. L'intersection de la courbe mouillée avec la courbe sèche correspond aux pores de la plus petite taille présents dans l'échantillon. Au-delà de ce point, les courbes mouillée et sèche sont superposées.

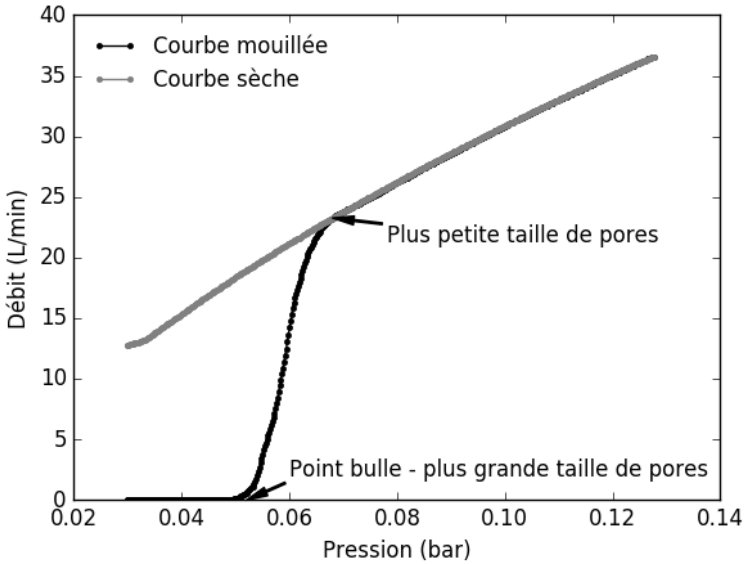


Figure 2.3 : Mesures expérimentales obtenues lors d'un essai de porométrie par drainage d'un liquide mouillant avec une membrane

2.2.2 Traitement des données expérimentales

À partir des données mesurées par le poromètre, quelques manipulations sont effectuées afin d'obtenir la distribution de la taille des pores. Tout d'abord, une distribution cumulative en fonction de la pression est obtenue en divisant le débit correspondant à la courbe mouillée par celui correspondant à la courbe sèche (voir Figure 2.4a). L'axe des abscisses est ensuite exprimé en fonction de la taille des pores suivant l'équation (2.3) en faisant l'hypothèse d'un liquide complètement mouillant ($\cos\theta = 1$). La distribution cumulative s'exprime donc maintenant en fonction du diamètre des pores du modèle cylindrique équivalent. Une illustration de ces calculs est présentée à la Figure 2.4, toujours pour l'exemple de l'échantillon de membrane.

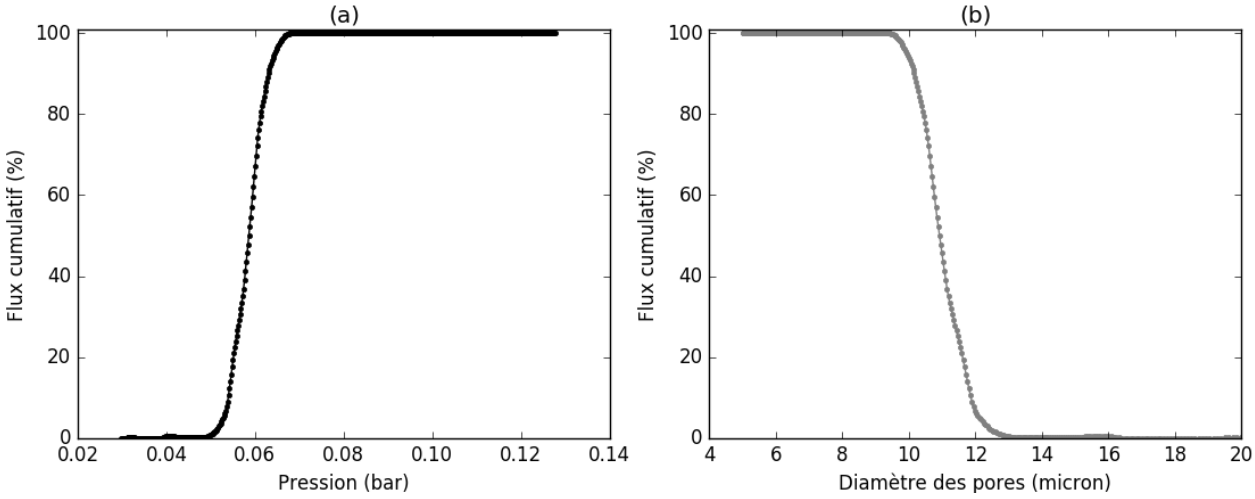


Figure 2.4 : Courbes de distribution cumulative de la taille des pores d'un échantillon de membrane : (a) en fonction de la pression appliquée; (b) en fonction de la taille des pores

La Figure 2.5 montre un exemple de lecture de la courbe cumulative en fonction de la taille des pores. Un point de coordonnée (50, 11) de la courbe signifie que pour un échantillon complètement sec, 50 % du débit d'air passe par les pores de 11 microns et plus. La plus grande taille de pores présents dans l'échantillon est approximativement 13,5 microns.

La courbe de distribution cumulative obtenue est par la suite dérivée en fonction de la taille des pores pour obtenir une courbe différentielle qui est considérée comme la courbe de distribution de la taille des pores. Comme le montre la Figure 2.6, cette courbe différentielle présente un pic pour

l’échantillon de membrane. La présence d’un pic unique indique une seule échelle de porosité dans l’échantillon. Ce pic correspond à la taille moyenne des pores présents dans l’échantillon. D’après la figure, la taille minimum des pores dans l’échantillon est de 9 microns, tandis que leur taille maximale est de 13,5 microns.

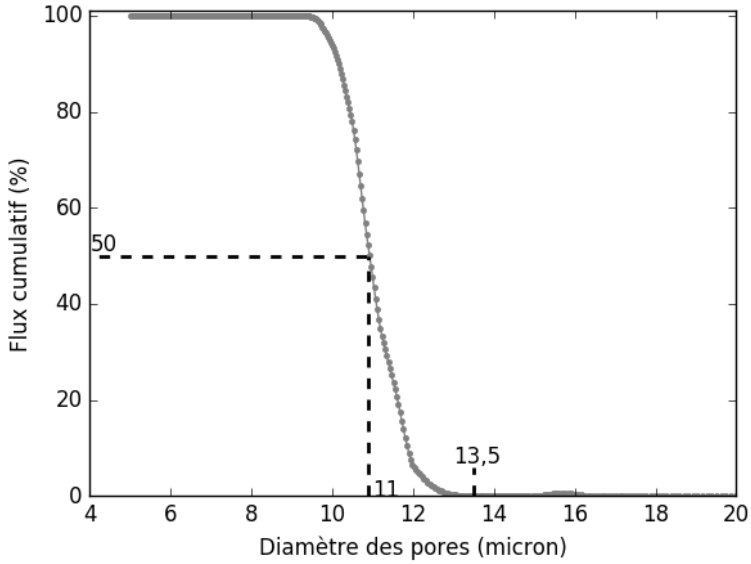


Figure 2.5 : Exemple d'interprétation de la courbe cumulative en fonction de la taille des pores

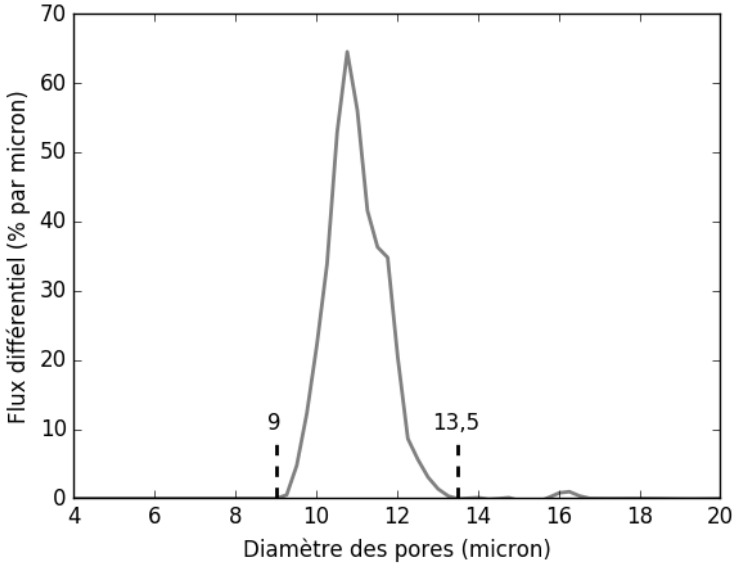


Figure 2.6 : Distribution différentielle de la taille des pores d'un échantillon de membrane

2.2.3 Avantages et inconvénients

La porométrie par drainage d'un liquide mouillant est une méthode simple et rapide pour évaluer la taille des pores dans un échantillon de matériau poreux. La mesure dure en moyenne une quinzaine de minutes, ce qui permet de comparer plusieurs échantillons en peu de temps. Cette méthode est un très bon candidat pour caractériser la taille des pores dans les renforts fibreux utilisés dans la fabrication des matériaux composites, car elle permet, entre autres, de travailler directement sur les renforts sans passer par une étape de fabrication.

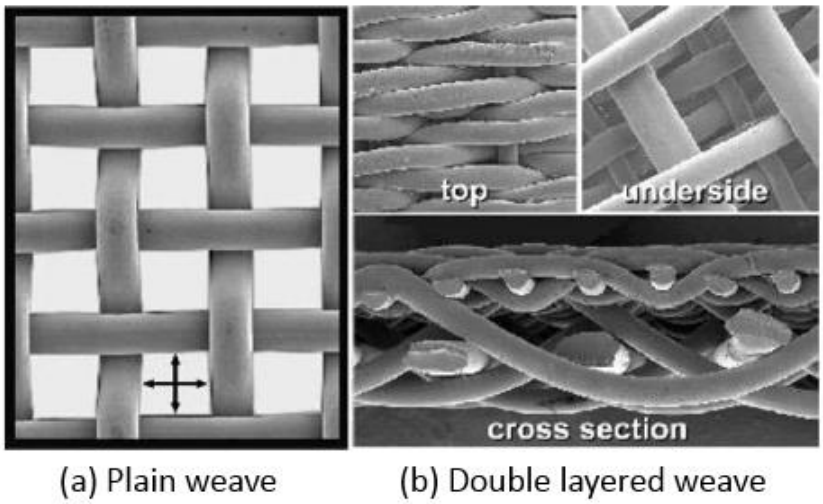


Figure 2.7 : Exemples de filtres tissés étudiés par Lydon et al. (2004)

La porométrie par drainage d'un liquide mouillant est employée depuis longtemps pour caractériser la distribution de la taille des pores de filtres 3D. L'irrégularité des pores et la superposition de plusieurs plis remettent souvent en question la validité de l'hypothèse de l'équation de Laplace-Young sur le modèle de pores cylindriques équivalent pour certains matériaux. Des études comparatives ont été menées par Lydon et al. (2004) concernant la taille des pores de filtres métalliques tissés. Les échantillons utilisés sont composés de plusieurs couches superposées (Figure 2.7). Pour cela, les auteurs ont comparé trois méthodes de mesure : deux méthodes fondées sur la capillarité utilisant les poromètres PMI (voir paragraphe 3.2) et Coulter Porometer I (voir paragraphe 3.3) ainsi qu'une méthode de mesure « challenge ». Cette dernière consiste à présenter des particules de taille connue aux échantillons et à voir si elles passent à travers les pores. La

conclusion de cette analyse a établi l'existence d'un facteur de tortuosité de 1,7 qui doit être pris en compte pour pouvoir comparer les résultats des deux poromètres. En effet, pour être comparable aux autres méthodes utilisées pour ces essais, les valeurs correspondant aux points bulles obtenues par porométrie doivent être divisées par le facteur de tortuosité de 1,7. Même si les résultats donnés par les poromètres sont de plus en plus précis, une validation avec une autre méthode reste nécessaire, surtout dans le cas de milieux poreux spécifiques comme les renforts fibreux. En effet, la tortuosité des pores n'est pas prise en compte par les méthodes de mesure par porométrie capillaire.

Une validation est aussi nécessaire pour une autre raison. En effet, la porométrie par drainage d'un liquide mouillant ne mesure que le diamètre minimum d'un pore tel qu'illustré à la Figure 2.8. Les diamètres des pores du modèle de pores cylindriques équivalent correspondent aux plus petits diamètres des pores réels. Le volume total des pores du modèle cylindrique équivalent est donc inférieur au volume réel. Cette différence doit être évaluée. Dans le cas où elle serait significative, un facteur de correction pourrait être appliqué.

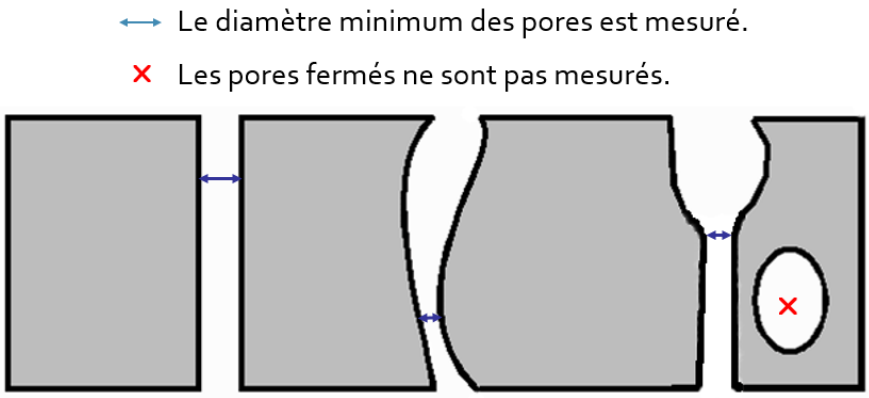


Figure 2.8 : Diamètre des pores mesuré par la méthode de drainage par un liquide mouillant

2.3 Porométrie à deux liquides

La porométrie à deux liquides (ou porométrie liquide-liquide) consiste à utiliser deux liquides immiscibles de faibles tensions superficielles. Comme le montre la Figure 2.9, l'hypothèse d'un modèle de pores cylindriques équivalent s'applique également ici. Un liquide (A) qui mouille l'échantillon est déplacé par un liquide (B) lorsque la pression appliquée par ce dernier est

suffisamment élevée pour dépasser l'énergie libre de l'interface du liquide (A) avec le solide (Calvo et al., 2011; Ellouze, Amar, & Deratani, 2015; Peinador et al., 2011).

Le principe reste très similaire à celui de la porométrie par drainage d'un liquide mouillant. La pression appliquée par le liquide (B) augmente par petits incréments. Le débit du liquide sous pression est alors mesuré en fonction de la pression. Au tout début, la pression du liquide (B) n'arrive pas à déplacer le liquide mouillant (A). Par la suite, le liquide mouillant (A) dans le plus grand pore est déplacé en premier par le liquide sous pression (B) en accord avec l'équation de Laplace-Young (2.2); ce point correspond au point bulle. Finalement, tout le liquide (A) présent dans l'échantillon est déplacé depuis les plus grands pores jusqu'aux plus petits. Un exemple typique de résultat obtenu pour une membrane d'ultrafiltration est montré à la Figure 2.10. La pente de la courbe obtenue correspond à la perméabilité de la membrane au liquide (B) qui augmente au fur et à mesure que les pores se libèrent du liquide (A). Lorsque tout le liquide (A) est déplacé et que la pression du liquide (B) augmente toujours, la perméabilité finale de la membrane est atteinte. Une asymptote à la courbe passant par l'origine peut alors être tracée. Le point d'intersection de la droite asymptotique avec la courbe mesurée correspond à la plus petite taille de pores dans l'échantillon.

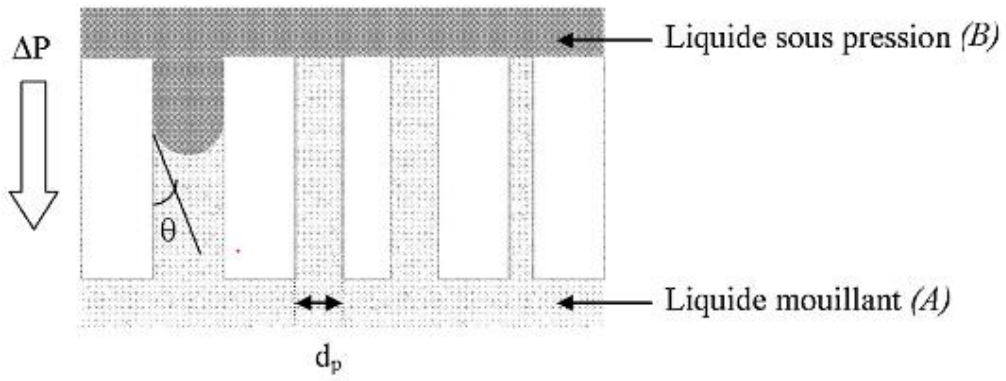


Figure 2.9 : Principe de la porométrie à deux liquides (Ellouze et al., 2015)

Cette méthode est souvent employée pour les membranes poreuses d'ultrafiltration ou de nanofiltration. Elle semble *a priori* prometteuse dans le cas des renforts fibreux tout en présentant les avantages et inconvénients cités à la section 2.2.3.

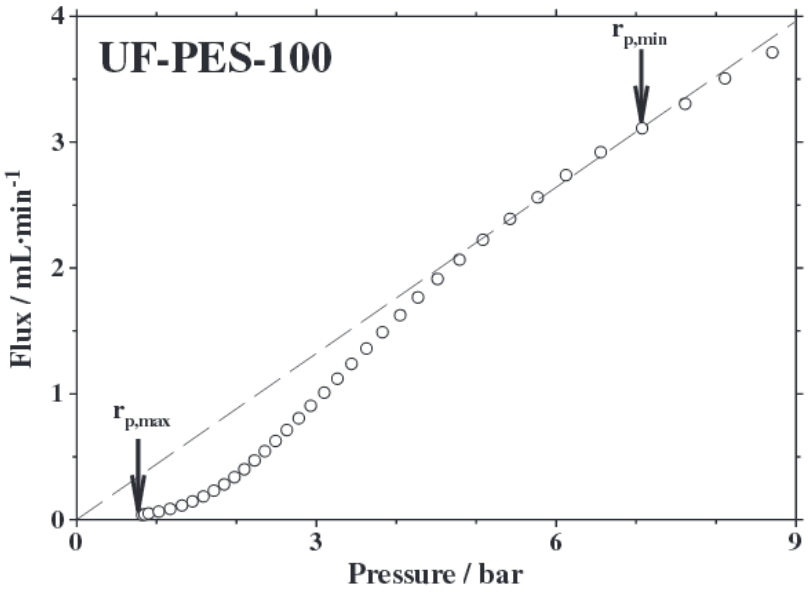


Figure 2.10 : Résultat typique d'une mesure par porométrie liquide-liquide avec un échantillon de membrane d'ultrafiltration commerciale UF-PES-100 (Calvo et al., 2011)

2.4 Porométrie par intrusion de mercure

Cette méthode figure parmi les plus utilisées grâce aux appareils de mesure très répandus sur le marché qui deviennent de plus en plus performants. Elle permet d'obtenir des données sur la distribution de la taille des pores, leur volume ainsi que la densité apparente et la surface spécifique de l'échantillon. Cette approche permet de mesurer des diamètres de pore entre 1,5 nm et 800 µm.

Un échantillon, dont la masse précise est connue, est introduit dans un contenant spécial appelé pénétromètre. Une pompe à vide permet de remplir de mercure la colonne montrée à la Figure 2.11. La pression augmente progressivement pour faire pénétrer le mercure dans les pores de l'échantillon. Le changement de volume du mercure dans la colonne est ensuite mesuré à l'aide de la position du ménisque. Le mercure étant un liquide non-mouillant, l'équation (2.4) est utilisée pour calculer le diamètre des pores de l'échantillon.

La porométrie par intrusion de mercure convient particulièrement aux matériaux ayant des pores de grande taille, donc principalement des macropores. Cette méthode n'est pas vraiment adaptée pour les matières poreuses granulaires comme les sols, sauf dans certains cas. En effet, elle nécessite un dégazage de l'échantillon sous vide ou sous azote au début de l'expérience pour

éliminer l'humidité. Manickam et McCutcheon (2012) ont montré que pour un échantillon de mat fibreux compressible (renfort formé d'une répartition aléatoire de fibres) utilisé en filtration, la méthode par drainage d'un liquide mouillant mesure généralement une plus grande porosité que celle par intrusion de mercure à cause de la grande pression imposée à l'échantillon. Par conséquent, la porométrie par intrusion de mercure n'est pas la meilleure approche pour le cas des renforts fibreux qui sont des matériaux compressibles.

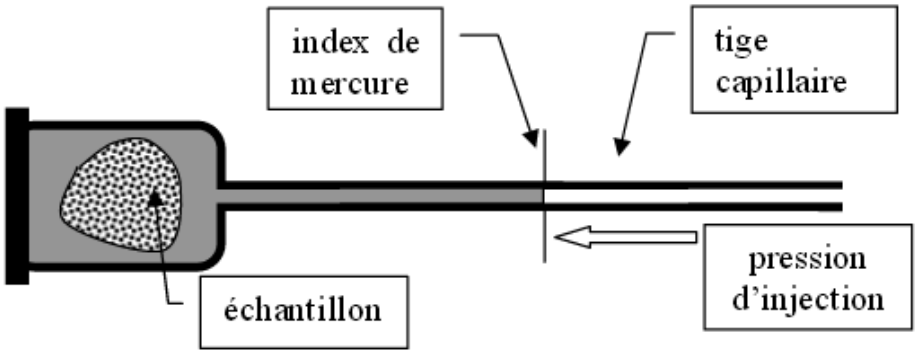


Figure 2.11 : Pénétromètre (Daïan, 2007)

2.5 Synthèse sur les méthodes de mesure par porométrie

Les méthodes de mesure par porométrie présentées dans ce chapitre peuvent être divisées en deux catégories : celles qui utilisent un ou des liquides mouillants, et celle qui utilise un liquide non mouillant. Toutes ces méthodes reposent sur le même fondement théorique, soit l'équation de Laplace-Young présentée à la section 2.1.

La méthode de mesure par intrusion de mercure consiste à forcer un liquide non mouillant à pénétrer dans un échantillon afin de mesurer la taille des pores. Elle n'est pas adaptée aux renforts fibreux car les pressions élevées associées à cette technique sont susceptibles de déformer l'échantillon.

La méthode par drainage de liquide mouillant et la porométrie à deux liquides reposent sur des principes très similaires et constituent donc deux méthodes qui pourraient être utilisées pour les renforts fibreux. L'inconvénient de ces deux méthodes pour les renforts fibreux est relié à l'hypothèse de cylindricité des pores car elle ne permet pas de tenir compte de l'irrégularité de la

forme des pores ni de leur tortuosité. Toutefois, une telle hypothèse est nécessaire pour une première approche afin de simplifier les calculs. D'autres méthodes de caractérisation peuvent être utilisées par la suite pour valider les résultats. Une méthode parmi les deux peut être choisie de par leur similitude. Dans ce travail, on a adopté la porométrie par drainage d'un liquide mouillant.

CHAPITRE 3 APPAREILS DE MESURE DE LA TAILLE DES PORES PAR DRAINAGE D'UN LIQUIDE MOUILLANT

Au fil des années, les appareils de mesure de la taille des pores par drainage de liquide mouillant ont évolué en fonction des besoins des domaines d'application. Une présentation non exhaustive des différents équipements offerts sur le marché est effectuée ici. Quelques résultats expérimentaux pertinents obtenus avec les appareils sont également présentés et commentés. Étant donné que le présent travail applique pour la première fois la méthode de porométrie par drainage d'un liquide mouillant au cas des renforts fibreux, ce chapitre présente des applications connexes ayant une forte relation avec le sujet du mémoire.

3.1 Autoporosimètre TRI

Cet appareil est l'un des tous premiers poromètres fabriqués. Il permet de mesurer une grande gamme de diamètre de pores allant de 1 à 1000 µm à travers l'épaisseur des échantillons. L'échantillon imbibé de liquide mouillant est placé sur une membrane microporeuse qui est elle-même posée sur une grille rigide. Le liquide mouillant est contenu dans deux récipients différents : juste en-dessous de la grille rigide et dans un autre contenant posé sur une balance. Les deux récipients sont reliés par un conduit qui permet au liquide évacué par l'échantillon de déplacer le niveau de liquide dans le récipient posé sur la balance. Ceci permet de mesurer la masse de liquide expulsée par l'échantillon (Figure 3.1).

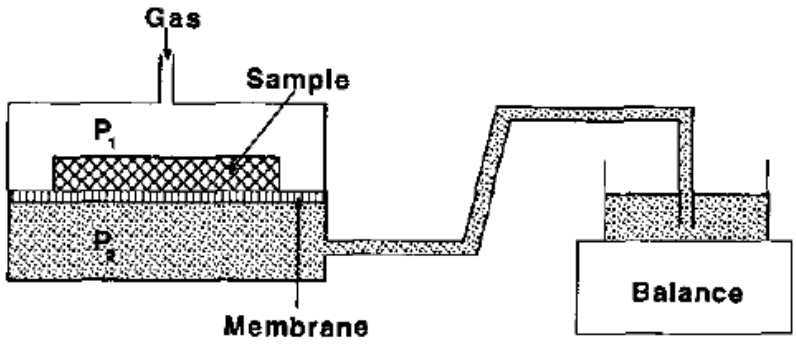


Figure 3.1 : Principe de l'autoporosimètre TRI (Miller & Tyomkin, 1994)

Les travaux de Miller et Tyomkin (1994) utilisant l'autoporosimètre TRI ont permis de valider deux points importants pour le sujet de ce mémoire, soit l'obtention d'une allure bimodale de la distribution de volume des pores pour les renforts fibreux tissés et la diminution de la taille des pores mesurée losrque l'échantillon est compacté.

Forme de la distribution de volume des pores pour des renforts fibreux tissés

Tout d'abord, Miller et Tyomkin (1994) ont effectué des mesures sur des renforts fibreux tissés alors que jusqu'à aujourd'hui, les fabricants de poromètres se limitaient la plupart du temps aux membranes, filtres ou matériaux non tissés. À l'issue de ces essais, une allure bimodale des courbes de distribution de volume a été obtenue (Figure 3.2). Ce type de courbe correspond aux attentes pour les renforts fibreux tissés qui possèdent une double échelle de porosité. Le premier pic représente le volume entre les filaments des mèches du tissu et le second pic correspond au volume ouvert entre les mèches du renfort. Ce résultat montre que les hypothèses de l'équation de Laplace-Young sont applicables aux renforts fibreux.

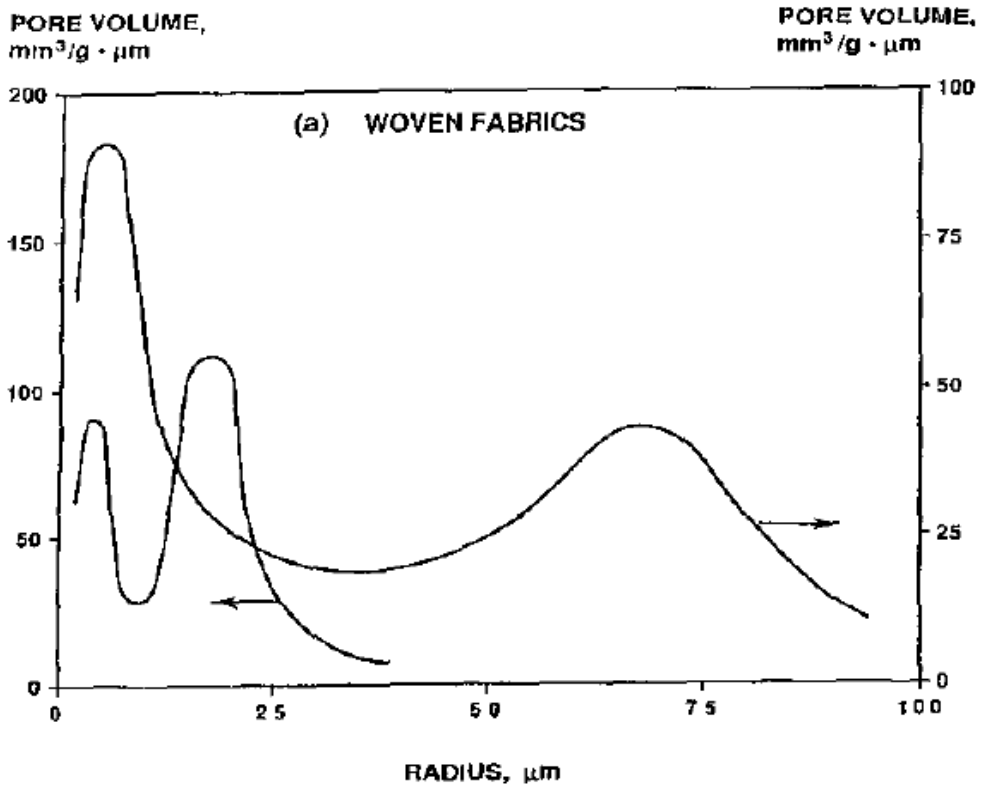


Figure 3.2 : Distribution bimodale typique du volume des pores pour des renforts fibreux tissés; mesures à travers l'épaisseur (Miller & Tyomkin, 1994)

Influence de la compression pour les matériaux à une échelle de porosité

Miller et Tyomkin (1994) se sont également interrogés sur l'influence de la compression sur la distribution du volume des pores. Dans le cas de l'application aux matériaux composites, le taux de fibres est un paramètre important qui gouverne la performance de la pièce finale. La méthode utilisée pour compresser l'échantillon est illustrée à la Figure 3.3. Une plaque munie d'un ressort est posée sur l'échantillon. Des cales d'une épaisseur connue permettent de connaître le taux de compression. Des expériences ont été menées sur des matériaux typiques à une seule échelle de porosité comme les membranes de filtration à des taux de compression différents obtenus pour différentes épaisseurs de cales. Comme attendu, le rayon des pores devient de plus en plus petit quand l'épaisseur des cales diminue (Figure 3.4). En présentant autrement les données de la Figure 3.4a, on peut mettre en évidence un autre aspect de l'influence du taux de compression : la relation entre le taux de compression et la taille des pores. À des taux cumulatifs de volume de pores différents (25 %, 50 % et 75 %), le rayon des pores est tracé en fonction de l'épaisseur des cales (Figure 3.4b). De telles données sont obtenues en traçant une ligne horizontale alignée au taux cumulatif de volume de pores voulu tel qu'illustré à la Figure 3.4a. À l'intersection de la ligne horizontale précédente et d'une courbe de taux cumulatif, une ligne verticale indique le rayon qui correspond à une épaisseur de cale donnée au taux cumulatif choisi. La relation entre le rayon et l'épaisseur suit en première approximation une tendance linéaire. Ceci signifie que le volume des pores est réduit proportionnellement avec la compression. Ce résultat est assez étonnant puisqu'on aurait pu s'attendre, pour un taux de compression donné, à ce que le volume des pores de plus grande taille soit plus réduit que celui des pores de petite taille.

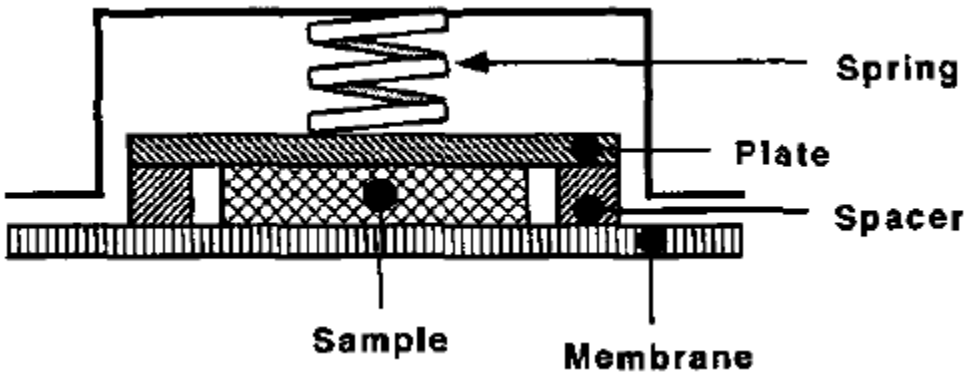


Figure 3.3 : Méthode pour contrôler le taux de compression des échantillons (Miller & Tyomkin, 1994)

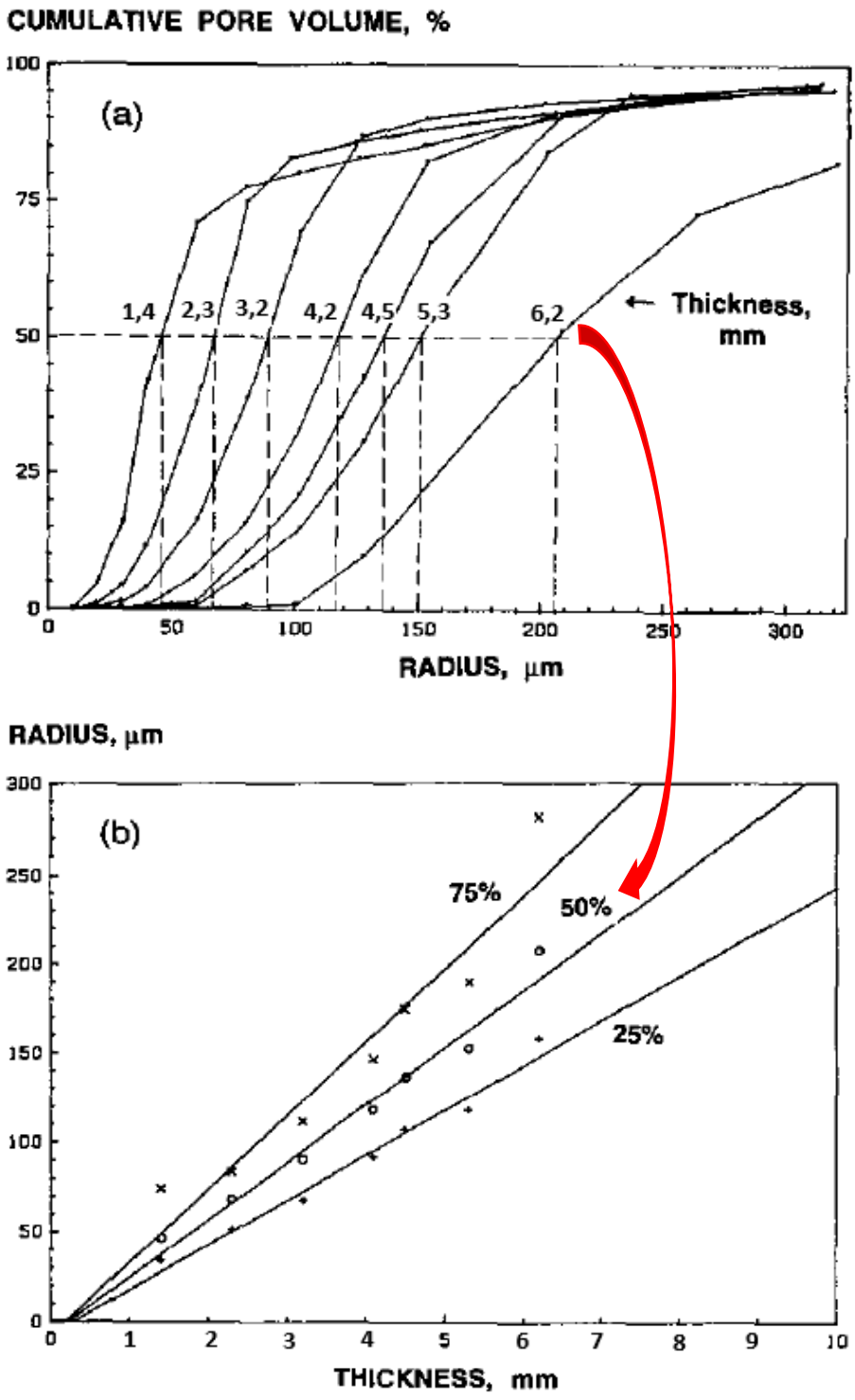


Figure 3.4 : Influence de la compression sur la distribution du volume des pores pour des matériaux à une échelle de porosité : (a) volume cumulatif des pores pour des épaisseurs différentes; (b) effet de la compression sur le rayon des pores à des taux cumulatifs de volume des pores différents (Miller & Tyomkin, 1994)

3.2 Poromètre PMI

Porous Materials Inc. ou PMI est une entreprise américaine spécialisée dans la fabrication d'appareils permettant de caractériser les matériaux poreux. Vers le début des années 2000, Jena et Gupta (1999, 2000) ont travaillé sur le poromètre dont les porte-échantillons cylindriques sont décrits à la Figure 3.5 et à la Figure 3.6. Le poromètre peut être utilisé dans deux configurations : une configuration pour la mesure à travers l'épaisseur et une autre pour la mesure dans le plan. Pour la mesure à travers l'épaisseur, l'échantillon circulaire est maintenu de part et d'autre par deux joints toriques. Une pièce massive vient ensuite comprimer le tout, puis le porte échantillon est fermé par le haut (Figure 3.5). Dans la configuration de mesure plane, l'échantillon est maintenu de part et d'autre par deux plaques rigides et non-poreuses. La plaque du dessous est munie d'un orifice circulaire pour laisser entrer l'air par le milieu de l'échantillon. L'air passe alors à travers l'échantillon d'une manière radiale (Figure 3.6). Dans tous les cas, l'air est injecté par le bas de l'échantillon pour être évacué par le haut.

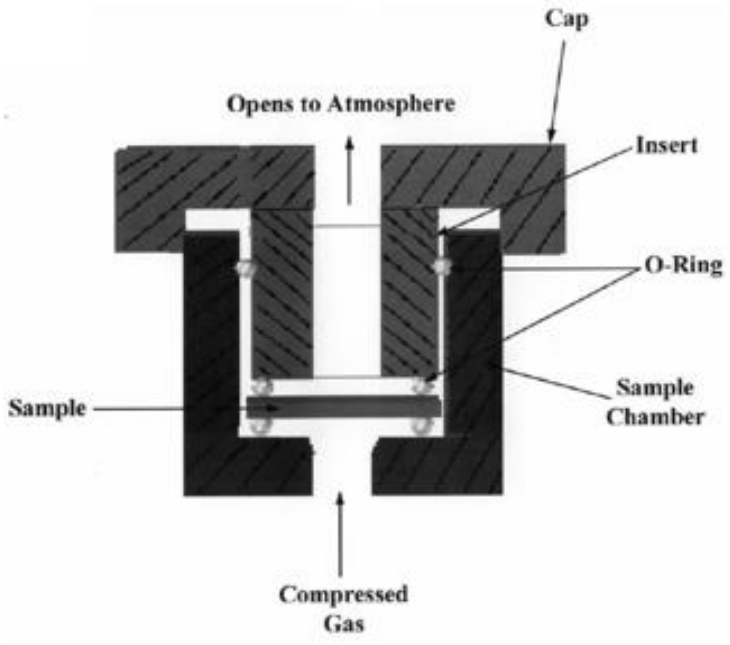


Figure 3.5 : Montage du poromètre PMI pour la mesure à travers l'épaisseur (Jena & Gupta, 2000)

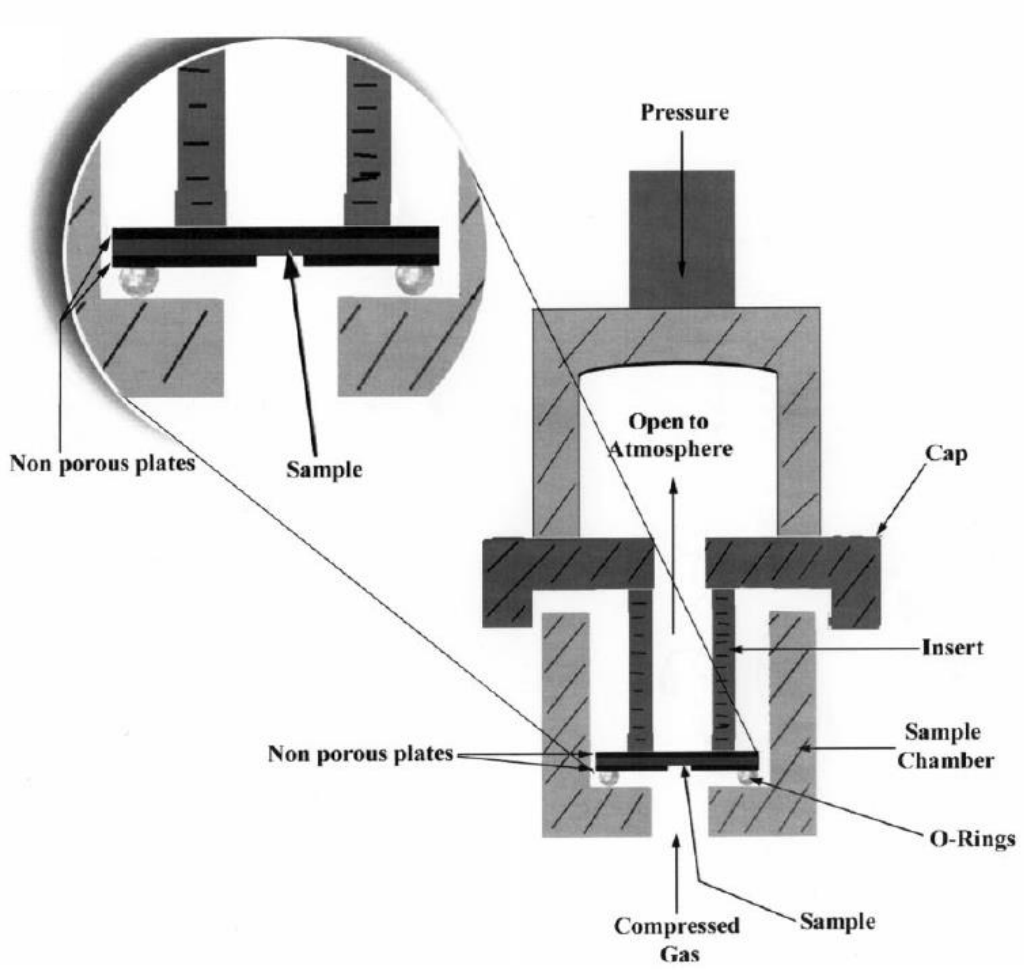


Figure 3.6 : Montage du poromètre PMI pour la mesure planaire (Jena & Gupta, 2000)

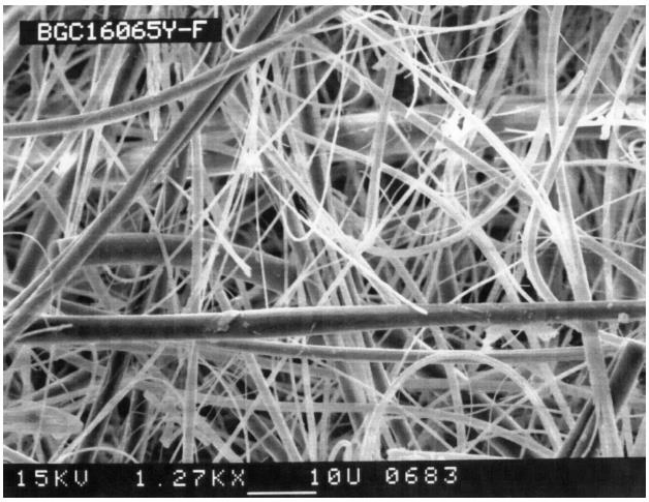


Figure 3.7 : Vue au MEB du séparateur de batterie Hovosorb (Jena & Gupta, 1999)

Des expériences sur des échantillons de séparateurs de batteries ont été effectuées à l'aide de ce poromètre. Les résultats pertinents sont présentés ci-après.

Mesures dans le plan et à travers l'épaisseur

Les études menées par Jena et Gupta sur les séparateurs de batterie ont permis de conclure que la configuration des pores dans le sens de l'épaisseur est très différente de la structure planaire (Figure 3.8). Le matériau étudié avec les montages de la Figure 3.5 et de la Figure 3.6 est une membrane fibreuse non tissée séparatrice de batterie telle qu'illustrée dans la photographie de la Figure 3.7. Les pores de cette membrane permettent le déplacement des électrolytes dans les batteries, donc sa perméabilité dans les trois directions de l'espace (qui est intimement liée à la taille des pores) joue un rôle primordial.

Le résultat obtenu est important, car il concerne une membrane dont la répartition spatiale des fibres est aléatoire. Les mêmes résultats pourraient être attendus dans le cas où les fibres sont regroupées d'une manière structurée comme dans un renfort fibreux. Les mesures à travers l'épaisseur fournissent déjà d'importantes informations sur la structure du matériau, mais elles ne sont pas suffisantes pour caractériser entièrement son comportement. D'où la nécessité d'étudier la taille des pores dans le plan pour les matériaux anisotropes.

Si la Figure 3.8b montre une distribution unimodale de la taille des pores à travers l'épaisseur centrée autour de 9 µm environ, la distribution planaire de la Figure 3.8a présente une toute autre allure. Il y a trois pics : autour de 5 µm, autour de 2,5 µm et un autre qui est coupé à moins de 2 µm. Les caractéristiques du séparateur de batterie Hovosorb sont donc bien distinctes dans le plan et à travers l'épaisseur.

Influence de la compression pour les mesures planaires

Jena et Gupta (1999) ont aussi étudié l'influence de la compression sur les mesures dans le plan. Les résultats sont regroupés dans le Tableau 3.1. On remarque notamment que lorsque la pression augmente, la taille des plus gros pores correspondant au point bulle diminue.

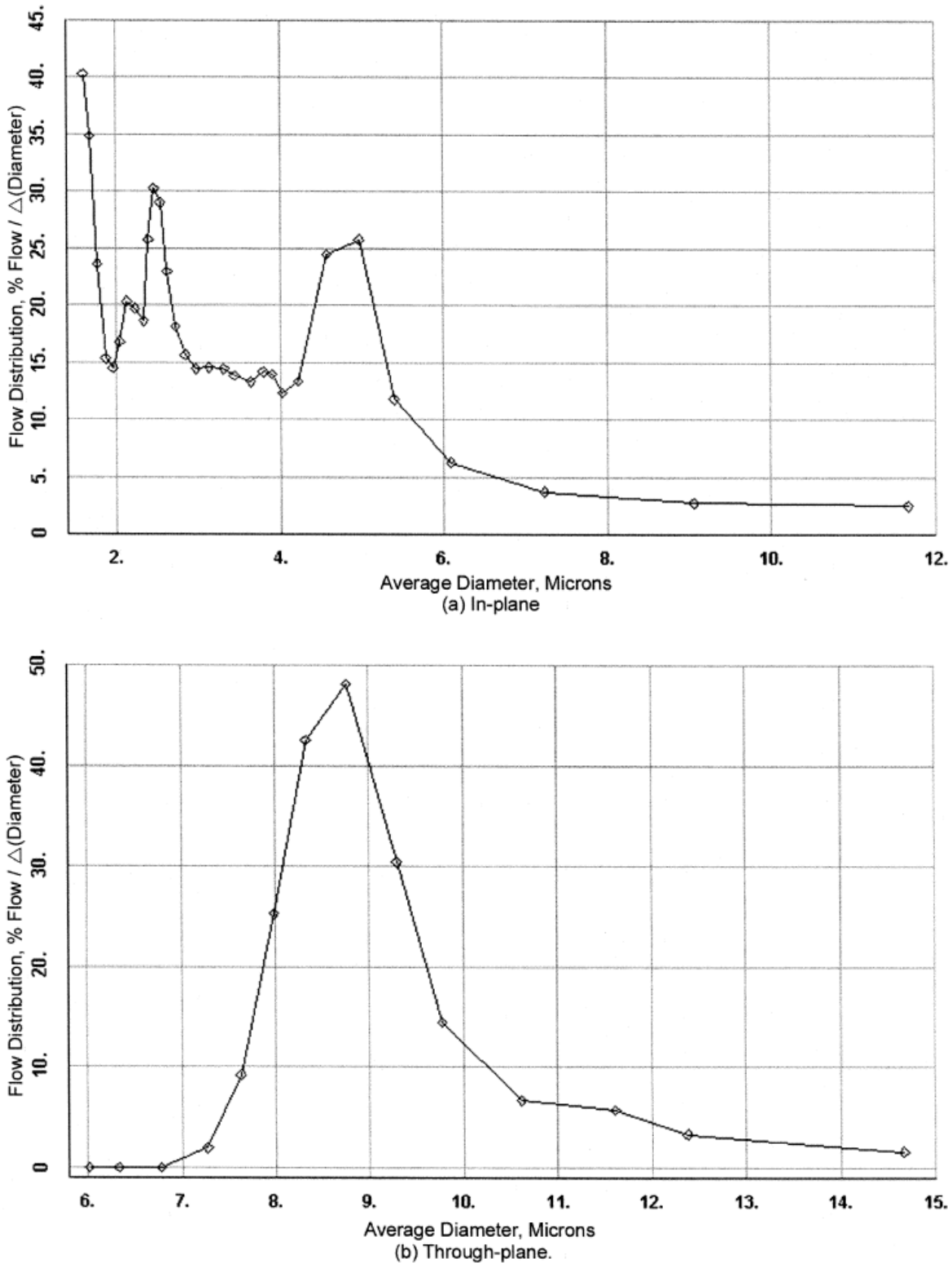


Figure 3.8 : Distribution de débit d’air en fonction du diamètre moyen des pores pour le séparateur de batterie Hovosorb : (a) dans le plan; (b) à travers l'épaisseur (Jena & Gupta, 1999)

Tableau 3.1 : Influence de la compression sur le diamètre maximal des pores dans un échantillon de séparateur de batterie Hovosorb; mesure dans le plan (Jena & Gupta, 1999)

Stress (kPa)	Pore diameter (μm)
	Bubble point
0	13.1
34.5	11.4
103	9.71
172	8.32
207	7.86
276	7.58
379	6.53

Les résultats présentés ici supposent l'existence d'une relation entre la taille des pores et la pression appliquée. Pour obtenir la tendance théorique de cette relation, les auteurs ont émis l'hypothèse qu'à l'état initial, sans contrainte de compression, les pores sont de forme cubique. Lorsqu'une pression est appliquée, le cube se déforme et la section des pores devient rectangulaire. En supposant de plus que le périmètre d'ouverture des pores reste approximativement le même lorsque l'aire de la section change et que la contrainte est proportionnelle à la déformation, ils obtiennent la relation suivante :

$$\frac{d}{d_0} = 1 - \varepsilon^2 = 1 - c^2 {\sigma_P}^2 \qquad (3.1)$$

où d_0 est le diamètre des pores sans contrainte de pression, d est le diamètre des pores à une contrainte de pression σ_P, ε la déformation (épaisseur initiale/épaisseur réduite) et c une constante.

La mesure expérimentale de d_0/d en fonction de la contrainte de pression σ_P^2 est présentée à la Figure 3.9. Une phase transitoire apparaît au début de la courbe pour des valeurs de σ_P^2 plus petits que 30000 kPa. Par la suite, la courbe semble suivre le modèle théorique linéaire de l'équation (3.1). Un modèle simple a donc été établi pour démontrer l'influence de la contrainte de compression sur la taille des pores pour une mesure planaire.

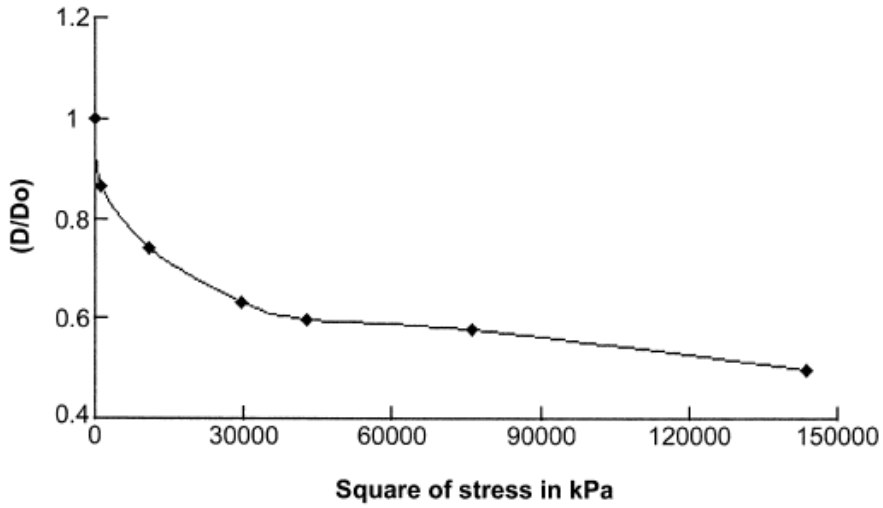


Figure 3.9 : Variation du rapport des diamètres au point bulle avec et sans compression en fonction du carré de la pression appliquée pour le séparateur de batterie Hovosorb (Jena & Gupta, 1999)

3.3 Poromètre Quantachrome

Quantachrome est une entreprise qui conçoit depuis plus de 45 ans des appareils d'analyse pour la caractérisation des matériaux, dont les poromètres à écoulement capillaire. Une gamme appelée Coulter Porometer a été tout d'abord développée avant d'aboutir à la configuration actuelle de la gamme des poromètres 3G. Le poromètre 3Gz, qui sera présenté dans ce paragraphe, est l'appareil avec lequel les mesures de porométrie vont être effectuées dans ce mémoire.

3.3.1 Description de l'appareil

La gamme de poromètre 3G comprend deux modules : le module de contrôle et le module du porte-échantillon (Figure 3.10). Le module de contrôle contient tous les composants actifs dont une carte de micro-ordinateur, le module de contrôle de pression, les capteurs de pression et les capteurs de débit. Le module du porte-échantillon est composé d'une base qui accueille le porte-échantillon interchangeable et les tubes qui le raccordent à la base. Il comprend également un conduit d'évacuation de liquide et d'air. Le module du porte-échantillon peut recevoir principalement deux types de porte-échantillons pour la mesure à travers l'épaisseur et pour la mesure dans le plan. Dans

tous les cas, l'échantillon est de forme circulaire et l'air entre par le haut, puis est évacué par le bas avec le liquide mouillant.

Le modèle 3Gz peut fournir un débit d'air allant jusqu'à 100 L/min avec une pression variant de 0,012 à 17 bars. Un seul capteur de débit est installé dans le module de contrôle, qui mesure un débit de 0 à 100 L/min. Par contre, il y a trois capteurs de pression avec trois précisions différentes : 0 à 0,35 bars, 0 à 7,0 bars et 0 à 16 bars.

Le Porofil® est le liquide mouillant recommandé par le manufacturier Quantachrome pour les essais sur leur gamme de poromètres. Avec le Porofil® , le modèle de poromètre Quantachrome 3Gz peut détecter les pores variant de 0,04 à 500 µm. Ce liquide possède toutes les propriétés physiques requises pour un bon liquide mouillant, à savoir : (i) une faible tension de surface (0,016 N/m) : c'est un liquide parfaitement mouillant dont l'angle de contact avec la majorité des surfaces est nul; (ii) une faible pression de vapeur, ce qui rend sa volatilité très faible; (iii) une viscosité ni trop élevée, ni trop faible (0,0025 Pa.s). Le Porofil est principalement fait à base de composés perfluorés et de composés organiques du carbone. À moins d'une mention contraire, c'est toujours le Porofil® qui sera utilisé dans ce mémoire pour les mesures de la taille des pores.

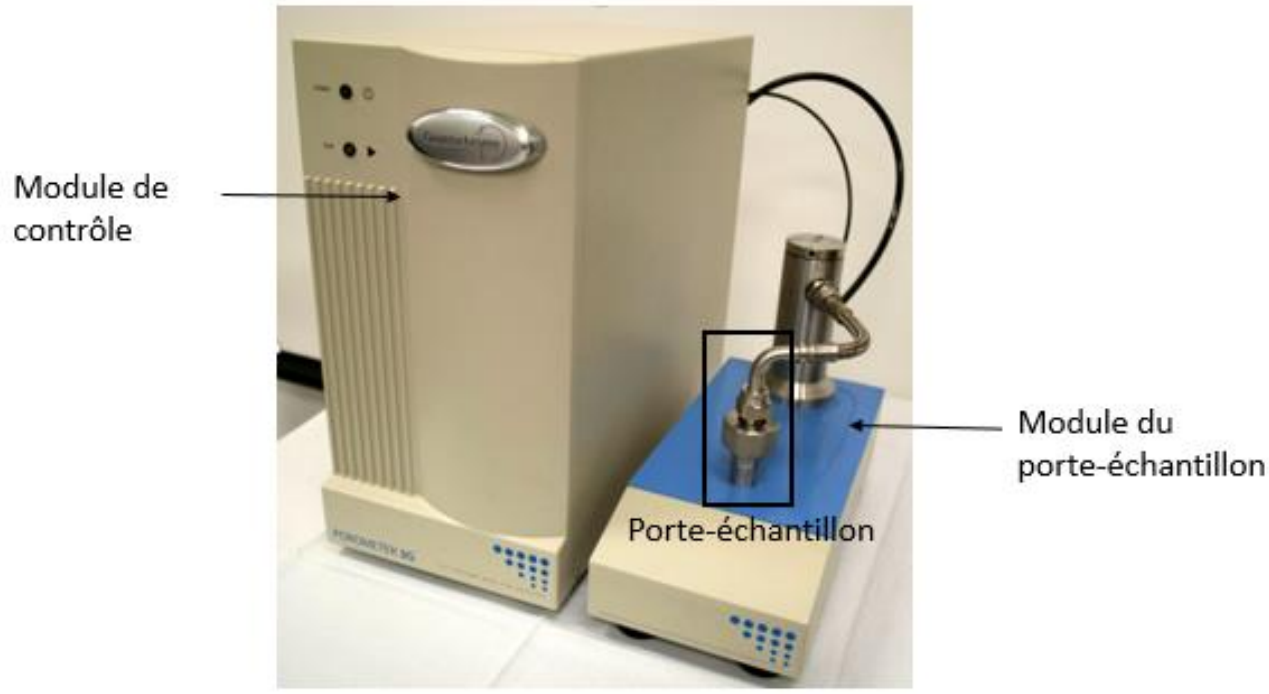


Figure 3.10 : Les deux modules du poromètre Quantachrome 3G

3.3.2 Description des porte-échantillons pour la mesure à travers l'épaisseur

Le porte-échantillon pour les mesures à travers l'épaisseur comprend un couvercle et une base circulaire qui s'emboitent à l'aide d'un système de filetage. Il en existe plusieurs tailles, mais celui de 25 mm de diamètre est le plus couramment utilisé. Un porte-échantillon universel de 50 mm de diamètre est aussi disponible. Ce porte-échantillon peut accueillir des échantillons circulaires de diamètres allant de 10 à 50 mm, dépendant du montage. Le principe reste le même pour toutes les mesures à travers l'épaisseur. L'échantillon circulaire imbibé de liquide mouillant est placé sur une grille métallique poreuse. Cette première grille très fine est supportée par une grille poreuse plus rigide avec des pores plus grossiers. Pour étanchéifier le montage, un joint torique est placé sur l'échantillon, puis le porte-échantillon est fermé. Dans cette opération, le bord de l'échantillon est écrasé par le joint torique, ce qui n'est pas grave dans le cas d'un matériau non compressible ou légèrement compressible. Un joint torique en caoutchouc nitrile classique, qui ne réagit pas avec le Porofil®, est utilisé. Lorsque l'essai est lancé, l'air vient se répartir sur toute la surface libre supérieure de l'échantillon. La pression augmente petit à petit et le liquide est évacué comme expliqué dans le paragraphe 2.2. Une courbe de débit en fonction de la pression est tracée en même temps par le logiciel 3GWin fourni par Quantachrome.

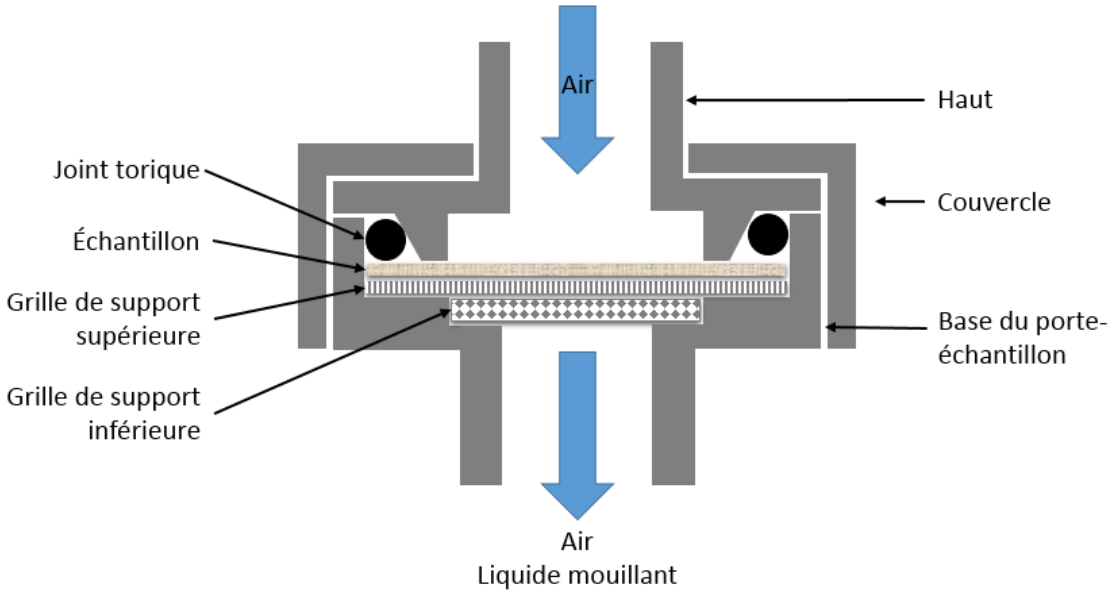


Figure 3.11 : Vue schématique en coupe du porte-échantillon de 25 mm de diamètre pour la mesure à travers l'épaisseur

Dans le cas d'une application sur les renforts fibreux, le joint torique posé sur l'échantillon pose un problème car une pression est appliquée sur le bord de l'échantillon. Toute la circonférence de l'échantillon est comprimée à un taux de fibres inconnu. La forme du renfort serait alors bombée au milieu et comprimée sur le bord. L'échantillon n'aurait donc pas une épaisseur constante (Figure 3.12). Dans ces conditions, il est difficile de bien évaluer l'influence de la compression sur la taille des pores.

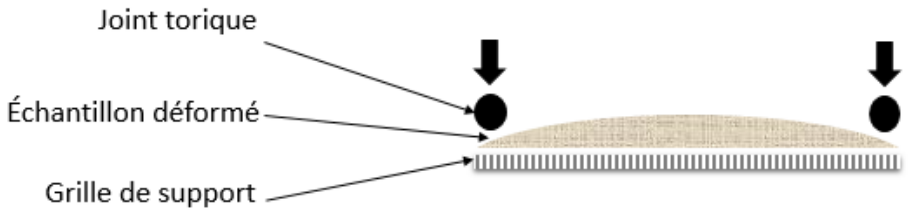


Figure 3.12 : Déformation de l'échantillon de renfort fibreux dans le porte-échantillon pour réaliser une mesure à travers l'épaisseur

3.3.3 Description du porte-échantillon pour la mesure dans le plan

La mesure plane est réalisée au moyen d'un écoulement radial de l'air à travers l'échantillon. Un schéma du dispositif est illustré à la Figure 3.13. L'échantillon circulaire de 25 mm de diamètre présente un orifice circulaire en son milieu. Déposé sur une plaque métallique, il est maintenu par le haut à l'aide d'un piston qui applique une pression modifiable par l'opérateur. L'air arrivant au niveau de l'orifice passe à travers de plan de l'échantillon en expulsant le liquide mouillant. L'air et le liquide mouillant sont ensuite évacués vers le bas à travers de petits canaux.

Dans cette configuration, la compression de l'échantillon ne constitue pas un problème puisqu'il est possible d'évaluer son épaisseur approximative au moyen de la pression appliquée par le piston. Le problème majeur dans le cas de renforts fibreux anisotropes est relié à l'écoulement radial. Dans leur expérience sur la mesure planaire avec le poromètre PMI présentée dans la section 3.2 concernant les séparateurs de batterie, Jena et Gutpa (1999) ont remarqué qu'il existe des zones d'écoulement préférentielles. Ils ont interrompu une expérience de mesure dans le plan avant que l'échantillon ne se vide complètement. L'échantillon de la Figure 3.14 montre le résultat obtenu, qui comprend trois zones distinctes : une zone sèche où l'air a pu pénétrer, une zone en périphérie mouillée et une zone au centre partiellement mouillée. Ces trois zones sont dues au fait que l'air

circule plus facilement dans les espaces larges et que les zones à plus fort taux de fibres sont plus difficiles d'accès. L'anisotropie du matériau implique une trajectoire d'écoulement aléatoire de l'air. Pour les renforts fibreux, les zones les plus difficiles à atteindre par l'air sont donc susceptibles de rester partiellement mouillées, ce qui entraine une différence notable entre la taille des pores mesurée et leur taille réelle.

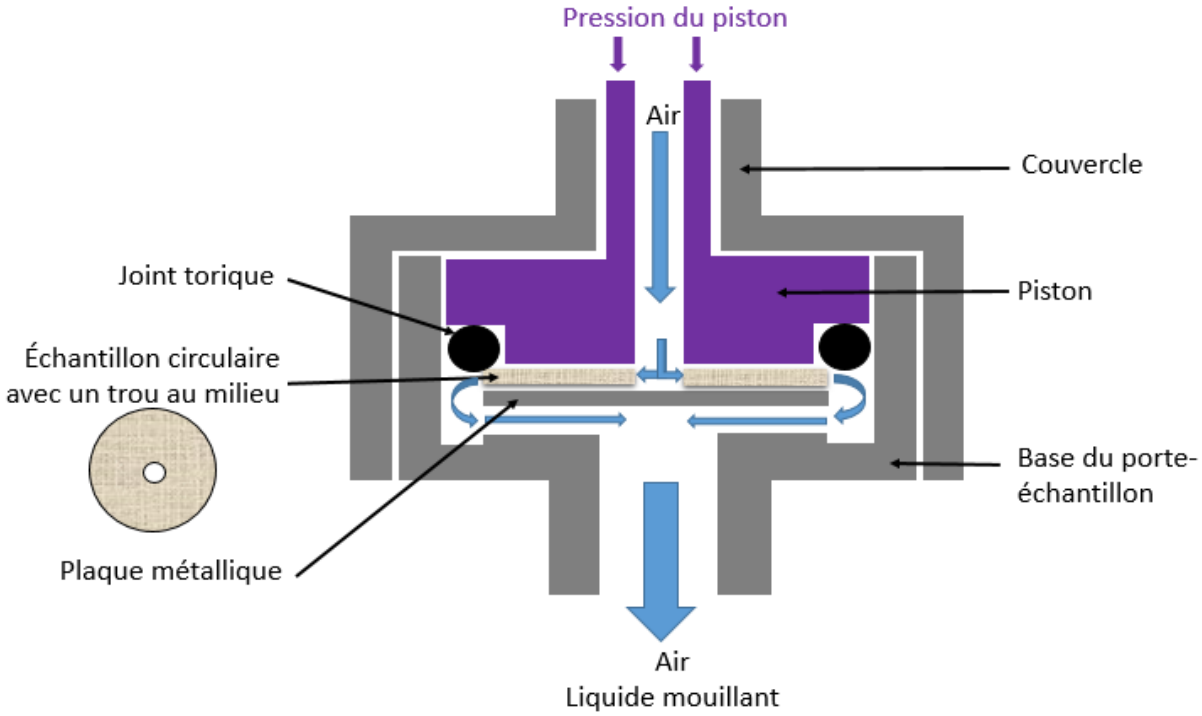


Figure 3.13 : Vue schématique en coupe du porte-échantillon de 25 mm de diamètre pour les mesures planaires

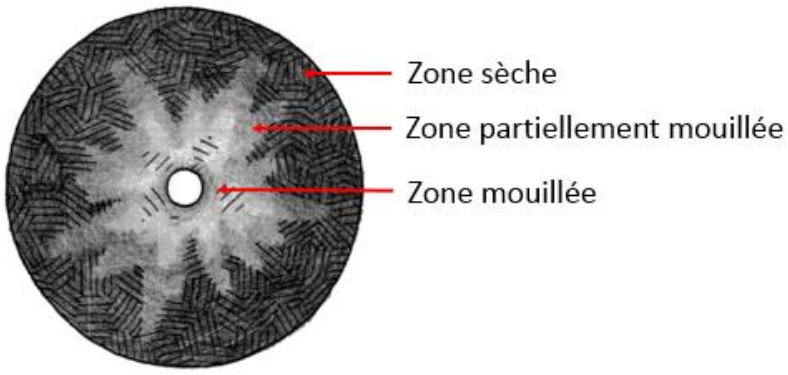


Figure 3.14 : Schéma d'écoulement dans le plan pour un échantillon de séparateur de batterie Hovosorb à structure fibreuse (Jena & Gupta, 1999)

3.4 Synthèse

L'autoporosimètre TRI a permis de mettre en évidence les résultats qui seraient attendus pour un matériau anisotrope à double échelle de porosité et les facteurs qui exercent une influence sur la mesure de la taille des pores comme la compression. Toutefois cet appareil est aujourd'hui désuet et laisse la place aux poromètres PMI et 3G de Quantachrome. Ces deux derniers ont des concepts similaires : deux différentes configurations qui permettent de drainer des échantillons circulaires soit à travers l'épaisseur, soit dans le plan. La mesure dans le plan se fait pour les deux au moyen d'un écoulement radial. La différence réside dans les mécanismes de fonctionnement de chaque appareil.

Les expériences effectuées sur les différents appareils de mesure permettent d'aboutir à plusieurs conclusions dans le cas des renforts fibreux. À cause de la double échelle de porosité, une distribution bimodale de la courbe de débit en fonction de la pression est attendue (Miller & Tyomkin, 1994). Cette distribution bimodale sera différente dans le plan et à travers l'épaisseur (Jena & Gupta, 1999). En effet, l'agencement des canaux d'écoulement dans les renforts est différent selon la direction de l'espace. Pour une mesure à travers l'épaisseur, il est possible de faire des mesures en superposant des plis (Miller & Tyomkin, 1994). Ceci est applicable à la fabrication des matériaux composites qui sont généralement composés de plusieurs plis de renfort.

La compression a également une grande influence sur la taille des pores et il fut possible d'en établir une tendance empirique pour les mesures planaires (Jena & Gupta, 1999; Miller & Tyomkin, 1994). Toutefois, l'effet de la compression n'est pas pris en compte dans les configurations à travers l'épaisseur par les poromètres de PMI ou de Quantachrome. Tel que montré précédemment à la Figure 3.12, le joint posé sur la périphérie de l'échantillon circulaire entraîne une déformation à son extrémité qui empêche d'évaluer l'influence de la compression sur la taille des pores.

Pour la mesure plane, l'utilisation d'un échantillon circulaire avec un écoulement radial peut être remise en question. En effet, l'anisotropie des renforts fibreux entraine un écoulement asymétrique qui peut laisser certaines régions de l'échantillon encore mouillées après la fin de l'essai de porométrie. Généralement, dans le cas des matériaux composites, les plis sont disposés d'une manière précise dans le moule (dans le sens chaîne, trame, ou selon un angle donné). L'écoulement de la résine se fait à travers les espaces libres d'une telle configuration. Il est donc important de

connaître la distribution de la taille des pores dans chaque direction spatiale. L'échantillon circulaire ne permet pas d'effectuer une telle mesure.

Malgré les inconvénients cités, le porte-échantillon de 25 mm de diamètre pour mesure à travers l'épaisseur a tout de même été utilisé pour réaliser des essais préliminaires sur des renforts fibreux à leur épaisseur libre. Les résultats seront présentés au Chapitre 4. Ces essais ont pour but d'étudier le fonctionnement du poromètre et d'évaluer les valeurs des paramètres de contrôle les mieux adaptées aux renforts fibreux (voir Annexe A). Ces essais préliminaires visent également à évaluer le potentiel de la porométrie par drainage d'un liquide mouillant pour détecter la double échelle de porosité dans les tissus fibreux. Par la suite, dans le but d'obtenir des résultats plus précis et de déterminer l'influence de la compaction sur la taille des pores, un montage a été conçu dans le but de contrôler l'épaisseur des échantillons. Tel que décrit au Chapitre 5, ce montage particulier sera inséré dans le porte-échantillon universel de 50 mm de diamètre.

Dans la même logique, le porte-échantillon standard de 25 mm pour mesure planaire a été utilisé pour des essais préliminaires afin de déterminer la configuration idéale d'un porte-échantillon pour mesurer la taille des pores dans le plan des renforts fibreux. Le Chapitre 6 décrit le cheminement des idées qui ont mené à la conception d'un porte-échantillon personnalisé pour la mesure planaire ainsi que les premiers résultats des expériences réalisées.

CHAPITRE 4 ARTICLE 1 : EXPERIMENTAL CHARACTERIZATION OF THE PORE SIZE DISTRIBUTION IN FIBROUS REINFORCEMENTS OF COMPOSITE MATERIALS

Beliny BONNARD, Philippe CAUSSE and François TROCHU

Chaire sur les Composites à Haute Performance (CCHP), Centre de recherche sur les systèmes polymères et composites à haute performance (CREPEC), Département de génie mécanique, Polytechnique Montréal

Submitted to Journal of Composite Materials (07/11/2016)

4.1 Abstract

This study uses capillary flow porometry to investigate the porous structure of engineering fabrics used in high performance polymer composites. This technique consists of applying air pressure to a previously wetted sample to progressively expel the liquid from the pores. A porometry testing device commonly employed to characterize filtration media was used as the principal tool for this investigation. Four types of fibrous fabrics made of glass and carbon fibers with different textile architectures have been experimentally characterized with a through-thickness setup. This allowed obtaining the pore size distribution inside the tested material. In all the cases studied, the porometry technique was able to detect in a reproducible way a bimodal pore size distribution reflecting the presence of both micropores (inside the fiber yarns) and mesopores (between the yarns). Moreover, experimental results indicate that the method can be used to study the influence of the textile pattern on the pore size distribution. Overall, the study shows that capillary flow porometry can give valuable information on the dual scale structure of fibrous reinforcements, which plays a critical role during the impregnation stage of *Liquid Composite Molding* processes. Because of its simplicity and speed of execution, the proposed approach appears to be a promising way to complement other sophisticated techniques already used for composites such as microscopy and X-ray microtomography.

KEY WORDS: Capillary flow porometry, Liquid Composite Molding, fibrous reinforcement, pore size distribution.

4.2 Introduction

Liquid Composite Molding (LCM) designates a family of composite manufacturing processes, in which a liquid reactive resin is injected into a dry preformed fibrous reinforcement. When using these techniques, it is of high importance to reach a full impregnation of the fibers to avoid defects that may affect composite mechanical properties. LCM processes usually involve engineering fabrics made of fiber yarns bound together with a stitching thread or assembled by a textile technique (e.g. weaving or braiding). Consequently, such fiber beds contain two types of open spaces that can be found between the fibers in a tow (intra-tow) and around the tow (inter-tow or interlayer spaces). The intra-tow spaces are qualified as micropores, while the inter-tow spaces are called mesopores. During the injection stage, the competition between viscous forces in the mesopores and capillary forces in the micropores is considered as one of the main cause of voids creation in the final part [1-5].

Characterization of the fibrous preform represents a key step for the production of high quality composites as the porous structure directly influences resin flow mechanisms. In particular, such information should help to predict transport properties as well as void formation in composite parts. It can also be used in process simulation. For example, characterization of the pore size distribution can be used to evaluate the permeability of fibrous reinforcements. Various permeability models that consider porosity have indeed been developed by different authors. For instance, the well-known Kozeny-Carman equation for flow through porous media establishes a relationship between permeability and key structural parameters of the porous material such as porosity, tortuosity, and the specific surface area [6, 7]. Tran et al. [8] modelled the shapes and positions of the pores in unidirectional reinforcements and calculated permeability using a microporomechanical approach. Vernet and Trochu [9] studied the mesoscopic pore size distribution in 3D interlock fabric using microscopy to validate a predictive permeability model developed previously [10]. The approach involved the fabrication of several composite parts and the analysis of multiple serial cuts made in the specimens. Valuable information was thus gathered on the morphology of the mesopores within such complex 3D arrangement. However, the experimental procedure and data post-treatment constituted a long and arduous task. The shape of the flow channels created by the mesopores can also be directly obtained using advanced characterization methods based on X-ray microtomography [11]. Straumit et al. [12] used this approach to reconstruct the morphology of

mesopores in a textile composite and predicted the permeability of the fabric using computational fluid dynamics over realistic tridimensional domains.

X-ray tomography can also give some valuable information regarding the pore structure inside the fiber bundles. For example, the overall pore volume distribution can be quantified [13] and voids can be classified according to their position in a dual scale composite structure (i.e., inside or outside the tows) [14]. With high resolution (around 1 μm), it is indeed possible to precisely detect the individual fibers in the sample [15]. Recent work from Vilà et al. [16] demonstrated that this technique could also be used to study fluid impregnation and void transport at the microscopic level. Using a specially devised setup, these authors were able to track the flow front position during the wetting of a glass fiber bundle. All these examples clearly illustrate that X-ray computed tomography is a very powerful tool to provide detailed microscopic and macroscopic information at the same time. However, it is an expensive technique that involves heavy calculations and its practical use remains limited to research groups having access to such advanced facilities. The approach followed in the present investigation is completely different since our main objective is to use a fast and easy method to study the pore size distribution in a dual scale fibrous medium. To that end, classical characterization techniques used in other research fields have been considered as potential candidates for our specific needs.

The characterization of porous media is of high importance in a wide variety of fields and applications, including Soil Mechanics, Petroleum Engineering, pharmaceutical researches, biomedical devices and materials design. A vast range of characterization methods are available to determine the key properties of porous media such as the pore volume, pore shape and pore size distribution. The most commonly used methods are based on image analysis and porometry. For example, Mertens and Elsen [17] determined the grain size distribution of sands by image analysis, Fredrich et al. [18] used laser scanning confocal microscopy to study the pore structure of geomaterials while nanofibrous materials were characterized by Li et al. [19] by Capillary Flow Porometry (CFP). The accuracy of all of these characterization methods has been compared several times for different porous materials. AlMarzooqi et al. [20] compared the results of image analysis of scanning electron microscopy (SEM) with CFP for non-fibrous membranes. This study showed relatively good matches between the two methods. However, Gigova [21] showed that SEM micrographs do not allow for measuring the pore sizes of glass mat membranes because of the fibrous structure. Also, Manickam and McCutcheon [22] matched up X-ray computed tomography,

liquid extrusion porometry and mercury intrusion porometry to characterize polymeric nonwoven filter media made of polyester and electrospun nanofibers. It could be inferred from their work that mercury intrusion porometry resulted in lower measured porosity than liquid extrusion porometry due to the compaction of the samples during mercury intrusion. Among the different porometry techniques, CFP appears to be a simple and affordable method that has already proved itself in the analysis of single scale porous media. It has been used numerous times to characterize fibrous mats and has given results that are comparable to other porometry methods [19-24]. Moreover, some studies suggest that CFP is able to detect a double peak of the pore size distribution for dual scale materials. Bimodal distributions were indeed reported for woven fabrics in the pioneering work of Miller and Tyomkin [25]. More recently, Wang et al. [26] used CFP to analyze carbon woven fabrics acting as supporting layer in a composite filter. Their results showed two majors regions in the pore size distribution that were attributed to intra-yarn and inter-yarn gaps.

In this work, Capillary Flow Porometry (CFP) is implemented to characterize the dual scale porosity of typical engineering fabrics used in LCM processes. To the best of the authors' knowledge, it is the first time that this characterization technique is employed for such purpose. The rest of the paper is divided into two main sections. The complete methodology of CFP is first presented through the typical example of a glass fiber reinforcement. The apparatus used for the investigation, the experimental procedure and the data post-treatment are described. In the second part, the results of capillary flow measurements corresponding to different reinforcements with various architectures are presented and discussed in details in order to evaluate the potential of the proposed approach.

4.3 Materials and methods

4.3.1 Apparatus

Capillary Flow Porometry (CFP) measurements were carried out with a 3Gz Porometer from Quantachrome Instruments Inc. (see Figure 4.1). The apparatus was equipped with a cylindrical sample holder that can receive a circular specimen of 25 mm diameter. This device enables the pore size distribution measurement in the through-thickness direction. As shown in Figure 4.2, the sample is placed on a porous support grid and an O-ring is added on its top for sealing. This

particular setup has been successfully used in several published works to study the pore size distribution in electrospun fibrous membranes [27, 28]. However, for the highly compressible fabric textiles considered in the present study, a possible drawback of the sample-holder configuration must be pointed out. Before testing, the overall assembly is manually tightened and the edges of the sample are compressed by the O-ring. Consequently, the thickness of the sample is not strictly controlled during the experiment so that the fiber volume fraction of the fabric is not precisely known. Nevertheless, this limitation was considered acceptable at this stage of the investigation since our primary goal was to assess the ability of CFP to detect a bimodal pore size distribution without necessarily taking into account the compaction state of the sample.

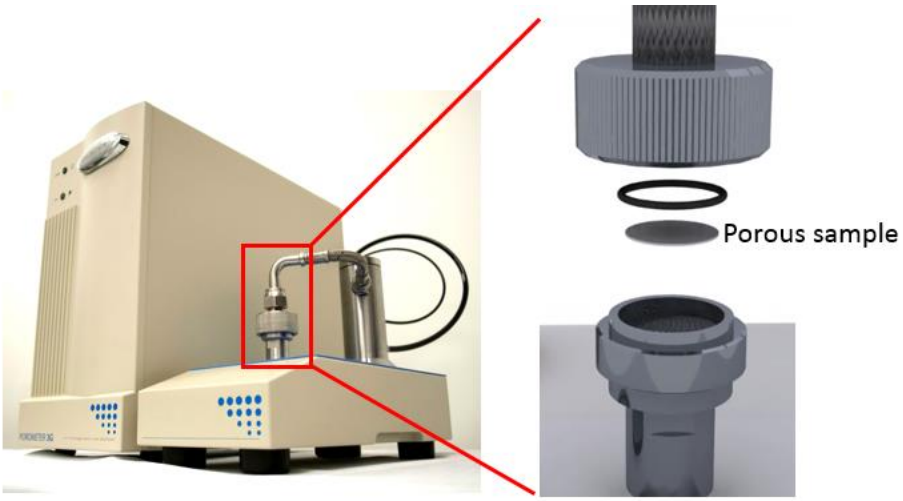


Figure 4.1 : Quantachrome 3Gz porometer with sample holder for through-thickness measurements

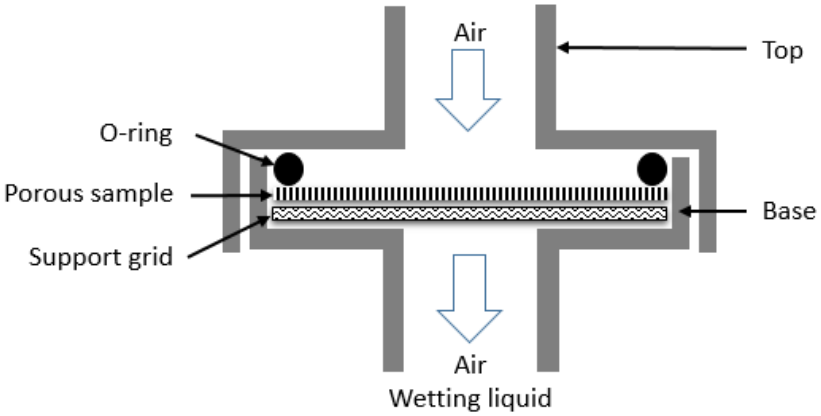


Figure 4.2 : Schematic view of the layout inside the sample holder for through-thickness measurements

4.3.2 Materials tested

The experimental program included the characterization of four fibrous reinforcements: two woven reinforcements and two *Non Crimp Fabrics* (NCF). These materials were selected to test different fibers and textile architectures (see Figure 4.3). Table 4.1 displays the details of each fabric including the reference, manufacturer, textile pattern and natural fiber volume fraction. The latter was estimated by measuring the thickness of fabric plies according to the standard test method for thickness of textile materials ASTM D1777-96 [29]. As mentioned earlier, the exact fiber volume fraction used during the porometry experiment is not precisely known and may not be representative of real LCM applications (usually equal or greater than 40 %). With the existing experimental setup, it is only possible to mention that the fiber volume fraction of the tested samples was higher than the values reported in Table 4.1.

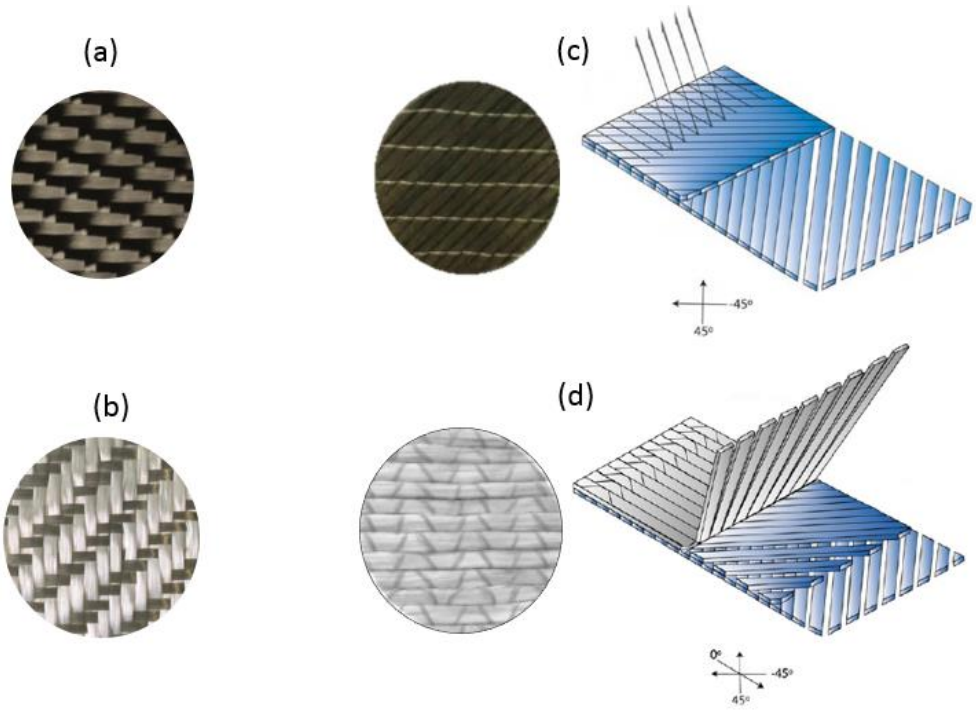


Figure 4.3 : Fibrous reinforcement characterized during the experimental program: (a) woven carbon (Sigmatex SC6221270); (b) woven glass (Texonic L1402197); (c) NCF carbon (SGL HPT 410 C45); (d) NCF glass (Vectorply E-TLX-2200-10)

Table 4.1 : Details about the fabric used for the measurements

Fiber type	Product	Manufacturer	Fiber architecture	Natural fiber volume fraction
Carbon	SC6221270	Sigmatex	8-harness satin weave	32 %
	HPT 410 C45	SGL	NCF +45°/-45°	32 %
Glass	L1402197	Texonic	2 layers 3x2 twill weave	31 %
	E-TLX-2200-10	Vectorply	NCF 0°/+45°/-45°	36 %

4.3.3 Test methodology

Circular samples having a diameter of 25 mm were cut from the fabric rolls with a custom made punch mounted on a hydraulic press. Given their relatively small size, the samples were handled very carefully with tweezers to avoid losing edge fibers during subsequent manipulations. Furthermore, the integrity of each tested specimen was visually inspected before launching the experiment. After cutting, the porous sample was first soaked with a proprietary wetting liquid called Porofil® recommended by Quantachrome. This fluid is a perfluorinated compound that possesses ideal properties for CFP experiments, namely a low vapor pressure, a medium viscosity (approximatively 2-3 centistokes at 20°C), a low surface tension (0.016 N/m) and an effective contact angle of zero for nearly all kinds of substrate. The use of such special wetting liquid makes filling mechanism occur spontaneously according to a physical process that tends to lower the free energy of the system. The air/sample interface is replaced by liquid/sample interface because the liquid/sample interfacial free energy is smaller than the air/sample free energy [24]. After soaking, the sample was placed inside the sample holder and the assembly was sealed before beginning the test. A controlled air pressure was then applied on one side of the sample and the pressure was increased stepwise while measuring the air flow passing through the sample. The evolution of the total flow during this first pressure ramp is called the wet curve. A typical result for a glass NCF sample is shown in Figure 4.4. At the beginning of the test, there is no flow passing through the sample until the pressure difference is high enough to expel the liquid from the largest pores: this

point is commonly called the *bubble point*. As the pressure increases, the air clears out all the liquid from the biggest pores to the smallest ones. The pressure was then reset to zero and another pressure increase was conducted with the dry sample using the same overall range. This second part of the experiment is commonly referred to as the dry run. As indicated in Figure 4.4, the point where the dry and wet curves meet corresponds to the smallest pore of the sample. For higher pressure values, the two curves are superimposed suggesting that all the liquid has been effectively drained out of the tested sample.

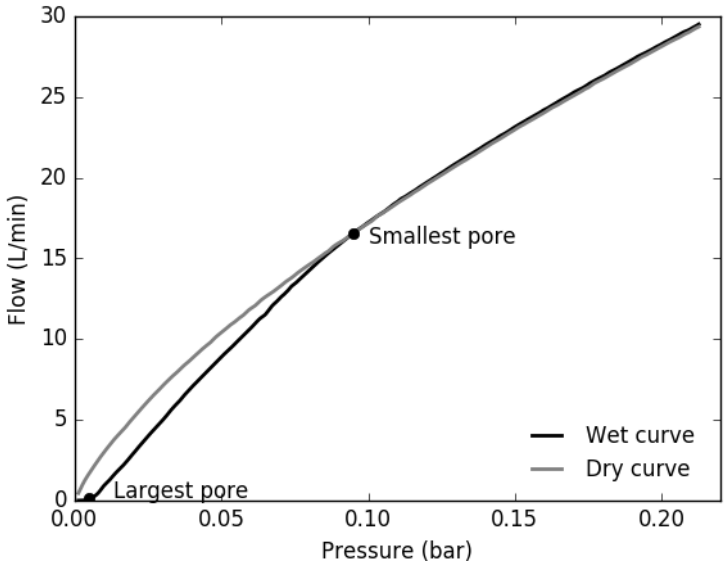


Figure 4.4 : Typical capillary flow experiment with a glass NCF specimen

4.3.4 Interpolation of raw experimental data

The capillary flow experiment described above is completely controlled by the software 3GWin® (version V1.00) provided by the supplier of the equipment. This software splits the pressure range selected for the test into equal intervals in order to obtain 256 measurement points for both wet and dry curves. 3GWin® also includes several options for rapid post-treatment and visualization of the results. However, this procedure involves built-in functions for interpolation and smoothing of the raw data that are not fully accessible to users. Consequently, the analysis of the experimental data was performed with an in-house code based on dual kriging to interpolate the raw results before completing the post-treatment. The mathematical formalism of this interpolation method is described in the Appendix.

Kriging is a general interpolation technique that uses a statistical model to predict values at unmeasured locations from observations in a continuous domain. It is a unique and general interpolation method which incorporates the variance of measurement errors also commonly referred to as the “nugget effect” in the interpolation procedure. Therefore, kriging function can be chosen to pass or not on each measured data points according to the variance values. Kriging takes also into account the distance between the measured and the estimation points, the distance between two measured points and the overall spatial arrangement among the measured data points. Consequently, it gives the best linear unbiased prediction of the estimated values. This is a powerful mathematical tool that contains splines and Bezier curves or surfaces as particular cases and least square methods as a limit case [30]. Kriging interpolation comes from Geostatistics and has been originally used as a general method for estimating natural resources in Mining Engineering and Soil Mechanics [31].

Figure 4.5 shows typical results of a porometry experiment and the associated kriged functions for the wet and dry curves. The data points correspond to the mean values of pressure and flow rate during each pressure increment as recorded by the control software. Unfortunately, the latter does not provide the temporal evolution during the time increment, nor the time of application of each pressure value. Moreover, the time increment cannot be controlled by the user since this parameter is automatically set by the software depending on the applied pressure. At the beginning of the experiment, the targeted pressure lies in the lower range of the porometer sensitivity and the application time for each pressure decreases progressively for the first 20 measurements points. Then, the time increment becomes constant for the rest of the experiment. As seen in Figure 4.5, the porometer might be unable to reach the set pressure within the allocated time for the first data points when the pressure is very low. As a matter of fact, a gap can be created in the wet curve after the bubble point. This results from the adjustment of the software control parameters when the flow rate increases drastically. Kriging helps to correct this issue by interpolating the data over that problematic range. Moreover, the introduction of a nugget effect gives a smooth representation that attenuates the experimental noise due to the sensors sensitivity. Finally, the kriging functions shown in Figure 4.5 provides a continuous description of the flow rate / pressure relationship even if the pressure data points of the wet and dry curves are not necessarily similar. As explained in the sequel, the use of continuous functions will facilitate the determination of the pore size distribution during post-treatment analyses.

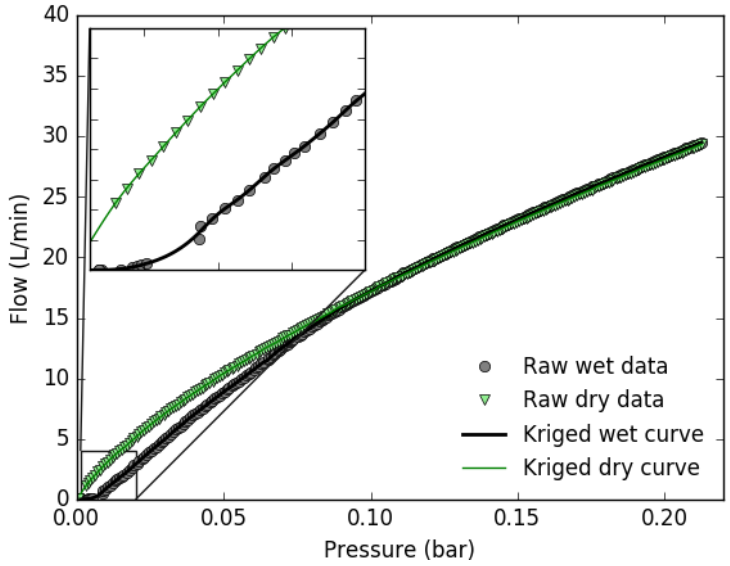


Figure 4.5 : Kriging smoothing function applied to the raw data measured by the porometer during a typical experiment with a glass NCF sample

4.3.5 Post-treatment analyses

The raw data measured by the porometer have been processed in the following way: first, the wet and dry curves were kriged using a very low and uniform nugget effect. Two interpolated functions representing the wet and dry curves were thus obtained. Numerical values of the kriged functions were calculated using small constant intervals throughout the pressure range. The wet data were then divided by the dry ones to obtain a cumulative flow distribution as a function of pressure. The capillary equivalent pore diameter was also calculated as a function of the applied pressure according to Young-Laplace equation (4.1) by assuming that the porous medium is made out of a set of parallel cylindrical pores:

$$D = \frac{4\gamma \cos\theta}{P} \tag{4.1}$$

where γ is liquid surface tension, θ is the contact angle of the liquid and P is the pressure applied [25]. For perfectly wetting fluids such as the one used during the experiments, this equation further simplifies since $\cos\theta = 1$.

It should be mentioned here that Young-Laplace equation is based on an important assumption on the pore shape that may not accurately reflect the structure of the tested material. It is indeed well

known that CFP can only measure the pore size at the narrowest point through the air pathway. This limiting diameter also called the pore throat is schematically illustrated in Figure 4.6. For the textile fabrics considered in this work, the assumption of cylindrical shapes is even more questionable since stacks of fibrous reinforcements usually contain a complex network of interconnected pores. However, this approach was adopted here because it is a common practice in CFP. For example, Manickam and McCutcheon [22] demonstrated that the resulting pore size distribution is indicative of effective cylindrical pore diameters that allow comparing complex porous materials such as nonwoven fibrous membranes even though the assumption of cylindrical pore shape is not strictly valid.

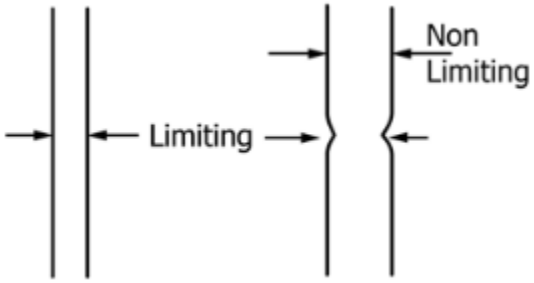


Figure 4.6 : Examples of limiting diameters during capillary flow porometry [32]

The cumulative flow is shown in Figure 4.7 as a function of the pore diameter. This curve gives the percentage of the total flow passing through pores that are larger than the indicated diameter. Since the pore diameter is inversely proportional to pressure, the intervals between two points of this cumulative curve are not constant. Consequently, the cumulative curve was also kriged following the previous procedure. The interpolated function was finally derived analytically to obtain the derivative flow distribution as a function of the pore diameter. This curve, also called the pore size distribution, is shown in Figure 4.8. It represents the percentage of the flow passing through pores having a diameter in a one micron range (nominal value ± 0.5 µm). For the glass NCF sample considered here, two separate peaks are clearly visible in the pore size distribution. It is also interesting to note that the peak locations lie in the expected diameter range for this type of fabric, hence suggesting that different types of pores have indeed been detected during the capillary flow experiment.

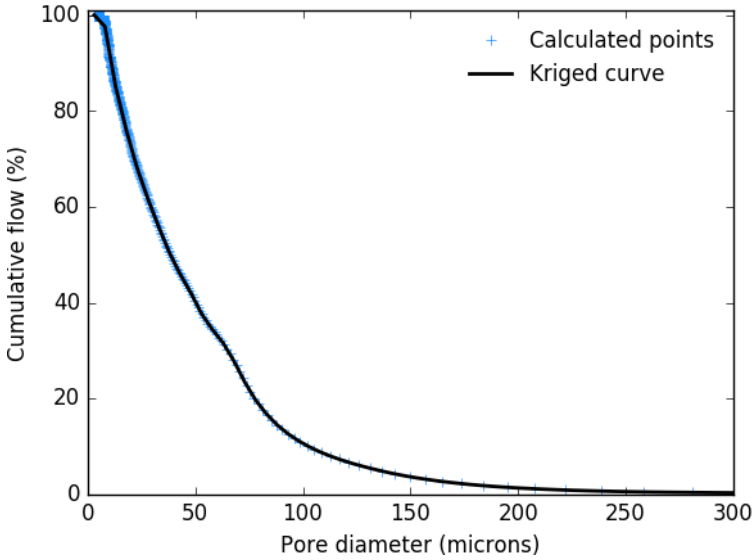


Figure 4.7 : Typical cumulative flow curve as a function of pore diameter for a glass NCF sample

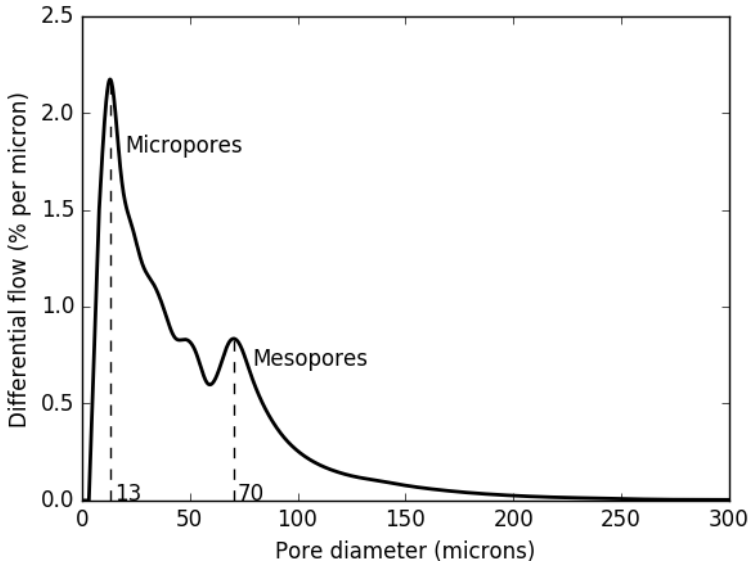


Figure 4.8 : Pore size distribution resulting from prost-treatment of the porometry data with a glass NCF sample

4.4 Results and discussion

4.4.1 Repeatability of the measurements

Capillary flow experiments were repeated three times for each fabric studied in the present investigation. Figure 4.9 shows the results of different tests carried out with the glass NCF reinforcement. Overall, the repeatability of the porometry curves appears to be very satisfactory: the bubble points as well as the meeting points are very close and the slopes in the overlap zone of the wet and dry curves are almost identical. The pore size distributions derived from these three tests are illustrated in Figure 4.10. Only minor differences are visible for pore diameters above 50 µm. These can be due to slight variations of the wet data points positions that are likely to occur at very low pressure since the porometer can hardly achieve the value of the set pressure exactly at the same time for each measurement. As a consequence of the relationship between the applied pressure and the capillary equivalent pore diameter, tiny differences between the positions of the wet data points at low pressure result in variations of the mesopore peak for different measurements. For that reason, the micropore peak is in general more repeatable than the mesopore peak for a given type of reinforcement. However, the repeatability of the entire pore size distribution can be considered as quite satisfactory. Figure 4.11 shows the mean pore size distribution obtained by averaging the results of the three repeated tests. Horizontal and vertical error bars are used to indicate the variability of the mesopore and micropore peaks. It can be noticed that the intensity of the peaks may slightly differ, but the pore diameters associated with the two peaks are almost perfectly repeatable. As already mentioned, the peak locations (13 µm for the micropores and 70 µm for the mesopores) appear realistic for this type of fabric.

The above discussion on test repeatability with the glass NCF reinforcement is also valid for the other materials considered in this investigation. Consequently, unless otherwise stated, the results shown in the sequel are also averaged from three repeated tests.

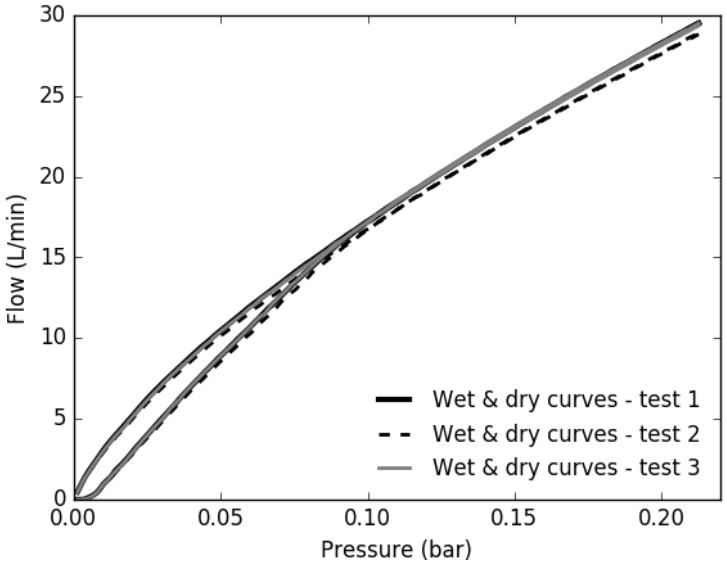


Figure 4.9 : Repetition of the capillary flow measurement for the glass NCF reinforcement

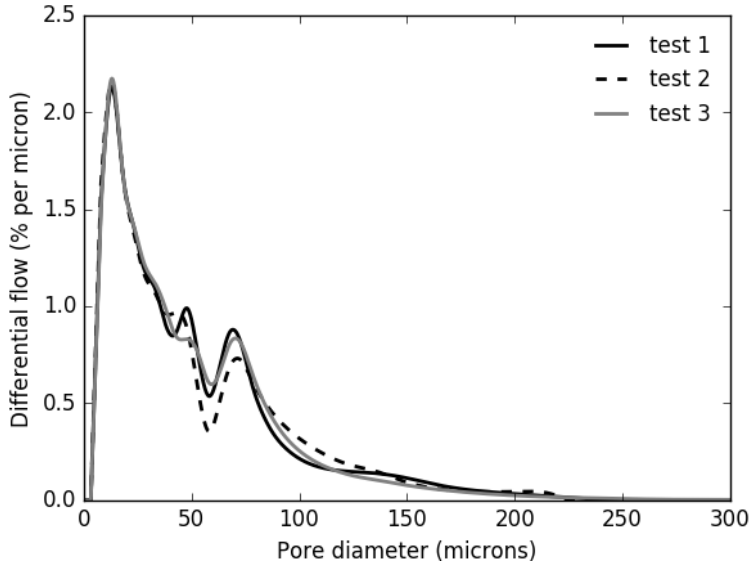


Figure 4.10 : Comparison of the pore size distributions from three measurements with the glass NCF reinforcement

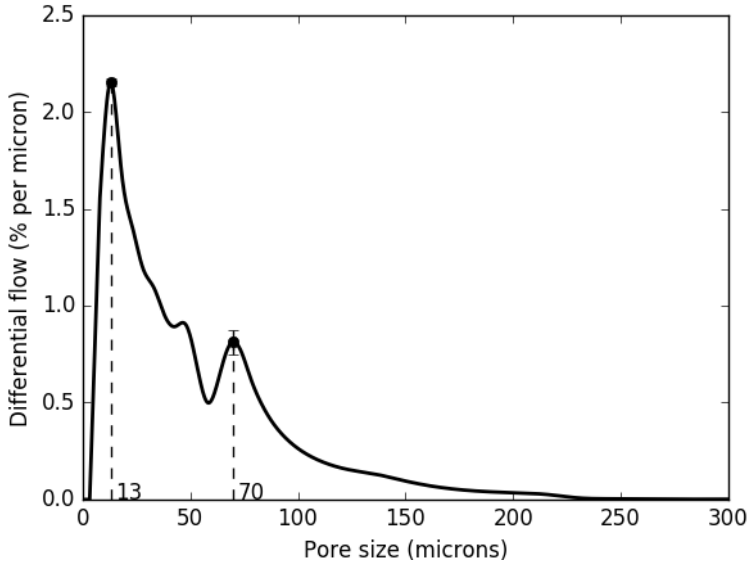


Figure 4.11 : Average pore size distribution resulting from three measurements with the glass NCF (standard deviations are indicated for peak locations and intensity)

4.4.2 Influence of textile architecture

To assess the possible influence of textile architecture, Figure 4.12 compares the pore size distributions for the two reinforcements made of glass fibers. Note that the diameters associated with the micropores are relatively similar, but the mesopore peak diameter is significantly higher for the woven reinforcement compared to the NCF. This difference seems to be consistent with the global structure of the fibrous materials. The waviness of the tows is indeed more important in a woven fabric, which tends to increase the gaps between the fiber bundles. Conversely, the mesopores in the NCF are mainly caused by the passage of the stitiching thread through the stack. In that case, one can expect the mesopores to be smaller and contribute less to the overall flow compared to a woven assembly. As shown in Figure 4.13, a similar conclusion about the mesopores can be drawn when comparing the pore size distributions of the two carbon fabrics. However, a completely different behavior is observed for the micropores. The diameter associated with the micropore peak is indeed almost twice as large for the woven reinforcement. Such a difference was somehow unexpected, but it is supported by qualitative analysis of serial cuts made in the dry fabrics with a digital microscope. This showed that relatively large gaps were dispersed inside the fiber bundles of the woven reinforcement. However, the preparation of the samples for

the microscopic analyses could also have damaged the integrity of the fiber yarns. It is then clear that a quantitative comparison with a proven characterization method such as microtomography could be very useful to gain confidence in the reliability of the porometry results

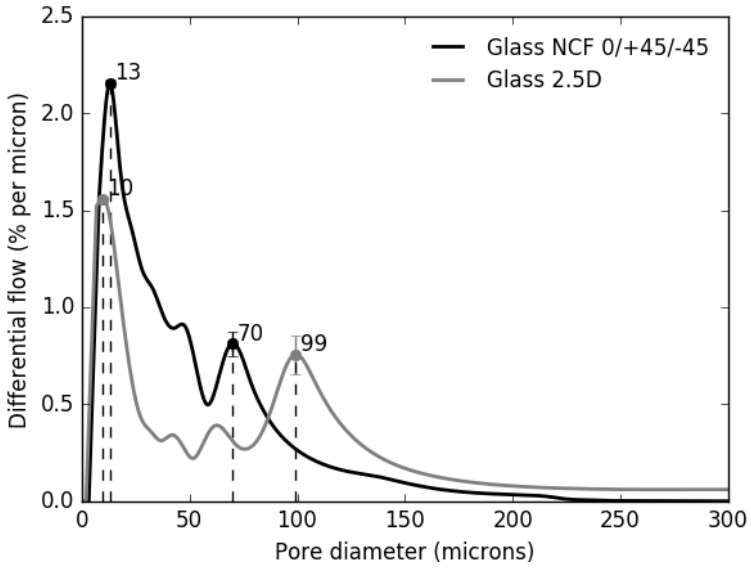


Figure 4.12 : Influence of textile architecture for glass reinforcements.

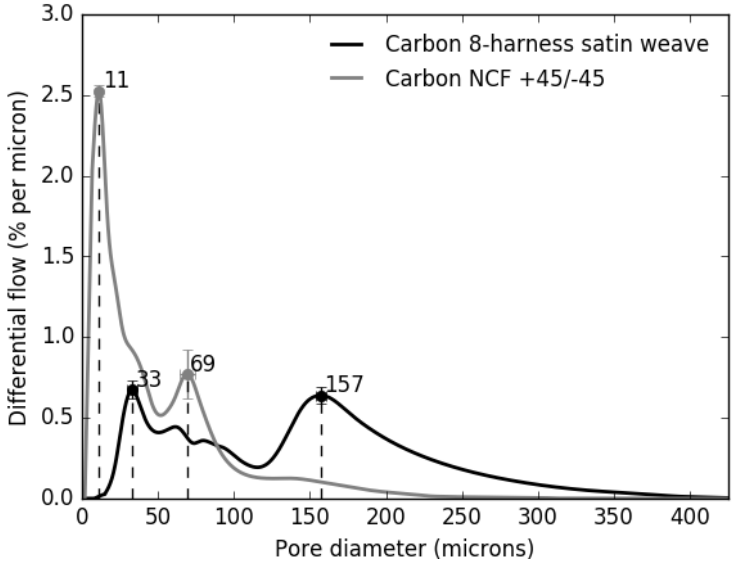


Figure 4.13 : Influence of textile architecture for carbon reinforcements

4.4.3 Influence of fiber type

The two NCF reinforcements have similar textile architecture, but are made of different fiber materials. Figure 4.14 shows that the pore size distributions are very close for these two fabrics. This suggests that the overall architecture plays a major role in the shape of the pore distribution. However, these results are preliminary and could possibly be coincidental. Therefore, comparing reinforcements made of different fiber bundles, but with exactly the same textile pattern (or having different architectures, but with the same kind of fiber bundles) could be interesting in future work.

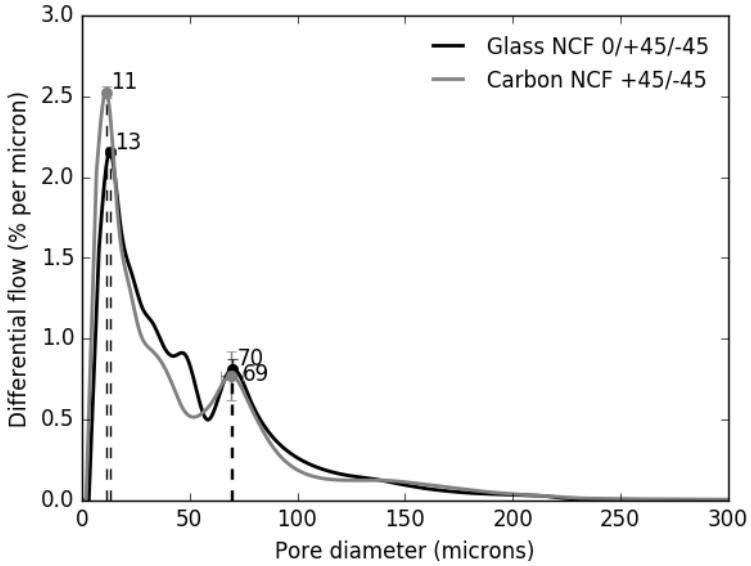


Figure 4.14 : Comparison of the pore size distributions in NCF fabrics made of different fiber materials

4.4.4 Influence of the number of plies

A final series of experiments was carried out with two plies of woven carbon to study the possible influence of stacking several fabric layers. Note that one of the three tests exhibited a rather singular behavior compared to all other experiments conducted. This observation is reported in Figure 4.15. As can be seen, the porometry curves cross each other and the flow associated to the wet run becomes momentarily higher than in dry condition. The origin of this phenomenon has not yet been explained, but could be due to a small displacement of the fibers during the test. Extrusion of the liquid may have influenced the nesting of the fabric layers, thus increasing slightly the overall pressure drop through the dry sample. However, further characterization with multiple-ply samples

is required to fully investigate it. For the time being, the cumulative flow of this specific test has been considered to be 100 % after the crossing point.

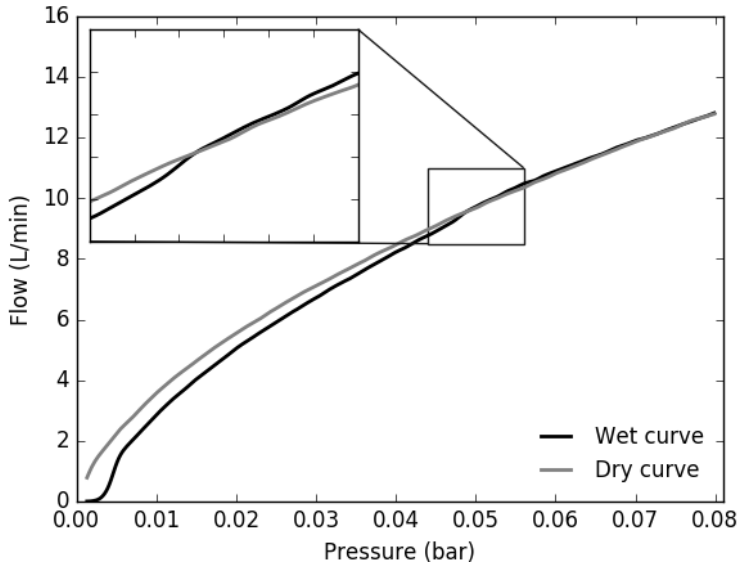


Figure 4.15 : Capillary flow porometry experiment with 2 plies of woven carbon showing crossing of the wet and dry runs

Figure 4.16 compares the porometry curves obtained with one and two carbon fabric layers. As expected, the flow passing through the sample decreases when the number of plies increases. The corresponding pore size distributions are plotted in Figure 4.17. The shapes of the curves are generally similar, but a shift of the peak locations towards smaller pore diameters is clearly seen when the number of plies increases. At least two reasons may be assumed to explain this behavior. Firstly, the stacking of two fabric plies can generate an interpenetration on the fiber bundles from the two fabric layers. Such a nesting effect can thus create multiple restrictions to the flow in the interlayer region. Secondly, a larger number of plies also increases the overall thickness of the tested sample. This should in turn increase the probability of having a smaller limiting diameter in the overall air pathway through the specimen.

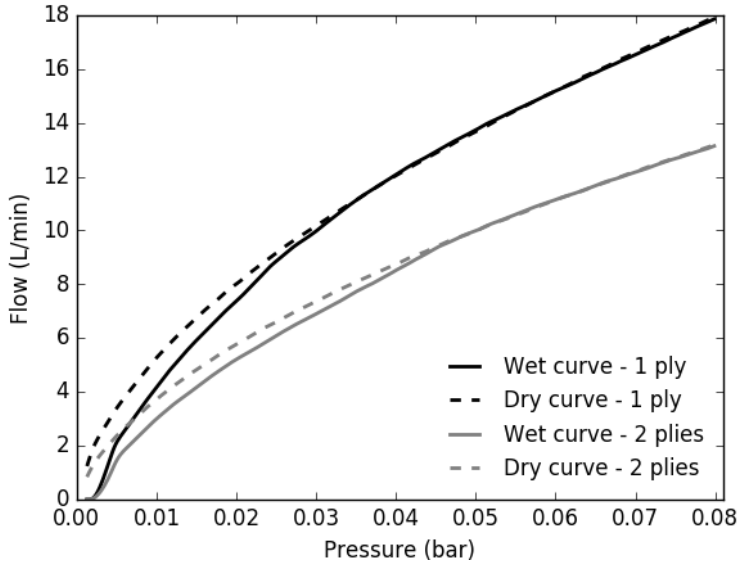


Figure 4.16 : Influence of the number of plies on porometry measurement with a woven carbon fabric

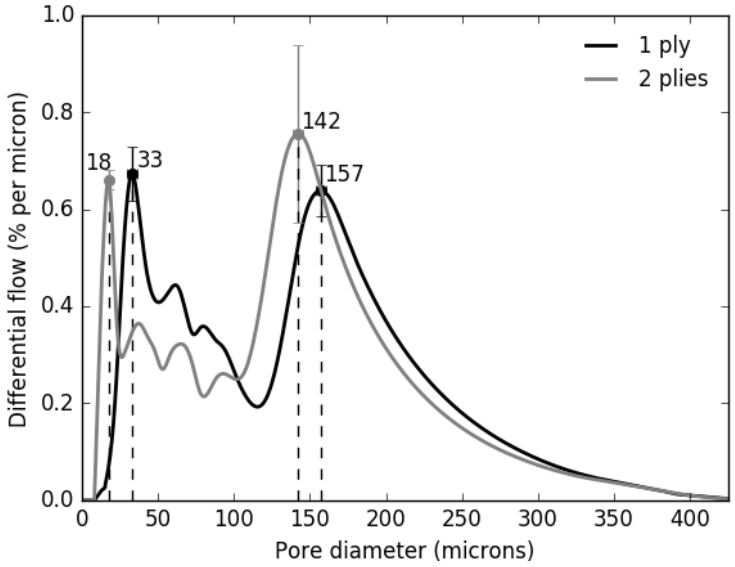


Figure 4.17 : Influence of the number of plies on the pore size distribution detected in a woven carbon fabric

Finally, it is worth mentioning that measurements with three plies of fabric have also been attempted, but the flow detected was less than 5% of the capacity of the 3Gz porometer flow sensor. The corresponding porometry curves exhibited a rather important noise. Consequently, the data were discarded. In the future, adding a new flow sensor to the porometer for low flow rate measurements would be an interesting upgrade to study thicker fibrous samples

4.5 Conclusion

This paper investigated the potential of a classical porometry technique based on capillary flow to characterize the porous structure of textile fabrics used to manufacture high performance composites. Four different reinforcements were characterized with a commercial porometer commonly used to analyze simple scale porous media for filtration applications. For all the cases studied, a reproducible pore size distribution showing two major regions of pore diameters was obtained. This shows that the two scales of pores (i.e., micropores and mesopores) could be identified in the tested fabrics. Moreover, comparing the results obtained with different materials suggests that porometry can reveal some important features of the textile architecture. Indeed, the pore size distribution gives the relative contribution of micropores and mesopores to the overall flow passing through the sample. Such information turns out to be highly valuable when studying LCM processes since the final quality of the part is directly influenced by the impregnation mechanisms occurring at different pore scales.

Compared to other methods already in use in the composite field such as microscopy and X-ray microtomography, the advantages of the proposed approach lie in its simplicity, the moderate cost of the equipment, the speed of characterization and the relative ease of data post-treatment. However, work is still needed to make capillary flow porometry a robust and practical tool for process analysis and optimization. To that end, future investigations could focus on comparing the results with other techniques such as microtomography or microscopy while improving the experimental setup to reproduce more closely real manufacturing conditions (for example by controlling precisely the fiber volume fraction or increasing the thickness of the tested sample).

4.6 Acknowledgement

This research was funded by Canada Research Chairs. The authors acknowledge the support of the National Science and Engineering Research Council (NSERC) of Canada, the Fonds de Recherche du Québec - Nature et Technologies (FRQNT), the Canada Foundation for Innovation (CFI) and the Ministère de l'Éducation du Québec for the infrastructure and expenses of the composite laboratory. The authors are especially thankful to Quantachrome Instruments Inc. for their collaboration and technical support. The contribution of Katrin Kenzlers to the experimental tests is also gratefully acknowledged.

4.7 References

[1] J. M. Lawrence, V. Neacsu, and S. G. Advani, "Modeling the impact of capillary pressure and air entrapment on fiber tow saturation during resin infusion in LCM," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing,* vol. 40, pp. 1053-1064, 2009.

[2] F. LeBel, A. E. Fanaei, E. Ruiz, and F. Trochu, "Prediction of optimal flow front velocity to minimize void formation in dual scale fibrous reinforcements," *International Journal of Material Forming,* vol. 7, pp. 93-116, 2014.

[3] J. S. Leclerc and E. Ruiz, "Porosity reduction using optimized flow velocity in Resin Transfer Molding," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing,* vol. 39, pp. 1859-1868, 2008.

[4] M. A. B. Abdelwahed, Y. Wielhorski, L. Bizet, and J. Breard, "Bubble formation and transport in T-junction for application to Liquid Composite Molding: Wetting effect," *Journal of Composite Materials,* vol. 48, pp. 37-48, 2014.

[5] V. Michaud, "A Review of Non-saturated Resin Flow in Liquid Composite Moulding processes," pp. 1-21, 2016.

[6] P. Carman, "Fluid flow through granular beds," *Transactions of the Institution of Chemical Engineers,* vol. 15, pp. 150-166, 1937.

[7] J. Kozeny, "Ueber kapillare Leitung des Wassers im Boden," *Sitzungsber Akad Wiss Wien,* vol. 136 (2a), pp. 271-306, 1927.

[8] T. Tran, S. Comas-Cardona, N.-E. Abriak, and C. Binetruy, "Unified microporomechanical approach for mechanical behavior and permeability of misaligned unidirectional fiber reinforcement," *Composites Science and Technology,* vol. 70, pp. 1410-1418, 2010.

[9] N. Vernet and F. Trochu, "Analysis of mesoscopic pore size in 3D-interlock fabrics and validation of a predictive permeability model," *Journal of Reinforced Plastics and Composites,* vol. 35, pp. 471-486, 2016.

[10] N. Vernet and F. Trochu, "In-plane and through-thickness permeability models for three-dimensional Interlock fabrics," *Journal of Composite Materials,* vol. 50, pp. 1951-1969, 2015.

[11] Y. Mahadik, K. A. R. Brown, and S. R. Hallett, "Characterisation of 3D woven composite internal architecture and effect of compaction," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing,* vol. 41, pp. 872-880, 2010.

[12] I. Straumit, C. Hahn, E. Winterstein, B. Plank, S. V. Lomov, and M. Wevers, "Computation of permeability of a non-crimp carbon textile reinforcement based on X-ray computed tomography images," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing,* vol. 81, pp. 289-295, 2016.

[13] A. G. Stamopoulos, K. I. Tserpes, P. Prucha, and D. Vavrik, "Evaluation of porosity effects on the mechanical properties of carbon fiber-reinforced plastic unidirectional laminates by X-ray computed tomography and mechanical testing," *Journal of Composite Materials,* vol. 50, pp. 2087-2098, 2015.

[14] A. Madra, N. E. Hajj, and M. Benzeggagh, "X-ray microtomography applications for quantitative and qualitative analysis of porosity in woven glass fiber reinforced thermoplastic," *Composites Science and Technology,* vol. 95, pp. 50-58, 2014.

[15] R. M. Sencu, Z. Yang, Y. C. Wang, P. J. Withers, C. Rau, A. Parson, *et al.*, "Generation of micro-scale finite element models from synchrotron X-ray CT images for multidirectional

carbon fibre reinforced composites," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing,* vol. 91, pp. 85-95, 2016.

[16] J. Vilà, F. Sket, F. Wilde, G. Requena, C. Gonzalez, and J. Llorca, "An in situ investigation of microscopic infusion and void transport during vacuum-assisted infiltration by means of X-ray computed tomography," *Composites Science and Technology,* vol. 119, 2015.

[17] G. Mertens and J. Elsen, "Use of computer assisted image analysis for the determination of the grain-size distribution of sands used in mortars," *Cement and Concrete Research,* vol. 36, pp. 1453-1459, 2006.

[18] J. T. Fredrich, B. Menendez, and T. F. Wong, "Imaging the pore structure of geomaterials," *Science,* vol. 268, pp. 276-276, 1995.

[19] D. Li, M. Frey, and Y. Joo, "Characterization of nanofibrous membranes with capillary flow porometry," *Journal of Membrane Science,* vol. 286, pp. 104-114, 2006.

[20] F. AlMarzooqi, M. Bilad, B. Mansoor, and H. Arafat, "A comparative study of image analysis and porometry techniques for characterization of porous membranes," *Journal of Materials Science,* vol. 51, pp. 2017-2032, 2016.

[21] A. Gigova, "Investigation of the porous structure of battery separators using various porometric methods," *Journal of Power Sources,* vol. 158, pp. 1054-1061, 2006.

[22] S. Manickam and J. McCutcheon, "Characterization of polymeric nonwovens using porosimetry, porometry and X-ray computed tomography," *Journal of Membrane Science,* vol. 407-408, pp. 108-115, 2012.

[23] L. T. Choong, P. Yi, and G. C. Rutledge, "Three-dimensional imaging of electrospun fiber mats using confocal laser scanning microscopy and digital image analysis," 2015.

[24] A. K. Jena and K. M. Gupta, "In-plane compression porometry of battery separators," *Journal of Power Sources,* vol. 80, pp. 46-52, 1999.

[25] B. Miller and I. Tyomkin, "Liquid Porosimetry: New Methodology and Applications," *Journal of Colloid and Interface Science,* vol. 162, pp. 163-170, 1994.

[26] Q. Wang, Y. Bai, J. Xie, Q. Jiang, and Y. Qiu, "Synthesis and filtration properties of polyimide nanofiber membrane/carbon woven fabric sandwiched hot gas filters for removal of PM 2.5 particles," *Powder Technology,* vol. 292, pp. 54-63, 2016.

[27] E. Omollo, C. Zhang, J. I. Mwasiagi, and S. Ncube, "Electrospinning cellulose acetate nanofibers and a study of their possible use in high-efficiency filtration," *Journal of Industrial Textiles,* vol. 45, pp. 716-729, 2016.

[28] Z. Wang and Z. Pan, "Preparation of hierarchical structured nano-sized/porous poly(lactic acid) composite fibrous membranes for air filtration," *Applied Surface Science,* vol. 356, pp. 1168-1179, 2015.

[29] "ASTM D1777-96 Standard Test Method for Thickness of Textile Materials (Reapproved 2015)," ed.

[30] F. Trochu, "A contouring program based on dual kriging interpolation," *Engineering with Computers,* vol. 9, pp. 160-177, 1993.

[31] D. G. Krige, "Statistical approach to some basic mine valuation problems on Witwatersrand," *Chemical, Metallurgical, and Mining Society of South Africa -- Journal,* vol. 53, pp. 43-44, 1952.

[32] "ASTM F3016-03 Standard Test Methods for Pore Size Characteristics of Membrane Filters by Bubble Point and Mean Flow Pore Test".

4.8 Appendix – Dual kriging

The interpolated function $u:\mathbb{R}\to\mathbb{R}$ obtained by kriging is a continuous function of known values u_i at N measured data points $x_{i,\ 1\le i\le N}$. It is decomposed into the sum of two terms: an average value $a(x)$ and a correction term $W(x)$ that represents fluctuations around the average. On one hand, the average term is chosen in order to fit the trend of the experimental data: it can be polynomial,

logarithmic or trigonometric. On the other hand, the fluctuation term assigns a shape function *K* to each of the *N* experimental values so that it depends on *N* degrees of freedom b_i. For the case of this present study, the trend function is linear and the shape function is cubic. The equation of the interpolated curve *u* is given by:

$$\begin{aligned} u(x) &= a(x) + W(x) \\ u(x) &= a_0 + a_1 x + \sum_{i=1}^{N} b_i . K\left(\left|x - x_i\right|\right) \\ u(x) &= a_0 + a_1 x + \sum_{i=1}^{N} b_i . \left|x - x\right|^3 \end{aligned} \tag{4.2}$$

where the parameters a_0 and a_1 of the trend function and the *N* degrees of freedom b_i of the correction term are unknown coefficients to be determined. A custom program has been especially written in Python to apply this simple 2D case of kriging method. The code solves the equation (4.2) using a matrix system called dual kriging. The dual kriging system is given by:

$$\begin{bmatrix} \ddots & & \iddots & 1 & x_1 \\ & K_{ij} & & \vdots & \vdots \\ \iddots & & \ddots & 1 & x_N \\ 1 & \cdots & 1 & 0 & 0 \\ x_1 & \cdots & x_N & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} b_1 \\ \vdots \\ b_N \\ a_0 \\ a_N \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} u_1 \\ \vdots \\ u_N \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} \tag{4.3}$$

where $K_{ij} = K\left(\left|x - x_i\right|\right) = \left|x - x_i\right|^3$ and $u_{i,\ 1 \le i \le N}$ are the measured values at the abscissa $x_{i,\ 1 \le i \le N}$.

The N first equations of this system are the conditions for the interpolated function to fit the measured data:

$$u(x_i) = u_i \tag{4.4}$$

Non-bias conditions are added to these *N* equations to solve the problem:

$$\sum_{i=1}^{N} b_i = 0 \tag{4.5}$$

$$\sum_{i=1}^{N} b_i x_i = 0 \tag{4.6}$$

To take into account the measurement uncertainty, a uniform nugget effect σ is introduced. The addition of a nugget effect allows deviation from the measured data in order to smooth the interpolated function. The dual kriging system including the nugget effect writes as follow:

$$\begin{bmatrix} \sigma^2 & & K_{ij} & 1 & x_1 \\ & \ddots & & \vdots & \vdots \\ K_{ij} & & \sigma^2 & 1 & x_N \\ 1 & \cdots & 1 & 0 & 0 \\ x_1 & \cdots & x_N & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} b_1 \\ \vdots \\ b_N \\ a_0 \\ a_N \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} u_1 \\ \vdots \\ u_N \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} \tag{4.7}$$

The values of the parameters a_0 and a_1 of the trend function and the N degrees of freedom b_i of the correction term obtained by solving the dual kriging system are injected in the equation (4.2) to obtain the analytical expression of the kriged smoothed function.

CHAPITRE 5 CARACTÉRISATION DE LA TAILLE DES PORES DES RENFORTS FIBREUX À TRAVERS L'ÉPAISSEUR

Les résultats obtenus précédemment ont permis de conclure que la méthode par drainage d'un liquide mouillant permet de mesurer la taille des pores dans les renforts fibreux et de caractériser leur double échelle de porosité. Toutefois, le montage standard fourni par Quantachrome présenté au paragraphe 3.3.2 ne permet pas de maîtriser la compression du renfort lors de la mesure. Ce chapitre présente la solution qui a été conçue dans le but d'évaluer l'influence du taux de fibres sur la taille des pores mesurée. Le nouveau montage pour mesure à travers l'épaisseur est tout d'abord présenté, suivi des caractéristiques des grilles utilisées. Ensuite, le porte-échantillon standard de 25 mm de diamètre et le nouveau montage sont comparés. Finalement, les résultats montrant l'influence du nombre de plis et l'influence du taux de fibres sur la taille des pores mesurée sont présentés et discutés.

5.1 Présentation du nouveau montage

Le porte-échantillon standard de 50 mm de diamètre constitue la base du nouveau montage. Il est possible de changer la configuration à l'intérieur de ce porte-échantillon à l'aide de différents inserts disponibles commercialement, ce qui lui vaut son nom de porte-échantillon universel. Il peut ainsi accueillir des échantillons circulaires de diamètres allant de 10 à 50 mm dépendant de la configuration. Dans le même ordre idée, des inserts personnalisés ont été fabriqués pour s'ajuster à l'intérieur du porte-échantillon universel afin de s'adapter au cas des renforts fibreux. Ces inserts ont été conçus de telle sorte que l'échantillon de renfort fibreux de 32 mm de diamètre soit comprimé uniformément entre deux grilles. L'épaisseur de l'échantillon est imposée à l'aide d'une ou plusieurs cales d'épaisseur calibrée. Ce nouveau montage est illustré à la Figure 5.1. Les éléments pointés avec des flèches à tige continue sont des éléments standards tandis que les autres ont été spécialement usinés.

Avant de conduire des essais avec le nouveau montage, des tests d'étanchéité ont été effectués avec succès. Ces essais consistent à boucher la sortie du porte-échantillon et à le plonger dans l'eau tout en y appliquant une pression d'air pour détecter d'éventuelles fuites.

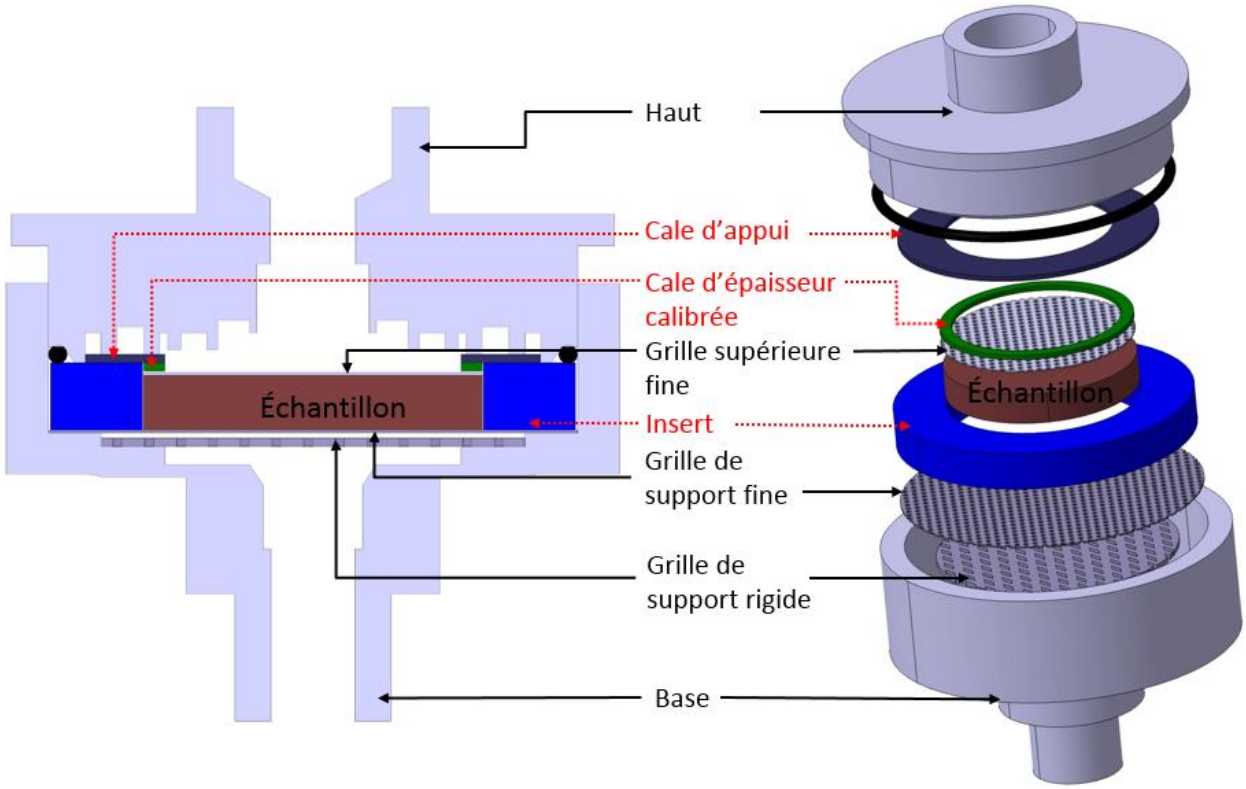


Figure 5.1 : Vue en coupe et éclatée du porte-échantillon universel de 50 mm de diamètre pour mesure à travers l'épaisseur dans la nouvelle configuration qui permet de fixer le taux de fibres

5.2 Les grilles de support

Le montage présenté précédemment ressemble au montage dans le porte-échantillon standard de 25 mm de diamètre dans la mesure où l'échantillon est posé sur une grille de support, qui elle-même est placée sur une autre grille de support plus rigide. Par ailleurs, pour pouvoir imposer une épaisseur uniforme à l'échantillon, une grille a été ajoutée au-dessus de l'échantillon. Les deux grilles qui compriment l'échantillon sont en acier inoxydable et ont les mêmes caractéristiques physiques. Toutes les grilles utilisées ont été fournies par Quantachrome, mais leurs dimensions ont été ajustées pour correspondre aux exigences du nouveau montage. Cette partie montre les caractéristiques de ces grilles ainsi que leur disposition dans le porte-échantillon lors d'une mesure. Il est aussi logique de se demander si l'ajout d'une grille supplémentaire par-dessus l'échantillon dans le nouveau montage avec le porte-échantillon universel a une influence sur les mesures.

5.2.1 Taille des perforations et disposition dans le porte-échantillon

Deux types de grilles sont utilisés : une grille fine de 0,2 mm d'épaisseur, qui a des perforations circulaires et une autre grille plus rigide avec des perforations à nervures repoussées[2], qui lui donnent une épaisseur de 0,7 mm. La grille fine sert de support direct des échantillons pour tous les porte-échantillons pour mesure à travers l'épaisseur. Elle a également été choisie comme grille supérieure au-dessus l'échantillon dans le nouveau montage avec le porte-échantillon universel. Comme le montre l'image au microscope de la Figure 5.2 et le schéma de la Figure 5.3, cette grille a des perforations circulaires en escalier : une première perforation peu profonde ayant un diamètre d'environ 850 µm et une deuxième de 600 µm de diamètre débouchant jusqu'à la surface opposée. Lors d'une mesure, il est important de s'assurer que le côté présentant le plus grand diamètre de perforation est orienté vers le haut. Cette forme en escalier permet une évacuation du liquide mouillant à la manière d'un entonnoir. Le plus petit diamètre de perforation a été choisi plus grand que la taille de pores maximale de 500 µm que le poromètre 3Gz peut détecter pour ne pas influencer les mesures. La grille rigide avec des perforations à nervures repoussées permet de supporter la grille fine qui est facilement déformable.

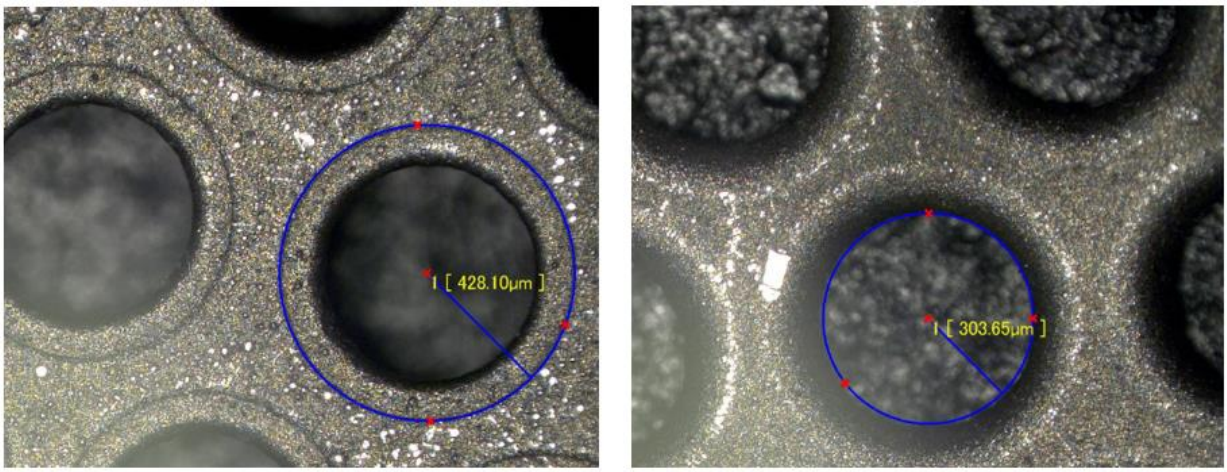


Figure 5.2 : Grille fine de 0,2 mm d'épaisseur : (a) vue de dessus; (b) vue de dessous

[2] http://www.df-perforation.fr/technique/perforations-et-gaufrages-speciaux/ du 13/10/2016

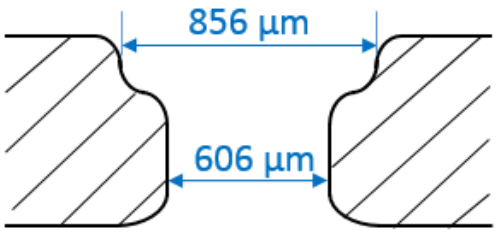


Figure 5.3 : Vue de profil schématique de la grille fine de 0,2 mm d'épaisseur

5.2.2 Influence de la grille supérieure

Dans le but d'observer si l'ajout d'une grille supérieure a une influence sur le débit dans le nouveau montage, des essais avec 2 et 3 plis de renfort Vectorply ont été effectués à des taux de fibres proches. La gamme de pression enregistrée pour les essais avec 2 plis varie de 1,28 mbars à 0,071 bars, tandis que pour ceux à 3 plis c'est de 1,28 mbars à 0,128 bars. Les résultats obtenus pour 2 plis, montrés à la Figure 5.4a, montrent une légère différence de débit, tandis que les résultats pour 3 plis, à la Figure 5.4b, sont tout à fait répétables. En général, il n'y a pas de différence notable lors de l'ajout d'une grille supérieure, par conséquent, elle n'influence pas le débit qui passe à travers l'échantillon. Les essais avec le nouveau montage ont tout de même été effectués en ajoutant la grille supérieure pour s'assurer de l'uniformité de la forme de l'échantillon.

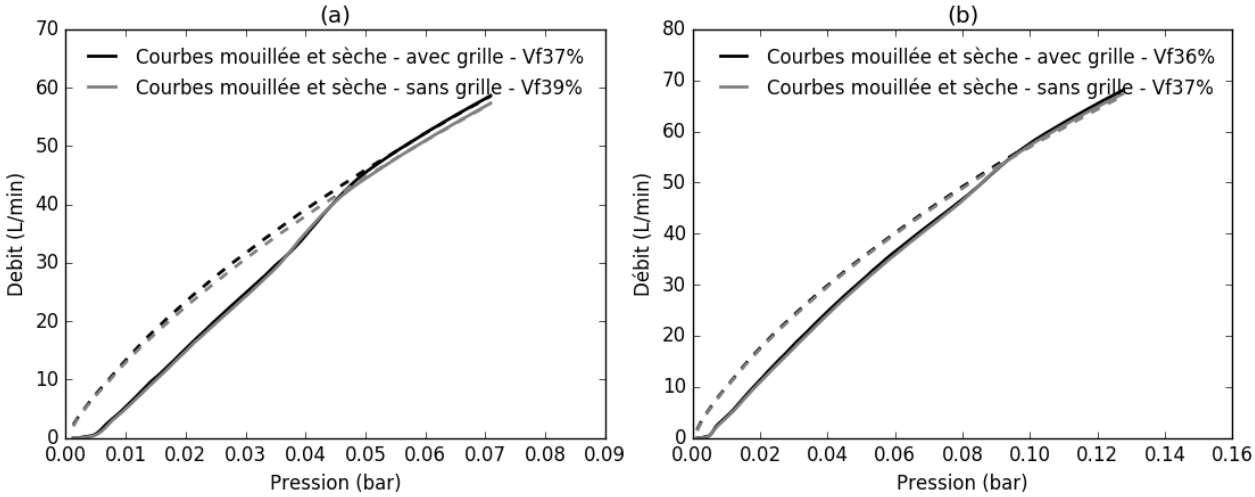
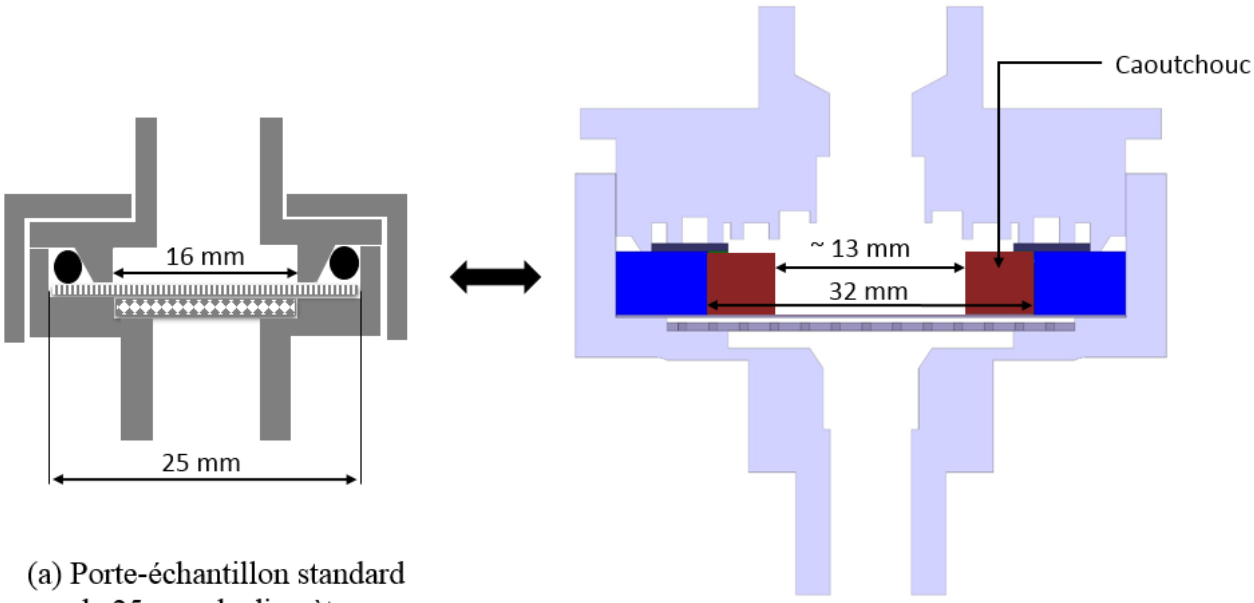


Figure 5.4 : Vérification de l'influence de la grille supérieure lors d'un essai de porométrie à travers l'épaisseur (renfort Vectorply) : (a) 2 plis; (b) 3 plis

5.3 Comparaison des deux montages pour mesure à travers l'épaisseur

Des essais à vide sans échantillon mais avec les deux grilles de support ont été effectués pour comparer le débit qui passe à l'intérieur des deux porte-échantillons. Les résultats ont montré que le débit qui passe à travers le porte-échantillon universel est beaucoup plus élevé que celui à travers le celui de 25 mm de diamètre pour une même gamme de pression. Les résultats obtenus ont soulevé des questions sur l'espace effectif dans le porte-échantillon de 25 mm de diamètre. En effet, la grille de support fine qui est directement posée sur une surface plane et la forme du haut du porte-échantillon ne laisse qu'un espace d'environ 16 mm de diamètre où l'air peut circuler directement comme illustré à la Figure 5.5a.



(a) Porte-échantillon standard de 25 mm de diamètre

(b) Porte-échantillon universel dans sa nouvelle configuration adaptée aux renforts

Figure 5.5 : Représentation schématique montrant l'équivalence entre le porte-échantillon de 25 mm de diamètre et le porte-échantillon universel avec un insert perforé en caoutchouc

Les résultats obtenus à la Figure 5.6 montrent que le débit qui passe à l'intérieur du porte-échantillon de 25 mm de diamètre est équivalent au débit qui passe dans le porte-échantillon universel muni d'un insert en caoutchouc avec une perforation d'environ 13 mm de diamètre

(Figure 5.5b). Bien que les échantillons aient un diamètre de 25 mm dans le porte-échantillon standard, leur taille effective semble donc plus petite. Les résultats obtenus avec le porte-échantillon de 25 mm de diamètre ont permis de mettre en évidence que la méthode par drainage d'un liquide mouillant permet de caractériser la double-échelle de porosité des renforts fibreux. Toutefois, il n'est pas tout à fait certain que la taille effective de l'échantillon à l'intérieur de ce porte-échantillon soit représentative du renfort. Par conséquent, l'échantillon de 32 mm de diamètre du nouveau montage devrait donner une meilleure estimation de la distribution de la taille des pores des renforts fibreux en supposant un modèle cylindrique des pores.

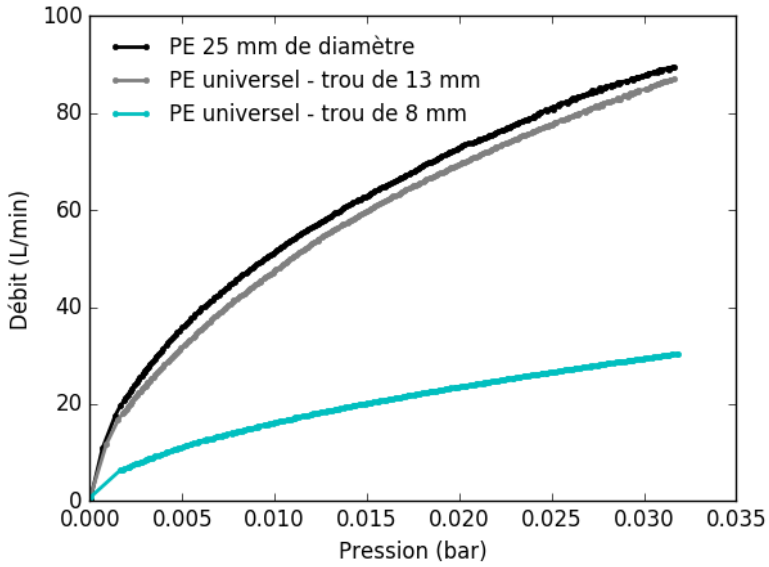


Figure 5.6 : Essais à vide dans le porte échantillon standard de 25 mm de diamètre et dans le porte-échantillon universel avec des inserts perforés en caoutchouc

5.4 Résultats

Tous les essais de ce chapitre ont été effectués avec le renfort en verre de Vectorply E-TLX 2200-10. Les échantillons ont un diamètre de 32 mm. La gamme de pression appliquée pour chaque essai a été ajustée pour que le débit ne soit pas trop proche de la limite du débitmètre de 100 L/min.

5.4.1 Influence du nombre de plis

Des essais faisant intervenir plusieurs plis de renfort à des taux de fibres (V_f) proches ont été effectués. Les détails de ces essais sont résumés dans le Tableau 5.1. Les Figure 5.7, Figure 5.8, Figure 5.9 et Figure 5.10 montrent les résultats obtenus pour 1 à 4 plis de renfort.

La Figure 5.7 montre que lorsque le nombre de plis augmente, le débit qui passe à travers l'échantillon diminue pour une pression donnée. Ces résultats sont tout à fait logiques puisque l'augmentation du nombre de plis implique une augmentation de l'épaisseur de l'échantillon qui fait que l'échantillon est moins perméable à l'air. Les courbes mouillées et sèches obtenues ont majoritairement le comportement suivant : elles se croisent au point qui correspond à la plus petite taille des pores puis s'éloignent au lieu de se superposer. Cette observation met en évidence une différence de comportement entre l'échantillon de renfort lorsqu'il est mouillé et sec. Le phénomène à l'origine de ce comportement n'a pas encore bien été déterminé, mais il pourrait être expliqué par une déformation de l'échantillon lors de la mesure à cause de la viscoélasticité du renfort.

Tableau 5.1 : Détails des essais avec différents nombre de plis

Nombre de plis	Taux de fibres estimé	Épaisseur de l'échantillon	Gamme de pression appliquée
1	39 %	0,80 mm	1,28 mbars à 0,050 bars
2	37 %	1,69 mm	1,28 mbars à 0,071 bars
3	36 %	2,57 mm	1,28 mbars à 0,128 bars
4	36 %	3,46 mm	1,28 mbars à 0,320 bars

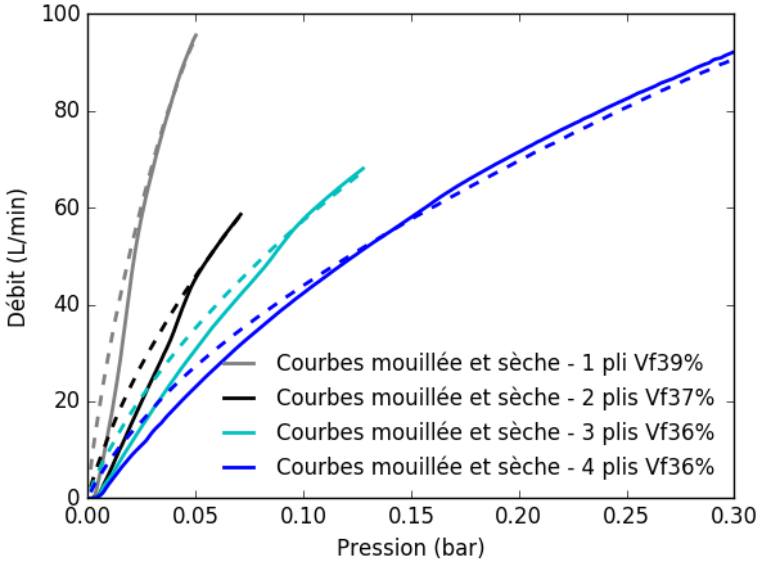


Figure 5.7 : Influence du nombre de plis lors d'un essai porométrique à travers l'épaisseur avec contrôle du taux de fibres (renfort Vectorply)

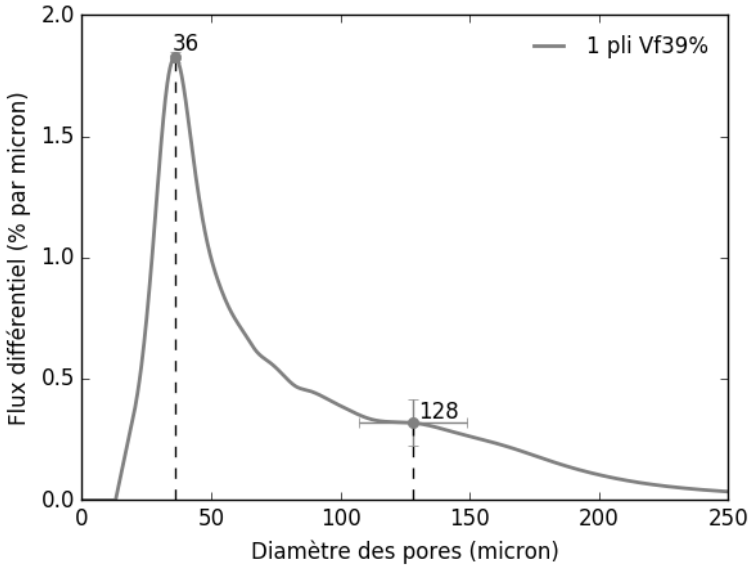


Figure 5.8 : Distribution de la taille des pores pour 1 pli de renfort Vectorply

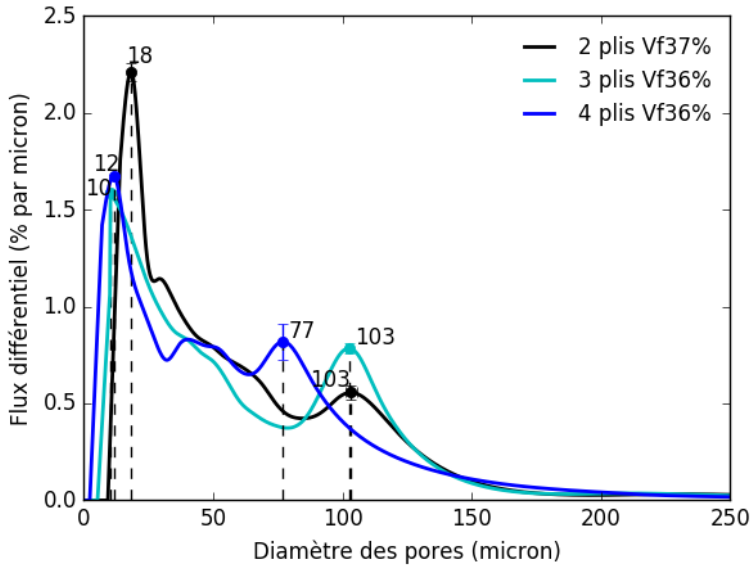


Figure 5.9 : Distribution de la taille des pores montrant l'influence du nombre de plis pour des taux de fibres proches. Renfort Vectorply

Les Figure 5.8 et Figure 5.9 représentent des moyennes de 3 essais avec les écart-types des valeurs de diamètre et de pourcentage de débit pour les pics de micropores et mésopores. Les résultats obtenus à la Figure 5.8 montrent qu'il est difficile de bien détecter les mésopores pour un pli de renfort avec le nouveau montage. En effet, le pic de mésopores est difficile à distinguer et sa position est beaucoup plus variable que pour les essais faisant intervenir plus de plis. La Figure 5.9 montre que les essais avec 2 à 4 plis de renfort permettent bien de caractériser la double échelle de porosité. De plus, il y a une bonne répétabilité tant pour le pic de micropores que pour celui des mésopores puisque les valeurs d'écart-type de diamètre moyen sont trop faibles pour qu'elles soient distinguées sur la figure.

La Figure 5.10 montre les valeurs moyennes des micropores et mésopores mesurées en fonction du nombre de plis. Ces valeurs ont été interpolées par une fonction polynomiale en utilisant la méthode de krigeage dual avec un effet de pépite égal au carré de l'écart-type en chaque point (c'est la valeur de l'effet de pépite par définition). Elle montre que lorsque le nombre de pli augmente, la taille moyenne des pores détectée diminue pour des valeurs de taux de fibres proches. Ce résultat vient vraisemblablement de l'effet de la mesure à l'endroit le plus restrictif du parcours de l'air pour la méthode de drainage d'un liquide mouillant (voir Figure 2.8). En effet, plus

l'échantillon est épais, plus le parcours de l'air est complexe; il a donc plus de chances de passer dans des chemins avec des diamètres plus restrictifs pour évacuer le liquide mouillant.

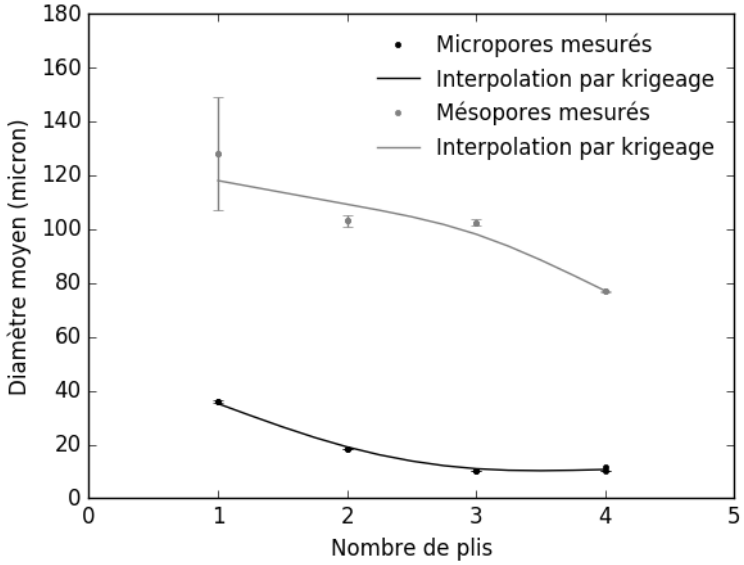


Figure 5.10 : Influence du nombre de plis sur la taille moyenne des pores avec un taux de fibres estimé entre 36 % et 39 % (renfort Vectorply)

5.4.2 Influence du taux de fibres sur la taille des pores

Le taux de fibres sélectionné lors de la fabrication détermine les propriétés finales de la pièce en composite. Comprendre son influence sur le rapport entre la taille des micropores et des mésopores permettrait de mieux comprendre la phase d'injection de la résine à travers le renfort fibreux. Pour évaluer la capacité de la méthode par drainage d'un liquide mouillant à déterminer l'influence de la compaction du renfort sur la taille des pores, des essais avec 3 plis de renforts à 3 taux de fibres différents ont été effectués. Les essais avec des échantillons à 36 % de taux de fibres estimatif ont été effectués avec une gamme de pression de 1,28 mbars à 0,128 bars, pour ceux à 49 % c'est de 1,28 mbars à 0,160 bars et pour ceux à 67 % c'est de 1,28 mbars à 0,320 bars. Les résultats obtenus sont résumés ci-après.

La Figure 5.11 montre que lorsque le taux de fibres augmente, le débit qui passe à travers l'échantillon diminue. Le fait que l'échantillon devient moins perméable à l'air lorsque le taux de

fibres augmente est cohérent puisque lorsque l'échantillon est compacté, il y a moins d'espace de passage pour l'air dans l'échantillon.

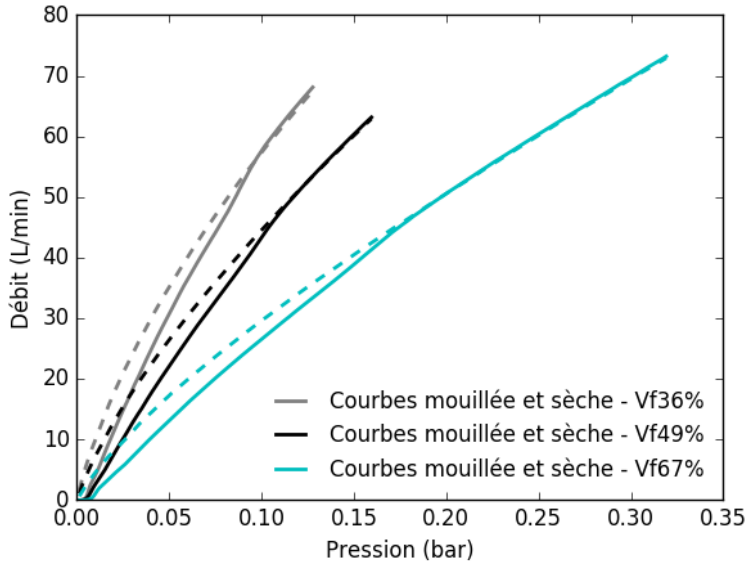


Figure 5.11 : Influence du taux de fibres sur la caractérisation à travers l'épaisseur (essais réalisés avec 3 plis de renfort Vectorply)

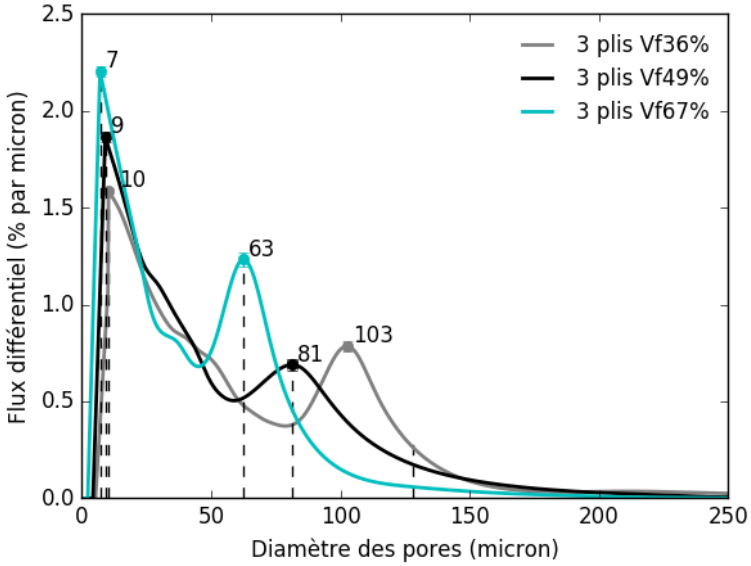


Figure 5.12 : Distribution de la taille des pores montrant l'influence du taux de fibres pour 3 plis de renfort Vectorply

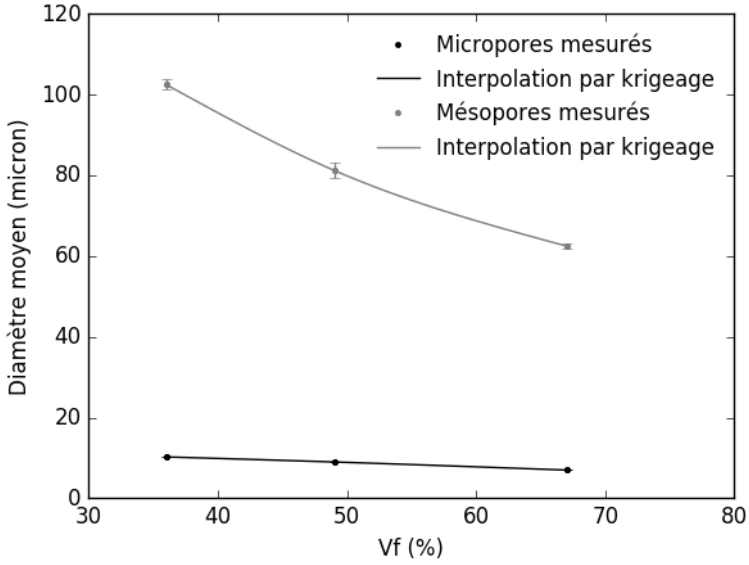


Figure 5.13 : Influence du taux de fibres sur la taille des pores pour 3 plis de renfort Vectorply

La Figure 5.12 montre les courbes de distributions obtenues avec les valeurs d'écart-type pour le diamètre moyen et le pourcentage de débit pour les pics de micropores et de mésopores. Les deux pics de micropores et de mésopores sont toujours bien distincts lorsque la valeur du taux de fibres augmente à 67 %. Les valeurs de diamètre moyen sont reportées à la Figure 5.13 et sont interpolées à l'aide de la méthode par krigeage dual avec un effet de pépite égal à la variance en chaque point. Les courbes obtenues montrent que lorsque le taux de fibres augmente, la taille des micropores et des mésopores diminue. Toutefois, cette diminution ne se fait pas de la même manière pour les deux échelles de porosité : les mésopores diminuent plus avec l'augmentation du taux de fibres que les micropores. Étant donné que les données obtenues jusqu'à maintenant ne permettent pas de déterminer le pourcentage occupé par les deux échelles de porosité en terme de volume, on ne peut conclure sur l'organisation des fibres et des torons à l'intérieur de l'échantillon lors de la compaction. D'autres part, il peut être noté que la diminution de la taille des pores suit en première approximation une tendance linéaire pour les deux échelles de porosité entre des valeurs proches du taux de fibres naturel (environ 36 %) et les valeurs usuellement utilisées pour la fabrication de composite à haute performance (entre 40 % et 60 %) pour le renfort Vectorply. Une étude avec plusieurs renforts pourra confirmer ultérieurement si cette tendance est valable pour plusieurs architectures de fibres.

5.5 Synthèse

Le nouveau montage pour mesure à travers l'épaisseur a été conçu dans le but de pallier au manque de contrôle du taux de fibres lors de l'utilisation du porte-échantillon standard de 25 mm de diamètre. Pour pouvoir maîtriser la forme de l'échantillon, le nouveau montage nécessite l'ajout d'une grille par-dessus l'échantillon. Après avoir démontré que cette grille n'influence pas le débit mesuré, des essais à vide ont été effectués afin de comparer le débit qui passe à travers les deux porte-échantillons pour mesure à travers l'épaisseur. Les résultats ont montré que la taille effective de l'échantillon dans le porte-échantillon standard de 25 mm de diamètre est inférieure à 25 mm. Malgré le fait que ce porte-échantillon ait permis de caractériser la double échelle de porosité dans les renforts fibreux comme démontré au Chapitre 4, il est probable que la taille effective de l'échantillon ne soit pas représentative du renfort. Les résultats montrent qu'en général, la taille des pores mesurée avec le nouveau montage (échantillon de 32 mm de diamètre) est plus grande qu'avec le porte-échantillon de 25 mm de diamètre. Dans le futur, plus d'essais avec les deux montages ainsi que des validations à l'aide d'autres méthodes comme la microtomographie aux rayons-X pourraient donner plus de précisions sur ce point.

Les essais conduits avec le nouveau montage ont permis de conclure qu'à des valeurs de taux de fibres proches, la taille des pores diminue lorsque le nombre de plis augmente. En effet, plus l'échantillon est épais, plus le chemin parcouru par l'air est complexe. Étant donné que la méthode par drainage d'un liquide mouillant donne le diamètre le plus petit sur le chemin d'écoulement d'air, le résultat obtenu est tout à fait cohérent. D'autres essais avec le renfort en verre de Vectorply ont aussi démontré que lorsque le taux de fibres augmente, les mésopores et les micropores diminuent d'une manière linéaire en première approximation. De plus, les mésopores diminuent plus avec l'augmentation du taux de fibres que les micropores. Une étude sur l'influence du taux de fibres sur le rapport de volume entre les mésopores et les micropores pourra dans le futur expliquer la réorganisation des torons entre eux et des filaments dans les torons pendant la compaction.

Les résultats obtenus avec les deux porte-échantillons ont permis de démontrer le grand potentiel de la méthode par drainage d'un liquide mouillant pour caractériser la double échelle de porosité à travers l'épaisseur. Il est donc possible d'espérer aller plus loin dans la caractérisation des renforts fibreux en explorant d'autres directions de mesure.

CHAPITRE 6 CARACTÉRISATION POROMÉTRIQUE DES RENFORTS FIBREUX PAR MESURE PLANAIRE

Lors de la fabrication des matériaux composites par LCM, l'injection de la résine dans le renfort fibreux se fait en majorité dans le plan. Une caractérisation dans le plan est donc nécessaire pour mieux comprendre l'écoulement lors de ces procédés. Une démarche progressive a été adoptée afin de comprendre les facteurs qui influencent la mesure planaire de la taille des pores des renforts fibreux. Dans un premier temps, le porte-échantillon standard présenté au paragraphe 3.3.3 a été utilisé. Les résultats préliminaires obtenus ainsi que les adaptations proposées afin d'obtenir de meilleurs résultats sont présentés dans les deux premières parties de ce chapitre. Différentes étapes ont notamment été nécessaires pour trouver les conditions d'expériences adéquates et pallier aux problèmes techniques. Suite à cette investigation préliminaire, il a été décidé de développer un nouveau dispositif expérimental pour la mesure planaire. La dernière partie de ce chapitre présente le cheminement des idées qui ont abouti vers la conception du nouveau porte-échantillon personnalisé ainsi que les résultats obtenus.

6.1 Mesures avec un écoulement radial à travers un échantillon circulaire

Dans un premier temps, le porte-échantillon standard pour mesure planaire présenté au paragraphe 3.3.3 a été utilisé selon le mode d'emploi conseillé par le fabriquant. Cette section présente les résultats obtenus avec un renfort fibreux lors d'une mesure avec écoulement radial.

6.1.1 Description de l'expérience

Le porte-échantillon standard de 25 mm de diamètre pour la mesure planaire est muni d'un piston qui comprime l'échantillon à une pression qui peut être modifiée par l'opérateur (voir Figure 3.13). L'échantillon circulaire de 25 mm de diamètre possède un orifice de 7 mm de diamètre au milieu pour laisser passer l'air dans le plan de l'échantillon (Figure 6.1). Son épaisseur est contrôlée par la pression appliquée par le piston qui doit être choisie de sorte que l'échantillon soit correctement compacté par le piston.

Beaucoup de difficultés ont été rencontrées pour les essais avec écoulement radial, entre autres concernant la découpe de l'échantillon. Un emporte-pièce et une presse ont été utilisés pour obtenir la forme circulaire de 25 mm de diamètre. Par contre, le trou circulaire au milieu a été réalisé à l'aide d'un emporte-pièce manipulé à la main et d'un marteau. Cette procédure entraîne beaucoup de manipulations sur l'échantillon, ce qui risque de modifier la structure fibreuse. Cependant, des échantillons satisfaisants ont été obtenus pour le renfort en carbone Sigmatex SC6221270 en travaillant avec beaucoup de précautions.

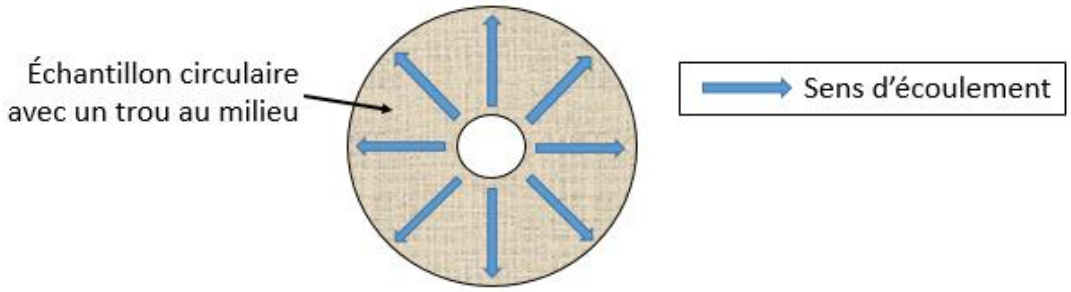


Figure 6.1 : Échantillon circulaire pour la mesure planaire par écoulement radial

6.1.2 Résultats pour un renfort en carbone de Sigmatex

Le renfort en carbone de Sigmatex a été choisi pour réaliser les mesures présentées ici car il possède un comportement stable et ne se défait pas à la découpe. L'intervalle de taille des pores enregistré avec le logiciel 3GWin pour la mesure est de 5 à 500 µm. Cette gamme correspond à une pression d'air de 1,28 mbars à 0,128 bars avec le Porofil® comme liquide mouillant. La pression appliquée par le piston a été modifiée par essais et erreurs jusqu'à ce que des résultats soient obtenus. La pression du piston pour laquelle les résultats montrés ici ont été obtenus est 0,621 bars (9 psi).

De nombreux essais ont été effectués dans le but de raffiner la méthode de mesure. Seulement les meilleurs résultats sont présentés ci-dessous. L'exemple de la Figure 6.2 montre que les données brutes mesurées par le poromètre présentent du bruit. Ceci est dû au fait que le débit est faible : sa valeur ne dépasse pas 3 % de la capacité du capteur de débit qui est de 100 L/min. Pour éliminer le bruit généré par le système de mesure, les données ont été lissées par la méthode de krigeage géométrique 2D décrite au Chapitre 4 en faisant intervenir un effet de pépite uniforme. Cette même figure montre que les courbes mouillée et sèche se croisent en un point, puis s'éloignent l'une de

l'autre au lieu de se superposer. La cause de ce phénomène n'a pas été identifiée avec certitude, mais ce comportement pourrait être causé par une déformation de l'échantillon au cours de l'essai. Par exemple, l'application d'une pression constante sur l'échantillon peut entraîner une compaction graduelle du tissu en raison du comportement viscoélastique des renforts fibreux. Il est aussi possible que la pression du piston de 9 psi appliquée à l'échantillon ne soit pas suffisante pour le maintenir en place lorsque le poromètre vient appliquer une pression avec l'air. Il est cependant difficile d'utiliser des pressions plus élevées que 9 psi car le débit devient très faible et n'est plus détectable par le capteur du poromètre

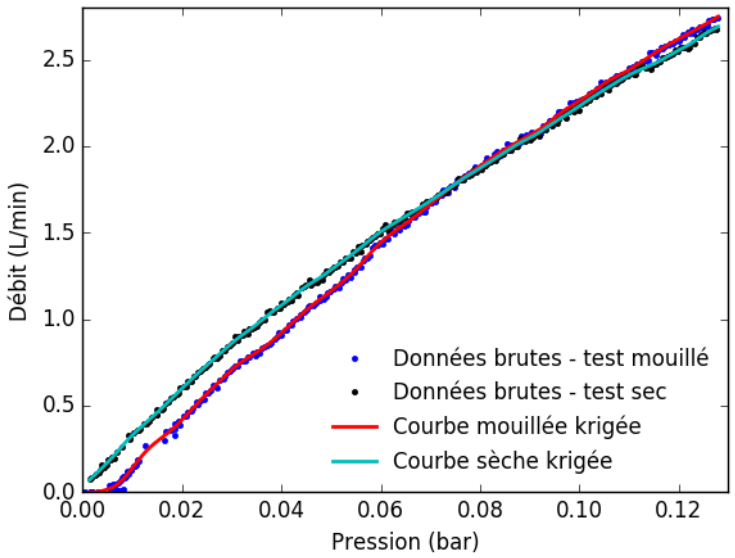


Figure 6.2 : Exemple de caractérisation du renfort de Sigmatex par mesure planaire pour un écoulement radial

Les résultats obtenus après lissage de 3 échantillons différents sont montrés aux Figure 6.3 et Figure 6.4. Les courbes de débit en fonction de la pression appliquée à la Figure 6.3 montrent que deux résultats sont répétables, mais que le test O1 s'éloigne sensiblement des deux autres. La différence de débit maximale à la fin de l'expérience entre le test O1 et les tests O2 et O3 est d'environ 60 %. Toutes les courbes mouillées et sèches se croisent au point correspondant à la plus petite taille des pores, puis s'éloignent sans se superposer à la fin de l'essai. Les courbes de distribution de la taille des pores présentées à la Figure 6.4 présentent beaucoup d'oscillations et ne semblent pas donner une tendance pour indiquer une échelle particulière de taille des pores. Une raison qui pourrait

expliquer la non répétabilité des mesures est l'utilisation d'échantillons différents pour chaque essai. En effet, les conditions de manipulation des échantillons diffèrent et peuvent modifier le placement des fibres et donc la structure des pores. Malgré la non répétabilité des essais, ces résultats montrent que des pores ont été détectés même si la distribution de taille obtenue n'est pas parfaitement répétable. Les résultats avec le tissu de carbone ouvrent une piste sur la faisabilité d'une mesure planaire pour caractériser la taille des pores des renforts fibreux.

Par ailleurs, il a été constaté que les échantillons ne se vident pas totalement à la fin de l'expérience. Les spécimens contiennent en moyenne 12 % de liquide mouillant après l'essai (Oger, 2012). Le résultat obtenu ici pour un renfort fibreux est donc similaire à celui de Jena et Gutpa (1999) pour un séparateur de batterie (voir paragraphe 3.3.3). La structure fibreuse du renfort et la force de compression appliquée créent des zones dans le renfort difficilement accessibles à l'air lors d'une mesure par écoulement radial.

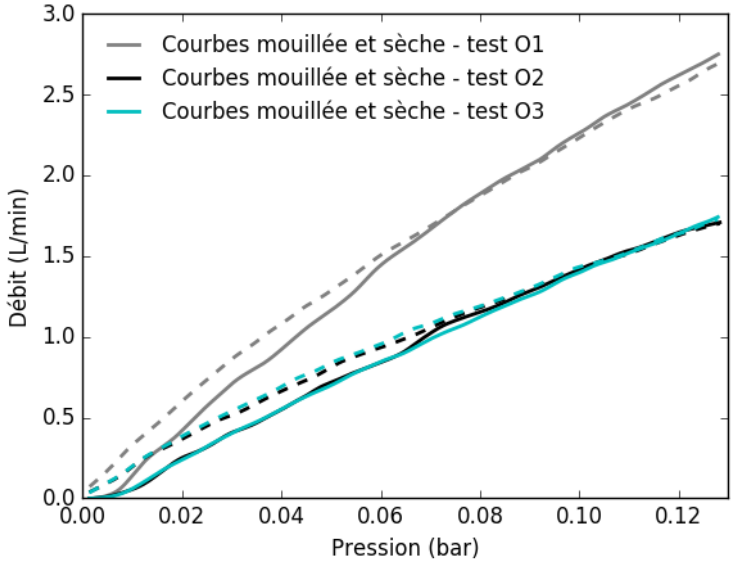


Figure 6.3 : Répétition de la mesure planaire par écoulement radial pour trois échantillons de renfort Sigmatex

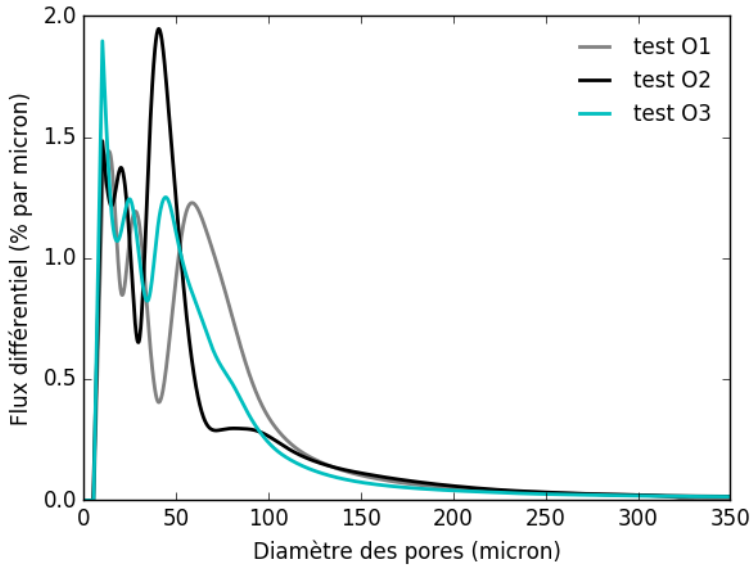


Figure 6.4 : Distribution de la taille des pores pour trois échantillons de renfort Sigmatex (mesure dans le plan avec écoulement radial)

6.1.3 Synthèse sur les mesures avec écoulement radial à travers un échantillon circulaire

Les essais ont montré que le montage avec écoulement radial ne semble pas approprié pour les renforts fibreux. En effet, les résultats n'étaient pas répétables et l'échantillon n'était pas sec à la fin de l'expérience, ce qui veut dire qu'une partie de l'information sur la taille des pores est perdue. Le fait que l'échantillon ne se vide pas concorde avec les résultats obtenus par Jena et Kupta (1999) expliqué au paragraphe 3.3.3. Il convient donc de modifier le montage pour orienter l'écoulement dans une direction donnée.

6.2 Mesures directionnelles avec un échantillon en forme de D

Dans le même porte-échantillon que précédemment, des éléments ont été insérés judicieusement afin de répondre aux besoins de mesure dans le plan des renforts fibreux. La forme de l'échantillon a été modifiée pour deux raisons : parce que la mesure par écoulement radial ne convient pas à tous les renforts (voir section précédente) et qu'il est préférable de caractériser la taille des pores dans une direction spécifique. Dans la nouvelle configuration présentée ici, l'écoulement dans une

direction particulière est privilégié. Les essais seront réalisés à nouveau avec le tissu Sigmatex SC6221270.

6.2.1 Description du montage

Comme montré à la Figure 6.5, l'échantillon a la forme d'un « D ». Pour permettre un écoulement dans le sens désiré, un joint en caoutchouc est placé autour de l'échantillon. Une petite cale rectangulaire est insérée dans l'épaisseur du joint. Ainsi, lorsque le piston vient appliquer une pression : (i) le joint se comprime et empêche l'air de passer de manière radiale comme auparavant, mais dirige le flux vers l'échantillon (ii) l'épaisseur entre la plaque métallique en-dessous de l'échantillon et le piston est égale à l'épaisseur de la cale. Le taux de fibres est donc fixé de cette manière. Un espace est soigneusement calculé entre l'arrivée d'air et le côté interne de l'échantillon pour permettre à l'air de bien se répartir tout le long de l'échantillon avant de passer à travers le renfort (voir Figure 6.6).

Un emporte-pièce a été usiné pour la découpe des échantillons, mais leur manipulation reste très délicate. En effet, la taille des échantillons est très petite (moins de la moitié d'un cercle de 12,5mm de rayon) ce qui entraîne souvent une déstructuration du tissu lors des manipulations. Il est donc probable que l'échantillon ne soit plus représentatif des caractéristiques physiques du renfort d'origine. Par conséquent, les résultats présentés dans cette section 6.2 doivent être considérés seulement à titre indicatif.

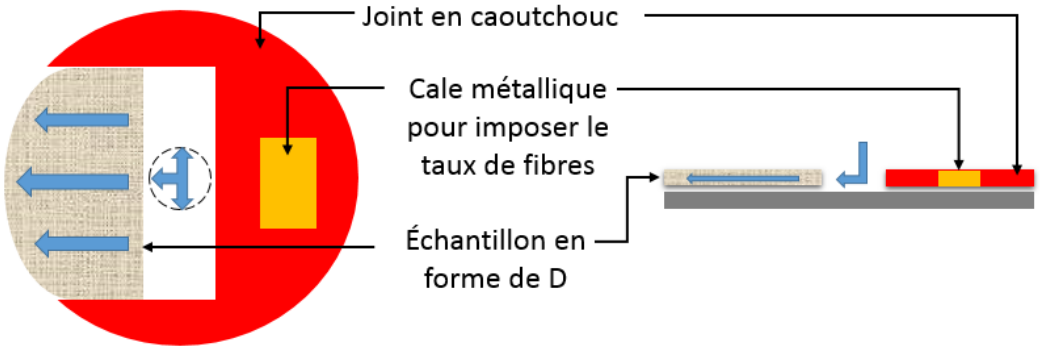


Figure 6.5 : Schéma de configuration de l'échantillon en D pour mesure planaire : à gauche vue de dessus; à droite vue en coupe

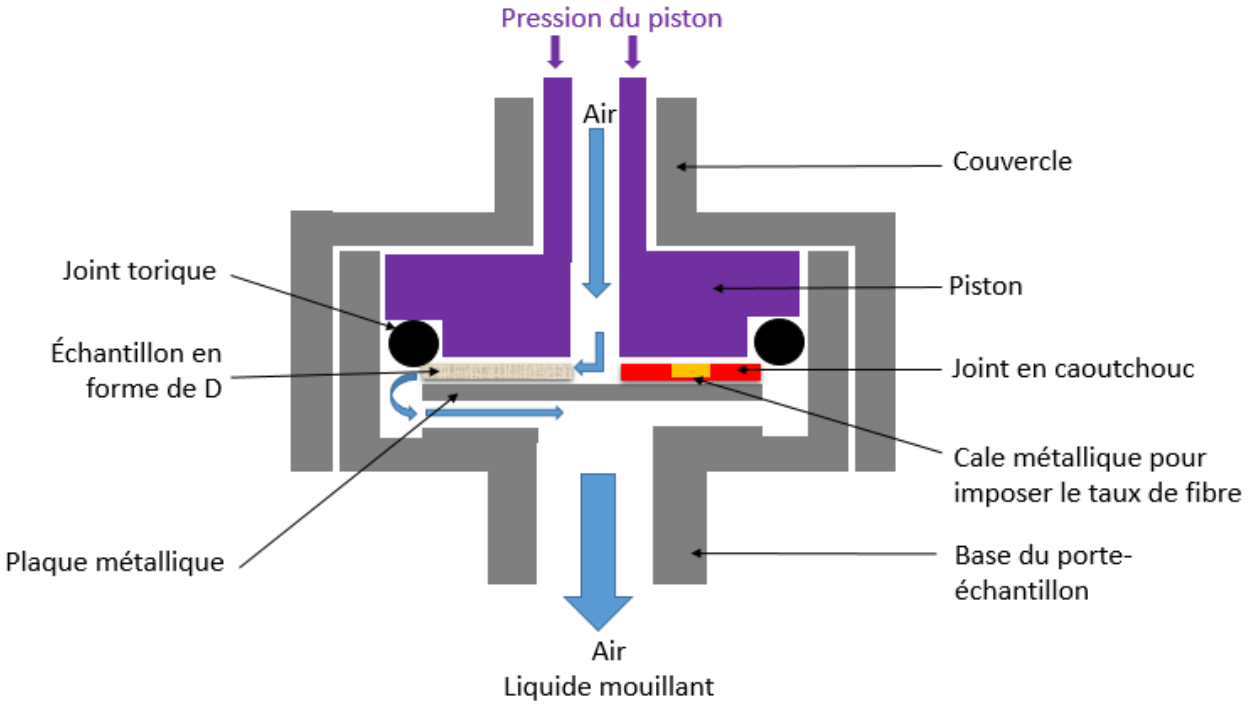


Figure 6.6 : Vue schématique en coupe de la configuration du porte-échantillon de 25 mm de diamètre pour des mesures planaires directionnelles

6.2.2 Résultats pour un renfort en carbone Sigmatex

La gamme de taille des pores enregistrée avec le logiciel 3GWin pour calculer la gamme de pression à appliquer varie de 9 à 500 µm. Dans cette configuration, il suffit d'appliquer juste assez de pression avec le piston pour comprimer le joint et assurer le contact avec la cale. L'épaisseur de la cale métallique est 0,5 mm, ce qui correspond à un taux de fibres estimé de 41 %. La pression appliquée par le piston est de 1,72 bars (25 psi).

La Figure 6.7 montre que le débit mesuré lors d'un essai avec cette configuration est toujours très faible et qu'il n'y a pas eu d'amélioration à ce niveau par rapport à la configuration de l'échantillon pour écoulement radial. Il y a toujours beaucoup de bruit et les courbes mouillées et sèches se croisent aussi pour s'éloigner à la fin comme auparavant.

La Figure 6.8 montre que les courbes correspondant à chaque essai ont des pentes différentes et ne sont donc pas répétables. La différence entre le débit maximal des courbes extrêmes est d'environ 30 %. Les courbes de distribution de la taille des pores à la Figure 6.9 ne sont pas répétables non plus, mais un point positif peut être noté sur cette figure : malgré les fluctuations, les courbes ont

tendance à présenter un premier pic avant 50 microns et un autre après. Cette fois-ci, la non répétabilité des résultats pourrait provenir de la petite taille de l'échantillon. En effet, la manipulation de l'échantillon pour l'insérer dans le montage est délicate. Beaucoup d'échantillons ont été perdus parce qu'ils se sont défaits.

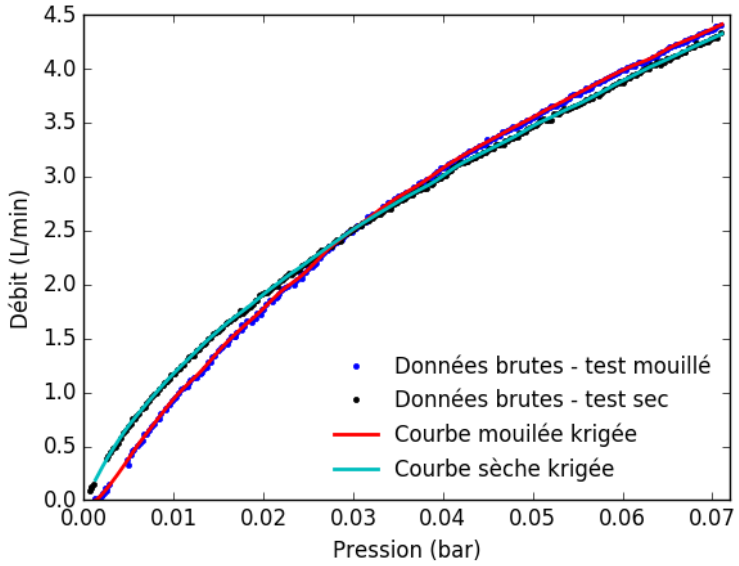


Figure 6.7 : Exemple de caractérisation du renfort Sigmatex par mesure planaire avec un échantillon en forme de D (sens chaîne)

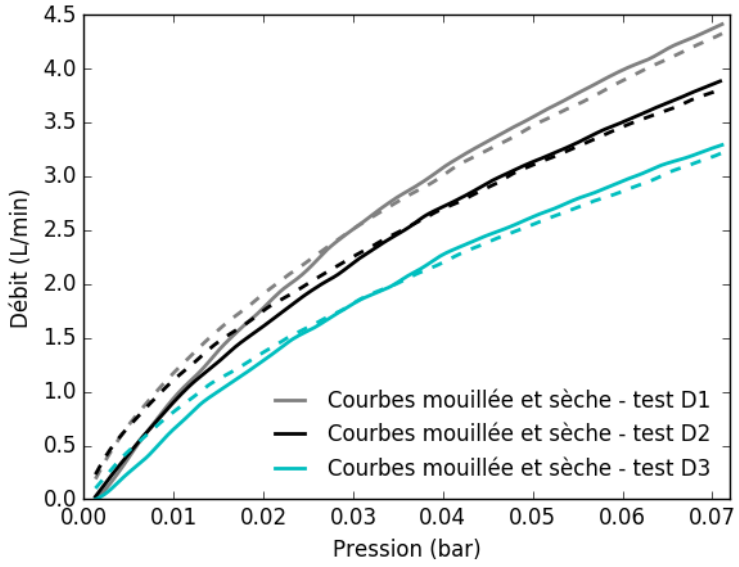


Figure 6.8 : Répétition de la mesure planaire avec un échantillon en forme de D pour le renfort Sigmatex (sens chaîne)

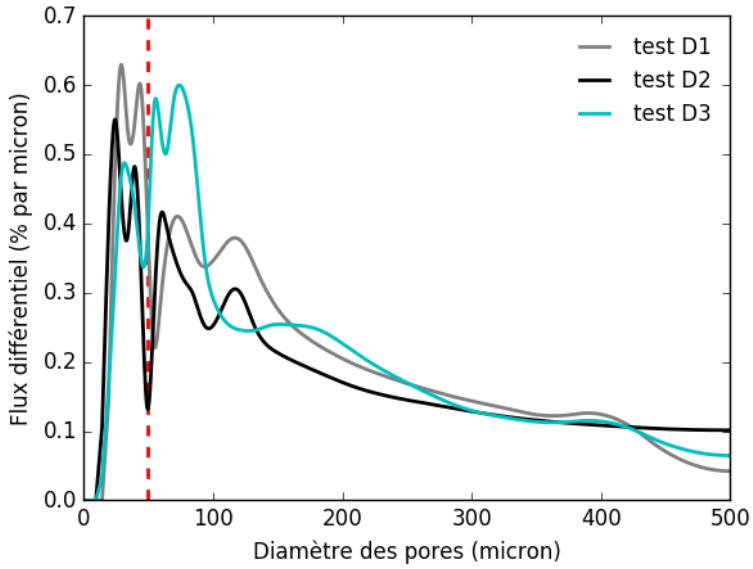


Figure 6.9 : Distribution de la taille des pores pour trois échantillons de renfort Sigmatex (mesure dans le plan avec un échantillon en forme de D dans le sens chaîne)

6.2.3 Synthèse sur les mesures directionnelles avec un échantillon en forme de « D »

Les essais pour les échantillons en forme de « D » ont été difficiles à effectuer puisque la mise en place de tous les éléments nécessaires pour cette configuration dans le porte-échantillon est très délicate. La taille trop petite de l'échantillon limite la précision des résultats obtenus, d'où les résultats très peu répétables. Néanmoins deux échelles de taille des pores sont biens détectées. Ces essais montrent que des mesures directionnelles dans le plan sont possibles pour des renforts fibreux.

Avec un porte-échantillon circulaire qui pourrait accueillir un plus grand échantillon, la même configuration avec un joint en caoutchouc devrait donner des résultats plus répétables et plus précis. Toutefois, il n'existe pas de porte-échantillon de plus grande taille. Il est donc nécessaire de mettre en place un autre dispositif de mesure pour obtenir des résultats directionnels dans le plan.

6.3 Mesures directionnelles avec un porte-échantillon personnalisé

Un nouveau porte-échantillon pour la mesure planaire adapté au cas des renforts fibreux a été conçu et fabriqué. Son design a fait l'objet d'une longue analyse et une rencontre avec les ingénieurs de Quantachrome a été nécessaire afin de valider le plan final. Les détails de sa conception sont présentés à l'Annexe D. Dans cette partie, le nouveau montage est d'abord brièvement présenté, puis les résultats obtenus avec le renfort en carbone Sigmatex SC6221270 sont exposés et commentés avant d'être comparés aux résultats obtenus à travers l'épaisseur.

6.3.1 Description du montage

Comme illustré à la Figure 6.10, le porte-échantillon est principalement composé de 3 parties : la partie supérieure, une cale d'épaisseur calibrée et la base. Il permet d'accueillir un échantillon rectangulaire posé à l'horizontale. La longueur des échantillons que peut contenir le porte-échantillon est variable (jusqu'à 28 mm), tandis que sa largeur est fixe (18 mm). Un joint plat d'une épaisseur légèrement plus élevée que la cale est posé autour de l'échantillon pour assurer l'étanchéité. La fermeture du porte-échantillon est assurée par 4 boulons. Lorsque le porte-échantillon est fermé, le joint plat est comprimé jusqu'à ce que la cale soit en contact de part et d'autre avec le haut et la base du porte-échantillon. L'air entre par le haut du porte-échantillon par un chemin cylindrique. Une fois arrivé au niveau de la cavité de l'échantillon, il est réparti sur un côté de l'échantillon grâce à la forme circulaire du joint. L'air traverse ensuite l'échantillon avant de sortir par la base du porte-échantillon.

L'échantillon, qui est découpé à la main, doit parfaitement se placer à l'intérieur du joint plat pour qu'il n'y ait pas d'effet de bord. L'échantillon est collé au haut et à la base du porte-échantillon à l'aide d'un ruban adhésif en fibres de verre pour ne pas qu'il bouge à cause de la pression d'air appliquée lors de la mesure. Lorsque l'échantillon est composé de plusieurs plis de renfort, seul le côté bas du pli inférieur et le côté haut du pli supérieur sont collés. On s'assure que le porte-échantillon est fermé d'une manière uniforme en serrant les boulons à l'aide d'une clé dynamométrique. L'échantillon sec est placé à l'intérieur du porte-échantillon, puis, lorsque celui-ci est fermé, une quantité suffisante de liquide mouillant est versée par l'entrée. Pour chaque essai, on s'assure que la quantité de liquide mouillant et le temps d'imbibition du spécimen soient identiques.

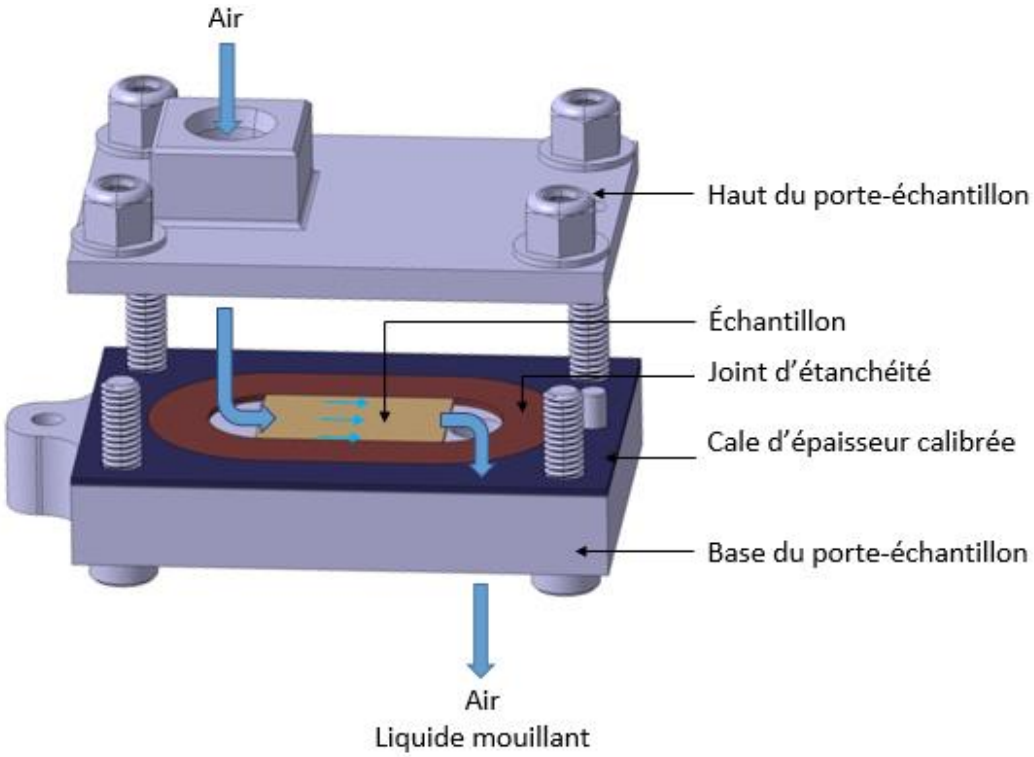


Figure 6.10 : Vue éclatée du nouveau porte-échantillon personnalisé pour la mesure planaire

6.3.2 Résultats pour un renfort en carbone Sigmatex

Deux groupes d'essais avec le renfort en carbone Sigmatex ont été conduits avec le nouveau porte-échantillon : un premier groupe avec 3 plis de renfort et un autre avec 5 plis. Tous les plis sont orientés dans le sens chaîne le long du porte-échantillon. Les échantillons ont une largeur de 18 mm et une longueur de 20 mm. Les deux groupes d'essais ont été effectués avec un même taux de fibres estimatif de 37 %, qui a été expressément choisi proche du taux de fibres naturel du renfort (32 %). La gamme de taille de pores enregistrée dans le logiciel 3GWin varie de 5 à 500 µm, ce qui correspond à une gamme de pression de 1,28 mbars à 0,128 bars avec le Porofil® comme liquide mouillant.

Les exemples présentés à la Figure 6.11 montrent que le débit maximal mesuré pour l'échantillon à 3 plis est inférieur à 6 L/min, tandis que celui à 5 plis est inférieur à 10 L/min. Comme le débit maximal de l'échantillon à 3 plis est plus faible que celui à 5 plis, les données brutes de la Figure 6.11a sont plus bruitées que ceux de la Figure 6.11b. Par conséquent, plus le débit est élevé, moins les données sont bruitées, tout en restant naturellement inférieur à la limite maximale du débitmètre.

Les courbes mouillée et sèche obtenues pour 3 plis se croisent au point correspondant à la plus petite taille de pores et se séparent de nouveau. Il est donc probable que l'échantillon ait bougé lors de l'essai. Il est difficile d'aboutir à la même conclusion pour 5 plis car la gamme de pression prescrite est trop restreinte pour pouvoir observer la suite des courbes mouillée et sèche.

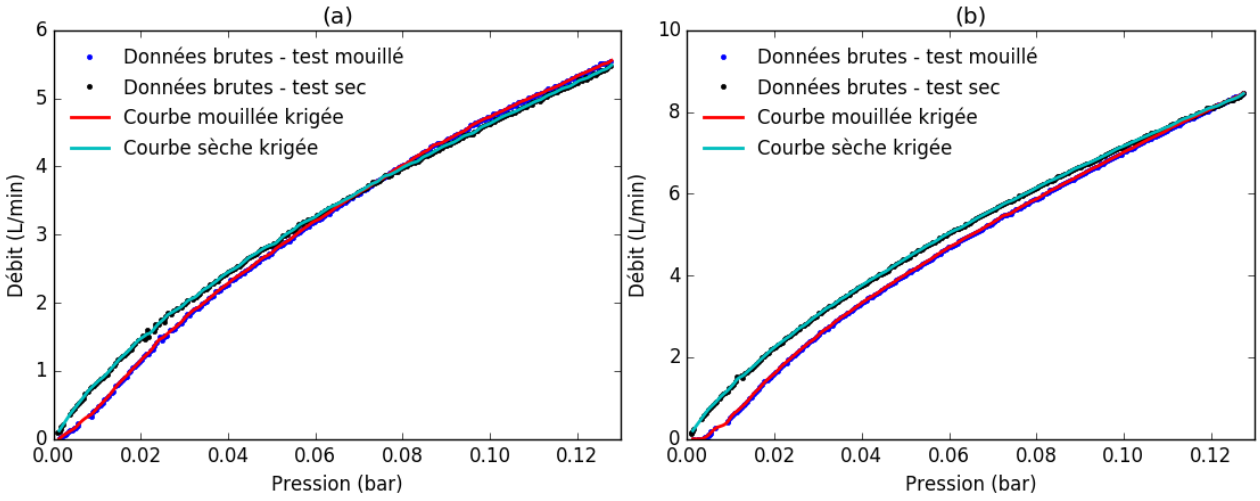


Figure 6.11 : Résultats typiques obtenus avec le nouveau porte-échantillon planaire pour le renfort Sigmatex : (a) trois plis de renfort; (b) cinq plis de renfort

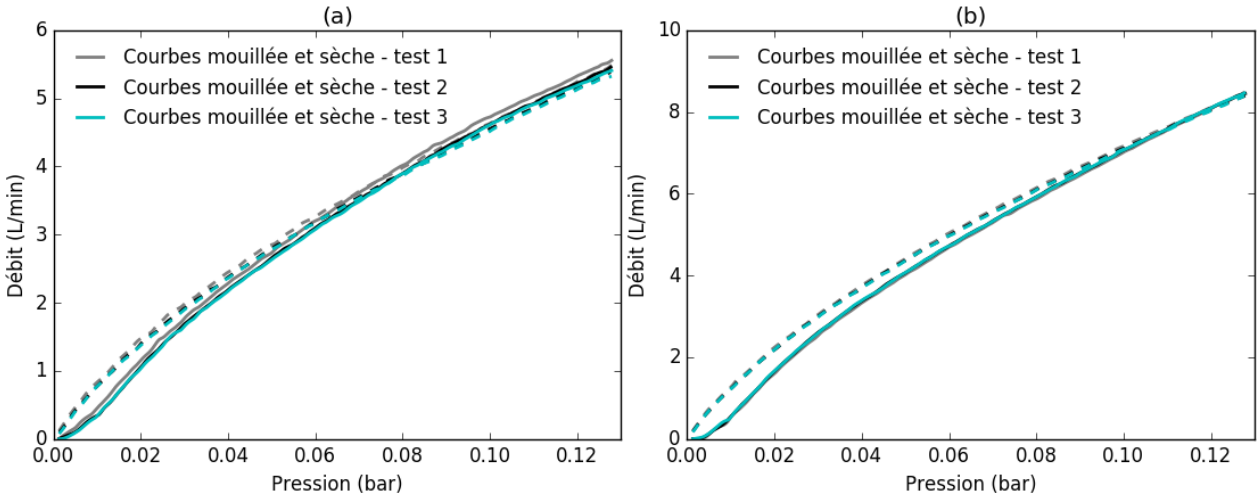


Figure 6.12 : Répétition des essais de caractérisation avec le nouveau dispositif planaire pour un échantillon de Sigmatex : (a) trois plis de renfort; (b) cinq plis de renfort

La Figure 6.12a montre une bonne répétabilité générale des courbes mouillées et sèches pour le groupe à 3 plis malgré le bruit provoqué par le débit très faible. Par contre, le point bulle n'est pas clairement détecté et les courbes mouillées et sèches présentent des ondulations à cause du bruit lors des mesures. Les résultats pour le groupe à 5 plis sont nettement plus répétables comme le montre la Figure 6.12b. Les courbes correspondant aux 3 essais sont en effet presque superposées.

La Figure 6.13 montre que malgré les fluctuations des premiers pics observés, les deux groupes d'essais présentent une distribution bimodale assez similaire. Un premier pic élevé et étendu en largeur représentant les micropores est suivi d'un deuxième plus petit qui représente les mésopores. Le problème de point bulle décrit précédemment dans le cas du groupe à 3 plis est mis en évidence à la Figure 6.13a car les courbes n'atteignent pas zéro après le pic des mésopores.

Même si les courbes ne sont pas parfaitement répétables compte tenu des fluctuations, la moyenne des 3 courbes obtenues pour chaque groupe est présentée à la Figure 6.14. Tel qu'illustré, la taille moyenne des pores mesurée est la même pour un même taux de fibres, mais avec un nombre de plis différent. La taille moyenne des micropores mesurée pour les deux groupes est d'environ 40 µm, tandis que celle des micropores est de l'ordre de 110 µm. Il est important de noter que les deux écart-types (pourcentage de débit et taille de pores) sont présentés dans cette figure pour les mésopores. Ils ne sont pas représentés pour les micropores car il est difficile de les évaluer à cause des fluctuations observées. Toutefois, l'emplacement des pics de micropores ainsi que leur hauteur moyenne sont relativement bien répétables comme illustré à la Figure 6.13.

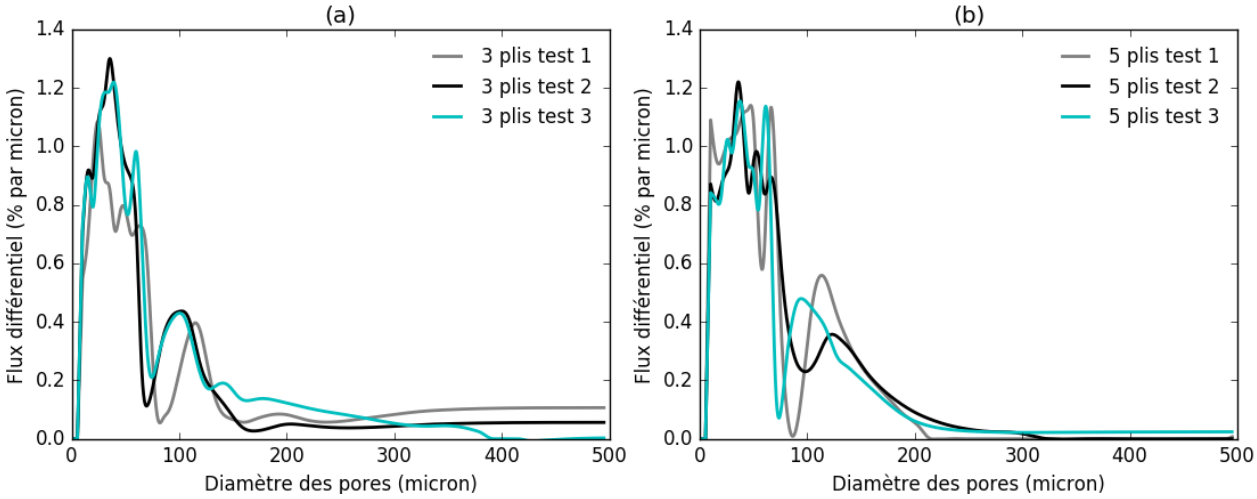


Figure 6.13 : Distribution de la taille des pores obtenue avec le nouveau dispositif planaire pour 3 essais avec un échantillon de renfort Sigmatex : (3) trois plis de renfort; (b) cinq plis de renfort

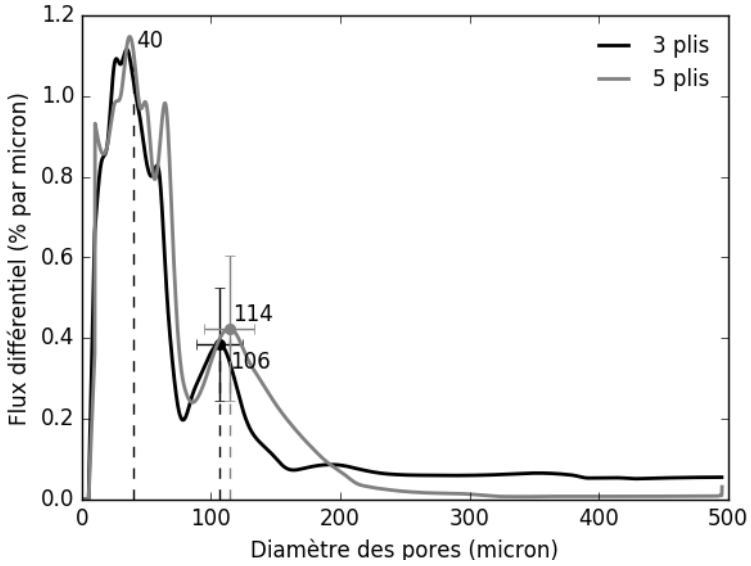


Figure 6.14 : Courbes de distribution de la taille des pores moyenne avec un échantillon de renfort Sigmatex

6.3.3 Comparaison avec les résultats obtenus dans à travers l'épaisseur

La Figure 6.15 montre les résultats obtenus avec 3 plis de renfort Sigmatex pour des mesures à travers l'épaisseur et dans le plan au même taux de fibres estimé de 37 %. Les courbes présentées sont des moyennes de 3 essais. On constate que le résultat à travers l'épaisseur est différent de celui obtenu dans le plan : l'emplacement des pics de micropores et de mésopores ainsi que leur taille varient en fonction du sens de mesure. La taille moyenne effective des mésopores à l'écoulement est plus élevée lors d'une mesure à travers l'épaisseur que dans une mesure planaire. Ceci s'explique par le fait que la taille des pores mesurée par la méthode de drainage par liquide mouillant correspond au diamètre le plus restrictif sur le chemin d'écoulement (voir Figure 2.8). Or le chemin parcouru par l'air est équivalent à l'épaisseur de trois plis (1,7 mm) pour la mesure à travers l'épaisseur tandis qu'il est de 20 mm pour la mesure planaire. La taille moyenne effective des micropores à l'écoulement est sensiblement le même pour les deux mesures.

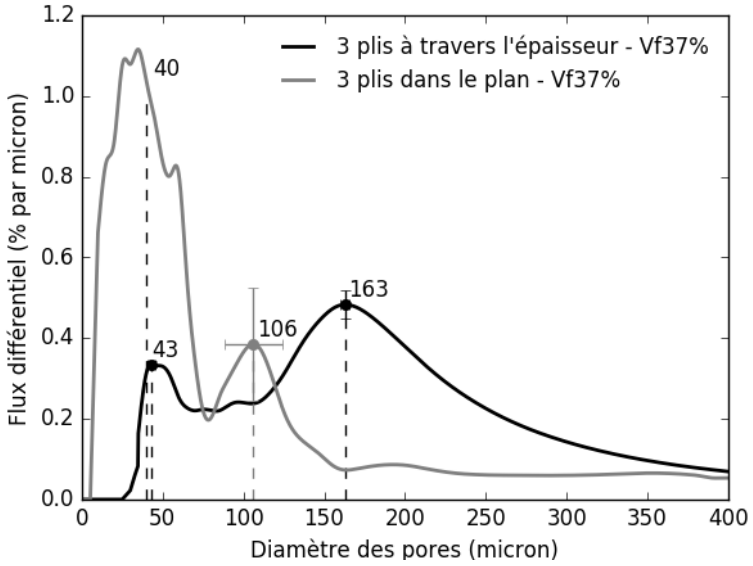


Figure 6.15 : Comparaison des mesures à travers l'épaisseur avec contrôle de taux de fibres et dans le plan pour le renfort Sigmatex

6.3.4 Synthèse sur les mesures avec un porte-échantillon personnalisé

Les mesures réalisées avec le porte-échantillon personnalisé montrent qu'une mesure planaire permet de caractériser la double échelle de porosité d'un renfort fibreux. Il a été mis en évidence que pour un même taux de fibres, mais avec des nombres de plis différents, la même distribution démontrant une porosité effective identique à l'écoulement est obtenue. Toutefois, pour un même taux de fibres, lorsque l'épaisseur de l'échantillon est faible, l'air a du mal à passer à travers l'échantillon, ce qui résulte en un débit plus faible. On a montré que les porosités effectives à l'écoulement mesurées à travers l'épaisseur et dans le plan sont différentes. Cette différence est due à la longueur et à la forme des chemins empruntés par l'écoulement d'air lors des mesures.

6.4 Synthèse de l'étude préliminaire dans le plan

Les premières mesures avec un écoulement radial dans un échantillon circulaire ont permis de mieux comprendre les mécanismes de fonctionnement du porte-échantillon et d'en évaluer les avantages et inconvénients. Remis en question au Chapitre 3, le fait qu'un écoulement radial ne soit pas adapté pour un échantillon fibreux s'est confirmé avec les résultats obtenus dans ce chapitre. En effet, les résultats des premiers essais n'ont pas été concluants et les échantillons

n’étaient pas complètement vidés à la fin des essais. Des solutions ont été imaginées pour pallier à ce problème. Dans le but d’adapter les mesures de porométrie aux cas des renforts fibreux utilisés dans la fabrication des matériaux composites, le porte-échantillon pour mesure planaire a fait l’objet de certaines modifications. Des inserts fabriqués au laboratoire ont été ajoutés à l’intérieur du porte-échantillon et la forme de l’échantillon a été modifiée. Les résultats obtenus avec ce nouveau montage ont permis de conclure qu’une mesure directionnelle est plus appropriée pour les renforts fibreux. Toutefois, le porte-échantillon utilisé présente des limitations, notamment en raison de la taille limitée des échantillons.

Un nouveau porte-échantillon donnant plus de flexibilité au niveau de la taille de l’échantillon et permettant de fixer l’épaisseur a été spécialement conçu pour les renforts fibreux. La conception de ce nouveau porte-échantillon a été réalisée en étroite collaboration avec Quantachrome. Les résultats obtenus montrent que la méthode par drainage d’un liquide mouillant permet de caractériser la double échelle de porosité des renforts fibreux dans le plan. Toutefois, les résultats présentés restent préliminaires. Ils peuvent être améliorés grâce à l’installation d’un débitmètre avec une précision plus élevée pour les débits faibles.

CHAPITRE 7 DISCUSSION GÉNÉRALE

Ce chapitre présente les difficultés rencontrées lors du projet. Il expose une analyse générale des méthodes utilisées et des résultats obtenus. Des suggestions et des recommandations sont également proposées pour la poursuite ultérieure du travail.

7.1 Limitations dues aux capteurs

7.1.1 Capteur de pression

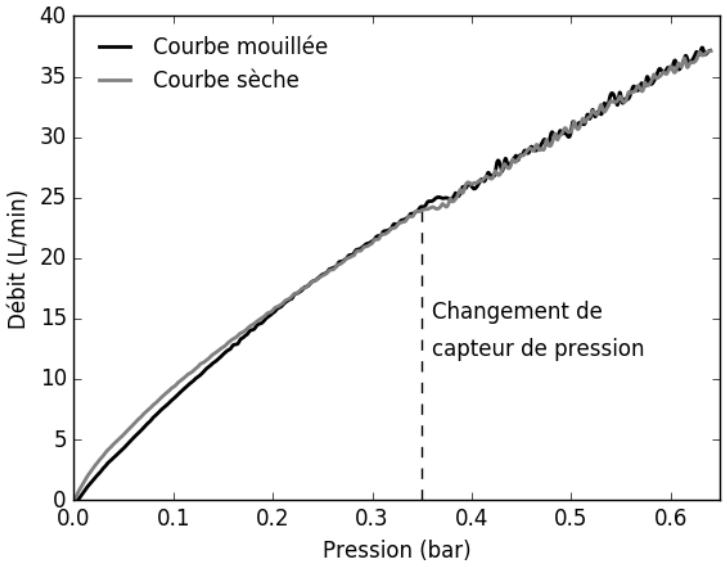


Figure 7.1 : Exemple de courbes montrant que le changement de capteur de pression introduit du bruit (renfort L1402197 de Texonic)

Comme expliqué dans la section 3.1.1 (Description de l'appareil), le poromètre 3Gz est muni de trois capteurs de pression avec trois précisions différentes : 0 à 0,35 bars; 0 à 7,0 bars et 0 à 16 bars. Ces capteurs sont utilisés de manière séquentielle lors d'une mesure. Si une mesure se fait de 0,1 à 12 bars par exemple, le poromètre va utiliser le premier capteur avec précision de 0 à 0,35 bars pour mesurer les pressions dans cette plage de valeurs, puis il va changer de capteur pour la partie 0,35 à 7,0. Il changera une dernière fois de capteur pour les pressions supérieures. Toutefois, le changement de capteur introduit un bruit dans les mesures, tel qu'illustré à la Figure 7.1 dans le

cas d'un renfort en verre 2,5D L1402197 de Texonic. À l'approche de la limite du premier capteur au point de pression 0,35 bars, les courbes mouillée et sèche commencent à osciller. Les fluctuations deviennent plus intenses après le changement de capteur. Pour éviter ces perturbations, les mesures effectuées avec le poromètre dans ce mémoire n'utilisent pas des pressions au-delà de 0,35 bars. Ceci correspond à une taille de pores de 1,83 µm avec le Porofil® comme liquide mouillant. Cette taille de pores représente le minimum détectable en raison de la limite du capteur de pression. Elle convient pour les renforts fibreux.

7.1.2 Capteur de débit

Les mesures effectuées avec le poromètre sont également limitées par la capacité du capteur de débit. Le modèle 3Gz de Quantachrome est muni d'un seul débitmètre pouvant mesurer le débit de 0 à 100 L/min. Pour être le plus précis possible, le débit maximal mesuré lors d'un essai ne doit pas se rapprocher des deux extrêmes de capacité du capteur. Dans le Chapitre 6, un débit relativement faible a été observé. En effet, lorsque le débit maximal mesuré lors d'un essai est proche ou inférieur à 5 % de la capacité du débitmètre, les données obtenues présentent du bruit. Pour améliorer les futurs résultats, surtout pour les essais avec un taux de fibres élevé, il est conseillé d'ajouter un débitmètre supplémentaire avec une précision plus élevée pour les faibles débits.

De même, il convient de faire attention à ne pas dépasser le maximum de capacité du capteur de débit. Ce cas a été souvent rencontré lors du passage du porte échantillon standard de 25 mm de diamètre pour la mesure à travers l'épaisseur au porte-échantillon universel avec le nouveau montage. En effet, comme l'espace à l'intérieur du nouveau montage et la taille de l'échantillon sont beaucoup plus grands qu'avec le porte-échantillon standard de 25 mm, un débit d'air plus élevé est mesuré. Cette limitation a souvent poussé à changer la gamme de pression utilisée lors des mesures, surtout pour les essais avec un pli de renfort avec des taux de fibres faibles.

7.2 Influence du parcours de l'air

Dans le Chapitre 5 et le Chapitre 6, des essais visant à observer l'influence du nombre de plis sur la taille des pores pour des valeurs de taux de fibres proches ont été effectuées à l'aide des nouvelles configurations adaptées aux renforts fibreux. Les essais à travers l'épaisseur ont permis de conclure

que lorsque le nombre de plis augmente, le débit qui passe à travers l'échantillon et la taille des pores mesurée diminuent. En effet, les chemins d'écoulement d'air diffèrent selon le nombre de plis puisque l'épaisseur de l'échantillon change. Des tailles de pore plus petites sont mesurées lorsque le nombre de plis augmente car les chemins d'écoulement d'air sont plus complexes, il est donc plus probable qu'ils comprennent des diamètres plus restrictifs. Par contre, les essais dans le plan avec 3 et 5 plis ont donné des distributions très proches. Étant donné que la valeur du taux de fibres (37 %) et la longueur de l'échantillon (20 mm) sont les mêmes pour les deux essais, les distributions de la taille des pores obtenues sont semblables malgré la différence de débit mesuré (voir paragraphe 6.3.2). Ces essais montrent la dépendance des résultats obtenus par la méthode de drainage d'un liquide mouillant à la longueur du chemin parcouru par l'écoulement d'air. La caractérisation de la porosité effective à l'écoulement mesurée par la méthode de drainage d'un liquide mouillant nécessite encore beaucoup d'investigations pour comprendre l'influence du parcours de l'air à travers le renfort fibreux.

Par ailleurs, les tubes capillaires du modèle équivalent représentent les diamètres les plus restrictifs dans le chemin d'écoulement d'air. Il est donc fort probable que le volume total des pores calculé avec l'hypothèse de pores cylindriques soit plus petit que le volume réel (voir paragraphe 2.2.3). Des comparaisons avec d'autres méthodes de mesures pourront dans le futur amener plus de précision sur cette particularité de la méthode. Des facteurs correctifs pourront par exemple être ajoutés au modèle.

7.3 Influence du temps d'application de la pression

Tous les essais effectués dans ce mémoire ont été effectués avec la version V1.00 du logiciel 3GWin qui ne permet d'obtenir que 256 points de mesure pour les courbes mouillée et sèche. Quantachrome a mis à jour ce logiciel vers une version V2 qui permet de gérer le nombre de points désiré pour chaque mesure et le temps d'application d'une valeur de pression en chaque point. Évaluer l'influence du nombre de points de mesure et du temps d'application de la pression permettra de mieux comprendre les résultats obtenus pour les renforts fibreux et de valider la pertinence de l'utilisation de la méthode par drainage d'un liquide mouillant. Par exemple, il sera intéressant de faire plusieurs essais en arrêtant la mesure à un point particulier et d'évaluer en mesurant la masse de l'échantillon, la quantité de liquide évacuée en fonction du temps

d’application d’une même valeur de pression. La nouvelle version du logiciel offre plus de fonctionnalités que la précédente, mais elle ne permet toujours pas d’obtenir les données mesurées en fonction du temps.

7.4 Vérification du drainage complet de l’échantillon

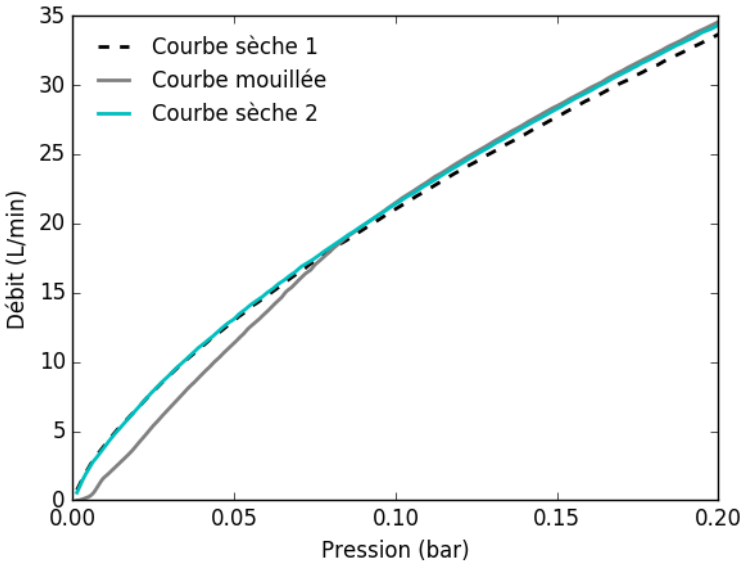


Figure 7.2 : Vérification du drainage de l'échantillon avec un échantillon de renfort Vectorply (mesure à travers l’épaisseur avec le porte-échantillon universel)

Avant de commencer un essai, il faut s’assurer que l’échantillon est complètement imbibé de liquide mouillant sinon le résultat obtenu est faussé. De même, une vérification du drainage complet de l’échantillon permet de conclure de la validité d’un essai. Deux méthodes ont été utilisées pour tenter d’obtenir des informations sur le drainage de l’échantillon après un essai : une méthode par mesures sèche et mouillée successives et une méthode par mesure de masse. La méthode par mesures sèche et mouillée successives consiste à effectuer un essai à sec puis un essai mouillé puis un dernier essai à sec sur un même échantillon pour vérifier si les pentes des courbes sont superposées. L’exemple de la Figure 7.2 montre les résultats obtenus pour un échantillon de renfort Vectorply E-TLX 2220-10. La première courbe sèche est superposée à la deuxième pour des valeurs faibles de pression, mais après elle reste en-dessous. L’origine de ce comportement

n’est pas encore tout à fait clair, mais il est probable qu’elle soit la même que pour le croisement et la non-superposition de certaines courbes mouillées et sèches après le point correspondant à la plus petite taille de pores comme vu dans d’autres chapitres. L’efficacité de cette méthode par essais à sec et mouillé successifs n’est donc pas manifeste.

D’un autre côté, les échantillons ont été pesés avant l’imbibition et après l’essai dans la mesure où cette manipulation ne les déformait pas. Par exemple, aucune vérification de masse n’a été effectué pour les essais dans le plan car l’échantillon de renfort découpé est très fragile et se défait facilement. Les mesures de masse effectuées avec des échantillons de matériaux poreux que Quantachrome utilise comme échantillon de référence tel que le métal fritté (voir Annexe C) montrent qu’il ne reste que 0 à 1 % de la masse de l’échantillon en liquide mouillant après un essai. Le liquide mouillant peut donc être considéré comme complètement évacué pour les matériaux poreux non fibreux. Pour le cas des renforts fibreux, les résultats obtenus pour les mesures à travers l’épaisseur avec le porte-échantillon de 25 mm de diamètre sont assez dispersés. Par exemple, pour un même type d’essai utilisant le renfort Sigmatex, avec le même nombre de pli, les mêmes paramètres de contrôle du logiciel 3GWin et les mêmes gammes de pression appliquées, il reste environ 1 à 20 % de la masse de l’échantillon en liquide mouillant. Il est difficile de localiser cette quantité de liquide restant dans l’échantillon, mais il est fort probable que le liquide mouillant initialement au niveau de la périphérie de l’échantillon ne soit pas complètement vidé à cause du joint torique qui vient appuyer sur l’échantillon sur les bords et de la forme du haut du porte-échantillon qui réduit l’accessibilité de l’air aux bords de l’échantillon. Ces résultats remettent encore une fois en cause la taille effective de l’échantillon dans le porte-échantillon de 25 mm de diamètre. Par contre, les mesures de masse effectuées pour les essais avec le porte-échantillon universel semblent donner de meilleurs résultats. Par exemple, pour les essais avec 3 plis de renforts Vectorply à différents taux de fibres, il ne reste qu’entre 0 et 1 % de la masse de l’échantillon en quantité de liquide. Des essais effectués avec 3 plis de renfort Sigmatex ont également permis d’aboutir à la même conclusion. Cependant, des essais avec un pli de renfort Vectorply ont donné une différence de masse entre 3 et 10 %. Ces résultats pour un pli avec le porte-échantillon universel sont meilleurs que ceux obtenus avec le porte-échantillon de 25 mm de diamètre, mais restent toutefois élevés pour dire que l’échantillon est drainé au complet. La méthode par mesure de masse reste le moyen le plus simple pour vérifier si l’échantillon est complètement vidé à la fin de la mesure. Les données recueillies à l’aide du porte-échantillon

universel ne permettent pas pour le moment de dire pourquoi la différence de masse peut monter jusqu'à 10 % dans certains cas particuliers. Pour comprendre ce phénomène, des essais durant lesquels une valeur constante de pression serait appliquée pour une très longue durée de temps pourraient être effectuées avec la nouvelle version du logiciel. De même, il serait intéressant de faire différents essais en arrêtant la mesure à plusieurs points où l'échantillon ne serait pas encore totalement vidé et de suivre l'évolution de la masse de l'échantillon.

7.5 Améliorations possibles du programme Python

Pour améliorer le programme Python, il serait intéressant d'inclure le krigeage des dérivées dans les fonctions de krigeage déjà existantes. En effet, le krigeage est un outil mathématique simple qui permet de construire des fonctions d'interpolation en tenant compte des valeurs de dérivées aux points de mesure ou en dehors. L'ajout de cette fonction permettrait par exemple de construire un point bulle au début de certaines courbes mouillées en imposant une dérivée nulle au premier point de mesure. L'ajout d'une contrainte de dérivée ne change pas la nature de la fonction d'interpolation construite par krigeage dual.

CHAPITRE 8 CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS

Les travaux réalisés au cours de ce travail de maîtrise ont permis de valider les hypothèses émises au début du projet. Les résultats des mesures à travers l'épaisseur et dans le plan permettent d'aboutir à la conclusion que la porométrie par drainage d'un liquide mouillant permet de caractériser la double échelle de porosité des renforts fibreux utilisés dans la fabrication des matériaux composites. Les distributions de taille des pores obtenues présentent une allure bimodale. De plus, la hauteur des pics de micropores et de mésopores ainsi que leurs positions changent en fonction de l'architecture du renfort. Il a été également démontré que la porosité effective à l'écoulement est différente selon la direction de mesure. En effet, la distribution de la taille des pores obtenue par drainage d'un liquide mouillant dépend du parcours de l'air à travers l'échantillon, car seul le diamètre le plus faible le long du chemin d'écoulement de l'air est mesuré. Finalement, les essais à travers l'épaisseur avec différents taux de fibres ont permis de vérifier que lorsque le taux de fibres augmente, la taille des pores mesurée diminue.

Toutefois, il reste encore des questions ouvertes. Par exemple, quels sont les volumes de micropores et de mésopores dans le renfort ? Ces recherches n'en sont qu'à leur début; des recherches futures pourront apporter des précisions sur certains points, entre autres, la pertinence de l'hypothèse de cylindricité des pores pour les renforts fibreux. Les résultats obtenus pourront par exemple être comparés à d'autres méthodes de caractérisation telles que la reconstruction 3D par analyse d'images à partir de résultats de microtomographie aux rayons-X. Des facteurs de correction comme la tortuosité pourront par exemple être ajoutés dans le cas où une différence significative pourrait exister entre les mesures. La capacité du capteur de débit du poromètre utilisé pour les expériences a aussi beaucoup limité les mesures. Il est recommandé aussi d'ajouter un débitmètre plus précis et de faire une mise à jour du logiciel qui accompagne le poromètre. De nouvelles fonctionnalités comme l'introduction du krigeage comme méthode d'interpolation dans le logiciel 3GWin pourront être proposées à l'entreprise Quantachrome. Enfin, le porte-échantillon personnalisé pour la mesure planaire pourrait être développé commercialement dans le cas des matériaux poreux compressibles en général.

LISTE DES RÉFÉRENCES

Abdelwahed, M. A. B., Wielhorski, Y., Bizet, L., & Breard, J. (2014). Bubble formation and transport in T-junction for application to Liquid Composite Molding: Wetting effect. *Journal of Composite Materials, 48*(1), 37-48. doi: 10.1177/0021998312467553

AlMarzooqi, F., Bilad, M., Mansoor, B., & Arafat, H. (2016). A comparative study of image analysis and porometry techniques for characterization of porous membranes. *Journal of Materials Science, 51*(4), 2017-2032. doi: 10.1007/s10853-015-9512-0

ASTM D1777-96 Standard Test Method for Thickness of Textile Materials (Reapproved 2015).

ASTM F3016-03 Standard Test Methods for Pore Size Characteristics of Membrane Filters by Bubble Point and Mean Flow Pore Test.

Calvo, J. I., Peinador, R. I., Pradanos, P., Palacio, L., Bottino, A., Capannelli, G., & Hernandez, A. (2011). Liquid-liquid displacement porometry to estimate the molecular weight cut-off of ultrafiltration membranes. *Desalination, 268*(1-3), 174-181. doi: 10.1016/j.desal.2010.10.016

Carman, P. (1937). Fluid flow through granular beds. *Transactions of the Institution of Chemical Engineers, 15* 150-166.

Choong, L. T., Yi, P., & Rutledge, G. C. (2015). Three-dimensional imaging of electrospun fiber mats using confocal laser scanning microscopy and digital image analysis. doi: 10.1007/s10853-015-8834-2

Daïan, J.-F. (2007). *Porométrie au mercure . Le modèle XDQ*

Ellouze, F., Amar, N. B., & Deratani, A. (2015). Étude comparative de deux méthodes de caractérisation de membranes d'ultrafiltration et de nanofiltration : la porométrie bi-liquide et le transport de solutés neutres. *Comptes Rendus Chimie, 18*(5), 482-491. doi: http://dx.doi.org/10.1016/j.crci.2014.10.009

Ferreira, L. M., Graciani, E., & París, F. (2014). Modelling the waviness of the fibres in non-crimp fabric composites using 3D finite element models with straight tows. *Composite Structures, 107* 79-87. doi: http://dx.doi.org/10.1016/j.compstruct.2013.07.038

Fredrich, J. T., Menendez, B., & Wong, T. F. (1995). Imaging the pore structure of geomaterials. *Science, 268*(5208), 276-276.

Gay, D. (1991). *Matériaux composites* (3ème[e] éd.).

Ghazanfari, M. H., Rashtchian, D., Kharrat, R., & Vossoughi, S. (2007). Capillary pressure estimation using statistical pore size functions. *Chemical Engineering & Technology, 30*(7), 862-869. Tiré de http://onlinelibrary.wiley.com/doi/10.1002/ceat.200700027/abstract

Gigova, A. (2006). Investigation of the porous structure of battery separators using various porometric methods. *Journal of Power Sources, 158*(2 SPEC. ISS.), 1054-1061. doi: 10.1016/j.jpowsour.2005.11.006

Jena, A. K., & Gupta, K. M. (2000). In-plane and through-plane porosity in coated textile materials. *Journal of industrial textiles, 29* 317-326. Tiré de http://pmiappeurope.com/publications/docs/InplaneThroughPlane.pdf

Jena, A. K., & Gupta, K. M. (1999). In-plane compression porometry of battery separators. *Journal of Power Sources, 80*(1), 46-52. doi: 10.1016/S0378-7753(99)00163-9

Kozeny, J. (1927). Ueber kapillare Leitung des Wassers im Boden. *Sitzungsber Akad Wiss Wien, 136 (2a)* 271-306.

Krige, D. G. (1952). Statistical approach to some basic mine valuation problems on Witwatersrand. *Chemical, Metallurgical, and Mining Society of South Africa -- Journal, 53*(2), 43-44.

Lawrence, J. M., Neacsu, V., & Advani, S. G. (2009). Modeling the impact of capillary pressure and air entrapment on fiber tow saturation during resin infusion in LCM. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 40*(8), 1053-1064. doi: 10.1016/j.compositesa.2009.04.013

LeBel, F., Fanaei, A. E., Ruiz, E., & Trochu, F. (2014). Prediction of optimal flow front velocity to minimize void formation in dual scale fibrous reinforcements. *International Journal of Material Forming, 7*(1), 93-116. doi: 10.1007/s12289-012-1111-x

Leclerc, J. S., & Ruiz, E. (2008). Porosity reduction using optimized flow velocity in Resin Transfer Molding. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 39*(12), 1859-1868. doi: 10.1016/j.compositesa.2008.09.008

Li, D., Frey, M., & Joo, Y. (2006). Characterization of nanofibrous membranes with capillary flow porometry. *Journal of Membrane Science, 286*(1-2), 104-114. doi: 10.1016/j.memsci.2006.09.020

Lydon, R., Mayer, E., & Dideal, G. R. (2004). Comparative Methods for the pore size distribution of woven and metal filter media. *WCF9*. Tiré de http://www.mkicorp.com/PDFs/whs/Comparative%20Methods%20for%20the%20Pore%20Size%20Distribution%20of%20Woven%20and%20Metal%20Filter%20Media.pdf

Madra, A., Hajj, N. E., & Benzeggagh, M. (2014). X-ray microtomography applications for quantitative and qualitative analysis of porosity in woven glass fiber reinforced thermoplastic. *Composites Science and Technology, 95* 50-58. doi: 10.1016/j.compscitech.2014.02.009

Mahadik, Y., Brown, K. A. R., & Hallett, S. R. (2010). Characterisation of 3D woven composite internal architecture and effect of compaction. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 41*(7), 872-880. doi: 10.1016/j.compositesa.2010.02.019

Manickam, S., & McCutcheon, J. (2012). Characterization of polymeric nonwovens using porosimetry, porometry and X-ray computed tomography. *Journal of Membrane Science, 407-408* 108-115. doi: 10.1016/j.memsci.2012.03.022

Mertens, G., & Elsen, J. (2006). Use of computer assisted image analysis for the determination of the grain-size distribution of sands used in mortars. *Cement and Concrete Research, 36*(8), 1453-1459. doi: 10.1016/j.cemconres.2006.03.004

Michaud, V. (2016). A Review of Non-saturated Resin Flow in Liquid Composite Moulding processes. 1-21. doi: 10.1007/s11242-016-0629-7

Miller, B., & Tyomkin, I. (1994). Liquid Porosimetry: New Methodology and Applications. *Journal of Colloid and Interface Science, 162*(1), 163-170. doi: http://dx.doi.org/10.1006/jcis.1994.1021

Ngo, N. D., & Tamma, K. K. (1999). Microscale permeability predictions of porous fibrous media. *American Society of Mechanical Engineers, Applied Mechanics Division, AMD, 233* 67-82.

Oger, S. (2012). *Analyse de la taille et distribution des pores dans un renfort fibreux par porométrie*. Rapport de stage.

Omollo, E., Zhang, C., Mwasiagi, J. I., & Ncube, S. (2016). Electrospinning cellulose acetate nanofibers and a study of their possible use in high-efficiency filtration. *Journal of Industrial Textiles, 45*(5), 716-729. doi: 10.1177/1528083714540696

Peinador, R. I., Calvo, J. I., ToVinh, K., Thom, V., Pradanos, P., & Hernandez, A. (2011). Liquid-liquid displacement porosimetry for the characterization of virus retentive membranes. *Journal of Membrane Science, 372*(1-2), 366-372. doi: 10.1016/j.memsci.2011.02.022

Potluri, P., Hogg, P., Arshad, M., Jetavat, D., & Jamshidi, P. (2012). *Influence of fibre architecture on impact damage tolerance in 3D woven composites* (vol. 19, p. 799-812). doi: 10.1007/s10443-012-9256-9

Potluri, P., Ramgulam, R., Chilo, M., & Arshad, H. (2012). *Tow-scale mechanics for composite forming simulations.* Communication présentée à 15th Conference of the European Scientific Association on Material Forming, ESAFORM 2012, March 14, 2012 - March 16, 2012, Erlangen, Germany (vol. 504-506, p. 255-260). doi: 10.4028/www.scientific.net/KEM.504-506.255

Sencu, R. M., Yang, Z., Wang, Y. C., Withers, P. J., Rau, C., Parson, A., & Soutis, C. (2016). Generation of micro-scale finite element models from synchrotron X-ray CT images for multidirectional carbon fibre reinforced composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 91* 85-95. doi: 10.1016/j.compositesa.2016.09.010

Shigidi. (2014). The use of bubble point test in membrane characterisation. *American Journal of Science and Technology*. Tiré de http://www.aascit.org/journal/ajst

Stamopoulos, A. G., Tserpes, K. I., Prucha, P., & Vavrik, D. (2015). Evaluation of porosity effects on the mechanical properties of carbon fiber-reinforced plastic unidirectional laminates by X-ray computed tomography and mechanical testing. *Journal of Composite Materials, 50*(15), 2087-2098. doi: 10.1177/0021998315602049

Straumit, I., Hahn, C., Winterstein, E., Plank, B., Lomov, S. V., & Wevers, M. (2016). Computation of permeability of a non-crimp carbon textile reinforcement based on X-ray computed

tomography images. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 81* 289-295. doi: 10.1016/j.compositesa.2015.11.025

Tran, T., Comas-Cardona, S., Abriak, N.-E., & Binetruy, C. (2010). Unified microporomechanical approach for mechanical behavior and permeability of misaligned unidirectional fiber reinforcement. *Composites Science and Technology, 70*(9), 1410-1418. doi: 10.1016/j.compscitech.2010.04.023

Trochu, F. (1993). A contouring program based on dual kriging interpolation. *Engineering with Computers, 9*(3), 160-177. doi: 10.1007/BF01206346

Trochu, F., Gauvin, R., & Zhang, Z. (1992). *Simulation of mold filling in resin transfer molding by non-conforming finite elements.* Communication présentée à 3rd International Conference on Computer Aided Design in Composite Material Technology - CADCOMP 92, Newark, DE, USA (p. 109-120).

Vernet, N., & Trochu, F. (2015). In-plane and through-thickness permeability models for three-dimensional Interlock fabrics. *Journal of Composite Materials, 50*(14), 1951-1969. doi: 10.1177/0021998315597989

Vernet, N., & Trochu, F. (2016). Analysis of mesoscopic pore size in 3D-interlock fabrics and validation of a predictive permeability model. *Journal of Reinforced Plastics and Composites, 35*(6), 471-486. doi: 10.1177/0731684415617537

Vilà, J., Gonzalez, C., & Llorca, J. (2014). A level set approach for the analysis of flow and compaction during resin infusion in composite materials. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 67* 299-307. doi: 10.1016/j.compositesa.2014.09.002

Vilà, J., Sket, F., Wilde, F., Requena, G., Gonzalez, C., & Llorca, J. (2015). An in situ investigation of microscopic infusion and void transport during vacuum-assisted infiltration by means of X-ray computed tomography. *Composites Science and Technology, 119*. doi: 10.1016/j.compscitech.2015.09.016

Wang, Q., Bai, Y., Xie, J., Jiang, Q., & Qiu, Y. (2016). Synthesis and filtration properties of polyimide nanofiber membrane/carbon woven fabric sandwiched hot gas filters for removal of PM 2.5 particles. *Powder Technology, 292* 54-63. doi: 10.1016/j.powtec.2016.01.008

Wang, Z., & Pan, Z. (2015). Preparation of hierarchical structured nano-sized/porous poly(lactic acid) composite fibrous membranes for air filtration. Applied Surface Science, 356 1168-1179. doi: 10.1016/j.apsusc.2015.08.211

ANNEXE A – RÉGLAGES DES PARAMÈTRES DE CONTRÔLE DANS LE LOGICIEL 3GWIN V1.00

Une démarche a été entreprise tout au long des travaux avec le poromètre 3Gz de Quantachrome afin d'obtenir de meilleurs résultats de mesure de la taille de pores des renforts fibreux. Les premiers essais ont permis d'observer l'allure générale des courbes et d'analyser les résultats en profondeur. Cette partie présente un problème non négligeable rencontré et décrit certaines solutions qui pourraient être apportées et qui font intervenir deux paramètres de contrôle dans le logiciel 3GWin V1.00. Les corrections qui pourraient être appliquées aux mesures sont donc expliquées ici en faisant varier les valeurs de ces paramètres de contrôle.

Dans cette partie, toutes les expériences sont effectuées avec le tissu en carbone de Sigmatex SC6221270, avec le porte-échantillon standard de 25 mm de diamètre pour mesure à travers l'épaisseur. La gamme de taille de pores enregistrée dans le logiciel est de 8 à 500 microns, ce qui correspond à une pression de consigne de 1,28 mbars à 0,080 bars.

Présentation du problème

- Comme expliqué au Chapitre 4, la version V1.00 du logiciel 3GWin permet d'appliquer la gamme de pression prescrite en 255 incréments à partir de la plus petite valeur, ce qui correspond à 256 points chacun pour les courbes mouillée et sèche. C'est un nombre de points par défaut qui ne peut être changé dans cette version du logiciel. De plus, le temps d'application d'une valeur de pression varie au cours d'un essai. Le temps exact pour atteindre une certaine pression de consigne ainsi que le temps de son maintien ne sont donc pas connus. Le logiciel 3GWin V1.00 permet néanmoins de prolonger le temps d'application de la pression à l'aide d'un paramètre de contrôle appelé Pressure Increment Rate (PIR).
- Dans la majorité des essais effectués, le poromètre n'arrive pas à appliquer la pression de consigne cible lorsque la pression est faible. La pression réelle reste inférieure à la pression prescrite. Ceci est dû au fait que le temps alloué par le poromètre pour incrémenter la pression et la garder à une certaine valeur est trop faible. Ce phénomène est surtout rencontré lors de la mesure mouillée. Pour illustrer cette singularité, prenons la Figure A.1 qui présente la pression réellement appliquée en fonction de la pression de consigne pour les deux mesures mouillée et sèche lors d'un essai avec le renfort en carbone Sigmatex SC6221270. Les courbes sont linéaires

le long de tout l'intervalle de pression sauf pour les valeurs très faibles. La solution à ce problème consiste à augmenter le temps de mesure pour que le poromètre ait le temps d'atteindre la pression ciblée. À cette fin, les valeurs de deux paramètres de contrôle du logiciel 3GWin V1.00 peuvent être modifiées : le Pressure Increment Rate (PIR) et le High Flow Low Pressure Factor (HFLPF).

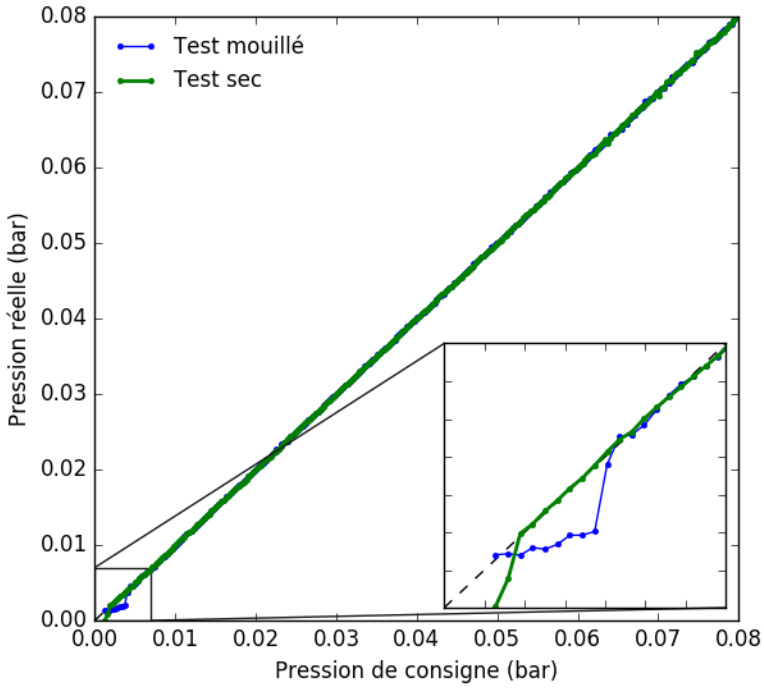


Figure A.1 : Exemple montrant la différence entre la pression réelle et la pression de consigne lors d'un essai avec les paramètres de contrôle par défaut pour le renfort Sigmatex

Pressure Increment Rate (PIR)

Le *Pressure Increment Rate* (PIR) est un paramètre propre au logiciel 3GWin V1.00. Sa valeur par défaut est 1. Diminuer sa valeur permet d'augmenter le temps alloué au poromètre pour incrémenter une valeur de pression et la maintenir. Diminuer le PIR permet de donner le temps au poromètre d'évacuer tout le liquide dans les pores de diamètre correspondant, ce qui est un réel avantage. En effet, lorsque le temps d'application d'une pression est trop court, les pores de la taille correspondante à la pression ne sont pas tous vidés. En contrepartie, entre deux points de mesure consécutifs, la façon dont la pression a augmenté n'est pas connue parce que le logiciel 3GWin ne

donne pas les données temporelles. Dans ce cas, il est impossible de savoir s'il y a eu une grande fluctuation de pression entre deux points de mesure.

High Flow Low Pressure Factor (HFLPF)

Le *High Flow Low Pressure Factor* (HFLPF) permet de faire la même chose que le PIR, mais seulement pour des valeurs faibles de pression. Sa valeur par défaut est 1.5. Il faut accroître ce paramètre pour augmenter le temps entre deux points de mesure au début de la courbe. La forme des mésopores dans les renforts fibreux utilisés pour la fabrication des matériaux composites est assez éloignée du modèle cylindrique supposé par l'équation de Laplace-Young. Les mésopores sont plus « ouverts ». Ainsi, le liquide mouillant contenu dans ces mésopores est plus sensible à la pression que les pores de forme cylindrique. Il est donc important d'ajuster le HFLPF lors d'un essai pour obtenir plus de précision au niveau du point bulle. Noter que ceci n'est pas facile à obtenir pour les renforts fibreux.

Optimisation des valeurs des paramètres PIR et HFLPF

Une série d'expériences a été menée afin de voir d'une manière indépendante l'influence des paramètres PIR et HFLPF sur les résultats. Les essais ont permis de conclure que modifier un seul des paramètres ne donne pas de résultats satisfaisants pour respecter de la pression de consigne. Un compromis entre les deux valeurs est donc mieux adapté pour que la pression réellement appliquée reste le plus proche possible de la pression de consigne. Pour le cas du Sigmatex SC6221270 montré à la Figure A.2, les valeurs des paramètres de contrôle permettant d'obtenir les courbes les plus linéaires possibles sont : PIR = 0,05 et HFLPF = 2,5.

Les essais ont aussi permis de conclure qu'il n'y a pas de valeurs optimales fixes de PIR et de HFLP qui correspondent à toutes les mesures effectuées. Les valeurs de ces deux paramètres de contrôle doivent donc être adaptées en fonction des résultats obtenus pour chaque échantillon.

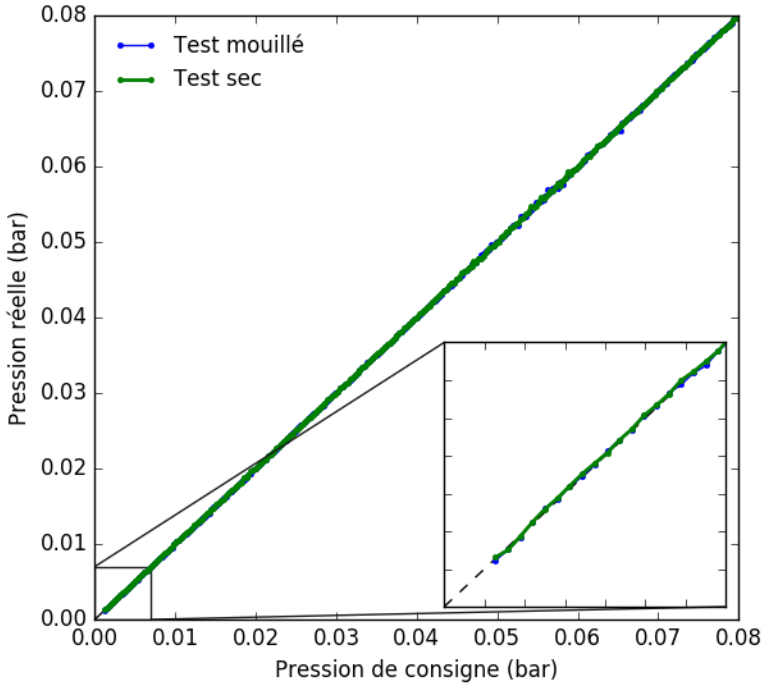


Figure A.2 : Exemple montrant le respect de la pression de consigne lors d'un essai avec les paramètres de contrôle modifiés pour le renfort Sigmatex

ANNEXE B – DIFFICULTÉS RENCONTRÉES DANS LE POST-TRAITEMENT AVEC LE LOGICIEL 3GWIN

Dans cette partie, tous les essais ont été effectués avec le tissu en carbone SC6221270 de Sigmatex, en utilisant le porte-échantillon standard de 25 mm de diamètre pour la mesure à travers l'épaisseur. La gamme de taille des pores assignée au logiciel pour les mesures va de 8 à 500 microns, ce qui correspond à une pression de consigne de 1,28 mbars à 0,080 bars.

Lors d'un essai avec le poromètre 3Gz de Quantachrome, les données expérimentales sont enregistrées à l'aide du logiciel 3GWin. Ces données correspondent au débit d'air qui passe à travers l'échantillon en fonction de la pression appliquée qui est mesuré deux fois : une première fois lorsque l'échantillon est initialement imbibé de liquide mouillant, puis une seconde fois lorsque tout le liquide a été évacué (voir paragraphe 2.2.1). Ces données sont traitées ensuite pour obtenir la distribution de la taille des pores dans l'échantillon (voir paragraphe 2.2.2). Le logiciel 3GWin permet de faire ce traitement, mais il introduit plusieurs modifications dans les données qui peuvent changer les résultats obtenus d'une manière significative :

- Les courbes de 3GWin sont tracées en fonction de la pression de consigne et non de la pression réellement appliquée. Comme les données expérimentales n'atteignent jamais parfaitement les valeurs de consigne, tracer les courbes en fonction de la pression de consigne peut biaiser les résultats. De plus, on vu à l'Annexe A que dans le cas de certains essais, la pression réellement appliquée par le poromètre n'arrive pas à atteindre la pression de consigne cible pour de faibles valeurs de pression, mais reste inférieure (voir Figure A.1). Dans ce cas, les points de la courbe de distribution correspondant aux plus grandes tailles de pores sont modifiés. La Figure B.1 permet d'illustrer la différence qu'apporte ce point sur la courbe mouillée pour le même essai que celui présenté à la Figure A.1.
- Les données des courbes mouillées et sèches tracées par 3GWin qui sont déjà tracées en fonction de la pression de consigne, sont de plus lissées pour les faibles pressions à l'aide de la méthode de lissage LOWESS (« *locally weighted scatterplot smoothing* »). D'après Quantachrome, la méthode LOWESS est un produit commercial vendu par un tiers. Il n'y donc a aucun moyen de savoir comment cette méthode fonctionne. Toutefois, en traçant les courbes mouillées non lissée et lissée ensemble en fonction de la pression de consigne comme à la Figure B.2, on peut évaluer

les valeurs de taille des pores qui sont affectées. Par exemple, dans le cas de l'échantillon de renfort en carbone présenté, les tailles de pore à partir d'environ 108 microns jusqu'à 500 microns sont affectées par le lissage.

- La version V1.00 du logiciel 3GWin permet de mesurer les courbes mouillées et sèches en 256 points. Lors du passage des courbes mouillées et sèches (déjà lissées par LOWESS et exprimées en fonction de la pression de consigne) vers les courbes cumulative et différentielle de taille des pores, les 256 points sont réduits à 100 d'une manière inconnue. Ceci engendre une fois de plus une perte d'information et de précision. Pour illustrer le problème, prenons l'exemple d'une courbe de distribution de la taille des pores d'un échantillon de renfort en carbone de Sigmatex tracée avec le logiciel 3GWin (Figure B.3). Certains points parmi les 100 constituant la courbe sont obtenus par une méthode d'interpolation qui introduit des sauts. Ainsi, la courbe présente une forme en escalier pour les grandes tailles de pores. De plus, comme le diamètre des pores du modèle cylindrique équivalent est inversement proportionnel à la pression, les points de la courbe de distribution de la taille des pores correspondants aux deux premiers points des courbes mouillée et sèches sont très éloignés (environ 100 microns de différence). Ainsi, les courbes tracées par le logiciel 3GWin ne sont pas directement exploitables.

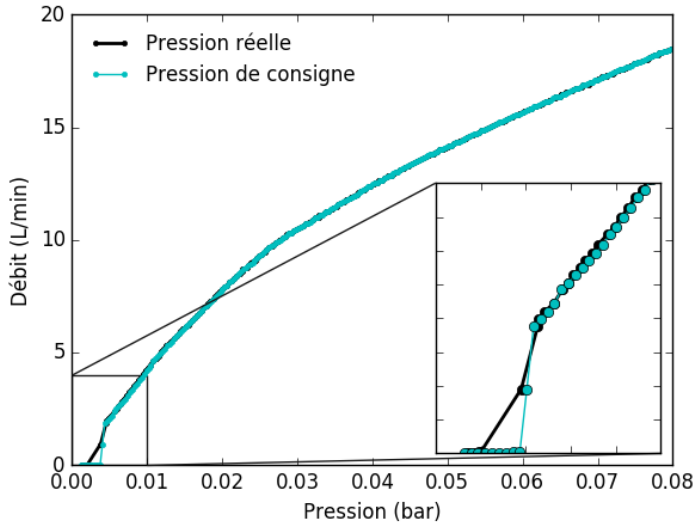


Figure B.1 : Influence de la différence entre la pression réelle et la pression de consigne sur la courbe mouillée pour un échantillon de renfort Sigmatex

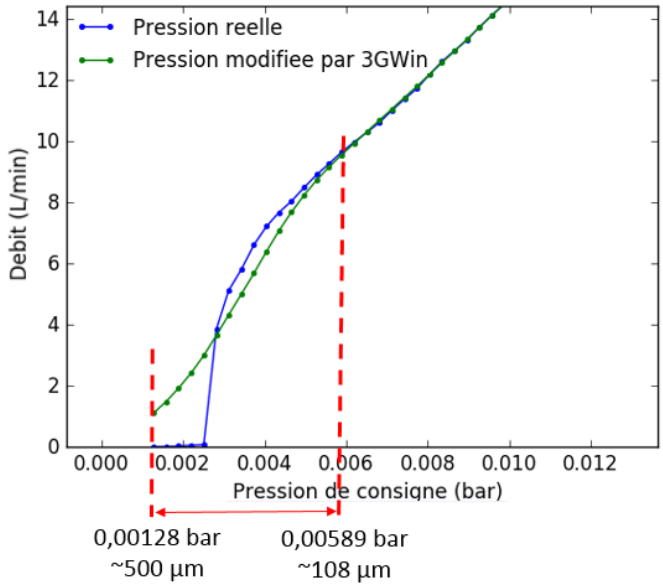


Figure B.2 : Influence du lissage de la courbe mouillée par le logiciel 3GWin pour un échantillon de renfort Sigmatex

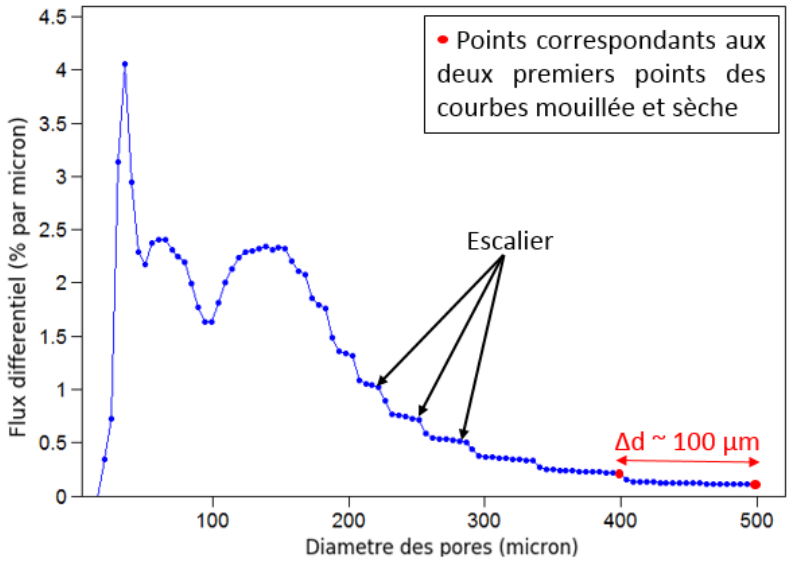


Figure B.3 : Exemple de distribution montrant les 100 points calculés par le logiciel 3GWin et des sauts pour un échantillon de renfort Sigmatex

Pour toutes les raisons citées, un programme en Python a été développé pour traiter les données expérimentales. Les valeurs de pression manipulées dans ce programme sont les données réellement mesurées. Le fonctionnement de ce code est expliqué dans le Chapitre 4.

ANNEXE C – COMPARAISON DE LIQUIDES MOUILLANTS AVEC UN ÉCHANTILLON DE MÉTAL FRITTÉ

Les essais qui suivent ont pour but d'évaluer si les résultats obtenus avec l'hexadécane sont comparables, voire meilleurs, que ceux obtenus avec le Porofil®. La motivation de cette étude est le coût du Porofil® relativement élevé. L'hexadécane est un liquide mouillant dont l'angle de contact est nul avec la plupart des solides. La viscosité de l'hexadécane utilisé lors des essais est 0,0345 Pa.s. Il est donc plus visqueux que le Porofil® (0,025 Pa.s). La tension de surface de l'hexadécane est 0,0275 N/m, ce qui est aussi plus élevée que celle du Porofil® (0,016 N/m). Dans la suite, les mesures ont été effectuées avec le porte-échantillon standard de 25 mm de diamètre pour mesure à travers l'épaisseur.

Échantillon de métal fritté

Les échantillons de métal fritté sont fabriqués en chauffant une poudre de métal préalablement comprimée sans aller jusqu'à la fusion pour que les grains se soudent entre eux sous l'effet de la chaleur. Ce procédé de fabrication permet d'obtenir un matériau poreux rigide et non compressible. La Figure C.1 montre une photo de l'échantillon de métal fritté utilisé pour la comparaison des deux liquides mouillant. Son diamètre est 25 mm et son épaisseur 1,6 mm. La taille moyenne des pores dans un composant métallique fritté est variable, allant de 2 à 210 microns[3].

Tests de répétabilité avec le Porofil®

L'échantillon de métal fritté choisi pour la comparaison est recommandé par Quantachrome comme échantillon de référence parce qu'il s'agit d'un matériau non déformable. De plus, les essais conduits avec le Porofil® comme liquide mouillant ont montré que les résultats obtenus sont tout à fait répétables (voir Figure C.2).

Lors de l'expérience, le liquide mouillant effectue un parcours long et sinueux à travers le réseau de pores de l'échantillon. Sachant que seule la taille minimale des pores dans un parcours est

---

[3] *Filtres et pièces métalliques poreux*. Disponible: http://www.ames-sintering.com/fr/products/porous-elements/ le 18/10/2016

détectée par la méthode de mesure par drainage de liquide mouillant (voir paragraphe 2.2.3), il est légitime de se poser la question de l'influence du sens de l'échantillon. Des essais ont été effectués sur les deux faces de l'échantillon. D'après les résultats obtenus, le sens de mesure de l'échantillon ne change rien à l'allure des courbes ni à la distribution de la taille des pores finale.

Figure C.1 : Échantillon de métal fritté

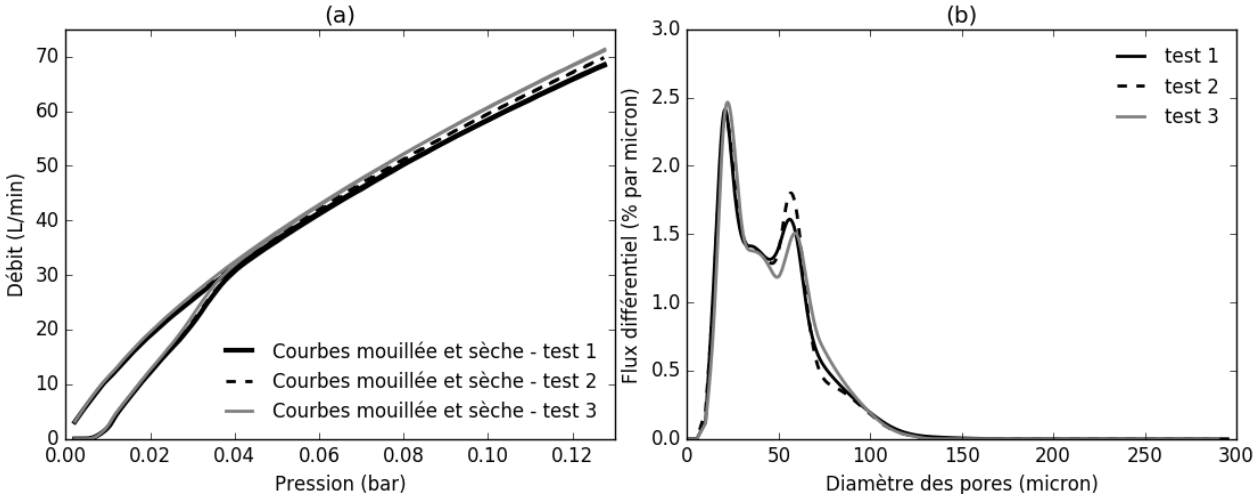


Figure C.2 : Répétabilité des essais effectués avec l'échantillon de métal fritté. (a) Débit en fonction de la pression. (b) Distribution de la taille des pores

Comparaison des deux liquides mouillants

Pour comparer les résultats, la même gamme de taille de pores à mesurer a été enregistrée dans le logiciel 3GWin pour tous les essais, soit de 5 à 300 microns. Cette gamme de taille de pores a été choisie de façon arbitraire en tenant compte des expériences passées. Puisque les tensions de surface des deux liquides sont différentes, cette gamme de taille correspond à des gammes de pressions différentes, soit de 2,13 mbars à 0,128 bars pour le Porofil®, et de 3,66 mbars à 0,219 bars pour l'hexadécane. Tous les paramètres de contrôle sont fixés à leurs valeurs par défaut.

La Figure C.3 montre les pentes finales des courbes mouillées et sèches qui sont très proches. Par contre, les courbes mouillée et sèche correspondant à l'hexadécane se rapprochent, mais ne se superposent pas à la fin de l'expérience. La Figure C.4 montre que les résultats obtenus avec l'hexadécane sont répétables, mais ne coïncident pas avec les résultats de l'essai avec le Porofil®. Les résultats montrent que l'utilisation de l'hexadécane ne permet pas d'obtenir des résultats aussi précis que le Porofil® pour la même gamme de taille de pores demandée. C'est donc le Porofil® qui a été retenu comme meilleur liquide mouillant et tous les essais ont été effectués avec ce liquide malgré son prix élevé.

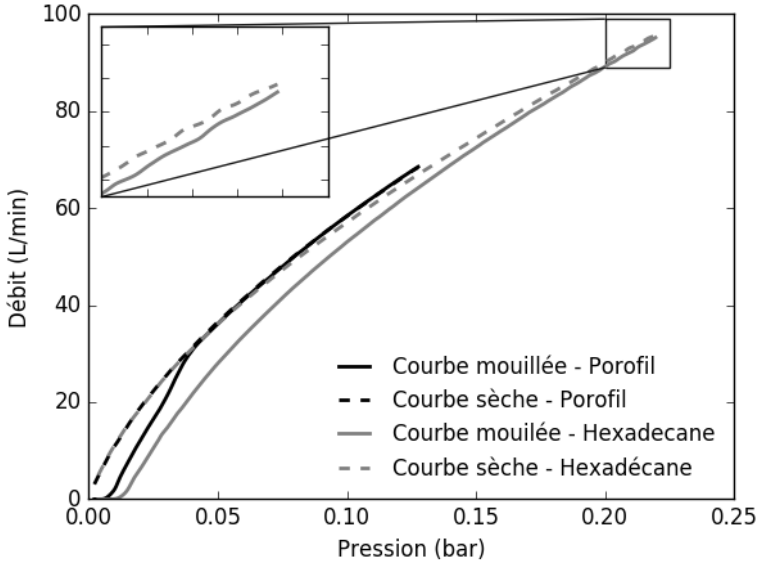


Figure C.3 : Comparaison des résultats obtenus à l'aide de deux liquides mouillants (mesures à travers l'épaisseur pour un échantillon de métal fritté)

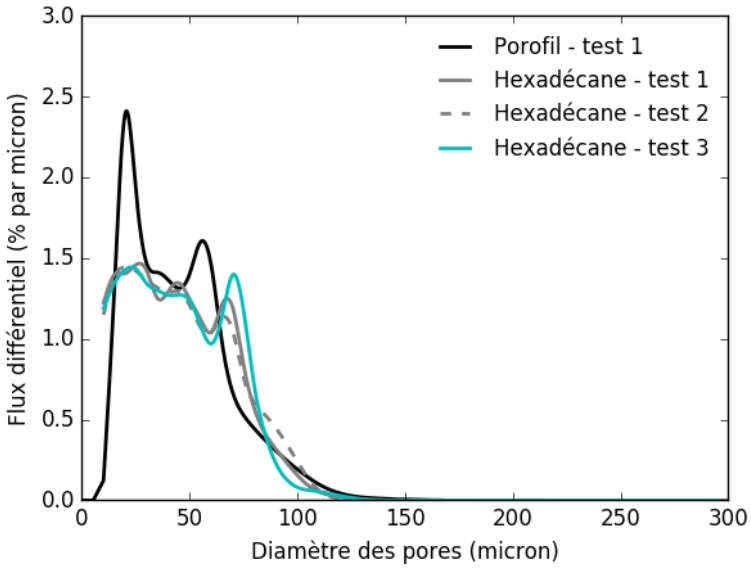


Figure C.4 : Comparaison des distributions obtenus à l'aide de deux liquides mouillants (mesures à travers l'épaisseur pour un échantillon de métal fritté)

ANNEXE D – CONCEPTION DU PORTE-ÉCHANTILLON POUR MESURE PLANAIRE

Les essais préliminaires effectués avec le porte-échantillon standard de 25 mm de diamètre pour la mesure planaire ont permis de conclure que la conception d'un porte-échantillon plus adapté au cas des renforts fibreux est requise. Un long travail d'analyse des besoins et des solutions possibles est réalisé avant d'aboutir à la solution finale. Cette partie présente les étapes de conception du porte-échantillon personnalisé pour la mesure planaire jusqu'à la fabrication du prototype.

Analyse générale des besoins

L'idée principale de la conception du nouveau porte-échantillon est de partir des expériences déjà réalisées avec le porte-échantillon standard pour créer un prototype le plus simple possible. Il est intéressant de concevoir un porte-échantillon qui permet de caractériser plusieurs types de renforts à la fois. Une configuration qui permet une certaine flexibilité au niveau de la taille de l'échantillon serait un atout car, étant donné la diversité des renforts fibreux, il existe plusieurs tailles de volumes élémentaires représentatifs. En outre, nous ne connaissons pas avec précision la perte de charge dans une mesure par drainage d'un liquide mouillant Il s'agit en effet d'un paramètre important, relié à la taille de l'échantillon et qui doit être compatible avec les capteurs de pression utilisés par le poromètre. Il est donc important de pouvoir ajuster les dimensions de l'échantillon afin d'augmenter les chances d'obtenir des bons résultats.

Étant donné la dépendance de la taille des pores avec le niveau de compression du renfort, il est nécessaire aussi de pouvoir imposer le taux de fibres des échantillons pour les mesures de porométrie. Le changement d'épaisseur de l'échantillon doit donc également s'effectuer d'une manière simple. Pour limiter les coûts, il est important de concevoir le porte-échantillon de manière à ce qu'il puisse se connecter facilement au montage du poromètre 3G déjà existant. De plus, pour faciliter les mesures, il faut que le porte-échantillon soit facile à manipuler et que sa masse ne soit pas trop grande. Ainsi, un certain nombre de critères doivent être respectés pour concevoir un porte-échantillon permettant de mesurer la taille des pores dans le plan des renforts fibreux. Un aperçu général du cahier des charges est donné dans le paragraphe suivant.

Analyse fonctionnelle simplifiée[4]

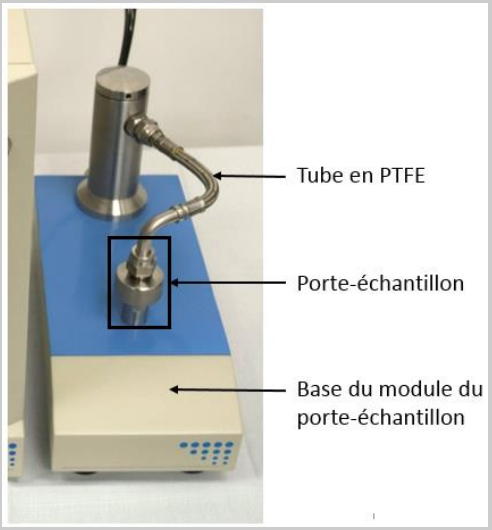
Sans préparer un cahier des charges fonctionnel détaillé, passons en revue deux grandes catégories de fonctions de service auxquelles le porte-échantillon doit se conformer pour répondre aux besoins : les fonctions d'usage qui correspondent aux besoins objectifs (Tableau D1) et les fonctions d'adaptation qui reflètent les facteurs environnementaux qui peuvent être une contrainte pour la conception (Tableau D2).

Tableau D1 : Fonctions d'usage du porte-échantillon

Exigences	**Critères d'appréciation**	**Niveau de performance**
Recevoir un échantillon de dimensions variables	• Largeur • Longueur	Fixe, 18 mm Variable, max. 28 mm
Contrôler la compaction de l'échantillon	• Taux de fibres du renfort	Min. taux de fibres naturel Max. 70 %
Permettre le passage de l'air	• Pression de l'air • Débit d'air	Min. 0,012 bars Max. 17 bars Max. 100 L/min
Permettre l'évacuation du liquide mouillant	-	-
Assurer l'étanchéité	-	-
Permettre un montage et un démontage facile	• Masse	Max. 1 kg

[4] Des Mesnards P.-H., Cahier des charges fonctionnel, Techniques de l'ingénieur

Tableau D2 : Fonctions d'adaptation du porte-échantillon

<table>
<tr><th>Exigences</th><th>Détails</th><th>Illustration</th></tr>
<tr><td>Se connecter au tube de PTFE supérieur par un raccord</td><td>Le raccord supérieur utilisé par Quantachrome n'est pas une pièce standard.</td><td rowspan="2"> 
</td></tr>
<tr><td>Se connecter à la base du module du porte-échantillon</td><td>-</td></tr>
<tr><td>Résister à la corrosion</td><td>Le porte-échantillon est en contact avec l'air et différents liquides mouillants.</td><td>-</td></tr>
</table>

Étapes de conception

La première idée a été de se tourner vers les porte-échantillons existants afin de les adapter pour se conformer aux nouveaux besoins. Des idées de conception ont donc été imaginées avec le porte-échantillon universel de 50 mm de diamètre. L'avantage d'utiliser ce porte-échantillon se situe au niveau du coût car il ne serait pas nécessaire d'usiner des pièces trop complexes, étant donné qu'on dispose déjà de tous les raccords nécessaires. Toutefois, l'espace à l'intérieur de ce porte-échantillon s'avère limité pour une configuration où l'échantillon serait orienté verticalement, et le cheminement de l'air de l'entrée à la sortie présenterait un problème si l'échantillon était placé horizontalement. Cette solution n'a donc pas été retenue.

Une solution s'inspirant du montage d'un appareil de mesure de la perméabilité des renforts fibreux dans le plan a ensuite été développée. Ce montage serait de forme rectangulaire, composé d'une base sur laquelle l'échantillon serait posé, d'une cale d'épaisseur calibrée et d'une plaque en verre

pour fermer le tout. Ce montage a tout d'abord été imaginé vertical, ce qui veut dire que l'air entre par le haut du porte-échantillon, passe verticalement dans l'échantillon et sort par le bas, comme dans les porte-échantillons pour mesure à travers l'épaisseur. Toutefois, les manipulations entre les mesures poseraient problème car on serait obligé de démonter tout le montage pour pouvoir changer d'échantillon ou le mouiller. C'est un montage où l'échantillon serait posé horizontalement qui a été retenu. L'idée de la plaque en verre sur l'échantillon était appuyée par la volonté de pouvoir observer l'échantillon pendant la mesure et de suivre l'évacuation du liquide mouillant. Or, pour le cas d'un renfort en carbone, on ne peut distinguer le liquide mouillant à l'intérieur de l'échantillon à cause de la couleur très foncée du renfort. Pour les renforts en verre, il est possible d'ajouter un colorant dans le liquide mouillant pour qu'il soit possible de le voir. Toutefois, les expériences ont montré que lorsque le liquide est évacué de l'échantillon, les pigments de colorant restent emprisonnés entre les fibres. Il n'est donc pas possible d'observer l'évacuation du liquide. L'idée de la plaque de verre a donc été abandonnée au profit d'une plaque métallique. C'est ainsi qu'on a abouti à la solution finale présentée au Chapitre 6 à la Figure 6.10.

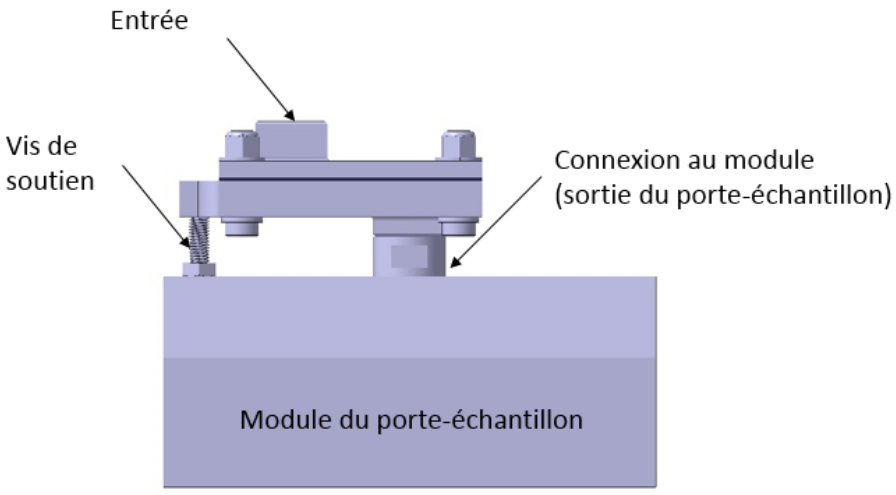


Figure D.1 : Vue de face du porte-échantillon monté sur le module

L'entrée d'air se trouve à une extrémité de la partie supérieure du porte-échantillon tandis que la sortie est placée sur une base à l'extrémité opposée. Tel qu'illustré à la Figure D.1, la configuration choisie est en porte-à-faux. Pour éviter le fléchissement de l'ensemble du montage au niveau de la

connexion au module, une vis de soutien a été ajoutée à l'extrémité du porte-échantillon. Des boulons ont été choisis pour assurer la fermeture de l'ensemble haut-cale-base du porte-échantillon. Pour assurer le bon alignement de toutes les pièces entre elles, deux goupilles sont placées au milieu des deux extrémités du porte-échantillon.

Calculs de dimensionnement

La Figure D.2 montre les éléments métalliques constituant le nouveau porte-échantillon. Les éléments à acheter directement ont leur légende à gauche, et les pièces à usiner sont présentées à droite. Une brève revue du dimensionnement de ces pièces ainsi que du joint plat est présentée dans cette partie.

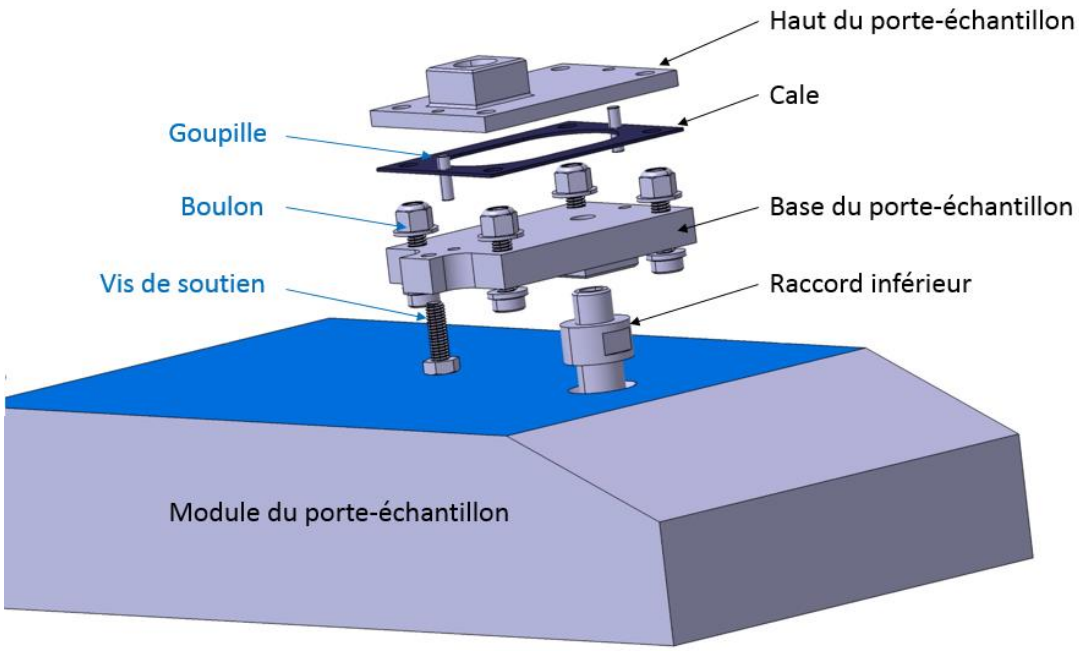


Figure D.2 : Les éléments métalliques du nouveau porte-échantillon pour mesure dans le plan

- Dimensionnement des goupilles, du haut et de la base du porte-échantillon

La taille des goupilles de positionnement est choisie en fonction des diamètres disponibles chez le fournisseur, des contraintes d'emplacement et de taille imposées par l'ensemble du porte-échantillon. Le diamètre choisi est de 4,76 mm. Une goupille doit être insérée dans un trou dont la profondeur est d'au moins égale au double de son diamètre. La profondeur du trou prévu pour les

goupilles dans la base du porte-échantillon est donc de 9,5 mm. L'épaisseur choisie pour la base du porte-échantillon est de 12,5 mm, ce qui tient compte de la profondeur des trous pour les goupilles et de l'espace nécessaire entre le fond de ces trous et la surface inférieur de la base (Figure D.3). La partie supérieure du porte-échantillon (épaisseur de 5 mm) et la base sont surdimensionnées par rapport à la pression d'air à laquelle ils sont contraints. La partie supérieure, la base ainsi que la cale du porte-échantillon ont une longueur de 80 mm et une largeur de 54 mm.

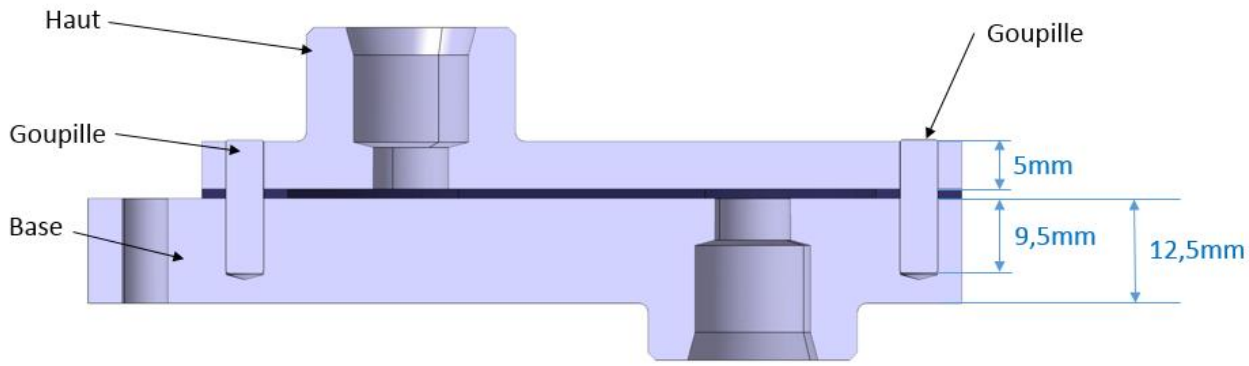


Figure D.3 : Coupe du porte-échantillon montrant les goupilles

- Dimensionnement des boulons

La pression maximale pouvant être appliquée par le poromètre est de 17 bars. En adoptant un coefficient de sécurité de 1,5, la pression maximale que le porte-échantillon doit supporter est de 25,5 bars, soit 2,55 MPa. Cette pression est appliquée sur une aire d'environ 723 mm^2, qui correspond à l'aire totale à l'intérieur du joint plat d'étanchéité. Une pression de 25,5 bars appliquée sur une surface de 723 mm^2 équivaut à une force de 1842 N. La force totale appliquée à chaque vis est donc 461 N.

Pour un acier de classe 8.8, ce qui semble tout à fait raisonnable pour cette application, la contrainte en tension admissible est de 580 MPa. Pour une charge répétée et pulsée, le facteur de sécurité recommandé est de 5, ce qui ramène la contrainte admissible de la vis en acier de classe 8.8 de notre cas à 116 MPa.

La section de la vis nécessaire pour supporter une force de 461 N est de 3,97 mm^2, ce qui correspond à un diamètre de 2,25 mm. Des vis en acier M3 de classe 8.8 sont donc appropriées.

- Dimensionnement de la vis de soutien

Une vis M6 a été choisie pour faciliter les manipulations. La taille de la vis de soutien est surdimensionnée car le diamètre nécessaire pour soutenir la masse entière du porte-échantillon (environ 690 g) est très faible.

- Dimensionnement des cales

L'épaisseur des cales permet de déterminer le taux de compaction des renforts qui vont être testés. L'épaisseur de la cale est égale à l'épaisseur de l'échantillon lors de la mesure. Un jeu de cales avec des épaisseurs allant de 0,4 mm (correspond à un taux de fibres d'environ 52 % pour le renfort le plus fin testé) jusqu'à 2,78 mm a été choisi en fonction des plaques d'épaisseur calibrée disponibles chez le fournisseur. Il est aussi possible de faire la combinaison de plusieurs cales pour obtenir d'autres épaisseurs.

- Dimensionnement des joints plats

Le jeu de joints plats a pour rôle d'assurer l'étanchéité du porte-échantillon à la fois à l'air et au Porofil® ou tout autre liquide mouillant utilisé. Le joint plat entoure l'échantillon et permet d'orienter le flux d'air depuis l'entrée vers l'échantillon, tout le long de l'échantillon, et enfin depuis l'échantillon vers la sortie. Une fuite à ce niveau entrainerait une fausse évaluation de la taille des pores de l'échantillon. L'épaisseur du joint plat est choisie de 5 à 20 % plus élevée que l'épaisseur de la cale correspondante. Sa largeur est de 4 mm pour maximiser sa surface de contact avec le haut et la base du porte-échantillon.

- Dimensionnement du raccord inférieur

Les dimensions nécessaires ont été fournies par Quantachrome.

Analyse par éléments finis

Le dimensionnement du porte-échantillon a été validé par une analyse par la méthode des éléments finis. Les pièces ont été regroupées en 7 sous-ensembles tels qu'illustrés à la Figure D.4 : la partie supérieure (haut du porte-échantillon + raccord supérieur), les 4 boulons, la cale et la partie inférieure (base du porte-échantillon + raccord inférieur). Lors de la simulation, le raccord inférieur est encastré. Une force de serrage de 1000 N est appliquée aux boulons et une pression de 1,8 MPa correspondant à la capacité maximale du poromètre est appliquée aux deux surfaces internes du

haut et du bas du porte-échantillon. Il est important de noter que cette surface d'application de la pression est plus grande que la surface d'application réelle car ici on ne tient pas compte du joint plat. Le calcul est fait avec des éléments quadratiques.

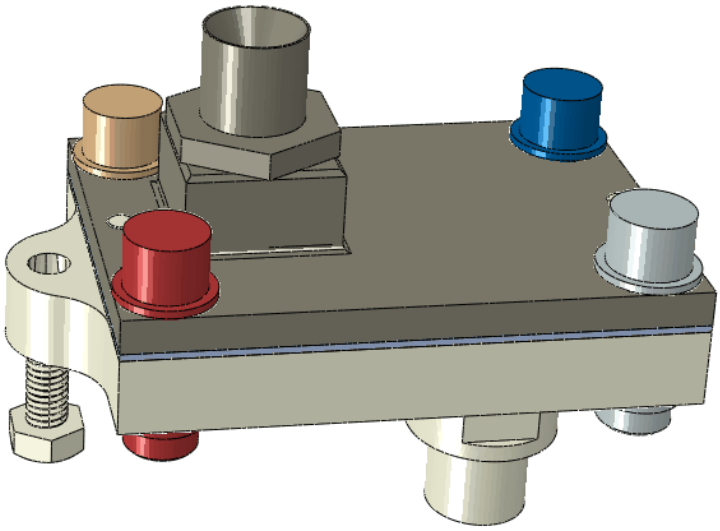


Figure D.4 : Les 7 sous-ensembles de pièces pour l'analyse par éléments finis

Les contraintes maximales (contraintes équivalentes de Von Mises) dans le porte-échantillon se trouvent sur la partie supérieure du porte-échantillon telles qu'illustrées à la Figure D.5. La contrainte maximale calculée de 153 MPa est inférieure à la limite d'élasticité de l'acier inoxydable utilisé pour la fabrication du porte-échantillon. Par conséquent, il n'y a pas de déformation plastique dans la pièce. Comme montré à la Figure D.6 et à la Figure D.7, l'ouverture maximale du porte-échantillon est de 0,04 mm, ce qui est relativement petit et peut largement être comblée par le joint plat.

L'analyse par éléments finis montre que le porte-échantillon conçu peut supporter les contraintes auxquelles il sera soumis lors de son utilisation. Le porte-échantillon a été fabriqué à la suite de cette analyse. Une fois usiné, des tests d'étanchéité pour chaque couple de cale et de joint plat ont été effectués avec succès.

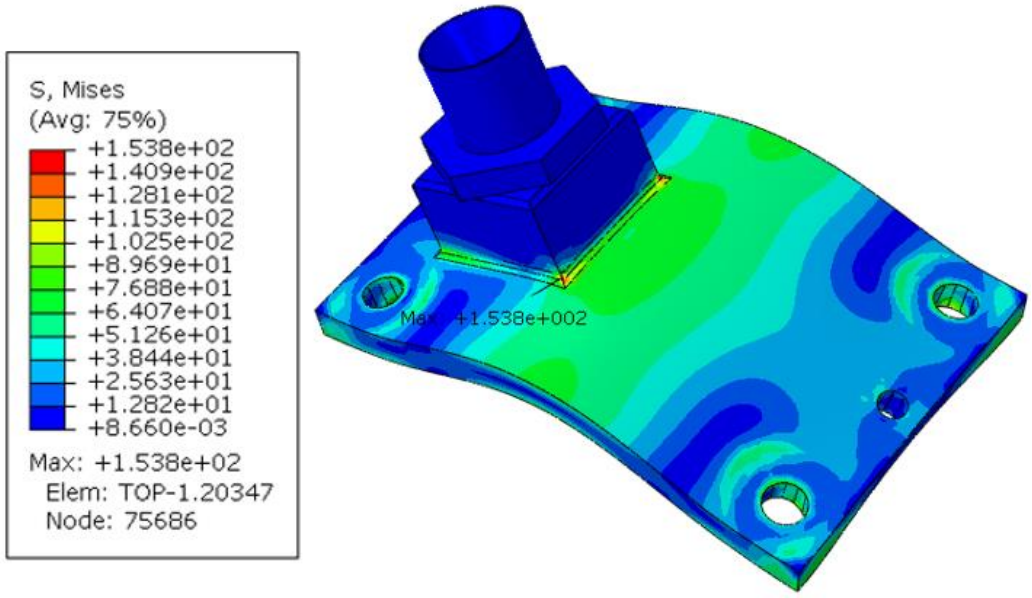


Figure D.5 : Contraintes équivalentes de Von Mises dans le haut du porte-échantillon (valeurs de la légende en MPa)

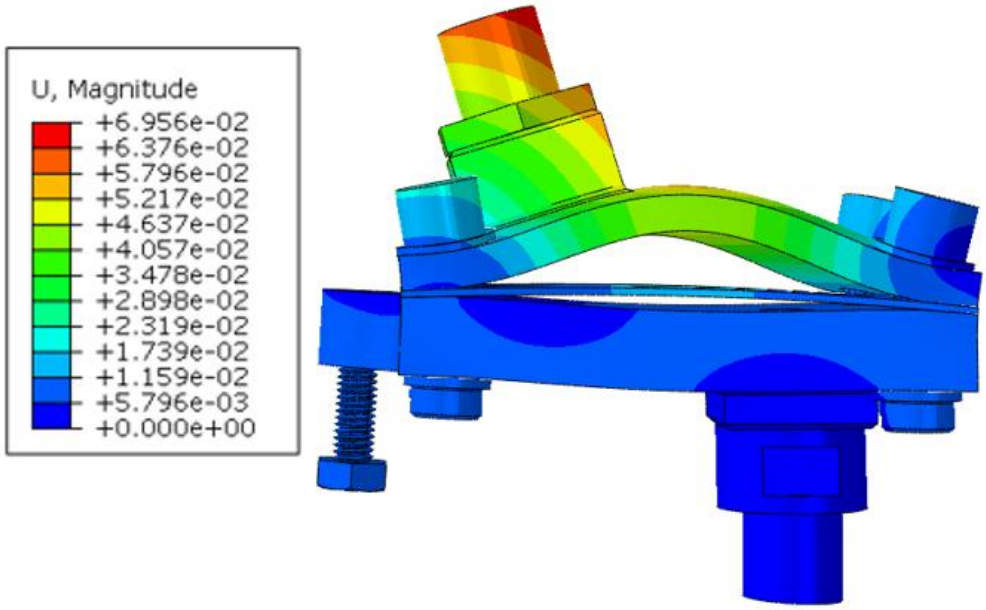


Figure D.6 : Déformations des pièces du porte-échantillon (valeurs de la légende en mm)

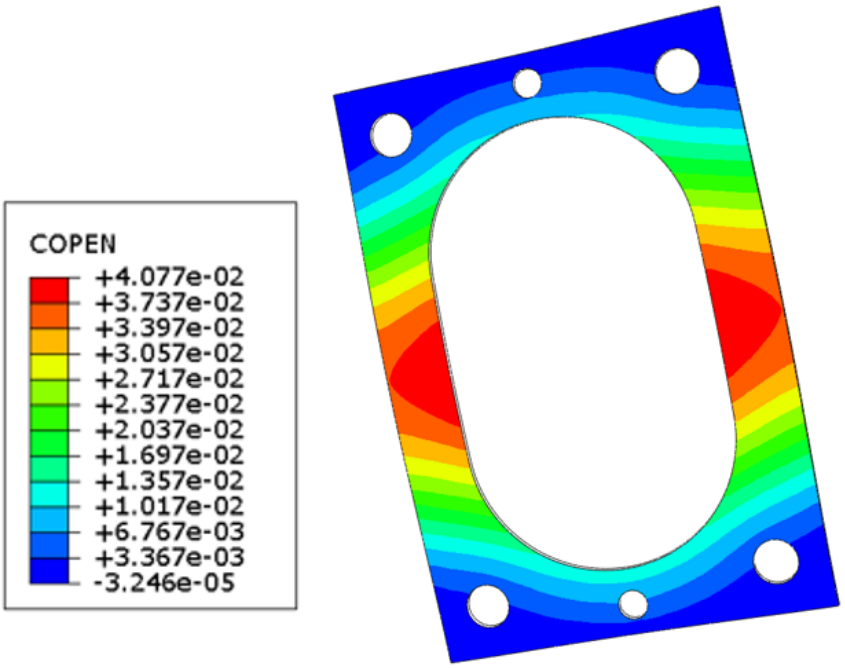


Figure D.7 : Écartement du haut du porte-échantillon par rapport à la cale (valeurs de la légende en mm)