



Titre: Contrôle de la fabrication des composites par injection sur renforts
Title:

Auteur: François Lebel
Author:

Date: 2012

Type: Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

Référence: Lebel, F. (2012). Contrôle de la fabrication des composites par injection sur renforts [Thèse de doctorat, École Polytechnique de Montréal]. PolyPublie.
Citation: <https://publications.polymtl.ca/864/>

 **Document en libre accès dans PolyPublie**
Open Access document in PolyPublie

URL de PolyPublie: <https://publications.polymtl.ca/864/>
PolyPublie URL:

Directeurs de recherche: François Trochu, & Edu Ruiz
Advisors:

Programme: Génie mécanique
Program:

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

CONTRÔLE DE LA FABRICATION DES COMPOSITES
PAR INJECTION SUR RENFORTS

FRANÇOIS LEBEL

DÉPARTEMENT DE GÉNIE MÉCANIQUE
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

THÈSE PRÉSENTÉE EN VUE DE L'OBTENTION
DU DIPLÔME DE PHILOSOPHIAE DOCTOR
(GÉNIE MÉCANIQUE)

JUIN 2012

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Cette thèse intitulée:

CONTRÔLE DE LA FABRICATION DES COMPOSITES
PAR INJECTION SUR RENFORTS

présentée par : LEBEL François

en vue de l'obtention du diplôme de : Philosophiae Doctor

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

M. TURENNE Sylvain, Ph.D., président

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

M. RUIZ Eduardo, Ph.D., membre et codirecteur de recherche

M. CHAPUIS Robert P., D.Sc.A., membre

M. NGÔ Anh-Dung, Ph.D., membre

DÉDICACE

À Isabelle et Élie.

Pour leurs sacrifices en abondance.

Pour leur confiance et leur patience.

Pour leur grande résilience malgré les malchances.

Mais surtout pour leur amour sans défaillance.

Amour sans lequel cette aventure reposerait déjà,

depuis bien longtemps, au cimetière

des regrets délaissés

et des rêves inachevés.

"Ceux qui prétendent détenir la vérité sont ceux qui

ont abandonné la poursuite du chemin vers elle.

La vérité ne se possède pas, elle se cherche."

-Albert Jacquard, 1925-

REMERCIEMENTS

Je tiens à exprimer ma sincère reconnaissance à mon directeur de recherche, le professeur François Trochu, de m'avoir accueilli au sein du CCHP en 2004 et de m'avoir appuyé tout au long de ces huit dernières années de collaboration. Sa vision originale et ses conseils ont permis d'orienter mes travaux de recherche vers des territoires encore inexplorés. De plus, je tiens à remercier le professeur Éduardo Ruiz pour son soutien, sa disponibilité et surtout pour les nombreuses discussions fructueuses que nous avons eues ensemble et qui ont permis de transformer cette thèse académique en un véritable projet de recherche expérimentale abouti. Mes remerciements vont également aux professeurs Sylvain Turenne, Robert P. Chapuis, Anh-Dung Ngô et Georges-Émile April qui ont aimablement accepté d'examiner ma thèse et de siéger sur mon jury.

J'ai eu la chance de concrétiser ce travail de recherche grâce à la précieuse implication pratique et technique de Christian-Charles Martel, Alex Bourgeois, Antonin Leclair-Maréchal, Michael Cantin, Yazid Belkhir, Mick  al Leduc, Michel Gari  py de Magnum Venus Plastech et Michel Therrien de Lab Integration. Mes remerciements vont   galement    Catherine Billotte, Nadir Nchit, Farida Bensadoun, Isabelle Ortega, Suzie Poulin, Jorge Alonso Uribe-Calderon, Jos  e Dugas, Carole Fraser et Rachel Godin pour leurs supports lors des diverses t  ches administratives et scientifiques de caract  risation des mat  riaux.

Au cours de ces six ann  es, de nombreux collaborateurs et stagiaires ont aussi particip      mon projet tels que Pier-Alexandre Pelletier, Mathieu Venne, Simon Dulong, Francis Carrier, Pascal Flynn-Robitaille, Julian Choquette,   ric Ruest, S  bastien Allard, Youssef Slassi-Moutabir, Fr  d  rick Marcil St-Onge, Francisco Doyon, Alexandre Cormier-Belley, Alexandre Poulin, Aymen Souissi, Sara Bouzekri, Chafik Abdellaoui, Julien Feuvrier, Jean-Christophe Roy, Benjamin Costa-Drolon, Gaston Francucci, Pol-Ewen Manac'h, Julien Barbo-Dumercy, Gilbert Band  , Alexandre Ferreira Benevides, Laura Mouret, Chakib Boushel, Robin Dub  , Jean-Fran  ois D  silets,   ric Allard, Bruno Croteau-Labouly et Simon Lynch. Je leur en suis

pleinement reconnaissant. De même, je voudrais remercier mes collègues de travail passés et présents avec qui j'ai eu plusieurs échanges riches en apprentissage. Merci donc à Paul Trudeau, Mouhcine Rifay, Matthieu Sola, Édith-Roland Fotsing, Julian Gutierrez, Nicolas Vernet, Philippe Causse, Tarik Daqoune, Cristian Demaria, Sofiane Soukane et Vincent Achim. Un merci particulier à Amir Ershad Fanaei qui m'a permis de retourner un maximum de pierres au cours de ce vaste projet de recherche.

Finalement, je remercie du fond du cœur mes parents, ma famille et mes amis pour leur soutien indéfectible tout au long de mon parcours académique. Plus spécialement, à mes deux dames de cœur, Isabelle et Élie. Merci de m'avoir supporté dans ce marathon d'épreuves.

RÉSUMÉ

Les procédés de mise en forme des composites par injection sur renforts (LCM) sont de plus en plus utilisés pour fabriquer des composites à haute performance. Lors d'une mise en œuvre par les procédés LCM, le renfort fibreux sec est tout d'abord drapé à l'intérieur d'un moule. Après la fermeture du moule ou le recouvrement du renfort par une membrane, une résine polymère est injectée ou infusée sous vide à travers le renfort. Les renforts fibreux couramment utilisés dans les procédés LCM possèdent généralement une structure à porosité bimodale: des pores microscopiques existent entre les filaments dans les mèches de fibres, tandis que des pores macroscopiques sont créés entre les mèches suite à la couture ou au tissage du tissu. À l'échelle microscopique, les forces capillaires à l'intérieur des mèches fibreuses jouent un rôle majeur sur la qualité des composites fabriqués par injection de résine. En effet, les forces capillaires régissent l'apparition de défauts d'imprégnation du renfort par emprisonnement d'air. Ces défauts sont critiques car ils ont un impact négatif sur les performances mécaniques des pièces composites au cours de leur vie en service. Toutefois, très peu de données expérimentales sont disponibles sur la formation de ces défauts microscopiques et macroscopiques. De telles données seraient utiles pour les ingénieurs qui veulent accroître l'efficacité, la productivité et la robustesse des procédés d'injection sur renforts. Par conséquent, une approche expérimentale multi-échelle est présentée dans cette thèse afin de mieux comprendre la physique fondamentale des phénomènes d'imprégnation et d'emprisonnement d'air dans les renforts fibreux à porosité bimodale et ainsi proposer des solutions pratiques pour les ingénieurs en contrôle de procédé.

Dans un premier temps, un montage est développé pour étudier la saturation des renforts fibreux à l'échelle macroscopique, durant le moulage des composites par transfert de résine (RTM). Ce montage permet de déterminer les paramètres qui gouvernent la qualité de l'imprégnation des renforts fibreux lors de l'étape du remplissage et pendant les stratégies industrielles de post-remplissage (purge du moule et consolidation). Ces paramètres sont identifiés à l'aide de trois plans d'expérience. Il s'agit de la vitesse d'avancée du front de résine, de la pression appliquée aux ports d'injection et du débit d'écoulement de la résine lors de la purge du moule. L'analyse effectuée dans ces plans d'expérience s'appuie sur une procédure *ASTM* standard de

détermination de la teneur en vides dans les pièces composites par carbonisation. Les trois plans d'expérience mis en place ont permis de relier *a posteriori* ces paramètres de fabrication aux phénomènes de formation, migration et dissolution de bulles dans des pièces composites verre-vinylester. Ces phénomènes de formation et de transport des bulles sont également observés en temps réel durant les étapes de remplissage et de post-remplissage de ces pièces composites. L'observation directe de ces phénomènes est rendue possible grâce à une méthode non-intrusive de suivi de la saturation des renforts fibreux transparents tels que le présent NCF de verre. Cette méthode tomographique 2D de suivi par transmission de lumière visible (VLT) s'appuie sur les lois d'optique de *Beer-Lambert* et de *Fresnel* et elle exploite la correspondance entre les indices de réfraction du verre et de la résine vinyl ester pour augmenter l'effet de contraste visuel. Noter que la méthode de suivi proposée et validée dans la première partie de la thèse est compatible avec des systèmes industriels d'injection automatisée. Cette approche utilise uniquement du matériel à faible coût tel qu'une caméra numérique, un moule RTM transparent et une source de lumière. Tous les résultats obtenus dans cette première étude sont cohérents avec les données déjà publiées dans la littérature scientifique.

La deuxième partie du travail vise à étudier à l'échelle microscopique et mésoscopique les mécanismes d'imprégnation des renforts fibreux pendant la mise en forme par les procédés LCM. Plus spécifiquement, cette analyse porte sur l'imbibition par capillarité dans les mèches de fibres et dans les laminés de renforts fibreux. Cette étude expérimentale est réalisée afin de comprendre les phénomènes physiques expliquant que la vitesse d'imprégnation fait partie des paramètres qui influencent la qualité des pièces composites fabriquées par les procédés d'injection sur renforts. Cette analyse permet également d'identifier les propriétés structurales de la mèche de fibres et du renfort fibreux qui influencent l'imprégnation capillaire. À cette fin, deux montages expérimentaux spécifiques ont été développés: le premier montage permet d'étudier les écoulements capillaires dans les mèches de fibres, et le second dans les renforts fibreux. Le principe de fonctionnement de ces deux montages s'appuie sur la méthode de montée capillaire déjà employée pour étudier les écoulements capillaires dans les sols, les textiles et les renforts fibreux. Toutefois, certains problèmes techniques sont apparus dans le passé avec ce type de montage. Afin de pallier ces faiblesses, trois modifications sont proposées dans cette thèse : (1) l'usage d'un fluide pénétrant totalement mouillant, léger, non volatil et stable; (2) l'utilisation de

la fluorescence (DPI) pour maintenir un contraste visuel adéquat; (3) l'emploi d'algorithmes de traitement d'images pour un suivi reproductible de la position du front capillaire. Dans la présente approche, le suivi visuel du front capillaire avec une caméra numérique est couplé à une acquisition continue de la masse absorbée à l'aide d'une balance de haute résolution.

Il faut noter aussi que cette méthode de suivi de la montée capillaire nécessite moins d'investissements en temps et argent comparativement à d'autres techniques plus standards de caractérisation souvent utilisées dans les milieux poreux. De plus, cette approche permet de recueillir des données représentatives sur les propriétés d'imbibition par capillarité des mèches de fibres et des renforts fibreux en s'appuyant sur les lois de *Lucas-Washburn* pour la hauteur du front capillaire et pour la masse de fluide absorbée par le milieu poreux. Ces propriétés d'imbibition par capillarité des mèches de fibres et des laminés sont ensuite étudiées en fonction de leurs caractéristiques morphologiques respectives. À cette fin, les caractéristiques morphologiques des mèches de fibres sont étudiées soit leur porosité microscopique, la surface totale de leur section transversale, leur surface spécifique, la taille et l'arrangement géométrique de leurs filaments. D'un autre côté, les caractéristiques morphologiques des renforts fibreux considérées sont le taux volumique de fibres et le motif de couture/tissage. Ces propriétés sont aussi déterminées à l'aide de méthodes de caractérisation standards afin de comparer les résultats obtenus avec les valeurs déduites à partir des expériences de montée capillaire. Les méthodes de caractérisation standards utilisées dans cette partie du travail sont la gravimétrie, la microscopie, l'analyse par la méthode *B.E.T.* et la porométrie capillaire. La cohérence des résultats obtenus par les deux approches est confirmée, validant ainsi le choix de la méthode de montée capillaire pour effectuer cette étude sur les mécanismes d'imprégnation des renforts fibreux. Par la suite, le montage de montée capillaire permet de mesurer l'impact du taux volumique de fibres et de l'ensimage des fibres sur la qualité de l'imprégnation du renfort, de caractériser la perméabilité axiale et la pression capillaire des mèches de fibres ainsi que d'étudier l'anisotropie du renfort.

Dans la dernière partie de la thèse, les propriétés du fluide d'infiltration qui gouvernent les mécanismes d'imprégnation sont d'abord identifiées, soit la viscosité dynamique, la tension de surface et la mouillabilité apparente (affinité chimique des phases en contact). Par la suite, un

modèle mécanistique prédictif est proposé pour estimer *a priori* les conditions optimales d'imprégnation des renforts fibreux à porosité bimodale. Ces conditions optimales d'imprégnation permettent de minimiser la formation de bulles par emprisonnement d'air en contrôlant la vitesse d'avancée du front de résine. Les deux paramètres qui gouvernent ce modèle mécanistique dérivé de la loi de *Lucas-Washburn* sont le nombre capillaire modifié optimal du renfort fibreux utilisé et la pénétrativité des résines thermodurcissables étudiées. Ces deux paramètres sont caractérisés à l'aide du montage de montée capillaire développé et validé dans la première partie précédente de cette thèse. La pénétrativité des résines et des additifs/agents de polymérisation est évaluée à partir de techniques standards de caractérisation comme la spectrométrie, la rhéométrie, la tensiométrie et la goniométrie. Les fluides considérés dans la présente étude sont une résine vinyl ester, une résine époxy, un solvant monomère (styrène) et un agent de polymérisation (anhydride). Les valeurs de pénétrativité obtenues par les techniques standards de caractérisation sont cohérentes avec les valeurs évaluées à partir de la méthode de montée capillaire. Ceci confirme l'intérêt de la méthode de montée capillaire pour étudier l'imprégnation des renforts fibreux. L'impact de la température sur la pénétrativité des résines a aussi été exploré à l'aide de techniques standards de caractérisation, mettant ainsi en lumière l'influence des transferts thermiques sur l'imprégnation des renforts fibreux.

Finalement, des essais de montée capillaire sont effectués avec la résine vinyl ester pour un composite constitué de six plis du renfort fibreux bidirectionnels de verre sans ondulation (NCF). Ces deux matériaux ont déjà été utilisés dans la première partie de notre étude sur la saturation des renforts. La caractérisation capillaire des conditions optimales d'imprégnation donne des résultats cohérents avec ceux obtenus dans la première partie de la thèse. La vitesse d'imprégnation optimale est prédite pour un couple renfort-résine donné sans avoir à exécuter des simulations numériques complexes d'écoulements diphasiques dans un milieu poreux à porosité bimodale. Utilisée en amont, cette approche permet de réduire le nombre d'essais de caractérisation et de fabrication. Cette caractérisation de montée capillaire prend en compte la variabilité des propriétés du renfort et de la résine, ce qui n'est pas toujours possible avec les techniques standards de caractérisation. Cette prédiction des conditions optimales d'imprégnation pour un couple de matériaux donnés permet d'optimiser les procédés d'injection sur renforts et donc de produire des pièces composites plus performantes.

ABSTRACT

Liquid Composite Molding (LCM) is an increasingly used class of processes to manufacture high performance composites. In LCM, the fibrous reinforcement is first laid in a mold cavity. After closure of the mold or covering of reinforcement with a plastic bag, a polymer resin is either injected or infused under vacuum through the fiber bed. The engineering fabrics commonly used in LCM possess generally dual scale architecture in terms of porosity: microscopic pores exist between the filaments in the fiber tows, while macroscopic pores appear between the tows as a result of the stitching/weaving fabrication process. On a microscopic scale, capillary flows in fiber tows play a major role on the impregnation quality of composites made by resin injection through fibrous reinforcements. Indeed, the capillary forces control the formation of impregnation defects in the fibrous reinforcement as a result of mechanical air entrapment. These defects are critical because they have a negative impact on the mechanical performance of composite parts during their operating life. However, very little experimental data are available in the literature on the formation of these microscopic and macroscopic impregnation defects. Such data would be useful for process engineers that want to increase efficiency, productivity and robustness of LCM processes. Therefore, a multiscale study is presented in this thesis in order to better understand the fundamental physics of impregnation and air entrapment phenomena in dual scale fibrous reinforcements and thus propose practical solutions for process control engineers.

First of all, an experimental setup is developed to study the saturation of fibrous reinforcements, at the macroscopic scale, during the *Resin Transfer Molding* (RTM). This setup is used to determine some key parameters of the part filling step and industrial post-filling strategies (mold bleeding and consolidation) that control the impregnation quality of fibrous reinforcements. These key parameters are identified using three series of experiments. These parameters are the flow front velocity, the inlet mold pressure and the bleeding flow rate. The analyses in these three series of experiments are based on an *ASTM* standard procedure for void content determination in the composite parts by carbonization (also called loss on ignition (LOI)). These three series of

experiments have related *a posteriori* the key parameters of LCM processes to phenomena of void formation, migration and dissolution in composite parts made of E-glass non crimp fabric (NCF) and vinyl ester resin. These phenomena of void formation and transport are also observed in real-time during filling step and post-filling steps of composite parts. The direct observation of these phenomena is carried out using a non-intrusive technique allowing the dynamic monitoring of saturation in transparent fibrous reinforcements such as the current E-glass NCF. This 2D tomographic reconstruction method by visible light transmission (VLT) is based on two fundamentals of optics, namely the *Beer-Lambert's* law and the *Fresnel's* law, and it takes advantage of the refractive index matching between the E-glass and the vinyl ester resin in order to increase the visual contrast. Note that this monitoring method, which is proposed and validated in this first thesis part, is compatible with industrial injection systems and is only using low-cost equipment such as a digital camera, a transparent RTM mold and a standard light source. All the results obtained in this experimental study are consistent with the data available in the literature.

The second part of this thesis aims to investigate, at the mesoscopic and microscopic scale, the impregnation mechanisms of fibrous reinforcements during LCM processes. This analysis focuses more specifically on wicking phenomenon in fiber tows and in fibrous laminates, namely here stacks of non crimp fabric plies. This experimental study is carried out to better understand the physics which explain that the impregnation velocity is one of the key parameters that control the quality of composite parts manufactured by LCM processes. This analysis also aims to identify the structural features of fiber tows and fibrous reinforcements that influence wicking phenomenon. Two specific experimental setups are developed to this purpose: A first setup in order to study capillary flows in fiber tows and a second one to monitor the same capillary flows in laminates. The operating principle of these two setups is based on the capillary rise method which was already used previously to study capillary flows in soils, textiles and fibrous reinforcements. However, such capillary rise experiments were not easy to perform, because of technical difficulties such as textile geometrical alteration during testing, changes in fluid properties due to evaporation of volatile fluid component and inaccurate observation of the progression of the capillary front (fading). To circumvent these problems, three technical changes to the standard capillary rise method are proposed: (1) the use of an infiltration fluid which is completely wetting, light, non-volatile and stable; (2) the use of a fluorescent dye penetration

inspection (DPI) method in order to keep an adequate visual contrast; (3) the use of image processing algorithms in order to have a reproducible tracking of the capillary flow position. In addition, the visual tracking of the capillary front using a CCD image acquisition is coupled with an acquisition of uptake fluid mass with a high resolution balance.

Note that this updated method of capillary rise monitoring by fluorescence requires less expensive and work-intensive compared to other more standard characterization techniques often used in porous media. Furthermore, this method allows acquiring representative data on the wicking properties of fiber tows and fibrous laminates. These wicking properties are based on the *Lucas-Washburn* laws for the capillary height evolution and the uptake fluid mass by the porous medium. These properties of fiber tows and fibrous laminates are then studied with respect to their respective morphological features. In this regard, the morphological properties of the fiber tows under investigation here are their microscopic porosity, their total cross-section area, their filament diameter and the packing configuration of their filaments. On the other hand, the morphological properties of the fibrous laminates considered in this study are rather their fiber volume content and the stitching/weaving pattern of the fibrous reinforcement. These morphological features of fiber tows and fibrous laminates are also evaluated using standard characterization methods in order to compare their results with the values deduced from the capillary rise monitoring. The standard characterization methods used in this work are gravimetry, microscopy, *B.E.T.* analysis and capillary flow porometry. The consistency of the results obtained using both approaches is confirmed, thus validating the selection of the capillary rise method in order to study the impregnation mechanisms in fibrous reinforcements. This validated setup is then used to investigate the impact of fiber volume content and fiber sizing on the impregnation of fibrous reinforcements, to characterize the axial permeability and capillary pressure of fiber tows as well as to study the natural anisotropy of the fibrous reinforcement. This setup is also used to carry out the next part of this experimental work.

In the last part of this work, the properties of the infiltration fluid that influence impregnation are first identified, namely the dynamic viscosity, the surface tension and the apparent wettability (chemical affinity between the phases in contact). Afterwards, a new mechanistic model that is

predictive and simple is proposed in order to estimate *a priori* the optimal impregnation conditions of dual scale fibrous reinforcements. These optimal impregnation conditions aim to minimize air entrapment, thus void formation, by controlling the flow front velocity. The two key parameters of this mechanistic model derived from the *Lucas-Washburn* law are the optimal modified capillary number for the selected fibrous reinforcement and the penetrativity of the thermosetting resins under investigation. These two parameters are estimated using the capillary rise setup previously developed and validated in this work. Moreover, the penetrativity values of the resins and additives/curing agents studied are evaluated using standard characterization techniques such as spectrometry, rheometry, tensiometry and goniometry. The fluids considered in this study are a vinyl ester resin, an epoxy resin, styrene (monomer) and an anhydride curing agent. The consistency is confirmed between the penetrativity values obtained by the standard characterization techniques and those estimated using the capillary rise method. Therefore, the selection of the capillary rise method is once again validated in order to complete this study on the impregnation mechanisms in fibrous reinforcements. Besides, the impact of temperature on resin penetrativities is explored using standard characterization techniques. This highlights the impact of heat transfers on the impregnation quality of fibrous reinforcements.

Finally, capillary rise tests are carried out with the vinyl ester resin on a six-ply laminate of E-glass NCF. Both materials were used to carry out the first study on the saturation of dual scale fibrous reinforcements. This characterization of optimal impregnation conditions minimizing air entrapment, thus void formation, is compared with the results obtained from the series of experiments in the first part of this thesis. A good match is obtained between these predictions and the manufacturing results, thus confirming the validity of the proposed mechanistic model. Therefore, this experimental approach based on the capillary rise method can predict the optimal flow front velocity for a given fibrous reinforcement-resin pair without having to perform complex numerical simulations of two-phase flow in dual scale porous media. This approach also allows reducing or avoiding many tests of characterization and manufacturing that are work-intensive and expensive when it used in the preliminary stages of a manufacturing project. Note that this comprehensive approach based on capillary rise method is representative of the impregnation mechanisms and is taking into account the inherent variability of the properties of fibrous reinforcements and resins, which is not always possible with standard characterization

techniques. These predictions of optimal impregnation conditions for a given material pair are useful additional data for process control engineers. Indeed, this quick estimations will allows optimizing and better controlling the LCM processes, thus manufacturing high performance composite parts while reducing material losses that are become more and more expensive.

TABLE DES MATIÈRES

DÉDICACE.....	III
REMERCIEMENTS	IV
RÉSUMÉ.....	VI
ABSTRACT.....	X
TABLE DES MATIÈRES	XV
LISTE DES TABLEAUX.....	XXII
LISTE DES FIGURES.....	XXIV
LISTE DES SIGNES ET DES ABRÉVIATIONS	XXXI
LISTE DES ANNEXES.....	XXXV
INTRODUCTION.....	1
CHAPITRE 1 REVUE DE LITTÉRATURE	4
1.1 Variables contrôlées dans les procédés LCM	6
1.1.1 Variables « machines »	9
1.1.2 Variables de « procédé »	12
1.1.3 Critères de qualité	13
1.2 Stratégies de contrôle des procédés LCM	17
1.2.1 Contrôle PID	18
1.2.2 Contrôle optimal.....	20
1.2.3 Contrôle intelligent.....	21
1.2.4 Contrôle robuste	25
1.3 Instrumentation dans les procédés LCM.....	26
1.3.1 Thermocouples et thermomètre à résistance électrique	27

1.3.2	Capteurs de flux thermique	28
1.3.3	Capteurs diélectriques et électrochimiques	30
1.3.4	Capteurs de fibres optiques à onde évanescente	32
1.3.5	Capteurs acoustiques	33
1.3.6	Capteurs de pression	34
1.3.7	Caméras	36
CHAPITRE 2	MOTIVATION ET OBJECTIFS	37
2.1	Motivation et hypothèse	37
2.2	Objectifs	43
CHAPITRE 3	ARTICLE 1 : DYNAMIC STUDY OF VOID FORMATION AND SATURATION IN DUAL SCALE FIBROUS REINFORCEMENT BY TOMOGRAPHIC RECONSTRUCTION	46
3.1	Présentation du chapitre	46
3.2	Abstract	47
3.3	Introduction	48
3.4	Bibliography	49
3.4.1	Void formation by air entrapment in LCM processes	49
3.4.2	Void transport in LCM processes	53
3.5	Material characterization	55
3.5.1	Fabric characterization	55
3.5.2	Characterization of the infiltration fluids	62
3.6	Experimental setup	66
3.6.1	Saturation analysis setup based on 2D tomographic reconstruction	66
3.6.2	Description of the RTM injection system	71
3.6.3	Characterization of void content and fiber volume content	73

3.7	Experimental Results	74
3.7.1	RTM injections at constant pressure	74
3.7.2	RTM injections at constant flow rate	77
3.7.3	RTM post-filling strategies	82
3.7.4	Analysis of saturation using Visible Light Transmission method	88
3.8	Discussion	96
3.9	Conclusion.....	96
3.10	Acknowledgements	97
3.11	References	98
3.12	Appendix	101
CHAPITRE 4	ARTICLE 2 : EXPERIMENTAL CHARACTERIZATION BY FLUORESCENCE OF CAPILLARY FLOWS IN THE FIBER TOWS OF ENGINEERING FABRICS.....	107
4.1	Présentation du chapitre	107
4.2	Abstract	108
4.3	Introduction	110
4.4	Bibliography.....	111
4.5	Modeling of capillary flows in fiber tows.....	113
4.5.1	Wetting and wicking	113
4.5.2	<i>Jurin's</i> law.....	114
4.5.3	Modified <i>Jurin's</i> law	115
4.6	Capillary creeping flow and imbibition models.....	118
4.6.1	<i>Lucas-Washburn</i> imbibition models	120
4.6.2	Global tow saturation	124
4.6.3	Axial permeability of the fiber tows	125

4.6.4	Capillary pressure at equilibrium	127
4.7	Material characterization.....	127
4.7.1	Fiber tow characterization.....	127
4.7.2	Characterization of the infiltration fluid	134
4.7.3	Characterization of the fiber tow variability	135
4.8	Experimental setup.....	137
4.8.1	Capillary rise experimental setup	137
4.8.2	Image post-treatment.....	138
4.9	Experimental results	139
4.9.1	Verification of basic assumptions	139
4.9.2	Wicking along fiber tows with sizing	143
4.9.3	Wicking along fiber tows without sizing	149
4.10	Conclusion.....	151
4.11	Acknowledgments.....	152
4.12	References	153
CHAPITRE 5	ARTICLE 3 : EXPERIMENTAL CHARACTERIZATION BY FLUORESCENCE OF CAPILLARY FLOWS IN DUAL SCALE ENGINEERING FABRICS.....	158
5.1	Présentation du chapitre	158
5.2	Abstract	159
5.3	Introduction	160
5.4	Bibliography.....	162
5.5	Modeling of capillary rise through dual scale fabrics	164
5.5.1	Modified <i>Jurin's</i> law for dual scale fabrics	165
5.5.2	<i>Lucas-Washburn</i> imbibition models	169

5.5.3	Fabric anisotropy and pore volume ratio	175
5.6	Material characterization.....	176
5.6.1	Fabric characterization	176
5.6.2	Fabric variability	182
5.6.3	Fluid characterization	184
5.7	Experimental setup	186
5.7.1	Capillary rise experimental setup	186
5.7.2	Image post-treatment.....	188
5.8	Experimental results	189
5.8.1	Verification of basic assumptions	189
5.8.2	Wicking in single ply with sizing.....	194
5.8.3	Wicking in single ply without sizing	199
5.8.4	Wicking in multiple ply laminates	200
5.9	Conclusion.....	206
5.10	Acknowledgements	208
5.11	References	208
CHAPITRE 6	ARTICLE 4 : PREDICTION OF OPTIMAL FLOW FRONT VELOCITY TO MINIMIZE VOID FORMATION IN DUAL SCALE FIBROUS REINFORCEMENTS	216
6.1	Présentation du chapitre	216
6.2	Abstract	217
6.3	Introduction	218
6.4	Bibliography.....	220
6.4.1	Sources of void formation.....	220
6.4.2	Void formation by air mechanical entrapment.....	220

6.4.3	Air entrapment by dual scale fingering.....	221
6.4.4	Key parameters impacting air entrapment	223
6.5	Modeling of capillary rise through dual scale fabrics	225
6.5.1	Modified <i>Jurin's</i> law for dual scale fabrics	226
6.5.2	<i>Lucas-Washburn</i> imbibition models	229
6.6	Determination of optimal impregnation conditions	232
6.6.1	Optimal impregnation velocity	232
6.6.2	Optimal modified capillary number	235
6.7	Material characterization.....	237
6.7.1	Fabric characterization	238
6.7.2	Fabric variability	242
6.7.3	Characterization of the infiltration fluids	242
6.8	Experimental setup.....	246
6.9	Experimental results	248
6.9.1	Analysis of macroscopic void formation	249
6.9.2	Characterization of Ca_{opt}^* for fiber tows	251
6.9.3	Characterization of Ca_{opt}^* for single fabric ply	253
6.9.4	Characterization of Ca_{opt}^* for multiple fabric ply.....	254
6.9.5	Penetrativity and optimal front velocity characterization	255
6.9.6	Discussion	261
6.10	Conclusion.....	263
6.11	Acknowledgements	264
6.12	References	264
CHAPITRE 7	DISCUSSION GÉNÉRALE	272

7.1	Approche expérimentale multi-échelle	272
7.2	Étude de l'imprégnation à l'échelle macroscopique	273
7.2.1	Stratégies de remplissage à pression constante et à débit constant	274
7.2.2	Stratégies industrielles de post-remplissage.....	279
7.2.3	Stratégies complémentaires pour l'optimisation de l'imprégnation	281
7.2.4	Optimisation de l'imprégnation par le contrôle de la vitesse de front	282
7.3	Études de l'imprégnation aux échelles microscopique et mésoscopique....	283
7.3.1	Phénomène de formation des bulles par emprisonnement d'air	283
7.3.2	Impact de la géométrie du renfort fibreux sur l'imbibition spontanée.....	285
7.3.3	Impact des propriétés rhéologiques et de surface du polymère sur l'imbibition spontanée.....	291
7.3.4	Détermination <i>a priori</i> de la vitesse d'imprégnation optimale	294
CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS		297
BIBLIOGRAPHIE... ..		305
ANNEXE I – SURVOL SUR LES PROCÉDÉS DE MISES EN FORME DES COMPOSITES PAR INJECTION SUR RENFORTS		325
ANNEXE II - BÉNÉFICE DE L'INJECTION RTM À VITESSE DE FRONT CONSTANTE PAR RAPPORT À L'INJECTION RTM À PRESSION CONSTANTE..		373

LISTE DES TABLEAUX

Table 3-1 : Properties of the <i>JB Martin</i> ® TG15N60A non-crimp fabric [27].....	57
Table 3-2 : Properties of fiber tows taken from <i>JB Martin</i> ® TG15N60A NCF [27]	58
Table 3-3 : Properties of a single ply of <i>JB Martin</i> ® TG15N60A NCF.....	59
Table 3-4 : Properties of the fluid for the permeability characterization tests	61
Table 3-5 : Properties of the <i>Derakane</i> ® 411-350 vinyl ester resin [30].....	63
Table 3-6 : Longitudinal positions of samples used to carry out void content characterization....	75
Table 3-7 : Results from the second series of experiments based on 21 injections at constant flow rate	78
Table 3-8 : Results of the third series of experiments based on 21 injections with three post- filling strategies	85
Table 4-1 : Properties of the JB Martin TG15N60A non-crimp fabric.....	132
Table 4-2 : Properties of fiber tows of the JB Martin TG15N60A non-crimp fabric	133
Table 4-3 : Probe fluid and interfacial properties	135
Table 4-4 : Dimensionless numbers in warp and weft imbibition tests with hexadecane	142
Table 4-5 : Results extracted directly from warp and weft imbibition tests with hexadecane	146
Table 4-6 : Results derived from warp and weft imbibition tests with hexadecane	149
Table 5-1 : Properties of fiber tows in JB Martin TG15N60A non crimp fabric ⁴⁹	178
Table 5-2 : Properties of JB Martin TG15N60A non crimp fabric.....	183
Table 5-3 : Characterization results of hexadecane fluid.....	186
Table 5-4 : Dimensionless numbers for single ply imbibition with hexadecane along the warp and weft directions	191
Table 5-5 : Results of warp and weft fiber tow imbibitions with hexadecane ⁴⁹	196
Table 5-6 : Results of single ply imbibitions with hexadecane.....	196

Table 5-7 : Results of the initial wicking behavior of fabric multiple ply imbibition tests with hexadecane in the weft direction	205
Table 6-1 : Properties of JB Martin TG15N60A non-crimp fabric.....	241
Table 6-2 : Fluid and interfacial properties	244
Table 6-3 : Results of fiber tow imbibition tests with hexadecane [60]	253
Table 6-4 : Results of single ply imbibition tests with hexadecane	254
Table 6-5 : Results of multiple ply imbibition tests in the weft direction with hexadecane	255
Table 6-6 : Results of single ply imbibition tests with liquid resins in the warp direction.....	257
Table 6-7 : Results of single ply imbibition tests with liquid resins in the weft direction.....	257
Table 6-8 : Results of single ply imbibition tests with styrene and anhydride in the weft direction	258
Table 6-9 : Optimal front velocities for multiple ply configurations in the weft direction.....	260

LISTE DES FIGURES

Figure 1-1 : Interactions des paramètres de contrôle dans les procédés LCM	5
Figure 1-2 : Représentation schématique d'un procédé LCM typique.	7
Figure 1-3 : Diagramme de moulabilité des procédés LCM.	8
Figure 1-4 : Trois niveaux hiérarchiques de variables du contrôle.	8
Figure 1-5 : Fenêtre de fabrication optimale des composites par procédés LCM.....	14
Figure 1-6 : Système de contrôle flou de la température.	23
Figure 1-7 : Vue simplifiée de la structure d'un réseau de neurones artificiel.	23
Figure 1-8 : Capteurs de flux thermique <i>Thermoflux Technologies SA</i> ®	28
Figure 1-9 : Schéma de la propagation d'une onde évanescente dans une fibre optique.....	33
Figure 2-1 : Montages utilisés pour la réalisation des essais mécaniques de flexion en trois points (a) et de cisaillement interlaminaire de type SBST (b).	40
Figure 2-2 : Corrélation entre la contrainte ultime obtenue lors de 150 essais de flexion en trois points et la teneur en vides obtenue par essai de carbonisation.	41
Figure 2-3 : Corrélation entre la contrainte ultime obtenue lors de 50 essais de cisaillement interlaminaire de type SBST et la teneur en vides obtenue par essai de carbonisation.	41
Figure 3-1 : Schematics of void formation due to resin fingering [28]: (a) microscopic flows through intra-tow pores; (b) macroscopic flows through inter-tow pores.	51
Figure 3-2 : Permeability characterization along weft direction at constant injection pressure. ..	62
Figure 3-3 : Characterization of gel times of vinyl ester resin formulation at 25 °C.	65
Figure 3-4 : The complete optical setup: (a) RTM mold with a digital camera and a filtered light source; (b) typical image acquisition of the dynamic saturation of the glass fibrous reinforcement; (c) calculations of dynamic saturation on a REV based grid (21 REV by 5 REV).....	70

Figure 3-5 : The RTM mold design: (a) CAD view of the RTM mold; (b) picture of the RTM mold with tempered glass covers and aluminum spacers bolted and sandwiched between steel plates.	71
Figure 3-6 : Photographs of the computer-assisted injection system: (a) workstation that acquires data from sensors and controls the automatic injection head; (b) two double action pumps driven by two tensile testing machines in order to supply resin (in front) and initiator (behind) to the injection head.....	73
Figure 3-7 : Void content analysis by <i>ASTM D2734</i> standard for 5 RTM injections at 4 different constant pressures.....	76
Figure 3-8 : Cut-off pattern of the composite plates used for void content and mechanical tests.	77
Figure 3-9 : Void content analysis by <i>ASTM D2734</i> for 21 RTM injections at 7 flow rates (0.025, 0.05, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4 and 0.5 ml/s).....	79
Figure 3-10 : Unit scaling of the void content determined in the part center with respect to the values in the gate and vent zones.	80
Figure 3-11 : Void content determined by <i>ASTM D2734</i> standard with respect to the modified capillary number for the different post-filling strategies.	86
Figure 3-12 : Spatial distributions of void content determined by <i>ASTM D2734</i> standard with respect to the modified capillary number for RTM injections followed by resin bleeding through the vent and mold pressure relief.	87
Figure 3-13 : Captured frames of a sequential RTM injection in which the flow front progression was stopped four times, leaving behind four areas of high saturation.	89
Figure 3-14 : Comparison of the VLT method with respect to void content determination by <i>ASTM D2734</i> standard and to volume balance.	90
Figure 3-15 : Comparison of 54 estimations of saturation levels determined by VLT method with respect to local saturation levels measured with <i>ASTM D2734</i> standard.....	91
Figure 3-16 : Tracking of saturation front profiles by VLT method during mold filling progression from inlet zone (85 mm) to outlet zone (275 mm).	93

Figure 3-17 : Monitoring of the saturation range evolution of fibrous preform by the VLT method during a gradual and incremental increase of mold packing pressure.	94
Figure 3-18 : Saturation “footprints” of 5 RTM injections carried out at 0.05 ml/s and followed by four different post-filling strategies.....	95
Figure 4-1 : Origin of the tortuosity of fiber bundles and filaments in fibrous reinforcements; (a) woven pattern of a 2D reinforcement; (b) intra-bundle tortuosity and tortuous capillary tube. ¹³	118
Figure 4-2 : Schematic view of the flow front evolution during a typical capillary rise through a porous medium.....	119
Figure 4-3 : Pictures of the <i>TG15N60A</i> E-glass NCF from <i>JB Martin®</i> : (a) picture showing the warp and weft directions and fabric unit cell; (b) binocular microscopic image along the weft showing a polyester binding filament.	128
Figure 4-4 : Microscopic (SEM) image of fiberglass tow: (a) showing the filament distribution; (b) SEM image of the resin-fiber interface.	129
Figure 4-5 : Newport® motorized stage with a rigid platform in cantilever configuration bolted on its moving part.....	139
Figure 4-6 : Capillary rise setup devised to follow the capillary front positions and the total uptake UV-dyed fluid mass.....	141
Figure 4-7 : Capillary flow front tracking inside a fiber bundle with <i>Otsu’s</i> algorithm. (a) raw picture of capillary flow without image post-treatment; (b) successive flow front positions inside a fiber bundle plotted by <i>Matlab</i>	142
Figure 4-8 : Evolution of the capillary number during capillary rise tests in fiber tows.	143
Figure 4-9 : Imbibition volume evolution in time during capillary rise tests with hexadecane on fiber tows along the warp and weft directions.	144
Figure 4-10 : <i>Lucas-Washburn</i> fits on height and mass evolutions of hexadecane in warp fiber tows.	145
Figure 4-11 : <i>Lucas-Washburn</i> fits on height and mass evolutions of hexadecane in weft fiber tows.	146

Figure 4-12 : Total tow saturation evolutions in time with hexadecane along the warp and weft directions.	149
Figure 4-13 : Comparison of square imbibition height evolutions in time for sized and unsized warp fiber tows with hexadecane.	150
Figure 4-14 : Comparison of square imbibition weight evolutions in time for sized and unsized warp fiber tows with hexadecane.	151
Figure 5-1 : Origin of the tortuosity of fiber bundles and filaments in fibrous reinforcements: (a) woven pattern of a 2D reinforcement; (b) tortuous capillary tube. ¹⁴	166
Figure 5-2 : Schematic view of the flow front evolution during a typical capillary rise through a porous medium.	170
Figure 5-3 : Pictures of the <i>TG15N60A</i> E-glass NCF from <i>JB Martin®</i> : (a) the unit cell and the <i>REV</i> definitions; (b) binocular microscopic image of the fabric along the weft showing a polyester binding filament.	177
Figure 5-4 : Porosity of the fibrous reinforcement and polyester mass fraction plotted as a function of the area of fabric samples.	184
Figure 5-5 : Schematic representation of the capillary rise setup for fibrous reinforcements.	188
Figure 5-6 : Capillary flow front tracking inside a fabric ply with <i>Otsu's</i> algorithm: (a) raw picture of capillary flow; (b) successive flow front positions along the fabric ply plotted with <i>Matlab</i>	189
Figure 5-7 : Capillary rise modeling in closed capillary tubes of diameters equal to the hydraulic diameters of fiber tows and of the gaps between fiber tows.	193
Figure 5-8 : Qualitative imbibition test in a single fabric ply along the weft direction with two successive alkanes of different colors (yellow and blue fluorescent dyes): (a) during imbibition; (b) after imbibition.	194
Figure 5-9 : Comparison of the <i>Lucas-Washburn</i> fits on the square height evolutions in time of hexadecane imbibitions of a single fabric ply in the warp and weft directions for initial and medium term wicking behaviors.	195

Figure 5-10 : Saturation evolution along the warp and weft directions in single ply fabrics with respect to imbibition height.....	198
Figure 5-11 : Total void content evolution along the warp and the weft directions in single ply fabrics with respect to the capillary number.	198
Figure 5-12 : Comparison of weight evolutions of hexadecane for weft imbibition in a single ply fabric with and without sizing.....	200
Figure 5-13 : Comparison of height evolutions of hexadecane for weft imbibition in a single ply fabric with and without sizing.....	200
Figure 5-14 : Impact of fiber volume content on the square weight evolutions of hexadecane in multiple ply fabrics (weft).....	202
Figure 5-15 : Impact of fiber volume content on the evolutions of square imbibition height of hexadecane in multiple ply fabrics (weft).	203
Figure 5-16 : Impact of fiber volume content on the saturation of multiple ply fabrics along the weft direction.....	205
Figure 6-1 : Microscopic and macroscopic void formation due to resin fingering [10]: (a) microscopic flows through intra-tow pores ; (b) macroscopic flows through inter-tow pores.	223
Figure 6-2 : Origin of the tortuosity of fiber bundles and filaments in fibrous reinforcements: (a) woven pattern of a 2D reinforcement; (b) tortuous capillary tube [36].	226
Figure 6-3 : Schematic view of the flow front evolution during a typical capillary rise through a porous medium.....	230
Figure 6-4 : Schematic views of imbibition evolution according to <i>Lucas-Washburn</i> law: (a) square imbibition height evolution in time based on Eq.(6.16); (b) imbibition velocity evolution in time based on Eq.(6.22) and average optimal imbibition velocity (v_{opt}) on L_c	234
Figure 6-5 : Pictures of the <i>TG15N60A</i> E-glass NCF from <i>JB Martin®</i> : (a) fabric image showing its principal directions and the unit cell dimensions; (b) microscope image of the fabric along the weft showing the polyester binding filament.	239

Figure 6-6 : <i>Representative Elementary Volume</i> analysis (<i>REV</i>) from porosity (gravimetry) and polyester mass fraction (thermo-gravimetry) plotted as a function of the area of fabric samples.	239
Figure 6-7 : <i>Arrhenius</i> plot of dynamic viscosity of resins and curing agents with respect to temperature (rheometer).	245
Figure 6-8 : Characterization of surface tensions of resins and curing agents with respect to temperature by tensiometry (force tensiometer).	245
Figure 6-9 : Characterization of fluid parameter (6.20) of resins and curing agents with respect to temperature by rheometry and tensiometry.	246
Figure 6-10 : Schematic representation of the capillary rise setup.	247
Figure 6-11 : Imbibition tests on single ply in the weft direction with (a) hexadecane; (b) vinyl ester resin; and (c) epoxy anhydride resin.	250
Figure 6-12 : Progressive macroscopic void formation by air entrapment during fabric imbibition with vinyl ester resin in the weft direction.	250
Figure 6-13 : Macroscopic void content generated by air entrapment in the TG15N60A fabric with vinyl ester and epoxy anhydride resins.	251
Figure 6-14 : Comparison of the <i>Lucas-Washburn</i> fits of single ply imbibitions by hexadecane, vinyl ester resin and epoxy anhydride resin in the warp direction.	256
Figure 6-15 : Capillary rise experiment with styrene monomer in a fiber tow: (a) CCD picture acquired after the capillary front has stopped; (b) CCD picture acquired after 24 hours. ...	261
Figure 7-1 : Intégration de tous les résultats d'analyse de teneurs en vides effectuées avec la résine vinyl ester <i>Derakane 411-350TM</i> et le renfort de verre bidirectionnel NCF TG15N60A.	276
Figure 7-2 : Prédiction de l'évolution de la teneur totale en vides en fonction du logarithme du nombre capillaire modifié pour un renfort fibreux donné (Patel 1994).	276
Figure 7-3 : Diagramme de moulabilité des procédés LCM avec sous-régions optimales.	279

Figure 7-4 : Formation de vides macroscopiques et microscopiques découlant du phénomène de digitation de la résine : (a) Écoulement à l'intérieur des pores microscopiques contenus dans les mèches; (b) Écoulement à l'intérieur des pores macroscopiques situés entre les mèches.

.....285

Figure 7-5 : Formation progressive de vides macroscopiques par emprisonnement d'air durant l'imbibition spontanée de résine vinyl ester dans un renfort fibreux (sens trame).290

LISTE DES SIGNES ET DES ABRÉVIATIONS

g	Accélération gravitationnelle
A_{gap}	Aire de la section transversale de la distance entre les mèches
A_{cs}	Aire de la section transversale de la mèche perpendiculaire à l'écoulement
θ	Angle de contact apparent
c_v	Capacité volumétrique de rétention du fluide
c_p	Chaleur spécifique massique (capacité calorifique) du matériau considéré
F_{geo} ou f_{geo}	Constante géométrique
k_o	Constante géométrique de <i>Kozeny-Carman</i>
$\alpha_{résine}$	Degré de réticulation de la résine $0 \leq \alpha_{résine} \leq 1$
d_h	Diamètre hydraulique équivalent
d_f	Diamètre moyen du filament
$\Delta\rho$	Différentielle entre les densités du liquide et du gaz
L_c	Dimension caractéristique de la cellule élémentaire (entre les centres de mèches)
ΔH	Enthalpie de réaction de réticulation de la résine thermodurcissable
h_{tow}	Épaisseur des mèches
Q	Flux total de chaleur généré lors de la réticulation de la résine thermodurcissable
$\overrightarrow{\nabla P}$	Gradient de pression
z_{eq}	Hauteur capillaire d'équilibre
z_{Jurin}	Hauteur d'équilibre de Jurin

n	Indice de réfraction optique du matériau considéré
I	Intensité de la lumière reçue ou transmise par le milieu poreux considéré
w_{gap}	Largeur entre les mèches (largeur de macropores)
l_{cap}	Longueur capillaire caractéristique
L_c	Longueur caractéristique de la cellule élémentaire représentative du renfort fibreux
λ	Longueur d'onde de la lumière monochromatique considérée
m_{fluid}	Masse de liquide absorbé par une mèche
$m_{meniscus}$	Masse due à la force ménisque sur une mèche lors du contact fibre-fluide
ρ_{fluid}	Masse volumique du liquide mouillant
ρ_{glass}	Masse volumique du verre
Ca	Nombre capillaire
Ca^*	Nombre capillaire modifié
Bo	Nombre de Bond
n_{tows}	Nombre de mèches pour largeur de renforts (mèche/cm)
Re_d	Nombre de Reynolds
Pe	Nombre de Péclet
R_{fluide}	Pénétrativité du fluide considéré
B_h	Pente de <i>Lucas-Washburn</i> (LW) de la hauteur capillaire
B_m	Pente de <i>Lucas-Washburn</i> (LW) de la masse absorbée par capillarité
P_{gap}	Périmètre mouillé de macropores
P_w ou P	Périmètre mouillé total
ϕ_m ou ϕ_{tow}	Porosité de la mèche

p_{atm}	Pression atmosphérique
p_{cap}	Pression capillaire
R_a	Ratio d'anisotropie du milieu poreux considéré
r	Rayon du tube capillaire
$\% \chi_{resin}$	Retrait volumique de la résine thermodurcissable considérée
s	Saturation de la mèche $0 \leq s \leq 1$
S_m	Surface spécifique massique du milieu poreux (par unité de masse)
S_{pv}	Surface spécifique volumique du milieu poreux (par unité de volume de pores)
$\dot{\gamma}$	Taux de cisaillement
V_f	Taux (fraction) volumique de fibres
T	Température du corps/matériau considéré
t_c	Temps caractéristique de remplissage
$\%v$	Teneur totale en vides
$\%V_{macro}$	Teneur volumique en vides macroscopiques
$\%V_{micro}$	Teneur volumique en vides microscopiques
$\overline{\overline{K}}$	Tenseur de perméabilité
γ_{lg}	Tension superficielle entre liquide-vapeur
γ_{sg}	Tension superficielle entre solide-vapeur
γ_{sl}	Tension superficielle entre solide-liquide
τ	Tortuosité de la mèche
μ	Viscosité dynamique du fluide d'infiltration

v_{ff}	Vitesse d'avancée du front ou vitesse interstitielle (pore)
$\vec{q}$	Vitesse de <i>Darcy</i> ou vitesse superficielle
$\dot{\alpha}_{résine}$	Vitesse de réaction de réticulation de la résine (vitesse stœchiométrique)

LISTE DES ANNEXES

ANNEXE I – SURVOL SUR LES PROCÉDÉS DE MISES EN FORME DES COMPOSITES PAR INJECTION SUR RENFORTS	325
ANNEXE II - BÉNÉFICE DE L'INJECTION RTM À VITESSE DE FRONT CONSTANTE PAR RAPPORT À L'INJECTION RTM À PRESSION CONSTANTE..	373

INTRODUCTION

À l'origine employés principalement dans le domaine militaire, les matériaux composites à matrice thermodurcissable se retrouvent maintenant dans un nombre grandissant d'applications industrielles. Leur popularité connaît une croissance fulgurante dans les domaines de l'aéronautique, du transport, de la médecine et du loisir. Ceci s'explique par leur excellente performance mécanique en termes de rigidité spécifique, leurs bonnes propriétés d'isolation acoustique et électrique, ainsi qu'une résistance remarquable à la fatigue et à la corrosion. Or les coûts de fabrication prohibitifs des matériaux composites, occasionnés bien souvent par des dépenses en main-œuvre et en matières premières toujours croissants (Mazumdar 2002), constituent un frein économique à l'expansion soutenue de cette industrie (Tecsult 2008). De plus, les procédés de mise en forme traditionnels requièrent des temps de cycle relativement longs, ce qui peut s'avérer conflictuel pour certains secteurs industriels où les cadences de production sont de l'ordre de centaines d'unités par jour. Il devient donc impératif de développer des solutions pratiques qui permettront de minimiser les rejets de pièces composites contenant des défauts critiques de fabrication, garantissant ainsi des gains en efficacité et en productivité.

À cet effet, les méthodes de fabrication des composites à haute performance par les procédés d'injection sur renforts (LCM) permettent de réduire significativement le temps et les coûts de la mise en forme de ces matériaux en comparaison avec les méthodes de fabrication plus classiques en autoclave ou de moulage au contact par exemple (Rudd 1997). De plus, cette réorientation vers des procédés de mise en œuvre des composites en moule fermé est appelée à prendre de l'ampleur suite à l'adoption en juin 2011 par le *United States Department of Health and Human Services* d'une nouvelle réglementation sur le contrôle des émissions de styrène (United States Department of Health and Human Services DHHS 2011). Néanmoins, ces procédés LCM sont à l'heure actuelle aux prises avec certains défis techniques exigeant des investissements majeurs en recherche et développement. Parmi ceux-ci, l'imprégnation des renforts fibreux à porosité bimodale par une résine thermodurcissable liquide constitue un enjeu-clé pour les fabricants de pièces aéronautiques. En effet, une imprégnation complète des renforts à fibres de carbone avant le gel du polymère est nécessaire afin d'éviter la formation de défauts ayant un impact nuisible

sur la performance mécanique des pièces composites en service. S'ils sont présents dans une proportion volumique dépassant 1%, ces défauts d'imprégnation peuvent entraîner la mise au rebut des pièces composites aéronautiques ne respectant pas ce critère d'admissibilité vérifié lors de l'étape de contrôle de qualité (Jeong 1997). La réduction des pertes dans la production de pièces composites à haute performance devient un enjeu stratégique de première importance. Ce défi industriel découle de la demande croissante pour les fibres de carbone par les pays émergents et de la hausse du cours du pétrole qui a entraîné une augmentation marquée des prix de vente des matrices polymères (Commission des Affaires Étrangères et de la Défense 2011; Investissement Québec 2011). Il faut souligner que les défauts microscopiques et macroscopiques d'imprégnation dans les renforts fibreux à porosité bimodale prennent bien souvent la forme de bulles qui apparaissent à cause d'un phénomène d'emprisonnement d'air dans les mèches de fibres et autour de celles-ci. Toutefois, les phénomènes physiques qui gouvernent l'emprisonnement d'air pendant l'imprégnation des renforts fibreux ne sont pas encore clarifiés.

Le présent travail de thèse vise justement à approfondir cette compréhension des phénomènes d'imprégnation et d'emprisonnement des bulles dans les renforts fibreux à porosité bimodale afin d'améliorer la qualité des pièces composites fabriquées par les procédés LCM. Les deux objectifs généraux de cette thèse consistent à identifier expérimentalement les paramètres qui gouvernent de la fabrication par injection sur renforts afin de contrôler la qualité de l'imprégnation des renforts fibreux et de développer des méthodes de caractérisation rapides, répétables et à faible coût des conditions optimales d'imprégnation pour un couple renfort-résine donné. Pour atteindre le premier objectif, un montage expérimental non-intrusif a été tout d'abord conçu afin de suivre en temps réel l'imprégnation et la saturation des renforts fibreux pendant leur mise en forme par le procédé RTM. Ensuite, cette nouvelle approche expérimentale a été validée à l'aide d'une technique standard de caractérisation par carbonisation des teneurs en vides dans les pièces composites. Finalement, l'évolution de l'imprégnation et de la saturation des renforts fibreux a été reliée aux divers paramètres de la mise en forme par le procédé RTM afin d'identifier les paramètres qui influencent principalement la formation des bulles par emprisonnement d'air, leur transport ainsi que leur dissolution. De son côté, le deuxième objectif a été rempli en concevant et en validant en premier lieu un montage expérimental qui permettait de caractériser les

écoulements capillaires d'un fluide de référence et des résines thermodurcissables dans des renforts fibreux. Ensuite, les conditions optimales d'imprégnation des renforts fibreux permettant de minimiser la formation de défauts (bulles) pendant la mise en forme des composites par le procédé RTM ont été estimées expérimentalement. Cette estimation *a priori* des conditions optimales s'est appuyé sur un modèle prédictif et une caractérisation expérimentale des écoulements capillaires des résines thermodurcissables dans des renforts fibreux, tout en évitant d'avoir à réaliser des modélisations et de simulations numériques complexes.

La thèse est subdivisée en 7 chapitres. En premier lieu, une revue de littérature est proposée au chapitre 1. Ce chapitre permet d'introduire les défis de la mise en forme des matériaux composites par injection sur renforts et de présenter la problématique générale de ce projet. Au besoin, le lecteur peut également consulter l'**Annexe I** pour un survol sur les procédés de mise en forme des matériaux composites par injection sur renforts. Les contributions originales de cette thèse sont également détaillées dans le chapitre 1. Les hypothèses de travail et les objectifs spécifiques du projet sont ensuite définis au chapitre 2. Quatre articles qui ont été soumis dans des revues scientifiques sont par la suite présentés dans les chapitres 3 à 6. La discussion générale sur les résultats et les analyses de ces articles est développée au chapitre 7. Enfin, les conclusions et recommandations pour la poursuite de cette recherche sont formulées dans le chapitre 8.

CHAPITRE 1 REVUE DE LITTÉRATURE

La revue de littérature vise à positionner la contribution originale de cette thèse par rapport aux autres publications portant sur la thématique du contrôle de procédé appliqué à la mise en forme des composites par les procédés d'injection sur renforts aussi appelés procédés « Liquid Composite Molding » (LCM) en anglais. Cette revue de littérature est divisée entre trois parties principales. Tout d'abord, un bref survol des diverses variables de contrôle des procédés LCM est proposé selon leurs ordres hiérarchiques de contrôle. Il s'agit des variables « machine » et de « procédé » ainsi que des critères de qualité. Dans la présente thèse, ces variables vont servir à contrôler le remplissage des pièces composites par le procédé RTM et ainsi étudier la formation et l'évolution des défauts d'imprégnation des renforts fibreux en fonction de ces paramètres de contrôle. Ensuite, les algorithmes de contrôle typiquement employés dans les procédés LCM sont introduits tels que le contrôle PID standard, le contrôle optimal, le contrôle intelligent et le contrôle robuste. Le contrôle PID sera justement retenu dans cette thèse pour assurer le contrôle des paramètres d'injection durant le remplissage RTM des pièces composites de la première étude expérimentale. Finalement, l'instrumentation généralement utilisée dans les moules pour le contrôle de la mise en forme des composites par les procédés LCM est présentée telle que les thermocouples, les capteurs de flux thermique, les capteurs diélectriques, les capteurs de fibres optiques, les capteurs acoustiques, les capteurs de pression et les caméras. Dans le cadre de cette thèse, les capteurs de pression et les caméras numériques ont été choisis pour leur robustesse, leur facilité d'utilisation et leur faible coût.

Lorsque vient le temps de juger de la qualité d'une pièce composite produite, le concepteur peut être guidé par une grande quantité de critères de performance potentiellement conflictuels tels que le degré de saturation final, le degré de réticulation final, le fini de surface, les déformations résiduelles, la masse de la pièce fabriquée et leur coût unitaire de fabrication. Pour maintenir un certain niveau de qualité, de répétabilité et de reproductibilité sur ces propriétés finales, les paramètres de conception et de contrôle doivent être optimisés et ajustés en permanence. Or, les critères de performance entrent la plupart du temps en opposition avec les objectifs de

profitabilité des industriels. La supervision de la fabrication des pièces composites, grâce à des stratégies de contrôle de procédé en temps réel, devient alors avantageuse surtout dans un contexte où les interactions entre les divers variables de contrôle sont nombreuses dans les procédés LCM telles qu'illustrées par la Figure 1-1.

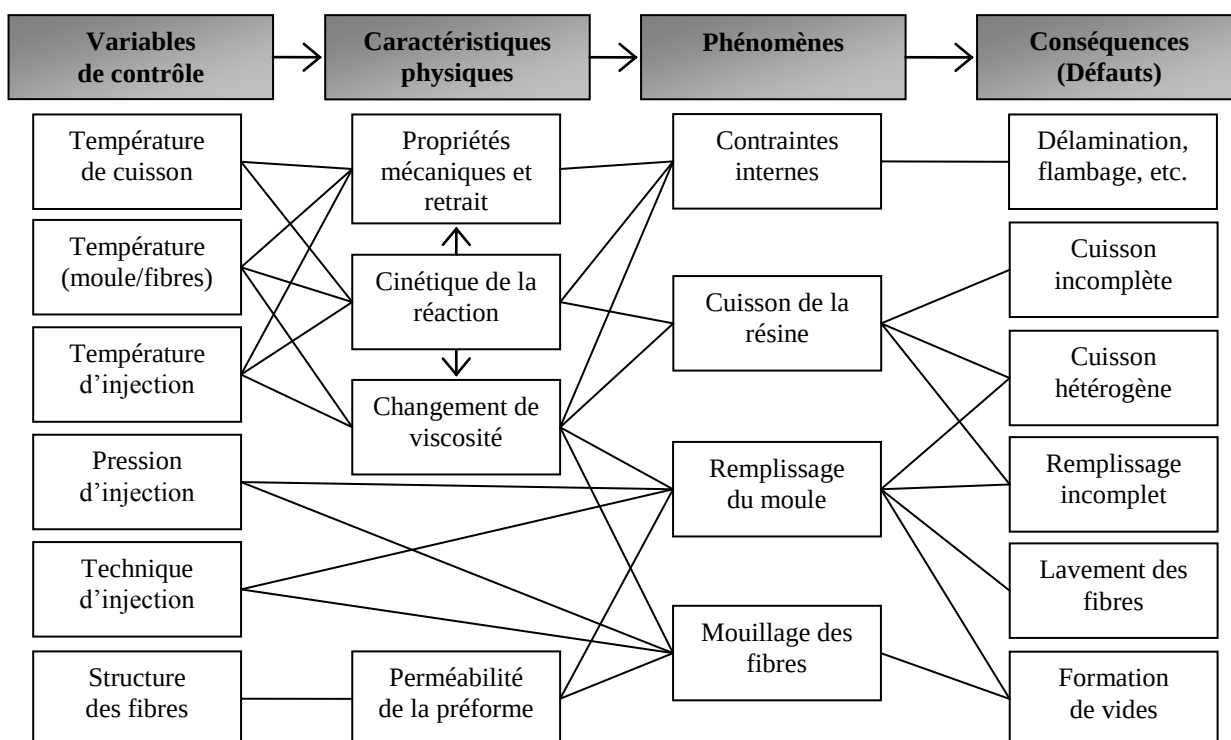


Figure 1-1 : Interactions des paramètres de contrôle dans les procédés LCM ¹.

À cette fin, le fabricant doit choisir les variables « machine » et de « procédé » ainsi que les critères de « qualité » qui seront suivis et contrôlés. De plus, il doit sélectionner les canaux de transmission d'information, l'instrumentation et les stratégies de contrôle étant les mieux adaptés à l'environnement industriel et aux variables d'états suivies durant la mise en forme LCM. Un survol de la littérature sur les variables de contrôle et leur hiérarchisation ainsi que sur

¹ Figure 1-1 inspirée de (Spoerre, Zhang et al. 1998) et de (Ruiz 2004).

l'instrumentation et les stratégies de contrôle de procédé utilisées pendant les mises en forme LCM fait justement l'objet des sous-sections suivantes. Cette revue de littérature permet de positionner les outils de contrôle sélectionnés pour réaliser les plans d'expériences de cette thèse portant sur l'étude des mécanismes d'imprégnation durant la fabrication des composites par procédé RTM.

1.1 Variables contrôlées dans les procédés LCM

Les propriétés finales d'une pièce composite dépendent fortement de l'histoire chimique, mécanique, rhéologique et thermique de sa mise en œuvre. De ce point de vue, le contrôle de procédé et le contrôle de qualité deviennent donc deux outils importants à la disposition de l'ingénieur afin d'assurer l'aptitude à l'emploi, les attributs, la conformité aux standards, la durabilité, l'esthétique, la fiabilité, la performance et la réputation des pièces fabriquées par un quelconque procédé de fabrication (Montgomery 2001). Par surcroît, cette supervision de la fabrication, réalisée à partir de suivis de la fabrication en temps réel et d'analyses post-production, certifie une faible variabilité statistique du procédé et des pièces mises en œuvre. D'autant plus que les procédés de mise en forme LCM, tels que schématisés à la Figure 1-2, peuvent être vulnérables face aux nombreuses sources potentielles de perturbations et aux environnements industriels de production « électroniquement bruyants ».

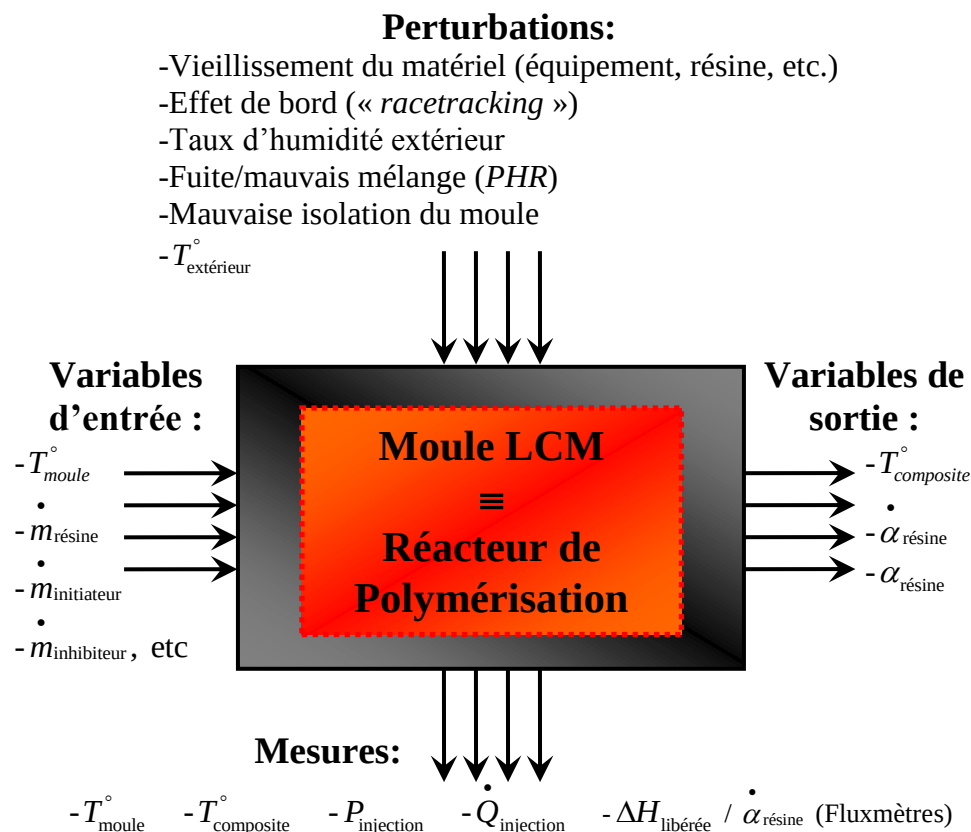


Figure 1-2 : Représentation schématique d'un procédé LCM typique.

Tout d'abord, pour assurer la robustesse des procédés de mise en forme LCM, ces derniers doivent être maintenus à l'intérieur d'une fenêtre de faisabilité de la fabrication donnée telle qu'illustrée à la Figure 1-3. Cette fenêtre de faisabilité, aussi appelée fenêtre de moulabilité, est le fruit d'une juxtaposition de contraintes thermo-physiques provenant du système d'injection utilisé, de l'architecture du renfort préformé, de la formulation chimique de la résine injectée (Gonzalez-Romero and Macosko 1990; Achim and Ruiz 2010). Malgré tout, si la fabrication est opérée à l'intérieur de cette fenêtre, la qualité finale des pièces produites peut ne pas être optimale car les procédés LCM peuvent être perturbés par des agents internes ou externes. Alors, pour garantir une meilleure qualité finale des pièces, des critères de qualité ou de performance intrinsèques aux pièces composites doivent être imposées et surveillées. Or, l'observation et le contrôle de ces critères ne sont pas toujours directs. Au contraire, pour atteindre et guider l'évolution de ces critères de « qualité », il faut transiter, dans l'ordre, par deux autres niveaux de

variables que sont les variables « machines » et les variables de « procédé » tels qu'illustrés à la Figure 1-4 (Chen and Turng 2004; Chen and Turng 2005).

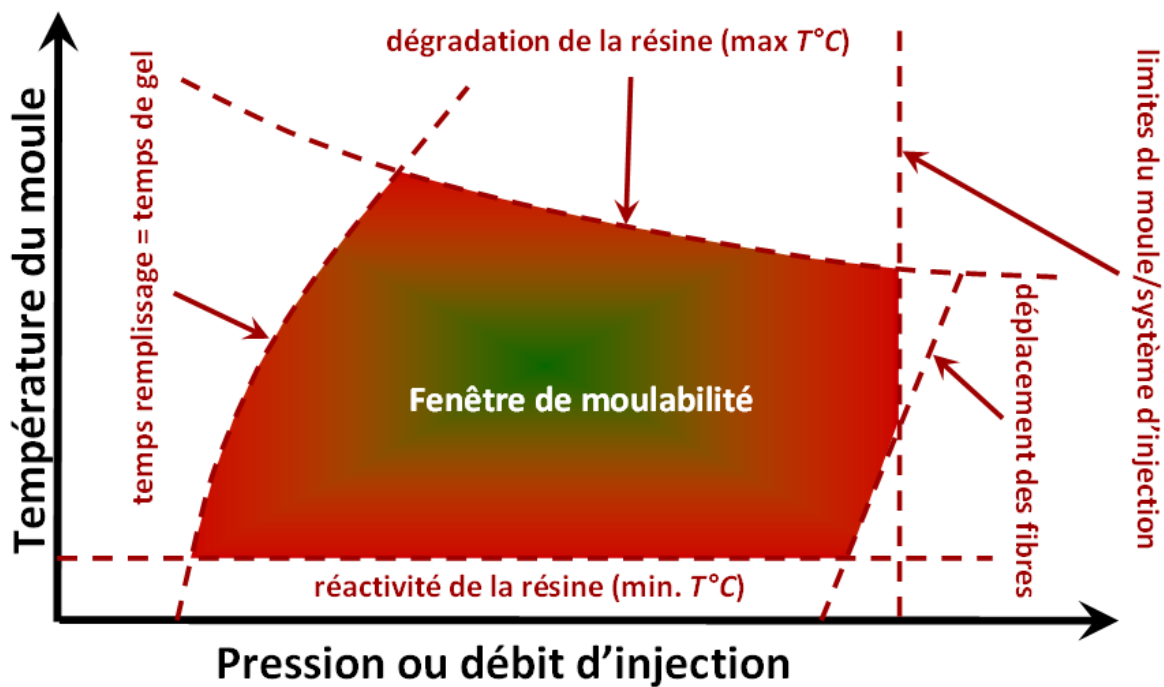


Figure 1-3 : Diagramme de moulabilité des procédés LCM.

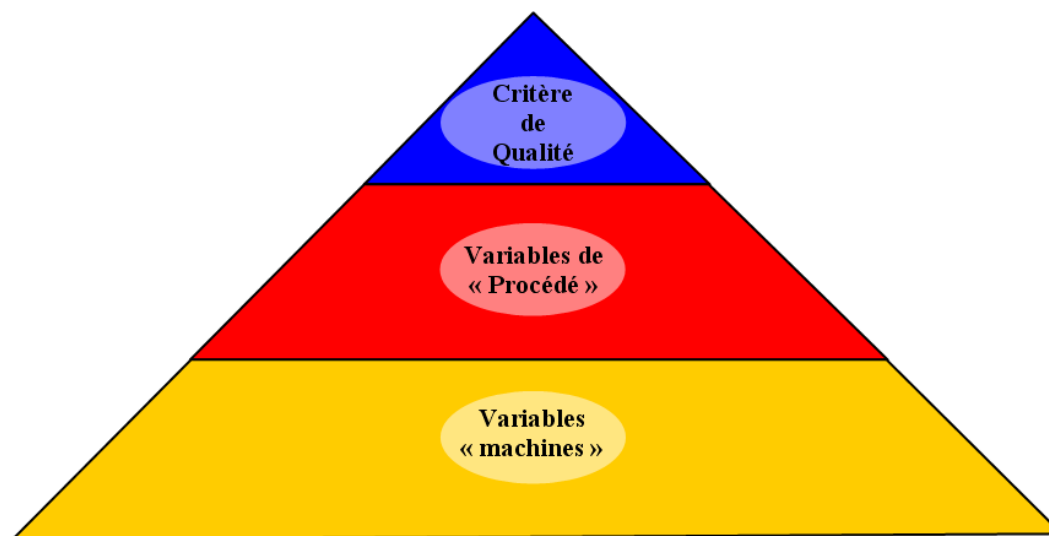


Figure 1-4 : Trois niveaux hiérarchiques de variables du contrôle.

1.1.1 Variables « machines »

Les variables « machines » constituent le premier niveau d'éléments de contrôle qui est en interaction directe avec l'opérateur. Ces variables sont donc indépendantes des autres niveaux de variables et elles gouvernent directement ou indirectement ces autres variables de contrôle. Tout d'abord, dans les procédés LCM, il y a les contraintes « machines » et « matérielles » telles que :

- Limites physiques des équipements et du matériel
 - Pression maximale et/ou débit maximal
 - Température maximale
 - Nombre de cycles maximal (durabilité)
- Géométrie de la cavité du moule
 - Forme (épaisseur¹, longueur, largeur, courbures, etc.)
 - Positionnement des ports et des événements
 - Fini de surface de la cavité (rugosité)
- Matériau du moule
 - Diffusivité thermique
 - Stabilité géométrique (dilatation thermique)
- Isolation du moule
 - Niveau d'influence des perturbations externes et internes
 - Niveau de consommation d'énergie
- Système de chauffage
 - Échangeur de chaleur
 - Résistif
 - Inductif
 - Micro-ondes
 - Rayonnement infrarouge
- Architecture et matériau du renfort fibreux
 - Nature chimique du renfort fibreux et de son ensimage
 - Mode de tissage ou de couture du renfort fibreux
 - Préformage et drapage du stratifié fibreux
 - Porosité et perméabilité du stratifié fibreux¹
- Nature chimique des espèces individuelles injectées

¹ La forme du moule, la porosité et la perméabilité du renfort fibreux peuvent devenir des contraintes fixes pour certains procédés LCM telles que le RTM ou des variables de « procédé » pour le Compression Resin Transfer Molding (CRTM), Resin Transfer Molding light (RTM light), etc.

Il s'agit des éléments qui sont fixés lors de la phase initiale de conception. À cet effet, des choix stratégiques, lors de cette étape de conception du moule, permettront une plus grande fenêtre de faisabilité, un gain substantiel en productivité et des économies à long terme (Rudd 1997). Ensuite viennent les paramètres « machines » pouvant être ajustés durant les mises en forme. En premier lieu, il y a la vitesse ou la pression appliquée aux pistons à « simple action », à « double action », à engrenages ou aux pompes qui peut être commandée directement. Il peut y avoir la pression pneumatique appliquée sur un pot de transfert. Dans le cas particulier du système d'injection utilisé dans le cadre de cette thèse, il est constitué d'une paire de pistons à « double action » montés individuellement sur deux machines d'essais en traction-compression dont le contrôle en position et en vitesse est très précis (débit et volume manipulés). Ces pistons pompent les fluides à partir de réservoirs fermés qui peuvent être mis sous pression. Ce contrôle direct et indépendant des débits volumiques des contenus des deux pistons offre une grande flexibilité et permet à l'opérateur de faire varier en temps réel les rapports d'initiateur, d'inhibiteur, d'accélérateur et/ou d'additifs tels que le styrène. Ainsi, l'utilisateur peut modifier, au besoin, la cinétique de polymérisation graduellement pour compenser l'écart entre les historiques thermiques de la résine à proximité du port d'injection et de celle à l'évent, dans le cas d'un moule RTM chauffé. Ainsi, le temps de gel dans le plan de la pièce peut être uniformisé, ce qui mènera à des temps de cycle plus courts et à l'atténuation des distorsions géométriques dues aux contraintes résiduelles (Blanchard and Rudd 1996; Kim, Kim et al. 2003; Devillard, Laut et al. 2005). Cette variation continue de la réactivité de la résine revient donc à diminuer la durée totale de la phase de cuisson et le délai d'attente entre la fin de l'injection et le début de la gélification. Il faut toutefois rappeler que le moule RTM utilisé dans le cadre de cette thèse n'est pas thermo-régulé car le système de résine sélectionné ne le nécessite pas. De plus, avec ce type de système d'injection à débit imposé, l'opérateur peut baliser la masse finale de la pièce et la vitesse d'avancée du polymère dans la cavité du moule RTM (Ruiz, Achim et al. 2006).

Toujours dans le but d'homogénéiser la gélification de la résine dans le plan de la pièce et de diminuer le temps de cycle, d'autres variables « machines » peuvent également être manipulées. Parmi celles-ci, on retrouve la température du mélange au port d'injection et la distribution de la température dans les parois du moule. À ce titre, la température du mélange au port d'injection peut être rehaussée via les systèmes de régulation thermique des réservoirs, des lignes

d'alimentation et du moule, ce qui n'est pas le cas dans la présente thèse. Les objectifs immédiats visés par cette régulation thermique sont l'abaissement de la viscosité du mélange à sa valeur optimale et l'atténuation du phénomène de refroidissement brusque à l'entrée du moule pour réaliser un remplissage de la préforme et une cuisson de la résine plus rapides (Rudd 1997). En outre, il existe une stratégie complémentaire pour réduire le délai entre les débuts de la réticulation à l'évent et au port d'injection. Il s'agit de faire subir une rampe de chauffage à la résine et à l'initiateur durant l'injection pour intensifier le niveau de réactivité de la dernière portion de résine entrant dans la cavité. En résulte un accroissement potentiel du rendement du procédé LCM employé. Toutefois, il peut être risqué de préchauffer le mélange réactif contenu dans un réservoir d'approvisionnement, surtout si le temps de résidence est long. Cette stratégie peut mener tout droit à un gel prématuré de la résine dans la conduite d'alimentation ou dans le moule. C'est pour cette raison que le chauffage séparé des éléments réactifs, en amont de la tête de mélange, est généralement privilégié dans l'industrie (Rudd 1997).

La régulation thermique des composantes d'un procédé peut être réalisée par divers moyens comme le démontre la vaste gamme de possibilités offertes aux concepteurs de systèmes de mise en forme et présentées dans la littérature scientifique (Johnson, Rudd et al. 1995; Johnson, Rudd et al. 1998; Zhu and Pitchumani 1999; Zhu and Pitchumani 2000; Johnson and Pitchumani 2003; Mawardi and Pitchumani 2003; Johnson and Pitchumani 2006). Tout d'abord, une des techniques conventionnelles les plus fréquemment utilisées est le moule configuré pour fonctionner tel un échangeur de chaleur. Dans ce cas de figure, de nouvelles variables « machines » viennent s'ajouter à la liste déjà existante, en occurrence la température du liquide caloporteur à l'entrée du moule et le débit volumique ou la pression du liquide caloporteur à l'entrée du moule. Bien souvent, ces variables sont employées dans un contrôle de ces réacteurs discontinus de polymérisation que sont les moules LCM. En ajustant individuellement les débits volumiques des alimentations chaude et froide de fluide caloporteur, il est possible de piloter la température du moule LCM dans son ensemble. En contrepartie, à l'aide d'un système de régulation thermique par zone utilisant le principe de l'effet Joule, de l'induction électromagnétique ou des micro-ondes, l'opérateur est en mesure de mieux cibler ses interventions sur la pièce composite en cours de fabrication et ainsi compenser localement les pertes de chaleur à proximité du port d'injection (phénomène de refroidissement brusque). Des gains de productivité non négligeables peuvent en

découler par rapport à un système de chauffage conventionnel, de l'ordre de 35% dans le cas du chauffage par micro-ondes (Rudd 1997).

1.1.2 Variables de « procédé »

Les variables de « procédé », qui dépendent des variables « machines », sont en lien plus direct avec la qualité des pièces produites que les variables « machines » telles qu'illustrées à la Figure 1-4. Il est donc logique de vouloir contrôler ces variables de « procédé » d'encore plus près. Dans le contexte de procédés LCM, un des paramètres de procédé primordial est la température du composite (résine et renfort). Celle-ci influence directement les deux autres variables de « procédé » que sont la viscosité dynamique de la résine et donc, dans certains contextes, la vitesse d'avancée du front de résine. En procédant à une injection non isotherme, il est possible d'obtenir les retombées positives suivantes (Rudd 1997) :

- Réduire les temps de remplissage du moule
- Réduire les temps de gel et de polymérisation
- Réduire ou éliminer les opérations de post-cuisson
- Améliorer les finis de surface en contrôlant le retrait

Ainsi, grâce à un système de régulation thermique rapide, flexible et efficace du moule et du mélange injecté, le cycle de production de pièces peut passer de plusieurs heures, pour une cuisson isotherme, à quelques minutes ou moins, pour une cuisson non isotherme. Cette température du composite est commandée par l'intermédiaire de la température du moule et des températures initiales du renfort et du système de résine injecté, lors de l'étape de préchauffage. Si la vitesse d'avancée du front de résine le permet, cette température du composite peut être influencée aussi par le passage du front de résine transportant de la chaleur, à savoir par un processus de transfert de chaleur par advection.

La viscosité dynamique est une autre variable de « procédé » centrale lors de la phase de remplissage car son comportement permet de cerner la zone optimale pour injecter ($\mu_{minimale}$) et la durée maximale que doit durer cette injection (t_{gel}). La viscosité dynamique de la résine est affectée par plusieurs paramètres, tels que la température de la résine à l'entrée du moule, la

température du moule, le degré de réticulation de la résine et la concentration de styrène dans la résine. Le comportement de la résine est également modifié par la formulation chimique originale du lot et par son vieillissement (ex. : évaporation du styrène). À cette fin, certaines dispositions de suivi du vieillissement du lot de résine ont été prises dans le cadre de cette thèse. Il faut dire également que le comportement thermique et rhéologique de la résine seule diffère du comportement de l'ensemble fibres/résine (Karbhari and Lee 2002). Face à toutes ces variations *a priori* non modélisables, les techniques robustes et *in situ* d'observation des événements liés à la viscosité deviennent donc pertinentes pour éviter la formation de défauts de remplissage et de cuisson des pièces composites lors d'injections non isothermes.

Finalement, une dernière variable de « procédé » qui doit être prise en compte est la vitesse de propagation du front de résine car, comme la viscosité dynamique, elle influe sur le temps de remplissage du renfort. Ce paramètre est directement contrôlé par le débit ou la pression d'injection, par la perméabilité et la porosité du renfort, par la géométrie du moule ainsi que par la viscosité dynamique de la résine. Par conséquent, elle est aussi indirectement dépendante de la température du composite lors des injections non isothermes. Dans le cadre du procédé RTM, la géométrie du moule, la porosité et la perméabilité sont connues et contraintes. Dans ces conditions, un contrôle direct et continu de la vitesse du front de résine peut être réalisable pour des géométries de cavité de moule simple. À ce titre, la cavité du moule utilisé dans le cadre de cette thèse possède une géométrie rectangulaire avec une épaisseur uniforme fixe, ce qui permet de réaliser des injections RTM unidirectionnelles pour lesquelles la porosité et la perméabilité du renfort fibreux sont fixées également.

1.1.3 Critères de qualité

Lorsque les contraintes « machines » des systèmes d'injection et de chauffage sont fixées, les limites thermo-physiques des matières premières ont été identifiées et que les variables « machines » et de « procédé » manipulables des mises en forme LCM sont connues, une nouvelle fenêtre de fabrication optimale peut être employée pour encadrer la mise en forme des pièces composites. À cet effet, un exemple de fenêtre de fabrication optimale, aussi appelée

fenêtre d'optimalité de la qualité, est proposé à la Figure 1-5. Cette fenêtre s'inscrit à l'intérieur du diagramme de moulabilité illustré à la Figure 1-3 et elle est délimitée par des critères de qualité propres aux mises en forme LCM tels que :

- Le gradient thermique transverse optimal pour obtenir un fini de surface voulu
- Le degré de cuisson final permettant d'obtenir les performances mécaniques souhaitées
- L'optimisation de l'uniformité du temps de gel et du degré de cuisson pour minimiser l'apparition de déformations résiduelles.
- La masse finale minimale et les tolérances géométriques respectées des pièces fabriquées

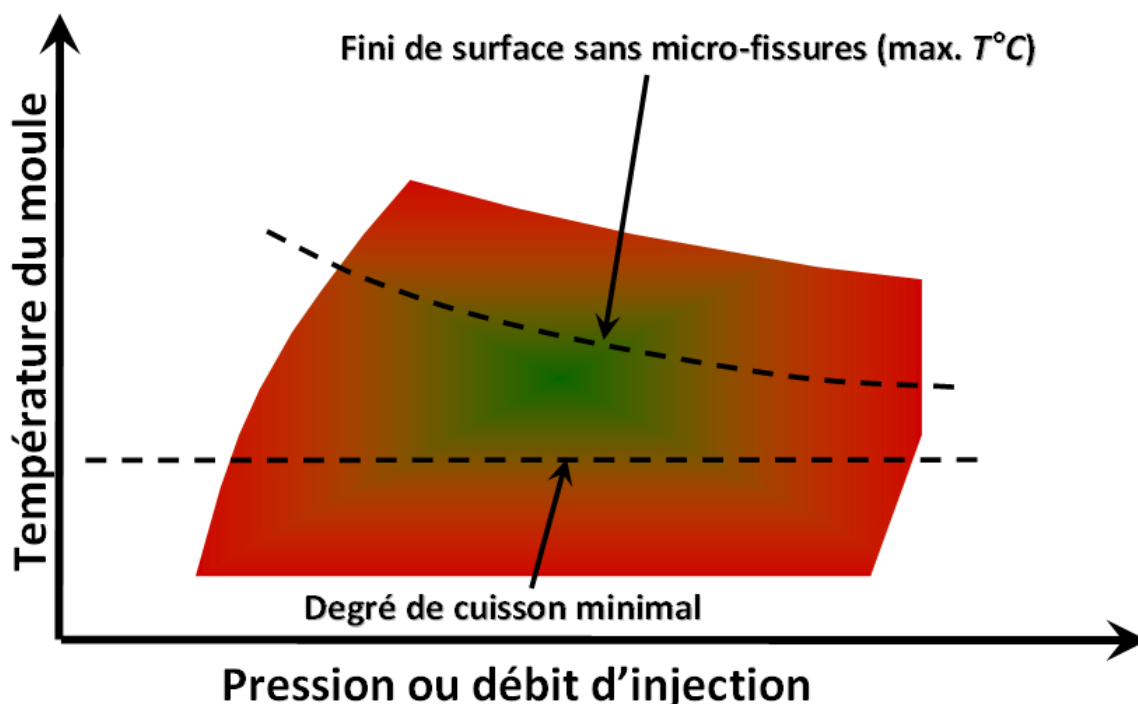


Figure 1-5 : Fenêtre de fabrication optimale des composites par procédés LCM.

Plusieurs auteurs se sont intéressés de près à ces critères de qualité pour la mise en forme des composites ainsi qu'aux paramètres de conception et de contrôle permettant d'influencer ces derniers. Tout d'abord, dans la littérature scientifique, certains paramètres ayant un impact déterminant sur le fini de surface ont été relevés (Haider, Lessard et al. 2005) tels que :

- La post-cuisson
- La fraction volumique de fibres V_f
- La peinture des pièces
- La pression dans le moule et la pression d'injection

- La préparation du moule (agent démoulant, enduits, etc.)
- Le temps de gel
- Le gradient transverse de température
- Les taux de charge, d'additif « faible retrait » et de styrène dans le mélange

Parmi les auteurs ayant abordé ce sujet, Landry a déterminé le gradient thermique et le taux d'additif « faible retrait » (« *Polyvinyl alcohol* »-PVA) qui minimisaient la rugosité de surface finale des pièces composites (Landry 2005). Cette auteure a choisi le rugosimètre (la moyenne arithmétique R_a des valeurs absolues des écarts du profil dans les limites de la longueur de base) pour étudier le fini de surface des pièces fabriquées par procédé RTM et pour établir des liens physiques avec la rhéologie et la morphologie de la résine polyester utilisée.

Dunkers et al. ont travaillé sur le contrôle de l'évolution de la réaction de réticulation et l'obtention d'un degré de polymérisation final prescrit initialement (Dunkers, Flynn et al. 2002). Ils ont élaboré une stratégie de contrôle de la vitesse de réaction $\dot{\alpha}$ à l'aide d'un spectromètre infrarouge à transformée de *Fourier*, et ce, dans le but de piloter simultanément la température de cuisson et la conversion des monomères réactifs via la température du moule. D'autres se sont plutôt attaqués à la minimisation des contraintes résiduelles thermiques en optimisant et en modifiant en temps réel les cycles de cuisson des pièces composites fabriquées (Genidy, Madhukar et al. 1997; Pillai, Beris et al. 1997; Antonucci, Giordano et al. 2002; Parthasarathy, Mantell et al. 2004; Lee, Kim et al. 2006; Ruiz and Trochu 2006). D'autres auteurs tels que Khoun (Khoun, de Oliveira et al. 2011) et Causse (Causse, Ruiz et al. 2011; Causse, Ruiz et al. 2012) ont plutôt étudié respectivement l'influence de l'interaction moule-pièce durant la cuisson et de la géométrie initiale des préformes fibreuses courbées sur les défauts finaux de distorsion géométrique. À cet effet, ces distorsions géométriques, à savoir le gauchissement (« spring-back » et « spring-in ») et les variations d'épaisseur dans les angles des pièces (« corner thickening » et « corner thinning »), peuvent entraîner des déviations par rapport aux tolérances géométriques préétablies. Advani et son équipe ont quant à eux travaillé en grande partie sur les problèmes de formation de zones sèches macroscopiques dues aux effets de bord. Ils ont su développer des méthodologies de détection continue du front de résine et des systèmes de contrôle automatisés utilisant cette information pour prévenir le mauvais remplissage des renforts

(Liu, Bickerton et al. 1996; Sozer, Bickerton et al. 2000; Devillard, Hsiao et al. 2003; Hsiao and Advani 2004; Devillard, Hsiao et al. 2005).

Finalement, tel que mentionné précédemment, les études expérimentales de cette thèse vont porter sur les mécanismes d'imprégnation et sur la saturation des renforts fibreux afin de comprendre, de prédire et de minimiser la formation de bulles nuisibles pour les performances mécaniques des pièces composites. Ce dernier critère de qualité est critique pour les industries fabricant des composites à haute performance telles que l'industrie de l'aéronautique. Certains auteurs ont déjà abordé cette problématique de modélisation et de contrôle de la formation et du transport des défauts d'imprégnation (bulles) par le passé (Parnas and Phelan Jr 1991; Mahale, Prudhomme et al. 1992; Lundström 1993; Lundström and Gebart 1994; Patel 1994; Lundström 1997; Chang and Hourng 1998; Bréard, Saouab et al. 2003; Ruiz, Achim et al. 2006; Leclerc and Ruiz 2008; Chung Hae Park and Woo 2011). Parmi ceux-ci, Patel a présenté une forte corrélation expérimentale entre la formation des défauts d'imprégnation (bulles) microscopiques et macroscopiques par emprisonnement d'air et le nombre capillaire modifié Ca^* défini comme suit (Patel 1994) :

$$Ca^* = \frac{v_{ff} \mu}{\gamma_{lv} \cos \theta} \quad (1.1)$$

où v_{ff} , μ , γ_{lv} et θ sont respectivement la vitesse d'avancée du front de fluide (vitesse interstitielle), la viscosité dynamique du fluide, sa tension de surface et l'angle de contact statique apparent du ménisque formé entre le fluide et la surface de la fibre. Patel et Shih ont également établi une corrélation entre la mobilisation des bulles emprisonnés dans le renfort fibreux et ce même nombre capillaire modifié Ca^* ou bien le nombre capillaire Ca (Patel 1994; Shih 2000) défini comme suit :

$$Ca^* = \frac{v_{ff} \mu}{\gamma_{lv}} \quad (1.2)$$

Ces derniers travaux de recherche étaient axés sur la caractérisation et la modélisation physique du phénomène d'emprisonnement d'air dans les renforts fibreux ainsi que la mobilisation de ces inclusions d'air. Du côté du contrôle de procédé, Leclerc et Ruiz ont plutôt mis l'accent sur le

contrôle de la vitesse d'imprégnation durant le remplissage des pièces composites par procédé RTM (Leclerc and Ruiz 2008). Le contrôle de ce paramètre-clé pendant l'étape de remplissage leur a permis de minimiser la formation des bulles par emprisonnement d'air dans les renforts fibreux utilisés et de maximiser les propriétés mécaniques des pièces fabriquées. De son côté, Lundström a étudié l'influence de la pression d'injection et du dégazage de la résine, avant l'étape de remplissage de la pièce, sur le processus de dissolution des bulles dans le polymère liquide (Lundström 1997). Il a démontré que des pressions d'injection importantes et un dégazage adéquat de la résine favorisaient la dissolution des bulles microscopiques emprisonnées dans les mèches de fibres. Ces trois paramètres que sont le nombre capillaire modifié, la vitesse d'imprégnation du renfort et la pression appliquée au port d'injection constituent donc un bon point de départ pour réaliser l'étude expérimentale de la présente thèse sur les mécanismes d'imprégnation et de saturation des renforts fibreux. Toutefois, en s'appuyant sur les conclusions des précédents travaux de Lundström et Gebart, il sera aussi important de porter une attention particulière à l'état de la résine avant chaque remplissage de pièces (Lundström and Gebart 1994; Lundström 1997). Ceci est critique afin de s'assurer que les propriétés rhéologiques de la résine soient homogènes et que sa préparation soit identique d'une injection à l'autre, à savoir sa formulation chimique, son débullage (bulles de gaz dans la résine) et son dégazage (gaz dissous dans la résine).

1.2 Stratégies de contrôle des procédés LCM

Lorsque l'information sur l'évolution des états du système est disponible, il faut interagir avec le procédé en fonction de l'information perçue et des balises initiales fixées par l'opérateur. Pour assurer un contrôle efficace, il faut neutraliser rapidement les perturbations provenant de phénomènes « parasites » extérieurs ou intérieurs au système comme le vieillissement de l'équipement utilisé, les fluctuations chimiques entre les différents lots d'un système de résine, le manque d'homogénéité du mélange injecté, les effets de bord et la variation du taux d'humidité environnant. (Dunkers, Flynn et al. 2002). De la même façon, les milieux de production industrielle sont souvent hostiles à l'utilisation d'équipements électroniques pour l'acquisition de données. Ceci explique la présence quasi-permanente de bruit dans les signaux des capteurs employés pour mesurer les variables d'état des procédés LCM. Si aucune rétroaction n'est

effectuée sur l'évolution de ces variables d'état, les performances du système de mise en forme ne sont pas garanties et de nombreux problèmes potentiels peuvent surgir tels qu'un remplissage inachevé de la préforme (zones sèches), une saturation partielle du renfort fibreux (mauvaise imprégnation), une détérioration du fini de surface final des pièces composites, des pertes de résine coûteuses, une cuisson incomplète ou hétérogène des pièces, une apparition de contraintes thermiques résiduelles et des temps de cycle plus longs (Rudd 1997).

De plus en plus, les systèmes de contrôle modernes incorporent de nouveaux modules utilisant divers algorithmes d'apprentissage, d'intelligence artificielle et de logique floue tels que les réseaux de neurones et les réseaux bayesiens. L'ajout de ces modules adaptatifs à la boucle de rétroaction peut accroître la robustesse des algorithmes de contrôle. En théorie, cet ajout peut également permettre au système de mieux s'adapter à un changement de contexte de mise en forme comparativement aux algorithmes simples de contrôle tels que le traditionnel contrôleur « Proportionnel-Dérivée-Intégral » (PID). Ce contrôleur PID fonctionne habituellement bien lorsque les phénomènes maîtrisés sont linéaires. Or, une telle situation constitue plus un cas d'exception que la règle générale dans les procédés de mise en forme des matériaux composites. Cette adaptabilité et cette efficacité du contrôleur « intelligent » peuvent donc devenir des atouts potentiels en fonction du type de phénomènes physiques à contrôler. En revanche, il faut tout de même s'assurer que l'algorithme de contrôle utilisé ne va pas produire de commandes hasardeuses aux fortes amplitudes susceptibles d'endommager le moule RTM, et ce, peu importe les modalités du processus de fabrication. Un très bref survol des stratégies de contrôle appliquées aux procédés de fabrication des composites est réalisée, à savoir le contrôle PID, le contrôle optimal, le contrôle intelligent et le contrôle robuste.

1.2.1 Contrôle PID

Un contrôleur PID est un algorithme de contrôle simple communément retrouvé dans les boucles rétroactives des procédés industriels. Il s'agit d'un algorithme de contrôle facile et rapide à ajuster par un opérateur expérimenté. Ce type de contrôleur effectue des comparaisons entre une valeur mesurée par un capteur quelconque et une valeur de référence fixée au préalable. La

différence entre ces deux valeurs constitue l'écart ou l'erreur du signal $e(t)$. Par la suite, un traitement proportionnel k_c est appliqué sur ce dernier pour déterminer la nouvelle valeur de commande $u'(t)$ à transmettre au procédé (contrôleur de type P). Cette nouvelle directive permettra de ramener la valeur mesurée par le système d'acquisition vers la valeur de référence imposée. En outre, le contrôleur PID continu idéal ajuste les commandes d'entrée du procédé $u'(t)$ en fonction de l'histoire (intégrale) et du taux de changement (dérivée) de cette même erreur du signal tel que décrit ci-dessous :

$$u'(t) = u'_0(t) + k_c \left(e(t) + \frac{1}{\tau_I} \int_0^t e(t) dt + \tau_D \frac{de(t)}{dt} \right) \quad (1.3)$$

Dans la formulation précédente, $u'(t)$ constitue la nouvelle directive, $u'_0(t)$ l'ancienne directive, $e(t)$ l'erreur du signal, k_c le gain proportionnel, τ_I le taux de remise à zéro et τ_D le taux de dérivée. D'un point de vue théorique, ceci assure au contrôle une plus grande rapidité et stabilité tout en maîtrisant les dépassements et les oscillations et en assurant une précision supérieure en régime stationnaire (Bequette 2003). Toutefois, les contrôleurs PID réels manipulent des variables d'entrée sur des intervalles de temps discrets Δt et subissent des contraintes physiques telles que la saturation d'actuateurs, ce qui peut mener à l'instabilité du procédé et à l'expansion du terme intégral de l'erreur (« *Reset Windup* »). Pour pallier cette faiblesse, il faut plutôt employer la forme « vitesse » du PID réel :

$$u'(n) = u(n-1) + k_c \left[\left(1 + \frac{\Delta t}{\tau_I} + \frac{\tau_D}{\Delta t} \right) e(n) + \left(-1 - \frac{2\tau_D}{\Delta t} \right) e(n-1) + \left(\frac{\tau_D}{\Delta t} \right) e(n-2) \right] \quad (1.4)$$

où les nouvelles et anciennes commandes d'entrée du procédé ainsi que l'erreur sur la variable d'état contrôlée sont évalués sur des intervalles de temps discrets n . Ce type de contrôleur peut être utilisé seul ou avec d'autres outils d'optimisation pour encadrer des systèmes de chauffage/refroidissement (Franklin, Powell et al. 2005) comme ceux utilisés dans les moules LCM. Noter que, dans la littérature portant sur le contrôle thermique de la mise en forme des composites par procédé LCM, la plupart du temps, lorsque rien n'est mentionné sur le contrôle, le concepteur utilise implicitement un contrôleur de type P ou PID. Dans le cadre de cette thèse portant sur l'étude expérimentale de l'imprégnation des renforts fibreux, le contrôleur PID a été

plutôt employé pour le contrôle des paramètres du remplissage du moule RTM. Le contrôle PID est utilisé en cascade pour fixer, en premier lieu, la vitesse de déplacement des pistons du système d'injection et pour ensuite maintenir constant le débit volumique entrant par le port d'injection du moule RTM. Cet algorithme de contrôle simple et très utilisé dans le milieu industriel a été en mesure de fournir un contrôle fidèle et juste du débit d'injection de résine.

1.2.2 Contrôle optimal

La théorie du contrôle optimal est un vaste champ d'études mathématiques qui est concerné par les techniques de rétroaction pouvant être déduites à partir de divers algorithmes d'optimisation. Le type de contrôle qui a justement pour objectif premier de minimiser une fonction de coût (critère à optimiser) sous contraintes est appelé contrôle optimal. Ce critère de performance peut reposer sur la minimisation des composantes du vecteur des entrées $\bar{u}'(t)$, du vecteur d'état $\bar{x}'(t)$ ou du vecteur des sorties $\bar{y}'(t)$ du système. Or il est impossible de minimiser tous ces indices de performance simultanément, car ceux-ci entrent directement en conflit : pour minimiser les composantes de l'état du système, il faut fournir une commande $\bar{u}'(t)$ importante. Un compromis doit donc être réalisé entre ces deux tendances opposées, tel qu'illustré dans le contrôleur « *Linear Quadratic Regulator* » (LQR) présenté dans la sous-section suivante (Franklin, Powell et al. 2005).

Dans le cadre de la conception d'un contrôleur LQR, la fonction de coût J qui minimise simultanément le signal de commande et les états du système est souvent présentée sous la forme suivante :

$$J = \int_0^{\infty} \left(\bar{x}'(t) \bar{Q} \bar{x}(t) + \bar{u}'(t) \bar{R} \bar{u}(t) \right) dt \quad (1.5)$$

où le tenseur-poids $\bar{Q}$ et le tenseur-poids $\bar{R}$ sont définis semi-positifs et positifs respectivement. L'énergie de contrôle et le temps pour atteindre l'état d'équilibre sont donc pénalisés par l'intermédiaire de la fonction de coût ci-dessus (forme quadratique). La solution du problème

d'optimisation précédent est appelée « *Linear quadratic regulator* » et constitue ni plus ni moins qu'un gain matriciel de rétroaction de la forme :

$$\bar{u}'(t) = -\bar{K}^T(t) \cdot \bar{x}'(t) \quad (1.6)$$

où $\bar{K}$ est une matrice bien dimensionnée solution de l'équation de Riccati suivante :

$$\bar{A}^T \bar{P} + \bar{P} \bar{A} + \bar{Q} - \bar{P} \bar{B} \bar{R}^{-1} \bar{B}^T \bar{P} = 0 \quad (1.7)$$

où le gain matriciel de rétroaction est défini comme suit :

$$\bar{K}^T = \bar{R}^{-1} \bar{B}^T \bar{P} \quad (1.8)$$

Malgré quelques rares exemples d'utilisation (Barooah and Jian-Qiao 2000), le contrôleur LQR est plus ou moins bien adapté à la famille de procédés LCM en raison de son manque de robustesse et sa plus grande complexité. Par conséquent, ce type de contrôle ne sera pas considéré dans cette thèse. Toutefois, d'autres types de contrôleurs optimaux peuvent quand même être utilisés dans le cadre de la mise en forme des composites par injection tels que les filtres de Kalman (Soucy and Holt 1990).

1.2.3 Contrôle intelligent

Le domaine du contrôle intelligent s'est développé depuis quelques années. Ces techniques modernes de contrôle ont vu le jour avec les nouveaux modèles de comportement intelligent et les méthodes numériques pour les implémenter. Toutes ces nouvelles lois de contrôle s'inspirent des diverses approches stochastiques telles que les réseaux de neurones, les réseaux bayesiens, les simulations probabilistes, la logique floue, les calculs évolutifs et les algorithmes génétiques. Une attention particulière sera portée à deux familles de contrôle particulières : le contrôle par logique floue et le contrôle à l'aide de réseaux de neurones artificiels (« *Artificial Neural Network* » - ANN).

La logique floue permet à des procédés analogiques, évoluant sur une plage continue de valeurs, et un ordinateur digital, effectuant des tâches à partir de valeurs abstraites, d'interagir ensemble comme s'il s'agissait de valeurs numériques discrètes. Le qualificatif « *floue* » ne se réfère pas à la rigueur de la méthode employée. Elle découle en réalité du fait que cette dernière peut manipuler des concepts flous, c'est-à-dire des concepts ne pouvant pas être qualifiés vrais ou faux, mais plutôt partiellement vrais ou partiellement faux. L'avantage principal de ce type de contrôle par rapport aux autres méthodes de contrôle stochastiques telles que le contrôle génétique et le contrôle ANN est que la solution du problème posé peut être transmise dans des termes compréhensibles pour un usager. Ainsi, l'expérience personnelle de l'opérateur peut jouer un rôle prépondérant dans la phase de conception du contrôleur. Cela rend plus facile la mécanisation et l'automatisation des tâches déjà réalisées avec succès par l'homme. Ce type de contrôleur apparaît souvent dans des applications de contrôle de procédés non-linéaires qui sont difficiles à modéliser mathématiquement. De plus, les systèmes contrôlés par la logique floue ont généralement une dynamique lente et un long temps de réponse tels que les échangeurs de chaleur pour le contrôle thermique de fluides caloporteurs (voir Figure 1-6) ou les processus biochimiques comme la fermentation par exemple (Lee, Lee et al. 1999). Ce type d'algorithme de contrôle flou est aussi présent dans les machines à laver, les systèmes de ventilation, les fours industriels et les machines de refroidissement. Il devient donc un outil de choix pour le contrôle de la température des fluides caloporteurs circulant dans les moules des procédés LCM (Chen and Turng 2005), dans les systèmes complexes d'aide à la décision (Ho, Lau et al. 2006) et dans de futurs systèmes de contrôle de qualité en temps réel des pièces composites fabriquées par procédés LCM. Cependant, ce type de contrôle s'applique moins bien à l'automatisation de systèmes industriels ayant des temps de réponse plus rapides tels qu'un système d'injection RTM.

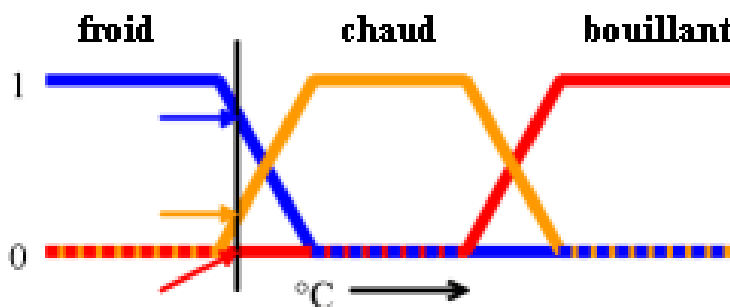


Figure 1-6 : Système de contrôle flou de la température.

De son côté, le réseau de neurones artificiel est un groupe d'unités virtuelles interconnectées qui permet d'effectuer le traitement de l'information sur la base d'une approche calculatoire dite « *connexionniste* ». Largement inspirée de la neurobiologie et de ses terminologies, cette approche cognitive repose sur le principe que les phénomènes complexes peuvent tous être décrits par ces réseaux d'unités simples, représentant des neurones, et de connections, constituant les synapses (voir Figure 1-7). Dans la plupart des cas, ce réseau de neurones est un système flexible qui modifie sa structure selon l'information y circulant. Les ANN sont donc des outils servant à la modélisation de la correspondance non linéaire entre divers lots de données statistiques. Ils permettent de découvrir les relations complexes s'établissant entre des valeurs d'entrée et de sortie d'un réseau donné ou de cerner des tendances présentes au sein d'ensemble de données en utilisant des algorithmes de rétro-propagation d'erreur (Bishop 1995).

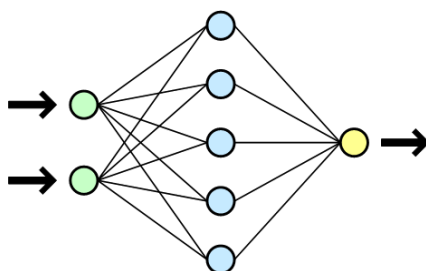


Figure 1-7 : Vue simplifiée de la structure d'un réseau de neurones artificiel.

La plus grande force des ANN réside dans leur capacité naturelle à apprendre progressivement cette correspondance, et ce, uniquement à partir de données issues de plusieurs observations. De plus, si le modèle du réseau, l'algorithme d'apprentissage et les divers hyper-paramètres

(fonction de coût, etc.) sont choisis stratégiquement, le réseau ANN résultant peut être très robuste face aux diverses perturbations des commandes. Les applications de ce type d'approche ANN sont très diversifiées :

- Système d'identification et de contrôle (contrôle d'automobile et contrôle de procédé)
- Jeux électroniques et aide à la prise de décision (jeux d'échecs, etc.)
- Reconnaissance de profils (radars, etc.) et de séquence (reconnaissance de voix, etc.)
- Applications financières (prédictions, etc.)
- Exploitation de données (traitement de base de données, « *data mining* », etc.)

Ainsi, les ANN deviennent tout désignés pour s'inscrire dans une future stratégie de contrôle de la qualité en temps réel en effectuant des prédictions sur l'état final des pièces composites produites par procédés LCM, à partir des paramètres d'entrée du procédé. Justement, cette relation reliant les paramètres de fabrication aux propriétés finales des pièces fabriquées est souvent très complexe et difficilement modélisable autrement qu'avec des ANN. À cet effet, un survol du domaine du contrôle intelligent du procédé « *Injection Molding* » est effectué par Chen et Turng (Chen and Turng 2005). De leur côté, Pillai, Beris et al. ont développé un système expert opérant dans le cadre de la cuisson en autoclave de laminés verre/polyester (Pillai, Beris et al. 1997). Plus particulièrement, ce système expert avait pour objectif de minimiser le temps de cuisson d'une pièce, tout en la produisant avec la meilleure qualité possible. Quant à eux, Nielsen et Pitchumani ont utilisé une stratégie de contrôle robuste s'appuyant sur un ANN entraîné afin d'obtenir une progression de front de résine stable et préétablie malgré une perméabilité hétérogène des préformes fibreuses (Nielsen and Pitchumani 2001). Il est intéressant de souligner que Martins et Coelho ont présenté une façon d'améliorer la performance d'un contrôleur PID standard d'un réacteur thermique en utilisant également un réseau de neurones (Martins and Coelho 2000). En revanche, les réseaux de neurone ne fournissent pas une compréhension claire et directe des concepts théoriques sur lesquels s'appuient ces observations. Cette approche dite « boîte noire » peut constituer une faiblesse dans le cadre d'une étude expérimentale comme celle réalisée dans cette thèse. De plus, très peu de données sont disponibles *a priori* sur le système d'injection RTM conçu pour réaliser les plans d'expériences et sur le comportement dynamique de ce dernier système durant l'injection du polymère liquide dans le renfort fibreux. Or, ces données sont essentielles pour soutenir l'apprentissage, par le réseau de neurones, de la relation entre les paramètres de contrôle « procédé » en entrée et les paramètres de contrôle « machine »

en sortie. Pour toutes ces raisons, les algorithmes de contrôle de procédé s'appuyant sur les ANN ont été mis de côté dans le cadre de cette thèse mais ils pourraient tout de même être considérés dans de futurs travaux.

1.2.4 Contrôle robuste

Le mot robuste signifie que le contrôleur conçu garantit certaines performances de rétroaction acceptables, telles que la stabilité du procédé et le suivi précis de l'erreur, malgré les perturbations inconnues des signaux de commande et d'acquisition et les variations aléatoires des paramètres du procédé lui-même. Cette robustesse du contrôle est inévitable, car la modélisation mathématique du procédé est imprécise et donc ne correspond pas au procédé réel qui est piloté. Les paramètres d'un procédé peuvent parfois varier de manière prévisible ou imprévisible, à cause de non linéarités et de perturbations dans les conditions d'opération, et peuvent donc n'être connus que partiellement. Ces variations parasites sont de deux natures, à savoir prévisibles ou imprévisibles. Pour les variations prévisibles, la structure et l'ordre du modèle du procédé sont connus mais quelques paramètres sont incertains et varient parfois (ex.: pôles et zéros incertains, fonctions de transfert incertaines, etc.). De leur côté, pour les variations imprévisibles, les seules choses connues sont les bornes des perturbations amorties telles que la saturation d'un activateur ou d'une valve et la dynamique non modélisée du système.

Dans plusieurs cas de figures, le contrôleur se doit d'être près de l'optimum. Par conséquent, la robustesse constitue une tolérance permise sur l'erreur d'identification. Parfois, la robustesse d'un contrôleur, tel que le contrôleur PID par exemple, est plutôt jugée par le niveau de stabilité offert par ce dernier sur une large bande de fréquences excitatrices comparativement à une stabilité optimale qui est étudiée sur une largeur de bande très étroite et précise. Ces contrôleurs robustes sont en développement à l'heure actuelle et ils sont notamment utilisés avec les réacteurs chimiques de polymérisation (Ryali and Moudgalya 1998; Zambare, Soroush et al. 2001; Alvarez-Ramirez and Alvarez 2005). Puisque les moules LCM constituent également des réacteurs de polymérisation, ces contrôleurs pourraient très bien convenir au contrôle de la réticulation de la résine thermodurcissable durant les mises en forme LCM car ces procédés sont

sensibles à plusieurs paramètres et peuvent être perturbés par de nombreux agents extérieurs tels que la température et l'humidité de l'environnement de travail (Michaud, Beris et al. 2002). Ces perturbations aléatoires, si elles ne sont pas maîtrisées, peuvent modifier grandement le rendement du système de mise en forme LCM et causer une dégradation de la « santé-matière » de la pièce composite finale. Néanmoins, le contrôle robuste de procédé constitue un champ de recherche mathématique relativement récent et les outils de contrôle s'appuyant sur cette approche sont encore au stade de développement, donc moins matures que des algorithmes PID traditionnels. Ces algorithmes de contrôle robuste ont donc été ignorés dans cette thèse.

1.3 Instrumentation dans les procédés LCM

Il existe plusieurs catégories de capteurs avec ou sans fil qui sont présentement en cours de développement ou déjà disponibles sur le marché. Ces derniers peuvent être installés dans un moule LCM et/ou une pièce composite, fournissant ainsi à l'opérateur toute l'information nécessaire sur la progression de plusieurs variables d'état telles que la température, le flux de chaleur, la pression, le débit et le degré de conversion. Donc, il devient possible de manipuler directement ou indirectement ces variables du procédé et, au bout du compte, d'intervenir sur la microstructure du matériau (formation de vides, degré final de cuisson, séparation des phases, etc.). Conséquemment, l'évolution temporelle de cette microstructure déterminera en grande partie les propriétés mécaniques de la pièce produite (Brown, Srinivasan et al. 1996). À cet effet, voici une liste non exhaustive des types de capteurs qui peuvent être utilisés lors d'une mise en forme des composites :

- Diélectriques (thermocouples, «LVDT», jauges d'extensométrie, etc.)
- Ultrasoniques (capteurs de position, de vitesse, d'accélération, etc.)
- À fibres optiques (capteurs de position, de la contrainte, etc.)
- Photovoltaïques (photomètres, émittance, etc.)
- Piézoélectriques (débitmètres, capteurs de pression et de force, etc.)
- Infrarouges (détecteurs de mouvement, thermographes, etc.)

Tous ces capteurs disponibles sont à la base des stratégies, plus ou moins traditionnelles, de contrôle de procédés LCM. Dans la sous-section qui suit, l'emphasis sera mise sur les capteurs les plus régulièrement employés pour contrôler les procédés LCM, c'est-à-dire les thermocouples et

les thermomètres à résistance électrique, les capteurs de flux thermique, les capteurs diélectriques et électrochimiques, les capteurs de fibres optiques à onde évanescence, les capteurs acoustiques, les capteurs de pression et les caméras.

1.3.1 Thermocouples et thermomètre à résistance électrique

Selon l'Organisation Météorologique Mondiale, le thermocouple est un « dispositif pour mesurer la température qui utilise l'effet thermoélectrique de Seebeck, c'est-à-dire que, lorsque deux conducteurs différents sont réunis à leurs deux extrémités, il s'établit une différence de potentiel proportionnelle à la différence de température entre les jonctions. Quant au thermomètre à résistance électrique, c'est un outil de mesure utilisant comme élément sensible une résistance dont la valeur est une fonction précise connue de la température. Ce dernier peut prendre deux formes: un film composé d'une fine couche de platine sur un substrat ou un fil bobiné résistif. Les thermocouples et les thermomètres à résistance font partie d'une instrumentation de base pour réaliser le contrôle de la température d'un procédé donné (Smith 2002). Ils peuvent être utilisés pour déceler des événements survenant durant les cycles anisothermes de fabrication (passage de la résine à proximité du port d'injection, pic exothermique de la cuisson, etc.). Peu dispendieux et accessibles, ils sont toutefois intrusifs. Ils peuvent perturber le phénomène étudié et laisser des traces sur les pièces fabriquées. Ainsi, ils ne doivent pas être situés sur des surfaces visibles ou critiques de la pièce (Rudd 1997).

De nombreux cas d'application avec les thermocouples et les thermomètres à résistance sont présents dans la littérature portant sur le contrôle de la fabrication des CMP. À cet effet, Devillard et al. se sont servis de thermocouples, durant une mise en forme VARTM, pour contrôler l'uniformité du temps de gel dans une pièce injectée (Devillard, Laut et al. 2005). Ils ont exploité des données sur la distribution de la température pour faire varier en temps réel la concentration d'initiateur (PHR) dans le mélange injecté à l'intérieur de la cavité du moule. Pour leur part, Trochu et al. ont développé un montage avec des thermistances chauffées pour détecter le passage du front de résine en s'appuyant sur le principe de l'anémomètre à fil chaud (Trochu, Hoareau et al. 1993). D'autres auteurs du milieu des thermoplastiques ont aussi eu recours aux

thermocouples pour mieux comprendre les phénomènes physiques actifs durant les procédés de mise en forme tels que l'*Injection Molding* et pour déterminer les conditions frontières (résistances thermiques) à l'interface moule-pièce (Farouq, Nicolazo et al. 2005). Dans le cadre de cette thèse portant sur les phénomènes d'imprégnation dans les renforts fibreux, les injections RTM réalisées sont isothermes et le moule n'est pas thermo-régulé car le système de résine vinyl ester retenu ne nécessite pas d'apports thermiques particuliers pour réticuler. Par conséquent, l'utilisation de ces deux technologies de capteur n'est pas pertinente pour réaliser les présentes études expérimentales sur l'imprégnation des renforts.

1.3.2 Capteurs de flux thermique

Les capteurs de flux thermique (ou fluxmètres) sont traditionnellement fabriqués à partir de thermocouples montés en série sur chacune des faces d'un capteur plan de faible épaisseur. La conductivité thermique et la chaleur spécifique de ce type de capteur sont connues et doivent être les plus voisines possibles de celles du matériau dans lequel il est inséré. Ainsi, le flux de chaleur est donné par l'écart de température entre les deux faces du capteur, multiplié par un coefficient instrumental obtenu par une calibration de ce capteur. Depuis peu, une nouvelle gamme de fluxmètres non-intrusifs (*Thermoflux Technologies SA*[®]) a fait son apparition sur le marché. Ces capteurs peuvent être introduits dans la paroi d'un moule, sans nécessairement déboucher sur la cavité de celui-ci. Ils peuvent donc supporter des conditions plus sévères de pression et de température, tout en minimisant l'influence sur le fini de surface de la pièce fabriquée.

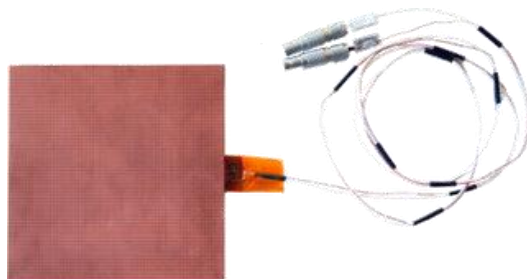


Figure 1-8 : Capteurs de flux thermique *Thermoflux Technologies SA*[®].

Ce type de capteurs est sensible et extrêmement prometteur pour l'automatisation industrielle des procédés LCM car il peut reconnaître la manifestation de certains événements thermocinétiques spécifiques tels que le passage du front de résine à proximité du senseur, l'évolution de la réticulation de la résine, le pic exothermique de cette même réaction de polymérisation et la fin de la cuisson des pièces composites. À cet effet, la vitesse de la réaction de réticulation de la résine thermodurcissable $\dot{\alpha}(t)$ à un moment donné t_i est typiquement considérée proportionnelle au flux de chaleur généré par cette réaction $Q(t)$ à ce même instant (Halley and Mackay 1996; Ruiz and Billotte 2009). Par conséquent, l'évolution générale de cette réaction $\alpha(t)$ à ce même instant t_i peut être approchée à partir de l'acquisition du flux de chaleur libéré $Q(t)$ de la manière suivante :

$$\alpha(t_i) = \int_{t=0}^{t=t_i} \dot{\alpha}(t) dt = \frac{1}{\Delta H_{total}} \int_{t=0}^{t=t_i} Q(t) dt \quad (1.9)$$

où ΔH_{total} est l'enthalpie totale de la réaction de réticulation du polymère étudié.

Dans la littérature scientifique sur les composites à matrice thermodurcissable et les thermoplastiques, plusieurs exemples d'utilisation de fluxmètres thermiques peuvent être retrouvés. En occurrence, cet outil de mesure est souvent utilisé pour la caractérisation des propriétés des matériaux composites. Tout d'abord, il a été employé pour caractériser la conductivité thermique λ de certains matériaux par métrologie inverse (Penn, Ledbetter et al. 1986; Loulou and Scott 2006). D'autres chercheurs du domaine des composites ont relié l'évolution de la conductivité thermique λ du renfort imprégné, pendant la cuisson, à la progression du degré de polymérisation α de la résine (Mathis, Pytel et al. 1997) et au développement des propriétés mécaniques de la pièce telles que le module d'élasticité E en tension (Rouison, Varejka et al. 2002). Certains ont même utilisé cette technologie pour caractériser *in situ* le retrait volumétrique de la résine thermodurcissable en fonction du degré d'avancement de la réaction de polymérisation (Boyard, Millischer et al. 2007; 01dB-Metravib 2010; Nawab, Boyard et al. 2011).

Certains auteurs ont plutôt utilisé cette technologie pour des fins de contrôle de procédé de mise en forme des composites en autoclave (Kalra, Perry et al. 1992; Perry, Lee et al. 1992). En effet, en procédant à l'acquisition du flux de chaleur en provenance de deux capteurs installés de part et d'autre d'une pièce composite, durant sa cuisson en autoclave, il est possible de faire un bilan thermique sur la cavité et de détecter certains événements tels que l'initiation de la réaction de polymérisation de la résine, son pic exothermique et la fin de la cuisson de la pièce. Par la suite, il devient possible d'utiliser un système expert qui va prendre des décisions et démarrer des actions de contrôle de procédé, telles que le refroidissement et l'ouverture de l'autoclave, en s'appuyant sur ces données de flux de chaleur. Ce type de technologie non-intrusive se prête bien au contrôle de la cuisson des pièces composites dans les moules RTM et à l'automatisation de l'ouverture de ces derniers. Or, cette thèse s'intéresse plutôt aux phénomènes d'imprégnation des renforts fibreux durant l'étape de remplissage du moule et non aux phénomènes thermiques durant la réticulation de la résine. Cette technologie sera donc mise de côté lors de cette étude expérimentale des mécanismes d'imprégnation.

1.3.3 Capteurs diélectriques et électrochimiques

Parfaitement bien adaptés au contrôle de qualité et à la production de masse, les capteurs diélectriques ont su se distinguer par leur aptitude à suivre l'évolution de la viscosité des résines mises en forme. Sommairement, il a été montré que la conductivité ionique d'un fluide est reliée à sa viscosité dynamique (Day 1989; Day, Lee et al. 1991; Shepard 1991). Cette relation existe car le mécanisme de diffusion des ions et des dipôles électriques dans un fluide est similaire au mécanisme de diffusion de la quantité de mouvement dans ce même fluide (loi de Stokes). Ces petites particules électriques perdent de la mobilité durant la progression de la polymérisation jusqu'à la formation de gel dans la structure moléculaire (point de gel). À ce moment précis, un fléchissement important apparaît dans la régression de la conductivité ionique. Les fabricants d'appareils de mesure diélectrique, ayant corrélé ensemble la conductivité ionique et la viscosité de la résine, ont donc adopté la terminologie « viscosité ionique » (IV) pour définir ce phénomène (Kendall and Rudd 1994). En outre, ils utilisent le point d'inflexion de la courbe du logarithme de la « viscosité ionique » (ou le pic maximum de la dérivée de la courbe du logarithme de la « viscosité ionique ») pour anticiper le point de gel pour divers systèmes de

résine, dans un environnement caractéristique des mises en forme industrielles. Ces courbes permettent également de déterminer plusieurs autres événements des procédés LCM tels que le passage du front de résine, le remplissage du moule, le point de viscosité minimale et le point de démoulage (fin de la cuisson).

De leur côté, Kranbuehl et son équipe ont développé une méthode de suivi de la mobilité/conductivité ionique faisant aussi partie de la famille des techniques diélectriques (Kranbuehl, Hoff et al. 1988; Kranbuehl, Eichinger et al. 1989; Kranbuehl, Haverty et al. 1989; Kranbuehl, Eichinger et al. 1990; Kranbuehl 1991; Kranbuehl, Kingsley et al. 1992; Kranbuehl 1994). Ce dispositif utilise des sondes électromagnétiques dépendant de la fréquence d'excitation (*Frequency Dependent Electromagnetic Sensing* – FDEMS) pour effectuer le contrôle intelligent automatisé du procédé RTM avec la complicité d'un système expert (Kranbuehl, Kingsley et al. 1994). Ces senseurs peuvent être des composantes jetables, lorsqu'ils sont insérés entre les couches de renfort, ou bien des constituants permanents d'un moule LCM (Rudd 1997). Certains auteurs ont également mis en place des systèmes de contrôle adaptatif des procédés LCM à l'aide de ce type de capteurs diélectriques, de réseaux de neurones et de simulations numériques prédictives (Pantelidis and Maistros 2003; Hegg, Ogale et al. 2005). D'autres ont plutôt opté pour des senseurs d'impédance complexe et électrochimiques, à savoir la force électromotrice créée par l'effet galvanique, pour observer les changements rhéologiques et chimiques du composite durant sa phase de cuisson (Rudd, Hutcheon et al. 1991; Shigue, Dos Santos et al. 2004). Il faut mentionner que ces senseurs onéreux doivent être en contact direct avec la pièce composite pour être fonctionnels. Par conséquent, cette technologie est considérée intrusive, ce qui peut constituer une faiblesse dans certaines situations où le fini de surface de la pièce composite est critique. De plus, il est préférable de ne pas mettre directement en contact ce type de capteurs avec des renforts fibreux qui sont de bons conducteurs électriques tels que les renforts de carbone (Chen, Outeau et al. 2009). De plus, comme toutes les techniques de suivi s'appuyant sur les variations électriques générées par le phénomène sous observation, cette technologie de diélectrométrie est souvent vulnérable aux bruits électromagnétiques qui sont présents dans les environnements industriels typiques (Baker, Dutton et al. 2004). Pour toutes ces contraintes et ces limitations industrielles, cette technologie de capteurs diélectriques n'a pas été considérée pour le suivi des phénomènes d'imprégnation dans le cadre de cette thèse.

1.3.4 Capteurs de fibres optiques à onde évanescente

Parmi tout l'éventail des capteurs de fibres optiques disponibles, ceux à onde évanescente sont fréquemment utilisés pour observer et contrôler la mise en œuvre des composites tels que le remplissage de la cavité du moule (Mathur, Advani et al. 1997) et l'évolution de la polymérisation de la résine thermodurcissable (Levy and Schwab 1989). Ils sont bon marché, durables, facilement multiplexés, immunisés contre les interférences électromagnétiques et protégés contre la corrosion galvanique. De plus, ces fibres optiques possèdent des dimensions similaires aux mèches de fibres typiquement utilisées dans la confection des renforts fibreux. Par conséquent, ce type de senseurs intrusifs ne devrait pas perturber significativement l'écoulement de polymère dans la cavité (Mathur, Advani et al. 1997). Ces fibres optiques peuvent aussi être laissées à l'intérieur des pièces composites fabriquées afin d'effectuer un suivi de l'intégrité des structures durant leur vie en service (Kuang and Cantwell 2003; Kuang, Quek et al. 2009).

Pour être fonctionnelle, la fibre optique doit être conçue à partir d'un verre possédant un indice de réfraction supérieur à l'indice de réfraction du milieu environnant. Ainsi, une onde lumineuse émise par un cristal en spectroscopie peut circuler dans ces fibres optiques par réflexion totale atténuée (voir la Figure 1-9). Cette onde évanescente est localisée le long de la surface extérieure du cristal et son amplitude décroît très rapidement, jusqu'à devenir négligeable, si elle s'en éloigne. Ensuite, des marqueurs moléculaires fluorescents sont incorporés à un agent d'adhésion (couche de silane à la surface du verre du capteur optique). Après un délai suffisant pour assurer une diffusion profonde de la molécule de résine dans la couche de silane, l'évolution thermochimique de la structure de la résine peut être suivie au cours de sa polymérisation. Toutefois, si le temps de diffusion de la volumineuse molécule de résine est trop long, cette méthode de supervision devient presque inapplicable pour une production de masse (Woerdeman and Parnas 1995). De plus, la fibre optique ne possède pas la capacité d'évaluer localement le degré de conversion de la résine. Cette faculté peut être intéressante car, dans les procédés LCM classiques tels que le RTM, le profil de cuisson varie à travers le moule, à un instant donné (Rudd 1997).

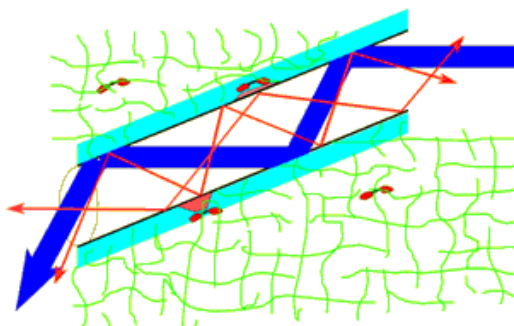


Figure 1-9 : Schéma de la propagation d'une onde évanescente dans une fibre optique.

À l'instar des senseurs décrits précédemment, les capteurs à fibres optiques sont régulièrement évoqués dans la littérature pour la détection d'événements thermochimiques. Selon plusieurs auteurs, pour réaliser un contrôle de la cuisson des pièces composites à matrice époxyde à l'aide des capteurs à fibres optiques, dans des contextes de procédés LCM et de mélange à mouler en feuilles (*Sheet Molding Compound* –SMC), il faut tirer profit du signal de ces capteurs et le coupler à un système expert permettant de lier la fluorescence moléculaire de la résine à sa viscosité et à son degré de cuisson (Schwab and Levy 1988; Levy and Schwab 1989; Schwab, Levy et al. 1991; Chailleux, Salvia et al. 2000; Chailleux, Salvia et al. 2001; Antonucci, Giordano et al. 2006). Toutefois, dans le cadre de cette thèse, cette technologie intrusive ne sera pas considérée car elle n'est pas en mesure d'effectuer le suivi des mécanismes d'imprégnation. En effet, ce type de senseur est uniquement en mesure de positionner le front de résine durant le remplissage du moule, en fonction de la proportion surfacique du capteur couverte par ce polymère. Il s'agit donc d'une mesure strictement locale et directionnelle de la progression du front de résine dans le moule (Mathur, Advani et al. 1997).

1.3.5 Capteurs acoustiques

Les techniques acoustiques commencent à se tailler une place de choix dans le milieu de l'aéronautique, surtout pour opérer la surveillance d'une pièce composite durant sa fabrication et sa vie utile au sein d'une structure (Rudd 1997). Les capteurs acoustiques fonctionnent selon le principe que tout changement physique dans le milieu entourant un capteur va se répercuter

comme une variation locale de l'impédance acoustique. Donc, le passage d'un fluide (air ou résine), la présence de bulles d'air et l'état de cuisson de la résine peuvent être capturés par la propagation d'un signal acoustique le long du moule. Cette classe de capteurs compacts, légers et économiques possède une bonne résistance aux hautes températures et à l'usure et une insensibilité face aux interférences électromagnétiques (Zhang and Irvine-Halliday 1996). Même si cette technologie de pointe est en cours d'évolution, cela n'a pas empêché des industriels et des chercheurs d'autres champs d'expertises de s'y intéresser abondamment (Richter, Fritze et al.). En revanche, cette technologie n'est pas considérée encore assez mature pour être utilisée dans cette thèse portant sur l'étude expérimentale et dynamique des mécanismes d'imprégnation des renforts fibreux durant des mises en forme par procédé RTM.

1.3.6 Capteurs de pression

Les capteurs de pression demeurent, avec les thermocouples, les instruments de mesure le plus couramment installés dans l'industrie et le milieu académique pour assister le contrôle des étapes d'imprégnation, de gélification et de polymérisation des divers procédés LCM (Rudd 1997). Bien souvent, ce type de senseurs s'appuie sur une technologie mature, durable et à faible coût. En effet, cet instrument de mesure est généralement constitué d'un diaphragme muni d'une jauge extensométrique pouvant associer une déformation à une pression. Ces capteurs peuvent être installés dans le moule d'une manière non-intrusive, ouvrant ainsi la porte pour avoir un moule de production de masse. Durant une imprégnation de renfort où le temps de résidence de la résine est long, ce type de capteurs devient avantageux par rapport aux thermocouples traditionnels (Rudd 1997). Ceci s'explique par le fait que la température de la résine entrant dans le moule subit un bref régime transitoire avant de se stabiliser rapidement à une nouvelle valeur d'équilibre qui est la température du moule et du renfort fibreux. Les thermocouples ne sont donc plus capables de repérer des variations thermiques associées au passage du front à proximité contrairement aux transducteurs de pression qui eux vont continuer à identifier les variations de pression, et ce, peu importe la géométrie du moule.

Plusieurs faits marquants lors de la fabrication d'une pièce composite peuvent être relevés par les capteurs de pression : l'arrivée de la résine à l'évent (hausse brusque de la pression à l'évent), l'expansion thermique de la pièce liée au pic exothermique (hausse de la pression dans la cavité) et le début du retrait associé au point de gel (baisse de la pression dans la cavité). Des auteurs ont donc créé une stratégie d'injection RTM robuste, s'appuyant sur les données provenant de ce type de capteurs, pour contrer la variabilité des renforts (perméabilité, géométrie, etc.), pour cerner les effets de bord, aussi appelés *racetracking*, et ainsi éviter la création de zones sèches (Sozer, Bickerton et al. 2000; Devillard, Hsiao et al. 2005). Par surcroît, certains industriels emploient ces capteurs pour arrêter prématurément l'injection et la cuisson de la pièce. Ce type de senseurs industriels, durables et à faible coût est tout à fait approprié pour obtenir des données pertinentes sur les phénomènes étudiés durant l'étape de remplissage et d'imprégnation du renfort fibreux par procédé RTM, peu importe le type de renfort employé. Par conséquent, cette technologie non-intrusive a été retenue pour effectuer l'étude expérimentale de cette thèse.

Il peut être intéressant, d'un point de vue économique, de réaliser une étude paramétrique pour fixer le nombre optimal de capteurs utiles et leurs positionnements pour effectuer une stratégie de contrôle efficace et robuste des procédés LCM (Hsiao and Advani 2004). Lorsque cette étude paramétrique et la sélection des capteurs utiles pour la supervision du procédé LCM sont complétées, tout est en place pour élaborer une stratégie de contrôle de procédé en temps réel fonctionnelle. Dans le cadre de cette thèse, le montage conçu pour réaliser les trois plans d'expériences portant sur l'étude de l'imprégnation durant les mises en forme RTM est uniquement muni de quatre senseurs, à savoir trois capteurs de pression et un débitmètre volumique. Ce nombre restreint de senseurs constitue un compromis entre l'efficacité du montage et son coût. En effet, ces quatre senseurs permettent d'obtenir une quantité suffisante d'informations pertinentes et non redondantes, de diminuer les coûts d'instrumentation et de réduire la complexité du montage expérimental, tout en assurant sa sécurité face aux surpressions et aux autres risques de bris potentiels.

1.3.7 Caméras

Il est possible d'effectuer le suivi de la progression du front de résine dans le renfort fibreux à l'aide de caméras et d'algorithmes d'analyse d'images lorsque le moule employé offre un certain degré de transparence (Nielsen and Pitchumani 2001; Nalla, Fuqua et al. 2007; Pineda, Montes et al. 2010). Cette approche relativement peu onéreuse en termes de coût d'équipement est plutôt bien adaptée aux procédés LCM industriels utilisant des moules semi-rigides translucides, à savoir le procédé RTM light (contre-moule en polymère renforcé de fibres de verre), ou bien employant des bâches à vide transparentes tels que les procédés LRI, VARI et SCRIMP. De plus, cette stratégie de suivi visuel, par l'entremise de caméras digitales, se prête très bien aux études expérimentales des écoulements capillaires qui seront réalisées dans cette thèse à l'aide de la méthode de montée capillaire couplée à l'utilisation d'un fluide sonde fluorescent (*Fluorescent Dye Penetration Inspection*). En revanche, cette technique de suivi visuel peut paraître moins appropriée pour les procédés LCM nécessitant des moules rigides tel que le procédé RTM. En effet, les moules industriels utilisés dans les procédés RTM, SRIM, CRTM et ACRTM sont surtout fabriquées à partir de matériaux rigides qui sont également opaques tels que l'aluminium, l'acier, la fonte ou d'autres types d'alliages métalliques et céramiques (Briones 2005). Dans le cadre de cette thèse, le procédé RTM a été retenu pour compléter les études expérimentales. Par conséquent, le choix du verre trempé s'impose de lui-même pour être en mesure de satisfaire simultanément les critères de transparence optique, de rigidité, de résistance chimique aux solvants et aux résines ainsi que de stabilité thermique et géométrique. La satisfaction de tous ces critères est essentielle à la bonne conduite des plans d'expériences et à la réalisation d'un montage expérimental employant à la fois un moule RTM et une caméra digitale à faible coût pour faire le suivi dynamique de la saturation des renforts fibreux.

CHAPITRE 2 MOTIVATION ET OBJECTIFS

2.1 Motivation et hypothèse

Au cours des cinquante dernières années, plusieurs chercheurs ont étudié l'impact des défauts d'imprégnation et de réticulation des pièces composites à haute performance sur leurs propriétés finales après l'étape de mise en œuvre. En occurrence, il a été rapporté dans la littérature scientifique que les bulles et les inclusions de gaz dans les pièces composites à matrice polymère avaient une influence significative sur leur fini de surface (Lee, Lee et al. 2002), sur leur absorption d'humidité (Shenoi, Wellicome et al. 1993), sur l'abrasion prématurée du renfort fibreux (Saidpour and Tehranchi 2001), sur leurs propriétés mécaniques finales (Greszczuk 1967; Bascom and Romans 1968; Kohn, Sands et al. 1968), sur l'initiation et la propagation de fissures dues à l'effet de concentration de contraintes (Chambers, Earl et al. 2006), sur la résistance à l'impact (Anderson and DeLacy 1972; Lee and McGarry 1976) ainsi que sur la diminution de la vie en fatigue (Stringer 1987; Lambert, Chambers et al. 2012). Toutefois, la vaste majorité des travaux expérimentaux publiés jusqu'à présent ont porté sur la mise en relation de la teneur en vides contenue dans les pièces composites et leurs propriétés mécaniques finales.

À cet effet, de nombreux travaux de recherche sur les pièces composites fabriquées à partir de renforts pré-imprégnés ont établi une corrélation entre l'augmentation de la teneur en vides contenue dans ces pièces et la détérioration de leurs performances mécaniques (Olster 1972; Judd and Wright 1978; Bowles and Frimpong 1991; Ghiorse 1993). Certains chercheurs se sont particulièrement intéressés à l'impact de ces vides sur les performances en traction et en compression des pièces composites (Schultz 1969; Lenoe 1970; Stringer 1987). Néanmoins, les propriétés mécaniques étudiées dans la plupart des essais expérimentaux étaient plutôt la résistance interlaminaire au cisaillement (ILSS) et la résistance à la flexion en trois points (S-3PBT). Le module de rigidité (M-3PBT) des pièces composites, obtenu par des tests de flexion en trois points, était également considéré lors de ces études mais les corrélations obtenues furent moins fortes que pour les propriétés ILSS et S-3PBT. Noter que les propriétés ILSS et S-3PBT des pièces composites sont totalement ou partiellement dictées par les propriétés mécaniques

intrinsèques de la matrice polymère et de l'interface renfort-matrice. Par conséquent, il est tout à fait logique que les bulles qui sont présentes à l'interface renfort-matrice et dans la matrice aient un impact plus notable sur les propriétés mécaniques des pièces composites qui dépendent directement de l'état de la matrice et de l'interface. Selon les travaux de Judd et Wright, chaque augmentation de 1% de la teneur en vides dans les pièces composites utilisant des renforts pré-imprégnés entraîne une diminution de 7% de leur résistance interlaminaire au cisaillement, pour une teneur en vides comprise entre 0 et 4% (Judd and Wright 1978). De son côté, Ghiorse a plutôt rapporté une diminution de 9.7% de la résistance interlaminaire au cisaillement et une diminution de 10.3% de la résistance à la flexion en trois points pour chaque augmentation de 1% de la teneur en vides comprise entre 0 et 5% (Ghiorse 1993). Il apparaît donc évident que la minimisation de ces défauts d'imprégnation est critique pour garantir la performance mécanique des pièces composites ainsi que leur certification, d'où le critère d'admissibilité établi à 1% pour la teneur en vides dans les pièces aéronautiques (Jeong 1997).

Or, pour les pièces composites mises en forme par les procédés LCM, peu de données expérimentales mettant en relation leurs performances mécaniques et leurs teneurs en vides sont disponibles à l'heure actuelle. Puisque les mécanismes d'imprégnation actifs pendant le remplissage des renforts fibreux secs sont différents de ceux qui ont cours lors de la mise en forme des renforts pré-imprégnés en autoclave, de telles données expérimentales sur les pièces composites fabriquées par les procédés LCM seraient donc pertinentes. Parmi les quelques résultats publiés sur le sujet, il convient de souligner les contributions de Varna, Joffe et al. ainsi que celles de Leclerc et Ruiz qui ont effectué des essais mécaniques en traction sur plusieurs pièces composites mises en forme par le procédé RTM (Varna, Joffe et al. 1995; Leclerc 2008; Leclerc and Ruiz 2008). En modifiant les conditions de remplissage et d'imprégnation de leurs pièces composites, ces deux groupes d'auteurs ont pu faire varier la teneur en vides contenue dans leurs pièces ainsi que leurs morphologies. De cette façon, ils ont mis en lumière l'impact de ces deux paramètres sur les performances mécaniques des pièces composites.

Au cours de ces deux études, des variations significatives de propriétés mécaniques des pièces composites ont été observées en fonction de l'augmentation des teneurs en vides mesurées dans

les pièces. Dans l'étude de Leclerc et Ruiz, il a été rapporté qu'une augmentation de 1.2 % de la teneur en vides (de 0.8% à 2%) avait engendré une diminution de 11% du module de rigidité, peu importe s'il s'agissait de bulles microscopiques ou macroscopiques (Leclerc 2008; Leclerc and Ruiz 2008). En revanche, une augmentation de 1% de la teneur en vides (de 1% à 2%) dans ces mêmes échantillons composites renforcés d'un tissu de verre bidirectionnel a entraîné une diminution de 18% de la résistance en traction en fonction du type de bulles emprisonnées (Leclerc 2008; Leclerc and Ruiz 2008). La nature, la position et la morphologie des bulles emprisonnées dans les pièces composites semblaient donc avoir un impact sur leurs mécanismes de rupture en traction. D'un autre côté, Varna, Joffe et al. ont plutôt étudié les propriétés mécaniques transverses de plusieurs échantillons composites renforcés d'un tissu de fibres de verre unidirectionnel à l'aide d'essais de traction (Varna, Joffe et al. 1995). Lors de ces essais mécaniques transverses, les auteurs ont utilisé des données *in situ* d'émission acoustique et de microscopie optique afin de suivre et d'analyser les mécanismes de fissuration et de rupture des échantillons pendant les essais mécaniques en fonction du type de bulles emprisonnées. De plus, les auteurs ont mesuré la déformation à la rupture, la résistance à la traction, le module de rigidité, la contrainte ainsi que la déformation lors de la détection de la première fissure. Ces chercheurs ont observé que les échantillons contenant les teneurs en vides les plus élevés étaient ceux qui contenaient également la plus grande proportion de bulles macroscopiques. Une diminution de 17% du module de rigidité transverse a été mesurée pour une augmentation d'environ 5% de la teneur en vides (de 0.4% à 5%). De plus, une augmentation significative de la déformation à la rupture a été enregistrée pour cette même augmentation de 5% de la teneur en vides. L'effet de la teneur en vides sur la résistance en traction transverse s'est toutefois révélé négligeable. Finalement, il a été noté, à l'aide de l'émission acoustique, qu'une augmentation de la teneur en vides engendrait une apparition prématurée de la fissuration.

À titre comparatif, des essais mécaniques et des mesures de teneurs en vides ont été réalisés dans la présente thèse sur des échantillons composites renforcés de 6 plis d'un tissu de verre NCF bidirectionnel (TG15N60A de *JB Martin®*). Tous ces échantillons ont été prélevés de pièces composites également mises en forme par le procédé RTM. La matrice polymère utilisée pour ces pièces était une résine vinyl ester *Derakane Momentum 411-350™* de *Ashland®* post-cuite. Les essais mécaniques de flexion en trois points (3PBT) et de cisaillement interlaminaire « *Short*

Beam Shear Test » (SBST) ont été réalisés respectivement dans le cadre des normes *ASTM D790* et *D2344* afin de mesurer la résistance à la flexion en trois points et la résistance interlaminaire au cisaillement des échantillons sélectionnés. Les deux montages sont présentés à la Figure 2-1. À cet effet, 150 essais de flexion en trois points ont été réalisés ainsi que 50 essais de cisaillement interlaminaire de type SBST. De leur côté, les mesures de teneurs en vides ont été réalisées par des essais de carbonisation conformément à la norme *ASTM D4762*.

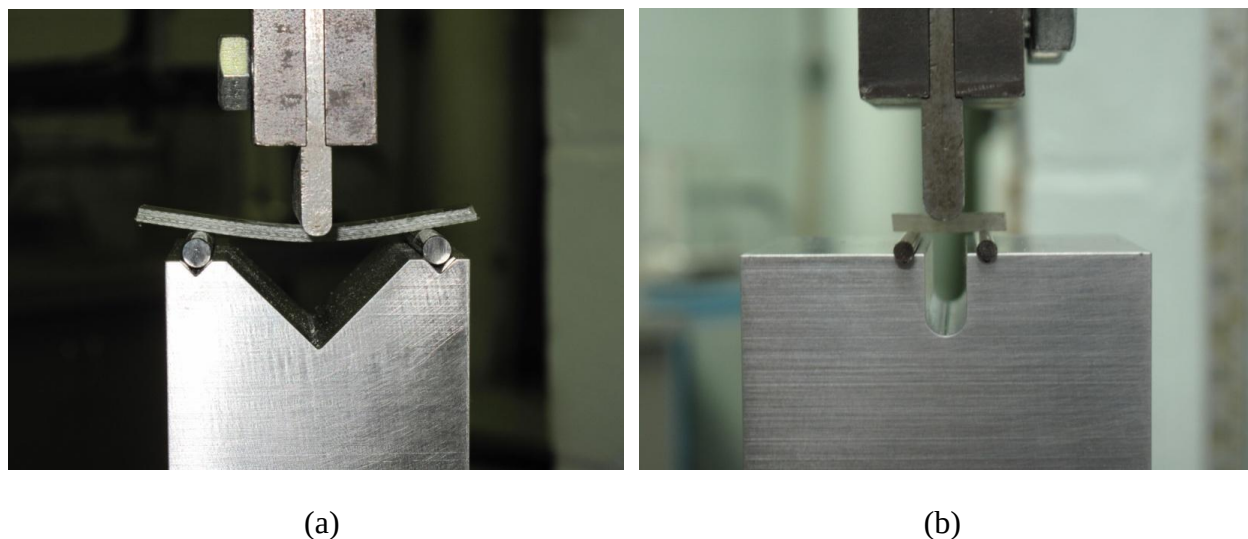


Figure 2-1 : Montages utilisés pour la réalisation des essais mécaniques de flexion en trois points (a) et de cisaillement interlaminaire de type SBST (b).

Les résultats expérimentaux sont graphiquement présentés aux Figure 2-2 et Figure 2-3. Les tendances expérimentales obtenues lors de ces essais sont relativement cohérentes avec les tendances précédemment introduites dans ce chapitre et disponibles dans la littérature scientifique. En effet, une diminution d'environ 10% de la contrainte ultime en cisaillement interlaminaire lors des essais SBST est observée à la Figure 2-3 pour chaque augmentation de 1% de la teneur en vides comprise entre 0 et 3%. Toutefois, une diminution de seulement 4% de la contrainte ultime en essai de flexion en trois points est observée à la Figure 2-2 pour chaque augmentation de 1% de la teneur en vides comprise entre 0 et 3.5%.

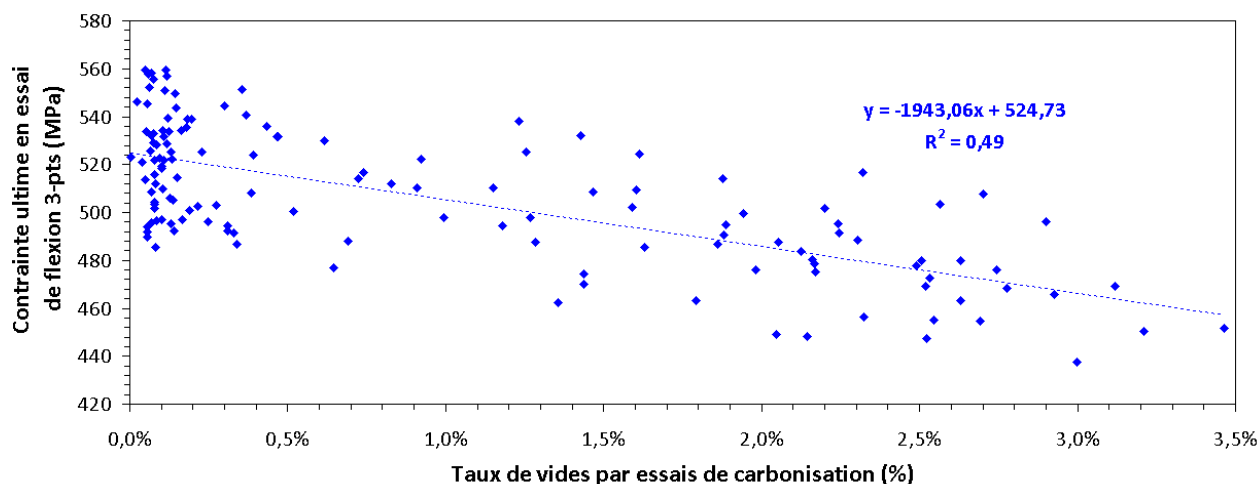


Figure 2-2 : Corrélation entre la contrainte ultime obtenue lors de 150 essais de flexion en trois points et la teneur en vides obtenue par essai de carbonisation.

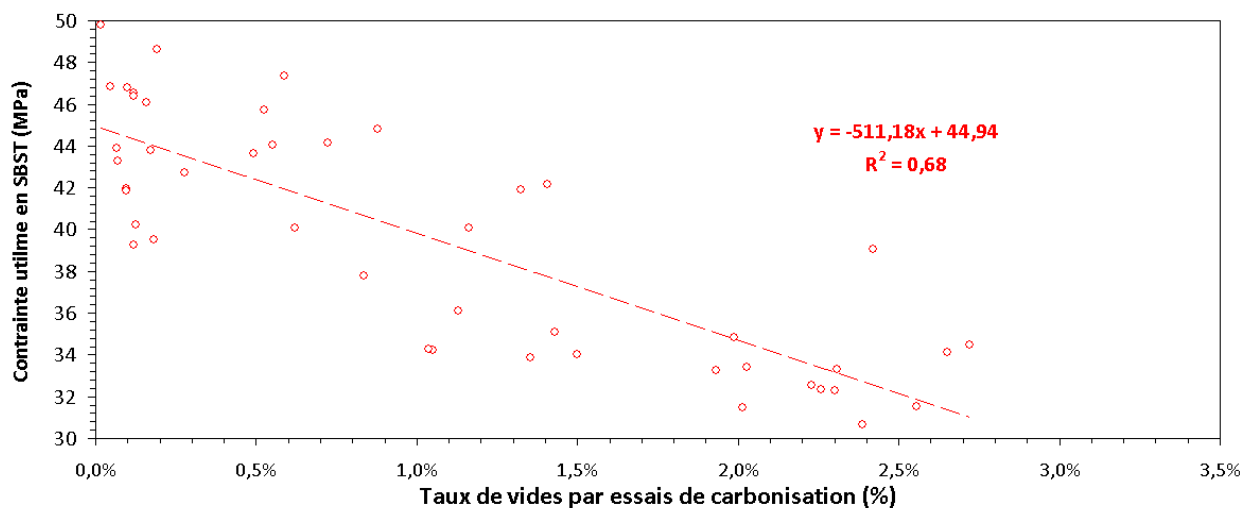


Figure 2-3 : Corrélation entre la contrainte ultime obtenue lors de 50 essais de cisaillement interlaminaire de type SBST et la teneur en vides obtenue par essai de carbonisation.

Malgré les deux tendances observées ci-dessus, il est important de rappeler que les résultats obtenus lors de ces essais mécaniques démontrent une variabilité significative, surtout pour de faibles teneurs en vides. Cette variabilité tire son origine de plusieurs causes. Tout d'abord, la

caractérisation de la teneur en vides par carbonisation pour un échantillon donné ne fournit aucune information sur la morphologie de ces vides, sur leur position dans l'échantillon ni même sur les mécanismes de rupture de l'échantillon, à savoir une rupture adhésive, cohésive fragile ou cohésive ductile (Mandell and Tsai 1990). Tel que mentionné précédemment, tous ces paramètres qui ne sont pas pris en compte dans cette étude comparative ont un impact notable sur les performances mécaniques des pièces composites. Cette réalité découle en bonne partie du fait que l'état des contraintes n'est pas uniforme dans l'épaisseur des échantillons sollicités lors des essais de flexion en trois points et de cisaillement interlaminaire. De plus, dans le cadre des essais de flexion en trois points, les efforts internes développés dans les échantillons composites n'étaient pas purement tranchant ou fléchissant. Il s'agissait plutôt d'une combinaison des deux types d'effort, ce qui peut rendre l'interprétation du mode de rupture plus complexe. Enfin, puisque cette technique de mesure de la teneur en vides par carbonisation est destructive, elle n'a donc pas pu être appliquée simultanément sur les échantillons ayant servi pour les essais mécaniques. Par conséquent, les valeurs de teneurs en vides associées aux échantillons des essais mécaniques ont dû être déduites par interpolation. Ces valeurs ont été interpolées à partir des valeurs de teneur en vides mesurées sur des échantillons adjacents aux échantillons pour les essais mécaniques. Afin de contourner ce problème, des outils de contrôle non-destructif tels que l'analyse par transmission d'ultrasons ou le tomographe à rayon-x seraient plus appropriés (Jeong 1997; Lambert, Chambers et al. 2012).

Toutefois, à la lumière des tendances et des résultats expérimentaux présentés dans cette section, l'hypothèse voulant qu'il existe une corrélation entre la détérioration des propriétés mécaniques des pièces composites et l'augmentation de la teneur en vides contenue dans ces pièces est confirmée. Par conséquent, il devient critique de développer des stratégies de contrôle des procédés LCM qui permettront d'améliorer l'imprégnation des renforts fibreux et de minimiser la formation de bulles par emprisonnement d'air. À cet égard, les deux hypothèses principales de cette thèse stipulent ce qui suit :

- Tout d'abord, **il existe des paramètres critiques à la mise en forme des pièces composites par les procédés LCM influençant directement la formation de bulles par emprisonnement d'air, leur transport ainsi que leur dissolution.**

- Finalement, **il existe des conditions optimales de remplissage et d'imprégnation des renforts fibreux à porosité bimodale permettant de minimiser la formation de ces bulles par emprisonnement d'air.**

2.2 Objectifs

L'objectif principal de la présente thèse consiste à approfondir la compréhension des phénomènes d'imprégnation et d'emprisonnement des bulles dans les renforts fibreux à porosité bimodale afin d'améliorer la qualité des pièces composites fabriquées par les procédés LCM. Afin d'atteindre cet objectif principal et éventuellement confirmer les deux hypothèses de cette thèse, les deux objectifs spécifiques suivants ont été retenus :

- Objectif 1 : **Identifier expérimentalement les paramètres qui gouvernent la fabrication par injection sur renforts afin de contrôler la qualité de l'imprégnation des renforts fibreux.** À cet effet, un montage expérimental non-intrusif a été tout d'abord conçu afin de suivre en temps réel l'imprégnation et la saturation des renforts fibreux pendant leur mise en forme par le procédé RTM. Ensuite, cette nouvelle approche expérimentale a été ensuite validée à l'aide d'une technique standard de caractérisation par carbonisation des teneurs en vides dans les pièces composites. Finalement, l'évolution de l'imprégnation et de la saturation des renforts fibreux a été reliée aux divers paramètres de la mise en forme par le procédé RTM afin d'identifier les paramètres qui influencent principalement la formation des bulles par emprisonnement d'air, leur transport ainsi que leur dissolution.
- Objectif 2 : **Développer des méthodes de caractérisation rapides, répétables et à faible coût des conditions optimales d'imprégnation pour un couple renfort-résine donné.** À cet égard, un montage expérimental a été en premier lieu conçu et validé afin de caractériser les écoulements capillaires d'un fluide de référence et des résines thermodurcissables dans des renforts fibreux. Ensuite, les conditions optimales d'imprégnation des renforts fibreux permettant de minimiser la formation de bulles pendant la mise en forme des composites par le procédé RTM ont été estimées expérimentalement. Cette estimation *a priori* des conditions optimales s'est appuyé sur un

modèle prédictif et une caractérisation expérimentale des écoulements capillaires des résines thermodurcissables dans des renforts fibreux, tout en évitant d'avoir à réaliser des modélisations et de simulations numériques complexes.

Les différents objectifs ont été atteints grâce à quatre articles présentés dans les chapitres suivants. Le premier article, soumis à la revue *Polymer Composites*, présente le montage optique, le système d'injection automatisé et les outils d'analyse qui ont été conçus et validés afin d'étudier en temps réel l'imprégnation et la saturation des renforts fibreux pendant leur mise en forme par procédé RTM. Ce travail expérimental a permis d'identifier les paramètres critiques qui permettent d'influencer la formation des bulles par emprisonnement d'air, leur transport et leur dissolution pendant l'étape de remplissage des pièces composites ou suite à l'utilisation de diverses stratégies industrielles de post-remplissage. Cette étude expérimentale a permis également de comparer l'efficacité des diverses stratégies de réduction de teneur en vides entre elles. Le deuxième article, soumis et accepté par la revue *Open Journal of Inorganic Non-metallic Materials (OJINM)*, présente le montage expérimental de suivi de montée capillaire qui a été développé pour suivre et caractériser les écoulements capillaires d'un fluide de référence dans des mèches d'un renfort de verre NCF avec ou sans solution d'ensimage. De plus, ce montage est validé en comparant les données obtenues de cette caractérisation par montée capillaire avec celles obtenues par des méthodes standards de caractérisation des milieux poreux. Le troisième article, soumis à la revue *Textile Research Journal*, présente le montage expérimental de suivi de montée capillaire qui a été conçu pour suivre et caractériser les écoulements capillaires d'un fluide de référence dans des structures monocouches et multicouches de renfort fibreux de verre NCF avec ou sans solution d'ensimage. De cette façon, l'impact du taux volumique de fibres sur les écoulements capillaires dans les stratifiés de renforts fibreux peut être étudié. Finalement, le quatrième article, soumis à la revue *International Journal of Material Forming*, présente un modèle prédictif de la vitesse optimale d'imprégnation des renforts fibreux qui va permettre de minimiser la formation de bulles par emprisonnement d'air. Ce modèle découle d'une équation mécanistique décrivant l'écoulement d'un fluide visqueux dans des canaux capillaires équivalents. Afin d'estimer *a priori* cette vitesse optimale d'imprégnation à l'aide du modèle proposé, deux paramètres critiques doivent être caractérisés à l'aide du montage expérimental de montée capillaire développé dans le troisième article, en

occurrence la pénétrativité de la résine thermodurcissable injectée et le nombre capillaire modifié optimal du renfort fibreux utilisé.

CHAPITRE 3 ARTICLE 1 : DYNAMIC STUDY OF VOID FORMATION AND SATURATION IN DUAL SCALE FIBROUS REINFORCEMENT BY TOMOGRAPHIC RECONSTRUCTION

François LeBel, Édu Ruiz and François Trochu¹

*Department of Mechanical Engineering and Chair on Composites of High Performance.
Centre de recherche en plasturgie et composites (CREPEC), École Polytechnique de Montréal,
P.O. Box 6079, Station « Centre-Ville », Montréal, Canada, H3C 3A7
¹Corresponding author's email : trochu@polymtl.ca*

3.1 Présentation du chapitre

Ce chapitre est un article qui sera soumis à la revue *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*. Cet article présente un montage qui a été développé pour étudier la saturation des renforts fibreux à l'échelle macroscopique, durant le moulage des composites par transfert de résine (RTM). Ce montage permet d'identifier les paramètres qui gouvernent le remplissage et les stratégies industrielles de post-remplissage (purge du moule et consolidation) afin de contrôler la qualité de l'imprégnation des renforts fibreux. Ces paramètres sont identifiés à l'aide de trois plans d'expérience. Il s'agit de la vitesse d'avancée du front de résine, de la pression appliquée aux ports d'injection et du débit d'écoulement de la résine lors de la purge du moule. L'analyse effectuée dans ces plans d'expérience s'appuie sur une procédure ASTM standard de détermination de la teneur en vides dans les pièces composites par carbonisation. Les trois plans d'expérience mis en place ont permis de relier *a posteriori* ces paramètres de fabrication aux phénomènes de formation, migration et dissolution des défauts d'imprégnation (bulles) dans des pièces composites constituées de six plis d'un renfort fibreux bidirectionnel de verre sans ondulation (NCF) et d'une résine vinyl ester. Ces phénomènes de formation et de transport des bulles sont également observés en temps réel durant les étapes de remplissage et de post-remplissage de ces pièces composites. L'observation directe de ces phénomènes est rendue possible grâce à une méthode non-intrusive de suivi de la saturation dynamique des renforts fibreux transparents tels que le présent NCF de verre. Cette méthode tomographique 2D de suivi

par transmission de lumière visible (VLT) s'appuie sur les lois de *Beer-Lambert* et de *Fresnel* de la physique optique et elle exploite la correspondance entre les indices de réfraction du verre et de la résine vinyl ester pour augmenter l'effet de contraste visuel. Noter que la méthode de suivi proposée et validée dans la première partie de la thèse est compatible avec des systèmes industriels d'injection automatisée. Cette approche utilise uniquement du matériel optique à faible coût tel qu'une caméra numérique, un moule RTM transparent et une source de lumière. Tous les résultats obtenus dans ce chapitre sont cohérents avec les données déjà publiées dans la littérature scientifique.

3.2 Abstract

This investigation aims to study of real-time evolution of liquid saturation of fibrous reinforcements used for manufacturing composite materials. Saturation was observed by Visible Light Transmission (VLT) technique developed in this work. This novel approach in the field of composite materials brings an insight on material property after impregnation. The monitoring of dynamic saturation in dual scale fibrous reinforcements is based on optical principles. The experimental setup is coupled with peripheral equipments, a computer-assisted injection system and a *Hele-Shaw* cell used as an RTM mold, that allow investigating dynamic saturation in dual scale fibrous reinforcements during mold filling and post-filling. Several RTM injections of an E-glass bidirectional non-crimp fabric with a vinyl ester resin were carried out under various manufacturing conditions to investigate key parameters such as flow front velocity, inlet mold pressure and bleeding flow rate. The formation, dissolution and transport of voids in composites were analyzed using D2734 *ASTM* standard. The results obtained compare well with previously published scientific literature, thus validating the VLT method to study dynamic saturation in dual scale fibrous reinforcements.

KEYWORDS

Liquid Composite Molding (LCM), saturation, void content, Visible Light Transmission method, *Beer-Lambert's* law, *Fresnel's* law, *ASTM D2734*.

3.3 Introduction

One key issue in composites manufacturing by resin injection is related to the impregnation of the fibrous reinforcement by a liquid reactive polymer. In processes such as *Resin Transfer Molding* (RTM), *Compression Resin Transfer Molding* (CRTM) and *Vacuum Assisted Resin Infusion* (VARI), a liquid resin is injected or infused inside a mold cavity containing a dry fibrous reinforcement. In order to produce high performance composite, the fibers must be completely saturated prior to resin gelation [1, 2]. Indeed, impregnation defects have a detrimental impact on mechanical properties of composite parts, not only on the maximum compression, flexural and shear inter-laminar strengths, but also on crack initiation and fatigue life, as well as on moisture absorption and surface finish [3-8]. Hence developing practical strategies to produce composite parts of high impregnation quality is a critical industrial goal [9, 10].

In order to minimize the void content in composites manufactured by LCM processes, it is necessary to study unsaturated flows in dual scale fibrous reinforcements. An accurate injection process should control not only mold filling, but also dynamic saturation in the fibrous reinforcement. For that purpose, a new monitoring technique was developed using Visible Light Transmission (VLT) through translucent fibrous reinforcements. This new approach based on so called refractive index matching method of optics requires a light source, a CCD image acquisition and a transparent RTM mold used like a *Hele-Shaw* cell. This low cost optical setup is coupled with a computer-assisted injection system to carry out resin injections either at constant injection pressure or constant flow rate.

The reliability of this monitoring technique of dynamic saturation was already demonstrated on granular translucent porous media such as glass beads and silica sands [11-13]. This technique was applied on this work to glass fibers. Three designs of experiments (DOE) were carried out in order to identify the key parameters that govern void formation by air entrapment and void transport during part filling and post-filling. The standard characterization of void content based on carbonization (*ASTM D2734*) provides an experimental validation of this new approach by comparing saturation estimations from the VLT method with results of *ASTM D2734*.

A review on the key parameters that have an impact on void formation by air entrapment and on void transport in dual scale fibrous reinforcements is first presented. Then, a predictive model of optimal impregnation to minimize void formation is introduced. The experimental setup and procedure used to carry out the current investigation are presented: the VLT method with its mathematical developments; the complete optical setup and the computer-assisted injection system; the procedures of material and mold preparation and the procedure of void content determination by *ASTM D2734*. Then, the experimental results from the three series of experiments on void formation and transport in dual scale fabrics are analyzed with respect to the key parameters that govern mold filling and post-filling strategies. These results are consistent with data published in the scientific literature on this topic. The results on saturation obtained by *ASTM D2734* are compared with estimations derived from VLT method to validate this new approach in fibrous reinforcements. A good match obtained between the two approaches allows a further validation of optimal impregnation conditions in dual scale fibrous reinforcements. Finally, the mechanisms of void formation and transport are investigated.

3.4 Bibliography

3.4.1 Void formation by air entrapment in LCM processes

Small defects such as microscopic and macroscopic voids in composite parts have a detrimental impact on their mechanical properties, on crack initiation and fatigue life [4-6, 14-16]. The void content has also an effect on moisture absorption and surface finish [8, 17]. Voids may be generated by air mechanical entrapment at the flow front, by gases from the chemical reaction of polymerization, by volume changes during cure as a result of resin shrinkage, by bubble nucleation from dissolved air, volatile organic compounds (VOCs), water or solvent present in the liquid resin or resulting from the on-line mixing with curing agents [18, 19]. Void formation by air mechanical entrapment is a critical issue in LCM processes.

The dual scale architecture of commercial woven fabrics is mainly responsible for air entrapment between the fiber tows and inside the tows. The fingering behavior is considered as a risk factor of void formation because the leading resin front can entrap air by overpassing the microscopic flow front in crosswise tows of lower permeability [20]. This leading flow front can also create voids inside lengthwise tows by crossing over these longitudinal tows, ahead of the lagging microscopic front. Often, these microscopic voids are difficult to predict because they can result from intrinsic tow variability, randomly packed fiber beds, heterogeneous pore size distribution and according to Advani and Simacek [21], Parnas et al. [22] and Peterson and Robertson [23] from local defects of the reinforcement. Moreover, in infusion processes with low viscosity resins or for the injection of large parts, capillary fingering can entrap air and generate macroscopic voids as described by Patel et al. [24].

For many authors, the air entrapment mechanisms that result from this lead-lag flow profile in dual scale porosity can be mainly related to the impregnation velocity of the reinforcement by the liquid resin [25]. Figure 3-1a shows that for low impregnation velocity, capillary forces are leading viscous forces. Thus, the resin impregnates more rapidly the fiber bundles than the open space between them. This flow scenario represents a risk of macroscopic void formation between the fiber tows. On the other hand, Figure 3-1b shows that for higher impregnation velocity the viscous force contribution becomes more important. The resin bypasses and surrounds the tows because the filament bundles represent obstacles to the viscous flow. This situation creates delayed tow saturation and residual microscopic voids inside the fiber bundles. Therefore, an intermediate range of impregnation velocity exists for which the porosity is minimized for a given fabric and resin [10].

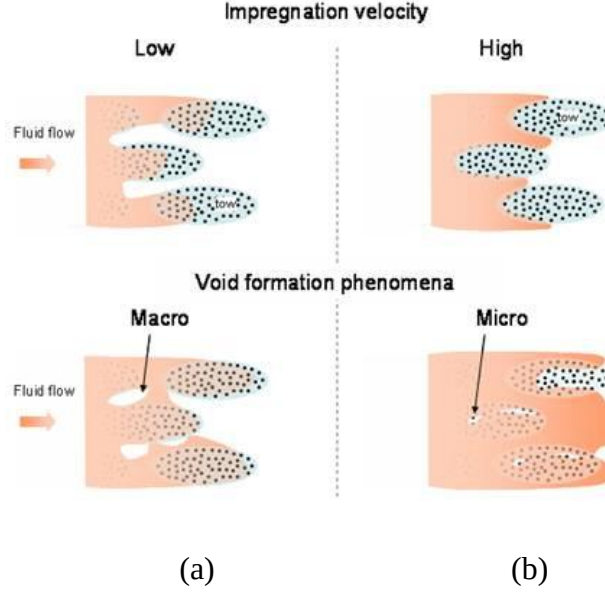


Figure 3-1 : Schematics of void formation due to resin fingering [28]:
 (a) microscopic flows through intra-tow pores; (b) macroscopic flows through inter-tow pores.

Leclerc and Ruiz [4], Patel et al. [24] and Mahale et al. [26] suggested that either the capillary number Ca_{ff} or the modified capillary number Ca_{ff}^* is the key parameter that governs void formation at the flow front. These dimensionless parameters are defined as follows:

$$Ca_{ff} = \frac{\mu v_{ff}}{\gamma_{lv}} \quad (3.1)$$

and

$$Ca_{ff}^* = \frac{v_{ff}}{R_{fluid}} \quad (3.2)$$

where v_{ff} is the local velocity of the flow front and R_{fluid} is the fluid penetrativity defined as follows:

$$R_{fluid} = \frac{\gamma_{lv} \cos \theta}{\mu} \quad (3.3)$$

where μ is the dynamic viscosity, γ_{lv} the surface tension of the resin and θ the apparent static contact angle of the meniscus between fluid and fibers.

Based on these previous proposals (see Eqs. (3.2) and (3.3)), a new predictive model of the optimal impregnation conditions based on the fibrous reinforcement properties is presented in the current work. This model allows estimating *a priori* the modified capillary number Ca_{opt}^* that minimizes void formation for the studied fabric. This model considered that the optimal filling time t_{opt} of the fabric unit cell is the “characteristic filling time” t_c of the fiber tow by spontaneous imbibition. This t_c can be evaluated by *Lucas-Washburn* law from the characteristic distance L_c of the fabric weaving/stitching unit cell as follows [27]:

$$t_{opt} = t_c = \frac{L_c^2}{B_h} \quad (3.4)$$

where B_h represents the *Lucas-Washburn* (LW) slope of the square of the capillary height evolution during the LW linear flow regime. According to LeBel et al. [27], B_h for capillary flows in fiber tows can be estimated as follows:

$$B_h = \frac{f_{geo}}{2 k_o} \cdot \frac{d_f \phi_{tow}}{\tau^2 (1 - \phi_{tow})} \cdot R_{fluid} \quad (3.5)$$

where d_f , ϕ_m and τ are respectively the diameter of the fiber tow filament, the porosity of fiber tows and their tortuosity. The parameters f_{geo} and k_o denote geometrical constants which depend on the pore size distribution, on the flow direction with respect to the fiber tows and on the filament packing configuration. Thus, the optimal impregnation velocity of the fabric unit cell is defined as follows:

$$v_{opt} = \frac{L_c}{t_{opt}} = \frac{B_h}{L_c} \quad (3.6)$$

After some mathematical manipulations, the model proposed in the current investigation is defined as follows:

$$Ca_{opt}^* = \frac{f_{geo}}{2k_o} \cdot \frac{d_f \phi_m}{\tau^2 L_c (1 - \phi_m)} \quad (3.7)$$

Note that the parameter B_h can also be obtained experimentally by linear regression on the evolution of the square of the capillary front height in time through fibrous reinforcements.

Indeed, the LW slope B_h can be characterized from capillary rise experiments in order to determine *a priori* the optimal range of impregnation conditions for a given pair of fibrous reinforcement and resin, with respect to their thermal manufacturing conditions. The B_h value for the non-crimp fabric and the vinyl ester resin currently investigated here was characterized with a capillary rise setup [27]. The range of modified capillary numbers Ca_{opt}^* for this fabric was about $[0.8 - 2.8] \times 10^{-3}$, whereas the optimal injection window with this resin at room temperature was restricted to flow front velocities of 0.15 ± 0.02 mm/s. Note that this *a priori* estimation of optimal impregnation conditions was obtained without having to perform expensive and time-consuming manufacturing tests or carrying out complex numerical modeling of dual scale flows in fibrous reinforcements. This *a priori* estimation of optimal impregnation conditions will be further validated in this investigation.

3.4.2 Void transport in LCM processes

The fast transport phenomenon resulting from the compression and advection of trapped voids in fibrous reinforcements is also governed by the capillary number Ca_{ff} or the modified capillary number Ca_{ff}^* of the resin flow. Chen et al. [20], Gourichon et al. [28], Lundström [29] and Patel and Lee [30] proposed models to predict the motion of voids trapped by capillary forces using the viscous shear forces created through high bleeding flow rates. According to the Haines jump theory [31], a void will move when the capillary pressure difference across the void is smaller than the hydrodynamic pressure difference between the void ends. The competition between the “dynamic” capillary forces and the viscous shear forces at the onset of void mobilization was represented by the capillary number Ca_{mob} as follows:

$$Ca_{mob} = \frac{4 K_i k_{r,w}}{l_{void} \cos \beta} \left(\frac{\cos \theta_r}{D_e} - \frac{\cos \theta_a}{D} \right) \quad (3.8)$$

where K_i , $k_{r,w}$, l_{void} , D_e and D are respectively the intrinsic permeability of the porous medium investigated, the relative permeability of the wetting phase (resin), the void length, the pore throat diameter (smallest pore diameter) and the typical diameter of the pore body. The angle between voids and the average flow direction β , the dynamic receding contact angle θ_r as well as the

dynamic advancing contact angle θ_a of the meniscus between the fluid and the fibers are also required to estimate this capillary number Ca_{mob} at the onset of void mobilization. Thereafter, the conversion from the capillary number to the modified capillary number is performed by using the apparent static contact angle θ of the meniscus between the fluid and the fibers as follows:

$$Ca_{mob}^* = \frac{Ca_{mob}}{\cos \theta} \quad (3.9)$$

The dynamics of individual bubbles and their subsequent trapping in biaxial non-crimp fabrics during LCM manufacturing were recently investigated by Frishfelds et al. [32] who demonstrated the highly probabilistic nature of this local behavior of bubble motion in dual scale reinforcements. Note that the current experimental study will not address this quasi-random phenomenon. Further studies of Yamaleev and Mohan [33] as well as Lundström [34] have also revealed the contribution of the pressure field in the mold cavity to slower transport phenomenon of voids. This phenomenon was the compression, dissolution and diffusion of entrapped gas into the surrounding resin during mold filling or using post-filling strategies. This thermodynamic phenomenon was also studied and modeled in autoclave manufacturing by Wood and Bader [35, 36] using the *Henry's* law of gas solubility and the *Fick's* laws of diffusion. However, note that Wood and Bader [35, 36] were rather modeling the opposite trend of void evolution, namely gas diffusion, void nucleation and growth in prepregated composite materials.

According to these authors, the key parameters of the compression, dissolution and diffusion of entrapped gas are the initial bubble size, the initial gas pressure inside the bubble, the resin pressure applied on the bubble, the initial concentration of dissolved gas in the resin, the resin temperature and time. It is interesting to point out that the resin flow during LCM processes should theoretically promote higher dissolution rates of gas in the resin compared to the autoclave manufacturing as result of the forced convection of dissolved species [34]. Finally, Lundström [34] proposed a phenomenological model that fits the length decrease in time of cylindrical voids as a result of gas compression, dissolution and diffusion into the resin. This exponential decay model in time of microscopic void length ξ with respect to their initial length ξ_0 was defined as follows:

$$\frac{\xi}{\xi_o} = Ae^{-B\frac{t}{R^2}} \quad (3.10)$$

where t denotes time, and the parameters B and R respectively the dissolution rate and current void radius respectively. The parameter A is rather connected to the measurement starting time. For more comprehensive reviews on void formation by air entrapment and void transport in dual scale fibrous reinforcements, the readers can refer to Pillai [37] as well as Park and Lee [38].

3.5 Material characterization

The fibrous reinforcement and the thermosetting resin used to carry out this experimental study are presented in this section. Key properties of the fabric and the resin are evaluated in the current work such as the fabric permeability, the resin gel time, glass transition temperature and resin shrinkage. These material properties will allow prescribing the processing window in order to carry out RTM injections for three series of experiments. These properties will also allow calculating the values of the critical parameters that control void formation by air entrapment and void transport. Fabric characterization had already been initiated by standard techniques such as image analysis, microscopy, spectrometry, capillary flow porometry, *B.E.T.* analysis, gravimetry by buoyancy measurement and thermogravimetry. Characterization of the resin has also been carried out by standard techniques such as pycnometry, rheometry, tensiometry and goniometry. The results of the characterizations of fiber tow architecture carried out by LeBel et al. [27] are reported in Table 3-1 and in Table 3-2, and the application to the current fabric is summed up in Table 3-3.

3.5.1 Fabric characterization

The current investigation on saturation was carried out with fibrous preforms consisting of 6 plies of E-glass non-crimp fabric (NCF) in the weft direction, i.e., the perpendicular direction to the stitching filaments. The same bidirectional NCF that was employed by LeBel et al. [27] in a previous investigation on capillary flows in fibrous reinforcements has been reused here to build 6-ply preforms (TG15N60A / #3028). According to the fabric properties reported in Table 3-3,

these fibrous preforms should exhibit a nominal fiber volume content V_f^o of 38.5% for a compacted thickness of 3.175 mm (1/8 inch). For fiber volume contents lower than 35%, the laminate becomes loose, thus creating channels when resin is injected into the mold. On the other hand, fiber volume contents higher than 55% would require too high injection pressures to be practical [39]. This glass NCF was manufactured by *JB Martin*® using *Vetrotex*™ glass warp (735 tex) and weft (275 tex) tows stitched together by polyester binder filaments (17 tex). These glass tows were coated with the *P688* sizing from *Vetrotex*® (octyltriethoxysilane) in order to alter the polarity of the aluminoborosilicate glass filaments, to ensure good chemical affinity with many thermosetting resins such as the vinyl ester resin used here and to provide water repellency and other basic sizing features. Furthermore, the polyester filaments hold the untwisted glass strands together. This unbalanced fabric has 45% of its glass filament volume along the warp and 55% along the weft. Each fabric ply consists of 2 weft layers and 1 warp layer. The size of the fabric *REV* was evaluated to be 225 mm² (15 mm × 15 mm) by plotting the polyester mass fraction and fabric porosity with respect to different fabric sample areas.

The characterization results of fiber tow and fabric are summed up respectively in Table 3-1, Table 3-2 and Table 3-3. Note that the information provided by the fabric supplier are given in parentheses in Table 3-1 and Table 3-2. In Table 3-3, the values derived from final uptake fluid mass and information provided by the fabric supplier are given in parentheses. The values of the optimal modified capillary number Ca_{opt}^* for the warp and weft tows was computed in Table 3-2 from the fiber tow properties and from the center-to-center tow distances in both fabric directions. On the other hand, the values of Ca_{opt}^* for warp and weft single plies was estimated in Table 3-3 from capillary rise experiments previously performed and from the center-to-center tow distances in both fabric directions.

Table 3-1 : Properties of the *JB Martin*® TG15N60A non-crimp fabric [27]

Properties ^a		values from standard characterization methods ^b	values from capillary rise method or supplier ^c	Units
Fabric	Vetrotex® glass mass density ρ_{glass}	2.57 ± 0.06	(2.6)	g/cm^3
	Sizing mass ratio R_{sizing}	0.4 ± 0.1	(0.55 ± 0.15)	%
	Sizing degradation temperature T_{sizing}	245	—	°C
	Anisotropy ratio of pores R_a^{tow}	3.0 ± 0.9	2.9 ± 0.3	—

^a Properties were characterized at room temperature ($22.5 \pm 2.5^\circ\text{C}$) for a relative humidity of $22 \pm 5\%$.

^b Standard methods are microscopy, porometry by liquid expulsion, *B.E.T.* analysis and gravimetry.

^c Information provided by the fabric supplier are given in parenthesis.

Table 3-2 : Properties of fiber tows taken from *JB Martin®* TG15N60A NCF [27]

Properties ^a		values from standard characterization methods ^b	values from capillary rise method or supplier ^c	Units
Warp direction	Filament diameter d_f	14.9 ± 0.1	(15)	μm
	Total cross-section area A_{tow}	0.54 ± 0.03 $2.20 \pm 0.02 \times 0.32 \pm 0.01$	0.52 ± 0.02	mm^2
	Microscopic porosity ϕ^{warp}	49 ± 8	45 ± 2	%
	Specific surface area per unit mass S_m	0.09 ± 0.01	0.104 ± 0.003	m^2/g
	Specific surface area per unit pore volume S_{pv}	2.8 ± 0.9	2.8 ± 0.4	$\times 10^5$ m^{-1}
	Hydraulic diameter d_h^m	12 ± 2 ; 8.76 to 16.04	12 ± 1	μm
	Axial permeability K_{exp} [27]	1.70 ± 0.09	—	darcy
	Optimal modified capillary number Ca_{opt}^* (3.7)	2.4 ± 0.8	1.8 ± 0.1	$\times 10^{-3}$
Weft direction	Filament diameter d_f	13.1 ± 0.2	(13)	μm
	Total cross-section area A_{tow}	0.178 ± 0.009 $1.347 \pm 0.007 \times 0.168 \pm 0.007$	0.186 ± 0.009	mm^2
	Microscopic porosity ϕ^{weft}	50 ± 10	44 ± 4	%
	Specific surface area per unit mass S_m	0.11 ± 0.02	0.119 ± 0.003	m^2/g
	Specific surface area per unit pore volume S_{pv}	3 ± 1	3.6 ± 0.7	$\times 10^5$ m^{-1}
	Hydraulic diameter d_h^m	12 ± 2 ; 8.76 to 16.04	10 ± 2	μm
	Axial permeability K_{exp} [27]	1.7 ± 0.1	—	darcy
	Optimal modified capillary number Ca_{opt}^* (3.7)	1.2 ± 0.5	0.9 ± 0.1	$\times 10^{-3}$

^a Properties were characterized at room temperature ($22.5 \pm 2.5^\circ\text{C}$) for a relative humidity of $22 \pm 5\%$.^b Standard methods are microscopy, porometry by liquid expulsion, *B.E.T.* analysis and gravimetry.^c Information provided by the fabric supplier are given in parenthesis.

Table 3-3 : Properties of a single ply of *JB Martin*® TG15N60A NCF

Properties		values	units
Global fabric	Fabric mass density ρ_{fabric}	2.54 ± 0.01	g/cm^3
	Polyester mass fraction $R_{polyester}$	1.72 ± 0.03	%
	Polyester degradation temperature $T_{polyester}$	385	°C
	Thickness h_{fabric}	0.543 ± 0.004 ^a 0.614 ± 0.003 ^b	mm
	Superficial density ρ_s	517 ± 6 (518) ^c	g/m^2
	Fiber volume content V_f^{REV}	37.7 ± 0.7 ^a 33.1 ± 0.6 ^b	%
Warp direction	Tow coun n_{tows}	3.07 (3.1)	tows/cm
	Center-to-center tow distance L_c	1.94 (1.92)	mm
	Width of gap between fiber tows w_{gap}	1.08 ± 0.03	mm
	Hydraulic diameter of macropores d_h^M	490 ± 30	μm
	Total effective area of the pores A_ϕ	9 ± 2 (8.4 ± 0.8)	mm^2
	Optimal modified capillary number Ca_{opt}^*	[1.3 – 2.8]	$\times 10^{-3}$
Weft direction	Tow count n_{tows}	10.31 (10.4)	tows/cm
	Center-to-center tow distance L_c	3.26 (3.23)	mm
	Width of gap between fiber tows w_{gap}	0.61 ± 0.02	mm
	Hydraulic diameter of macropores d_h^M	260 ± 30	μm
	Total effective area of the pores A_ϕ	9 ± 2 (8.5 ± 0.8)	mm^2
	Optimal modified capillary number Ca_{opt}^*	[0.8 – 2.8]	$\times 10^{-3}$

^a ASTM D1777-96 standard (option 4; applied pressure of 18.9 ± 0.7 kPa); compacted.^b ASTM D1777-96 standard (option 1; applied pressure of 4.14 ± 0.21 kPa); uncompacted.^c Values derived from final uptake fluid mass and information provided by the fabric supplier are given in parentheses.

Permeability measurement

The permeability of this 6-ply fibrous preform ($V_f^o = 38.5\%$) in the weft direction was evaluated by the flow front tracking method developed by Ferland et al. [40]. The permeability benchmark used here was already introduced elsewhere [41, 42]. This unidirectional setup consisted of a steel mold with a rectangular cavity of 0.90 m long by 0.13 m wide by 3.175 mm thick. Ten unidirectional flow experiments were performed at different constant inlet pressures between 0.02 and 0.95 bar.

The fluid used for these tests was a 0.1 Pa.s silicone oil from *Dow Corning® (Xiameter® PMX-200)* which behaves as a Newtonian fluid. The key properties of this fluid reported in Table 3-4 were evaluated by standard characterization procedures such as pycnometry, rheometry, tensiometry and goniometry. Accordingly, the dynamic viscosity and the surface tension of this silicone oil were characterized respectively with a *MCR-501* rheometer from *Anton-Paar®* and a *K14* force tensiometer from *Krüß® (Wilhelmy's plate method)*. The dynamic contact angle between this fluid and the tow filaments and the static contact angle between the fluid and fiber tows were also characterized with the *K14* force tensiometer. Moreover, the static contact angle between the fluid and a reference surface was characterized with a *NRL-100* optical goniometer from *Ramé-Hart®*. Finally, the mass density of this fluid was characterized a 25 ml pycnometer from *Fisher Scientific®* and a *CP225D* balance from *Sartorius®*. All the properties were measured at room temperature ($22.5 \pm 2.5^\circ\text{C}$). The capillary pressure at equilibrium P_{cap} between this silicone oil and glass fiber tows was estimated by an analytical model proposed in LeBel et al. [27] and defined as follows:

$$P_{cap} = f_{geo} \cdot S_{pv} \cdot \gamma_{lv} \cdot \cos \theta \quad (3.11)$$

where S_{pv} , γ_{lv} and θ are respectively the specific surface area per unit of pore volume of the fiber tow, the surface tension of the silicone oil and the equilibrium contact angle. On the other hand, the geometrical constant f_{geo} , $0 \leq f_{geo} \leq 1$, depends on the pore size distribution and on the flow direction with respect to the fiber tows. For capillary flows along fiber tows, this latter constant is considered to be around unity ($f_{geo} \approx 1$). From the S_{pv} values of the fiber tows in the warp and weft

directions reported in Table 3-2 and from the silicone oil properties reported of Table 3-4, the capillary pressure values were evaluated to be around 0.06 ± 0.02 bar as reported in Table 3-4.

Table 3-4 : Properties of the fluid for the permeability characterization tests ^a

Fluid	Fluid properties		Interfacial properties			Imbibition properties	
	density (kg/m ³)	dynamic viscosity (mPa·s)	Surface tension (mN/m)	advancing dynamic contact angle (degree)	static contact angle (degree)	Capillary pressure P_{cap} (3.11) (bar)	
						warp	weft
Dow							
Corning®	959.895	102.0	20.7890	~ 0.1	2.4 ± 0.7 ^b	0.06	0.06
(Xiameter®	± 0.008	± 0.1	± 0.0003		0.0 ± 0.2 ^c	± 0.02 ³	± 0.02 ³
PMX-200)							
silicone oil							

Experimental results of this permeability characterization are presented in Figure 3-2. The average interpolated permeability was calculated to be about $(7.8 \pm 0.3) \times 10^{-10} \text{ m}^2$. According to the injection pressures used to carry out this characterization, the permeability values are in good agreement, excluding the injection at 0.02 bar. Indeed, the experimental data overlap the confidence interval of the average permeability. The permeability value obtained at 0.02 bar was clearly departing from the confidence interval of the average permeability. Therefore, this value was not considered in the estimation of the preform permeability. This phenomenon can be explained by the significant contribution of capillary effects in fiber tows to the flow front

^a All the properties were characterized at room temperature ($22.5 \pm 2.5^\circ\text{C}$) for a relative humidity (RH) of $22 \pm 5\%$.

^b From *NRL-100* optical goniometer (*Ramé-Hart®*) measurements of equilibrium (static) contact angles.

^c From tensiometry (capillary rise setup) measurements of advancing contact angles on warp fiber bundles.

progression at this very low injection pressure [43]. Actually, this injection pressure of 0.02 bar was significantly lower than the equilibrium capillary pressure in fiber tows estimated previously at 0.06 bar.

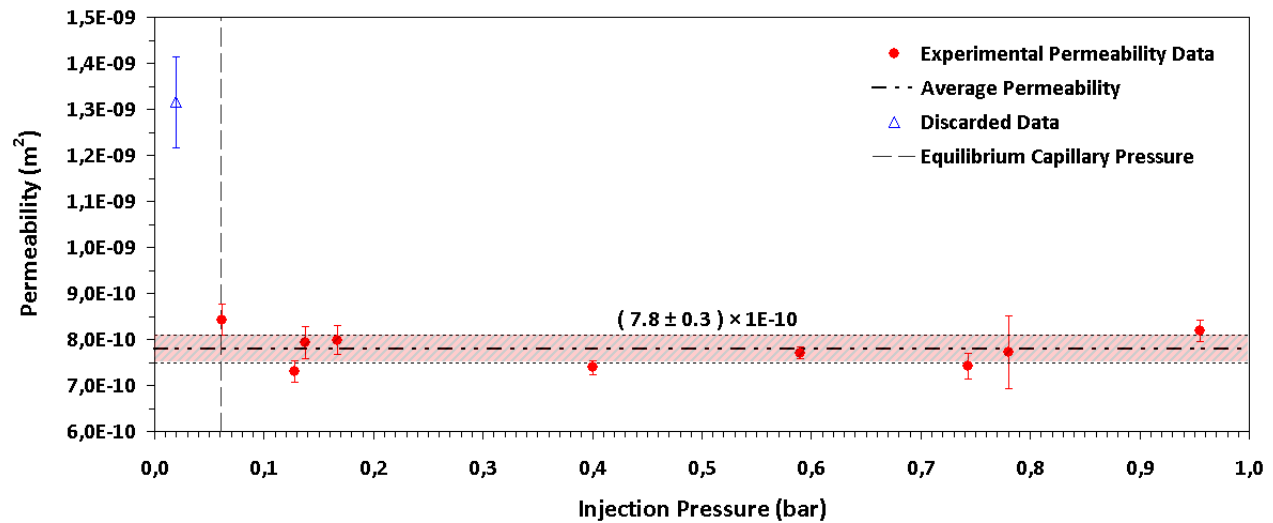


Figure 3-2 : Permeability characterization along weft direction at constant injection pressure.

3.5.2 Characterization of the infiltration fluids

The *Derakane*® 411-350 vinyl ester resin produced by *Ashland* inc. has been selected to carry out the previous characterization of capillary flows in dual scale fibrous reinforcements by capillary rise experiments and to perform the RTM injections in the three series of experiments. The properties of this resin at room temperature^a are reported in Table 3-5. This resin was chosen because of its ability to crosslink at room temperature, its low viscosity arising from the thinning contribution of the styrene monomer and its chemical affinity with the fiber sizing. This resin was also chosen because of its similar optical properties with the fiberglass. The refractive index of

^a Properties were characterized at room temperature ($22.5 \pm 2.5^\circ\text{C}$) for relative humidity (RH) of $22 \pm 5\%$.

the E-glass fibrous reinforcement is considered to be close to 1.56 whereas the one of this vinyl ester resin was calculated to be around 1.564 [44, 45].

Table 3-5 : Properties of the *Derakane*® 411-350 vinyl ester resin ^a [30]

Fluid	Fluid properties		Interfacial properties		Imbibition properties	
	density (kg/m ³)	dynamic viscosity (mPa·s)	surface tension (mN/m)	advancing and receding dynamic contact angle (degree)	static contact angle (degree)	penetrativity R_{resin} (m/s)
<i>Derakane</i>® 411-350 vinyl ester resin	1045.4804 ± 0.0004	478.8 ± 0.4	34.34 ± 0.04	~ 0	44 ± 2 ^b 40.8 ± 0.2 ^c	0.052 ± 0.002 ² 0.0543 ± 0.0002 ³

In order to investigate a wide range of modified capillary numbers Ca_{ff}^* for the flow front progression at room temperature, a slow resin cure system was formulated to reach gel time after more than one hour. The *Derakane*® 411-350 vinyl ester resin was mixed with 0.15 PHR of Cobalt Naphthenate promoter 12% and with 0.2 PHR of 2,4-pentanedione inhibitor from *Ashland* inc. Prior to the resin entrance into the RTM mold, 1.5 PHR of *Norox*® cumyl hydroperoxyde from *Syrgis* inc. was added to the promoted resin by an online mixing system. This latter initiator was selected for its ability to limit the foaming phenomenon and decrease the heat exotherm. The gel time of the current resin formulation was characterized at 25°C by a *MCR-501* rheometer from *Anton-Paar*® with a geometry of parallel plates. The oscillating mode was chosen by setting the oscillation strain amplitude and frequency respectively to 1% and 10 radians/s. As shown in Figure 3-3, different gel times were obtained based on the selected criterion defining

^a All the properties were characterized at room temperature (22.5 ± 2.5°C) for a relative humidity (RH) of 22 ± 5%.

^b From *NRL-100* optical goniometer (*Ramé-Hart*®) measurements of equilibrium (static) contact angles.

^c From tensiometry (capillary rise setup) measurements of advancing contact angles on warp fiber bundles.

the gelation event^a for thermosetting resins. Different gel time criteria are proposed in the *ASTM D2471* standard or in the scientific literature [47]. A resin viscosity of 10 Pa.s is considered as a process limitation for RTM injections [48]. Thus, the gel time estimation based on the cross-over point between the storage and loss modulus was not considered in the current investigation. More practical criteria were selected here such as the maximum peak of $\tan \delta$ (phase angle) or the “processing gel time” defined as the point at which the resin viscosity curve has a slope of 10% per minute [49].

Accordingly, the gel time for this resin formulation was around 55 ± 1 minutes. Besides, an ageing monitoring of the liquid polymer was carried out weekly during the current experimental study by keeping track of the vinyl ester resin viscosity. This quality control of the polymer viscosity allows changing the stored vinyl ester resin by a fresh one when the former resin showed a 10% increase in dynamic viscosity from its initial value.

Samples of cured vinyl ester resin at room temperature during 24 hours were analyzed with a *Q1000* Dynamic Scanning Calorimeter (DSC) from *TA Instruments* in modulated mode (MDSC) in order to evaluate their final glass transition temperature T_g . A first T_g was reached around 50°C and a second one at 110°C. The former T_g value is related to the crosslinked state of the resin after 24 hours of cure at room temperature, whereas the latter corresponds to the fully crosslinked state of the resin at the end of the test. The same characterization procedure was carried out on post-cured resin samples at 120°C for 3 hours. The T_g obtained was similar to the value at fully crosslinked state.

^a Gelation usually happens around a degree of cure of 5% and even lower for vinyl ester resins [46].

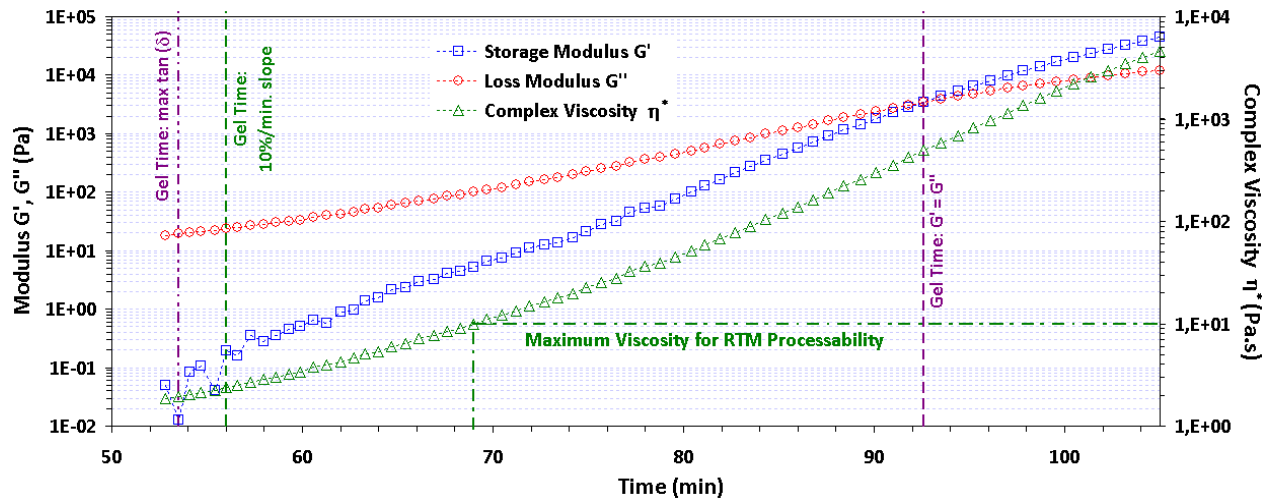


Figure 3-3 : Characterization of gel times of vinyl ester resin formulation at 25 °C.

Finally, the total volume shrinkage of the vinyl ester resin was evaluated by gravimetric measurements from solid resin sampling on each manufactured composite part and by pycnometry measurements on liquid resin (see Table 3-5). The density of the post-cured resin and the total volume shrinkage were estimated for each composite plate by measuring the mass of solid resin samples in the air and submerged in a totally wetting liquid of known density and low volatility such as pure hexadecane for example (*Sigma-Aldrich*® 99% pure hexadecane). This procedure was carried out on 42 solid resin samples, which gave a density of 1.1329 ± 0.0009 g/cm³. The total volume shrinkage of the resin was evaluated to be 7.73 ± 0.08 % from the density variations (see Table 3-5) using the following approximation:

$$\% \chi_{\text{resin}} = 1 - \frac{\rho_{\text{liquid}}}{\rho_{\text{post-cured}}} = 1 - \frac{1.0455}{1.1329} = 7.73\% \quad (3.12)$$

The density of the liquid and solid resin as well as its volume shrinkage are consistent with the manufacturer data, namely 1.046 g/cm³, 1.14 g/cm³ and 7.8% respectively.

3.6 Experimental setup

In this section, the mathematical developments and the optical setup required to perform dynamic saturation analyses during mold filling are introduced. The equipment used to control the RTM injections, the material and the mold preparation carried out before resin injection are also presented in addition with the characterization procedures of the void and fiber volume contents.

3.6.1 Saturation analysis setup based on 2D tomographic reconstruction

Principles of 2D tomographic reconstruction by visible light transmission

The analysis of dynamic saturation in fibrous reinforcement developed in this investigation is based on 2D tomographic reconstruction using Visible Light Transmission (VLT). This optical phenomenon is essentially modeled by the *Beer-Lambert* and *Fresnel* laws. The *Beer-Lambert's* law relates the absorption (or the transmission T) of light to the properties of the medium through which the light is travelling as follows:

$$T = \frac{I}{I_o} = e^{(-\rho \alpha(\lambda) x)} \quad (3.13)$$

where I , I_o , x , ρ and α and are respectively the transmitted light intensity, the incident light intensity, the medium thickness, the medium bulk density and the wavelength-dependent light absorption coefficient λ . This optical law states a logarithmic dependence between the light transmission T through a medium and the product of an absorption coefficient of the substance and the distance the light travels through the medium. On the other hand, the *Fresnel's* law gives the light transmission factor τ at a dioptr interface, assuming normal incidence, as follows:

$$\tau = \frac{4n}{(n+1)^2} \quad (3.14)$$

where n is the ratio of refractive indices of the two phases, i.e., $n_{glass}/n_{air} \approx 1.56$ (i.e., $\tau_{glass-air} \approx 95\%$) and $n_{resin}/n_{glass} \approx 1.0026$ (i.e., $\tau_{glass-air} \approx 100\%$).

Simplifying hypotheses and mathematical manipulations are required to derive from these two optical laws a convenient and physically significant mapping between the transmitted intensity of visible light and the local saturation level in a translucent porous medium. The required mathematical developments reported in **Appendix** follow a study on saturation in translucent single scale granular porous media [11-13]. The final expression of this optical mapping stands as follows:

$$S_r = \frac{\ln \left[\frac{I_{unsat} - \left(\frac{I_{unsat}^{ref}}{I_{dry}^{ref}} \right) \cdot I_{dry}}{I_{sat} - \left(\frac{I_{sat}^{ref}}{I_{dry}^{ref}} \right) \cdot I_{dry}} \right] \cdot \left[\left(\frac{I_{sat} - B}{I_{dry} - B} \right) - \left(\frac{I_{sat}^{ref}}{I_{dry}^{ref}} \right) \right] + \frac{I_{unsat}^{ref}}{I_{dry}^{ref}}}{\ln \left(\frac{I_{sat} - B}{I_{dry} - B} \right)} \quad (3.15)$$

where I_{dry} , I_{unsat} and I_{sat} are respectively the transmitted light intensities through the reinforcement for the completely dry state, the unsaturated states and the fully saturated state. On the other hand, I_{dry}^{ref} , I_{unsat}^{ref} and I_{sat}^{ref} denote respectively the light source intensity of the reference image in the completely dry state, in the unsaturated states and in the fully saturated state. Finally, B represents the background intensity (i.e. the intensity when no light is transmitted).

All the calculations of dynamic saturation were carried out on a REV based grid on the reinforcement because the concept of saturation in porous media is usually defined with respect to porosity. Thus, each picture frame of the fibrous reinforcement during mold filling (see Figure 3-4b) was converted from a Red-Green-Blue (RGB) representation to a Hue-Saturation-Intensity (HSI) representation. These pictures were then divided in square REV cells of 15 mm by 15 mm. Accordingly, the saturation field was meshed with 21 REV along the fabric length and 5 REV along the fabric width as shown in Figure 3-4c.

The evaluation of the average intensity of the light source I_{dry}^{ref} , I_{unsat}^{ref} and I_{sat}^{ref} was performed by direct visual access to the light source presented in Figure 3-4b. The evaluation of the average transmitted light intensities I_{dry} , I_{unsat} and I_{sat} through the fibrous reinforcement was

performed in each REV cell, using respectively the first picture frame of each injection (completely dry state), the current picture frame during the evolution (unsaturated states) and the final picture frame of a reference injection for which the void content was considered zero. The background intensity B was evaluated from the last picture frame acquired within the dark room with all light sources turned off. Note that all these average light intensities were computed from pixel light intensities as defined by the HSI representation. Thereafter, the dynamic saturation field was estimated at each time step by Eq. (3.15) from the average intensities of the light sources and of the light transmitted through the fibrous reinforcement.

Description of the optical setup and the *Hele-Shaw* cell

The optical setup presented in Figure 3-4a includes a digital camera with a wide-angle lens set under the RTM mold, a white light source set over the mold, a light diffuser and monochromatic filters inserted between the light source and the mold as well as a software for camera remote control. In this specific configuration, a transparent cavity frame gives direct visual access to the light source for the digital camera shown in Figure 3-4b. The digital camera selected was the *Nikon D80* with a 12-24 mm f/4G *Nikkor* lens. The compatible remote control software for this camera was the *NKRemote* from *Breeze Systems Ltd*. The light source was a white fluorescent tubular light with mercury vapour bulbs from *Philips NV* which generates a color temperature of 4100 K. The light diffusers used in the current setup were made from sand blasted glass plates 25.4 mm-thick.

The light filters used here were from *Rosco Laboratories*. According to *Beer-Lambert's* law introduced previously in Eq. (3.13), the light transmitted in the absorbing medium is a wavelength dependent phenomenon. Thus, two specific optical filters were selected in order to generate a kind of band pass filter with a transmission peak around 541 nm (green), in the visible light spectrum. This optical band pass filter results from the transmission spectrum superposition of the *Roscolux 86* and *122* filters. This transmission peak around 541 nm was really close to one of the strongest peaks of the emission line spectrum of the mercury vapour bulbs which is located around 546 nm. The charge-coupled device (CCD) of the *Nikon D80* camera was also more luminance sensitive to this wavelength as a result of the *Bayer* filter which possesses more green

photosensors than blue or red ones. Before every injection, the whole optical setup and the RTM injection head, which is presented in the next subsection, were installed in a dark room in order to exclude any parasitic light from other sources than the white fluorescent light. Note that all the optical equipment was fixed in order to ensure permanent distances between the light source and the mold as well as between the mold and the digital camera. The camera lens axis was set perpendicular to the mold surface.

All the camera parameters^a such as the aperture, focal length, shutter speed, ISO speed and white balance were identically set for the three series of experiments to avoid automatic compensation and thus allow direct comparisons between injections. Capture frames in RAW image format (.NEF) were acquired every ten seconds for dynamic monitoring of the fabric saturation. This image format directly generated by the CCD analog-to-digital converter was chosen because of its minimal image processing requirements. It allows minimizing the loss of information and digital artefacts that could be produced by compression algorithms such as JPEG conversion for example. Then, image post-treatment tools were used in order to evaluate the local saturation level of the reinforcement and the velocity of the flow front. First, raw format images were converted in TIFF ones by the *DxoOptics* 5.3.5 software from *Dxo Labs*®. This TIFF image format minimized the loss of information and allows further computations by *Matlab* functions. A second post-treatment step was carried out by *DxoOptics* 5.3.5 software to correct several optical aberrations, especially image distortions such as additive white Gaussian noise, barrel distortion (fish-eye), corner darkening and dust particles adhering to the CCD. Two *Matlab* functions were run on the post-processed images to analyze the saturation of the fabric and the progression of the flow front.

^a The camera parameters were set to an aperture of f/16, a focal length of 14 mm, an ISO speed of 400, a shutter speed of ¼ second (longer than refresh rate of fluorescent light bulbs) and a white balance of 4200K (around the color temperature of mercury vapour bulbs).

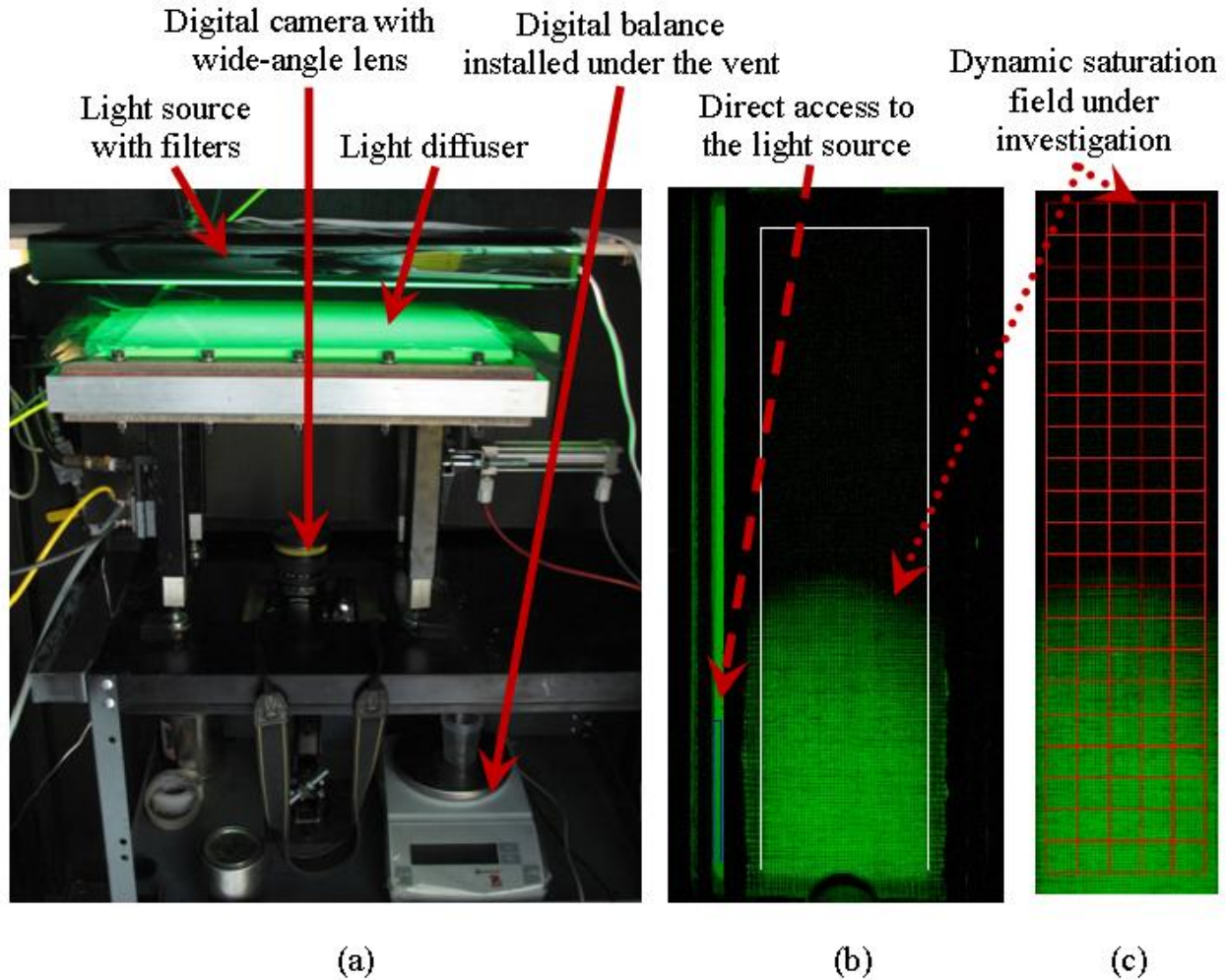


Figure 3-4 : The complete optical setup: (a) RTM mold with a digital camera and a filtered light source; (b) typical image acquisition of the dynamic saturation of the glass fibrous reinforcement; (c) calculations of dynamic saturation on a REV based grid (21 REV by 5 REV).

In order to perform simultaneously real RTM injections and analyze the dynamic saturation of the fibrous reinforcement, a RTM mold based on *Hele-Shaw* cell principle was designed as shown in Figure 3-5. The top and the bottom covers were 19.05 mm-thick plates in tempered glass with machined mold inlet and outlet. Both mold ports were equipped with aluminum inserts for automatic sprue and vent gripper. The nominal cavity thickness was 3.175 mm. According to thickness measurements carried out on 21 composite plates with a *Digimatic* caliper gage from *Mitutoyo*, the average cavity thickness was evaluated at 3.19 ± 0.02 mm. The variability of the cavity thickness to be below 0.05 mm (less than 1.6%) which is acceptable according to the literature [43].

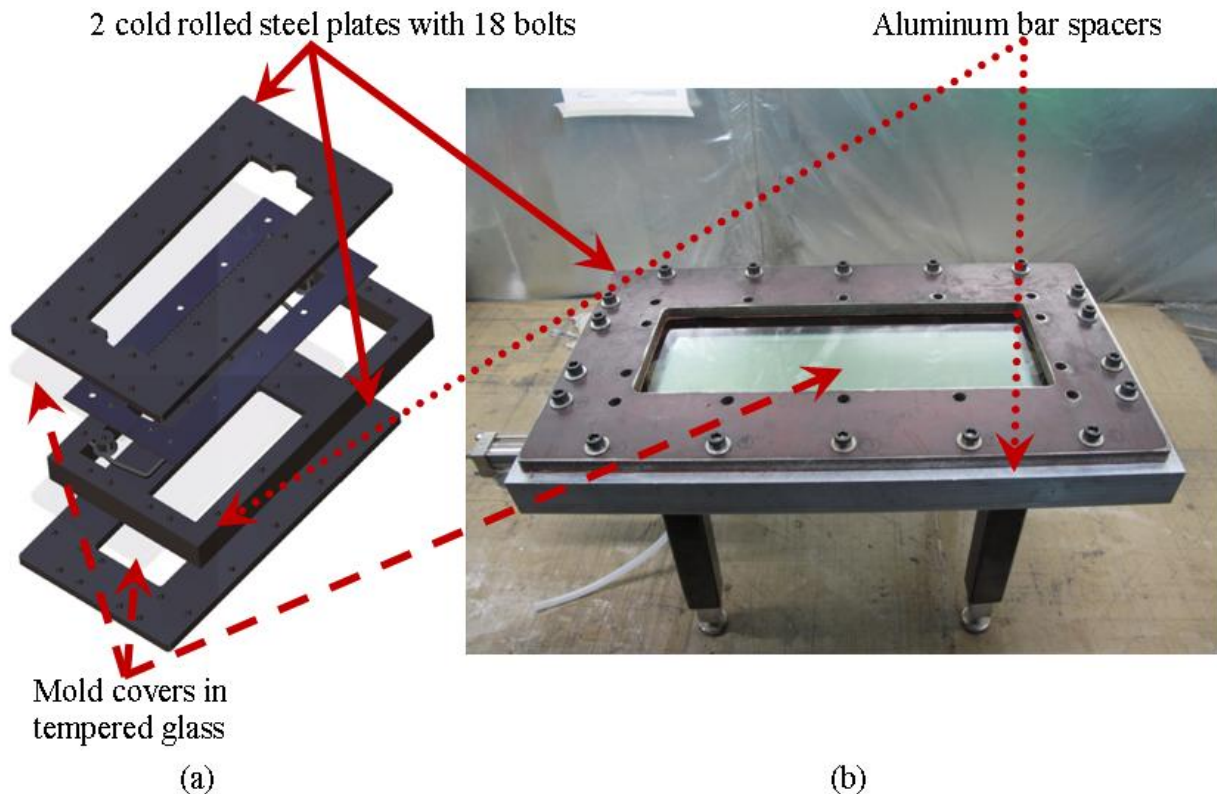


Figure 3-5 : The RTM mold design: (a) CAD view of the RTM mold; (b) picture of the RTM mold with tempered glass covers and aluminum spacers bolted and sandwiched between steel plates.

3.6.2 Description of the RTM injection system

The computer-assisted injection system developed to carry out this study is able to perform injections at constant injection pressure or constant flow rate at room temperature. This system is based on a workstation *Intel® Pentium 4 CPU 2.80 Ghz* equipped with a *National Instruments® (NI) PCI-6220* data acquisition card. This workstation is directly connected to two *DOLI®* external digital controllers (*EDC60*) which in turn control separately an electro-mechanical tensile testing machine from *Lab Integration* as shown in Figure 3-6. A first machine controls the resin supply (*LM60-50k*) in an industrial injection head whereas, the other controls the initiator supply (*LM60-30k*). The workstation is also connected to an *Ohaus® Adventurer ARC120* balance, which transmits data on the total fluid mass exiting the mold through the vent gate.

The *NI* data acquisition card was connected to a *Bürkert GmbH 8071* oval gear flowmeter installed on a resin supply line and to a high accuracy flush-mounted pressure transmitter from *Nöding GmbH (PTMFB/P20)* installed before the mold inlet. Two *Ashcroft K2* pressure sensors were mounted on the system to protect from overpressure as shown in Figure 3-6a. The *NI* card allows also controlling several solenoid valves which in turn pneumatically control the *CPC-1200-A* automatic injection gun as well as the *MAS-1000* mini automatic sprue from *Magnum Venus Plastech*, the solvent selection valve and the vent gripper. All these components allow automatically performing several maintenance actions on the injection system before part filling, such as air purging from the resin supply line and cleaning/flushing of reactive resin with acetone or air. Furthermore, these valves also allow opening/closing mold gates, resin inline mixing prior to injection into the mold and pressure consolidation after mold filling. The homogeneous mixing of resin with initiator is provided by *Statomix® MIX-1010* static mixers. Finally, a strainer with 100 μm pores is installed on the supply lines in order to intercept particles before the flowmeter and to filter the biggest air bubbles before the mold inlet [50]. The injection system error on the flow rate was experimentally estimated to remain below 1% for all the flow rate range investigated in this work.

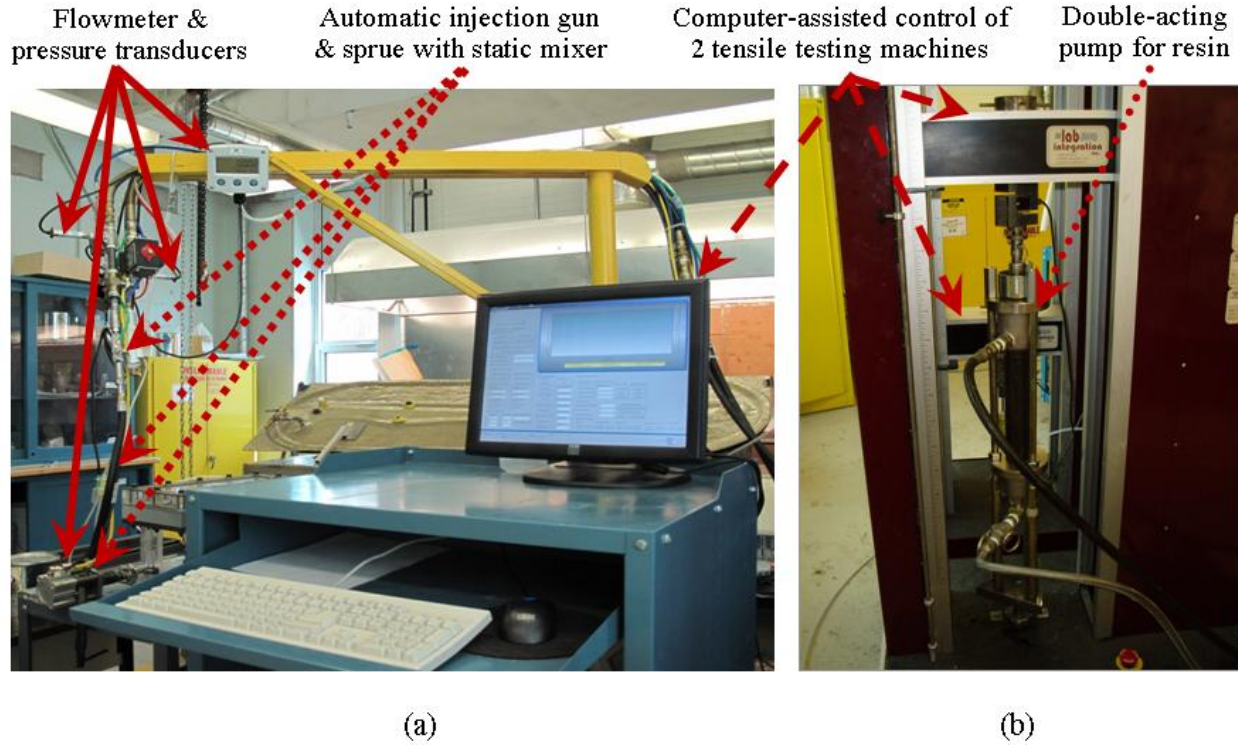


Figure 3-6 : Photographs of the computer-assisted injection system: (a) workstation that acquires data from sensors and controls the automatic injection head;
 (b) two double action pumps driven by two tensile testing machines in order to supply resin (in front) and initiator (behind) to the injection head.

3.6.3 Characterization of void content and fiber volume content

The saturation analysis of fibrous reinforcements proposed in this investigation was validated according to standard characterization procedures of void content in glass fiber reinforced plastic (GFRP) parts. The *ASTM D2734* standard for characterization of void content $\%v_i^{ASTM}$ and fiber volume content $V_{f,i}^{ASTM}$ in GFRP by carbonization was selected because these measurements can be carried out on composite samples of the REV size and can be compared to Visible Light Transmission (VLT) measurements for GFRP parts. Indeed, local saturation levels of fibrous reinforcements estimated by the VLT method can be further compared to local saturation levels S_i^{ASTM} evaluated using the *ASTM D2734* standard as follows:

$$S_i^{ASTM} = 1 - \frac{\%v_i^{ASTM}}{(1 - V_{f,i}^{ASTM})} \quad (3.16)$$

This procedure of void content determination is widely used in industry. However, this approach is work intensive. An accurate density characterization of the resin and fibers is required. A single measurement of void content by *ASTM D2734* is usually less accurate than the measurements carried out by other methods ($\pm 0.5\%$) and does not provide information on void distribution nor void morphology. After a 24-hours cure at room temperature, each plate was demolded and post-cured at 120°C for three hours. Their total mass was measured in order to estimate the amount of injected resin and thus deduce the total unsaturated volume in the part from a global volume balance. The balance between the volume of resin injected in the part and the theoretical pore volume in the fibrous preform allows estimating the total partially saturated volume in the composite. The part was cut into square samples of 25.4 mm by 25.4 mm and sample mass was measured in air and in 99% pure hexadecane following the *ASTM D2734* standard. Refer to Leclerc [3] for the detailed procedure.

3.7 Experimental Results

The RTM injections carried out in the three following series of experiments were performed at room temperature without vacuum assistance in order to study only the phenomena of void formation and transport. The liquid resin was briefly debulked at -60 kPa in its tank during 5 minutes prior to RTM injection. The three series of experiments aim to investigate the phenomena of void formation and transport during RTM injections carried out under the following conditions: (1) at constant pressure; (2) constant flow front velocity and (3) with post-filling strategies based on resin bleeding and mold packing (pressurization) during cure.

3.7.1 RTM injections at constant pressure

A first series of experiments was carried out for a stacking of 6 plies along the weft direction of the current fibrous preform. The goal was to estimate the maximum flow velocity that the reinforcement can withstand without fiber washout. Moreover, these experiments represent a first attempt to investigate the impact of the resin front velocity on void formation by air entrapment.

Five RTM injections without resin bleeding nor mold packing (pressurization) during cure were performed at four different constant pressures of 1, 2.4, 4.1 and 5.2 bars. Visual tracking of the front was carried out with capture frames acquired by the digital camera at constant time step.

After post-curing, plates were cut in square samples 25.4 mm x 25.4 mm and void content measured following the *ASTM D2734* standard. The sample pairs were extracted from both sides of the central longitudinal axis of the composite plates. The longitudinal positions of the selected sample pairs are reported in Table 3-6. The average front velocity associated with each sample position was estimated from the visual monitoring. Using *Eq. (3.2)* and the resin penetrativity reported in Table 3-5, the front velocity was converted to a dimensionless form expressed by the modified capillary number Ca_{ff}^* of the flow front. The results of void content are plotted in Figure 3-7 with respect to Ca_{ff}^* . Fiber washout was observed above a modified capillary number Ca_{ff}^* of 5.4×10^{-2} . The void content trend shows a clear deviation at $Ca_{ff}^* = 1.8 \times 10^{-2}$. This behavior is linked to the formation and transport of microscopic voids.

Table 3-6 : Longitudinal positions of samples used to carry out void content characterization

No.	Injection pressure (bar)	Five center positions of samples from injection gate (mm)				
1 & 2	1	62.5	112.5	162.5	212.5	262.5
3	2.4	30	92	156	220	284
4	4.1	62	126	190	254	318
5	5.2	62	126	190	254	318

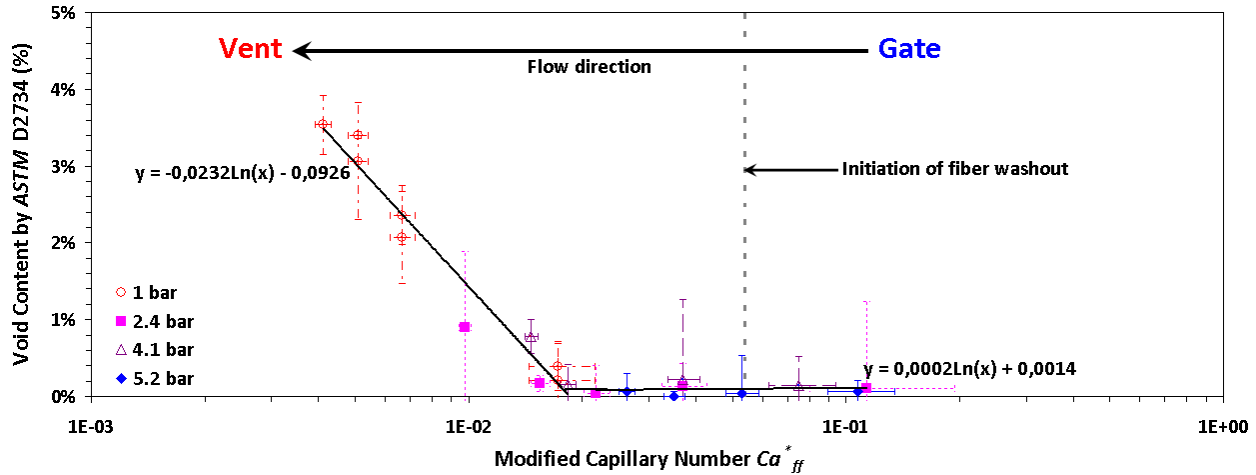


Figure 3-7 : Void content analysis by *ASTM D2734* standard
for 5 RTM injections at 4 different constant pressures.

During RTM injections at constant pressure, the flow front velocity varies along the length of the part. This induces a variation on the void content along the injection length as a result of air entrapment and bubble mobilization. However, local pressure also varies along the part due to *Darcy's* flow. The local pressure is known to affect the compression and the dissolution of entrapped voids in fibrous reinforcements [34]. The resulting void content is then a combination of the impregnation velocity and local pressure history. Therefore, trends in void content evolution only with respect to modified capillary number of the flow front are rather difficult to interpret in regard to phenomena of void formation and transport. Besides, the void content data in Figure 3-7 were showing significant variability because only two composite samples by longitudinal position were analyzed by *ASTM D2734* standard. In order to clarify these observations, a new series of experiments at constant flow rate will be carried out and the void content will be determined at specified positions with an additional sample, i.e., three samples rather than two.

Table 3-7 : Results from the second series of experiments
based on 21 injections at constant flow rate

No.	Flow rate Q (ml/s)	Modified capillary number Ca_{ff}^* (3.2)		Void content %v by ASTM D2734 (%)			Fiber volume content V_f by ASTM D2734 (%)		
		nominal	measured	gate	center	vent	gate	center	vent
1-3	0.025	2.3×10^{-3}	$(2.13 \pm 0.02) \times 10^{-3}$	0.1 ± 0.1	1.3 ± 0.2	1.8 ± 0.2	37 ± 1	36 ± 1	37 ± 1
4-6	0.05	4.5×10^{-3}	$(4.1 \pm 0.3) \times 10^{-3}$	0.4 ± 0.1	1.7 ± 0.1	2.1 ± 0.2	38.5 ± 0.6	38.1 ± 0.8	37.7 ± 0.7
7-9	0.10	9.0×10^{-3}	$(8.0 \pm 0.9) \times 10^{-3}$	0.5 ± 0.3	1.9 ± 0.2	2.6 ± 0.2	37.5 ± 0.7	36.9 ± 0.6	36.9 ± 0.6
10-12	0.20	1.8×10^{-2}	$(1.6 \pm 0.1) \times 10^{-2}$	1.1 ± 0.2	2.3 ± 0.2	2.7 ± 0.1	37.1 ± 0.4	36.6 ± 0.5	36.9 ± 0.7
13-15	0.30	2.7×10^{-2}	$(2.64 \pm 0.07) \times 10^{-2}$	0.7 ± 0.1	1.6 ± 0.2	2.5 ± 0.3	39.2 ± 0.7	38.5 ± 0.5	38.6 ± 0.5
16-18	0.40	3.6×10^{-2}	$(3.6 \pm 0.2) \times 10^{-2}$	0.22 ± 0.07	1.2 ± 0.1	2.1 ± 0.3	39.2 ± 0.4	38.8 ± 0.4	38.9 ± 0.4
19-21	0.50	4.5×10^{-2}	$(4.5 \pm 0.2) \times 10^{-2}$	0.13 ± 0.04	0.5 ± 0.3	1.1 ± 0.4	39.4 ± 0.5	38.7 ± 0.5	39.1 ± 0.6

Analysis of void content with respect to modified capillary

As shown in Figure 3-9, there is an increase in void content from the Ca_{ff}^* considered within the “optimal impregnation window”, i.e., $(2.13 \pm 0.02) \times 10^{-3}$, to a critical Ca_{ff}^* around $(1.6 \pm 0.1) \times 10^{-2}$. For higher Ca_{ff}^* , the void content decreases describing a bell-like behavior. Similar results were observed by other authors [10, 26, 51]. The regression slopes were not different, namely all around 5×10^{-3} . Besides, the spatial distributions of void content along the fibrous reinforcement show similar trends for the lowest four flow rates, i.e., most of the residual microscopic voids were entrapped by capillary forces in the fiber tows of the central zone and around the mold vent. This observation is highlighted in Figure 3-10 where the unit scaled values of void content at the part center $\overline{\%v_{center}}$ was almost constant below the critical Ca_{ff}^* around $(1.6 \pm 0.1) \times 10^{-2}$. Note that the void contents determined in the part center ($\%v_{center}$) for a given

flow rate was scaled according to values of void content obtained around the gate ($\%v_{gate}$) and the vent ($\%v_{vent}$) as follows:

$$\overline{\%v}_{center} = \frac{\%v_{center} - \%v_{gate}}{\%v_{vent} - \%v_{gate}} \quad (3.17)$$

It seems that the formation of stable microscopic voids in fiber tows with respect to the main flow direction was the predominant phenomenon below the critical Ca_{ff}^* of $(1.6 \pm 0.1) \times 10^{-2}$. The modified capillary number that minimizes void formation was found to be around $(2.13 \pm 0.02) \times 10^{-3}$ as previously determined by capillary rise experiments. This optimal Ca_{ff}^* value is also consistent with values already published [10, 25, 26, 30]. However, another gradual and slow transport phenomenon mainly driven by local pressure was responsible for void content variations along the part. The most plausible transport phenomenon for these voids trapped inside perpendicular fiber tows with respect to the main flow direction is the gas compression, dissolution and diffusion into the surrounding liquid polymer [33, 34]. Note that a more conservative assumption based on the ideal gas law was also considered by Lundström [18] to model the evolution of void size.

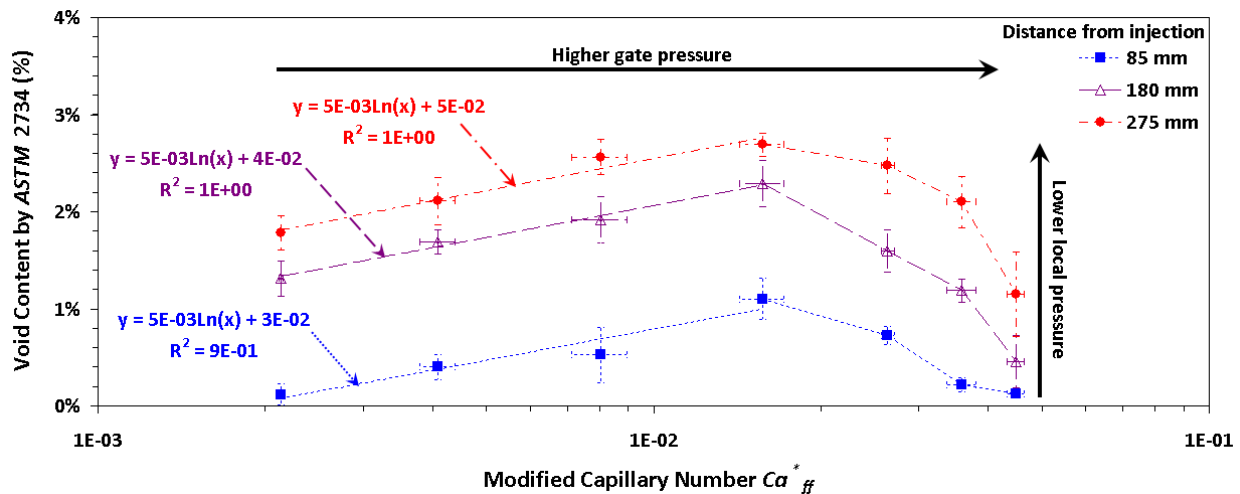


Figure 3-9 : Void content analysis by ASTM D2734 for 21 RTM injections at 7 flow rates (0.025, 0.05, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4 and 0.5 ml/s).

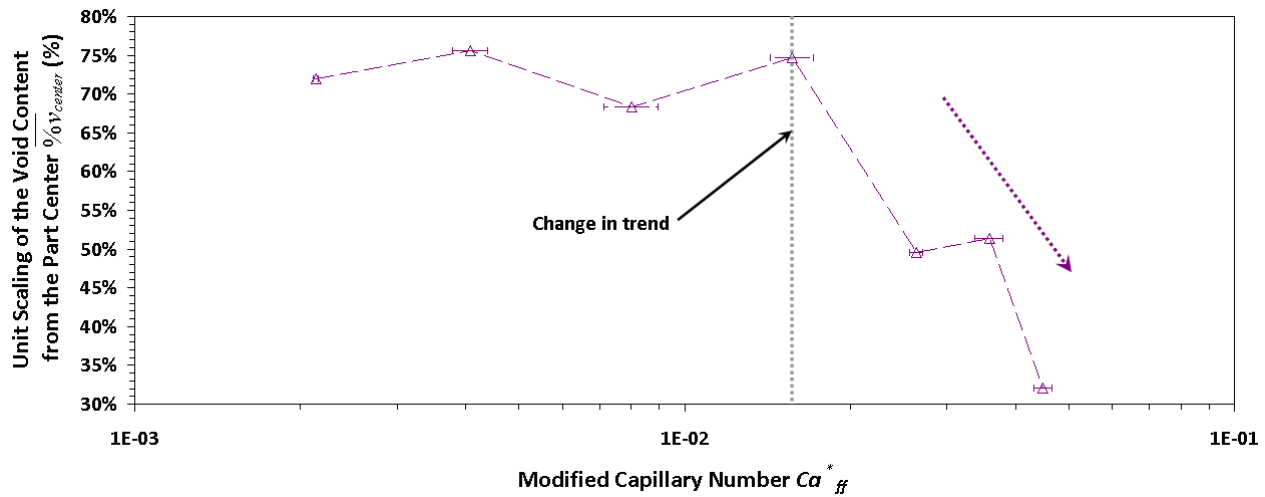


Figure 3-10 : Unit scaling of the void content determined in the part center with respect to the values in the gate and vent zones.

It was also observed a change in trend above the critical Ca_{ff}^* of $(1.6 \pm 0.1) \times 10^{-2}$ according to Figure 3-9 and Figure 3-10. This is consistent with the Ca_{ff}^* of 1.8×10^{-2} presented in Figure 3-7. This phenomenon of void transport was driven by the flow front velocity, thus by viscous shear forces, no matter if the voids were trapped near the gate, the vent or in the center of the part. From visual observations of the vent zone, this change in trend of void content is assumed to be related to mobilization of microscopic voids as well as the advection of coagulated and compressed mesoscopic voids towards the mold outlet. Indeed, many tiny voids transported by the resin flow were leaving the fibrous reinforcement for Ca_{ff}^* values above $(1.6 \pm 0.1) \times 10^{-2}$. According to Eqs. (3.8) and (3.9), the different conditions of void mobilization Ca_{mob}^* can be roughly estimated *a priori* by considering the relative permeability of the resin phase $k_{r,w}$, with $\cos \beta$ equal to unity in a first approximation. The Ca_{mob}^* value for the microscopic voids entrapped in the fiber tows along the flow direction (which have an estimated length between 10 and 100 μm) was evaluated to lie between 4.6×10^{-3} and 4.6×10^{-2} . This range of modified capillary numbers was estimated as follows:

$$Ca_{mob}^*|_{axial\ tow} = \frac{4 \cdot K_{axial}^{tow} \cdot k_{r,w}}{l_{void} \cos \beta} \left(\frac{\cos \theta_r}{d_h^m|_{smaller}} - \frac{\cos \theta_a}{d_h^m|_{larger}} \right) \cdot \frac{1}{\cos \theta} \quad (3.18)$$

As reported by Patel and Lee [30], it has been observed that that during mold filling at high flow rates, several microscopic voids were coagulating, coming out of the fiber tows and forming relatively larger mesoscopic voids which are then subsequently removed by rejoining the flow front. The Ca_{mob}^* for these latter mesoscopic voids entrapped between fiber tows was evaluated to be around 1.5×10^{-2} from the following equation:

:

$$Ca_{mob}^*|_{mesovoids} = \frac{4 \cdot K_{exp}^{fabric} \cdot k_{r,w}}{d_h^M|_{warp} \cdot \cos \beta} \cdot \left(\frac{\cos \theta_r}{d_h^M|_{weft}} - \frac{\cos \theta_a}{d_h^M|_{warp}} \right) \cdot \frac{1}{\cos \theta} \quad (3.19)$$

This theoretical Ca_{mob}^* is consistent with the experimental data of Figure 3-9. Finally, the Ca_{mob}^* value for the microscopic voids entrapped in transverse fiber tows with respect to the main flow direction was estimated considering the typical throat size d_{throat} below $1\ \mu m$ using pictures of the fiber tows acquired with a Scanning Electron Microscope (SEM) [27]. The transverse permeability of the fiber tows was also required to evaluate this value of Ca_{mob}^* . This transverse permeability value K_{trans}^{tow} was estimated from the model of Gebart [52] as follows:

$$K_{trans}^{tow}|_{Gebart} = \frac{4}{9\pi\sqrt{2}} \left(\sqrt{\frac{\pi/4}{(1-\phi_{tow})}} - 1 \right)^{5/2} d_f^2 \quad (3.20)$$

Thus, the following transverse permeability values were obtained in the fiber tows:

$$\begin{aligned}
K_{trans}^{warp\ tow}|_{Gebart} &= \frac{4}{9\pi\sqrt{2}} \left(\sqrt{\frac{\pi/4}{(1-0.45)}} - 1 \right)^{5/2} (14.9\ \mu\text{m})^2 = 0.37 \pm 0.04 (\mu\text{m})^2 \\
K_{trans}^{weft\ tow}|_{Gebart} &= \frac{4}{9\pi\sqrt{2}} \left(\sqrt{\frac{\pi/4}{(1-0.44)}} - 1 \right)^{5/2} (13.1\ \mu\text{m})^2 \approx 0.25 \pm 0.06 (\mu\text{m})^2
\end{aligned} \tag{3.21}$$

From Eq. (3.8), the Ca_{mob}^* value for the voids entrapped in transverse fiber tows was calculated as shown in the following Eq. (3.22) and resulted in values of 1.5×10^{-1} and 1.0×10^{-1} for flow along the warp and weft direction respectively.

$$Ca_{mob}^*|_{trans\ tow} = \frac{4 \cdot K_{trans}^{tow}|_{Gebart} \cdot k_{r,w}}{d_h^m|_{average} \cos \beta} \left(\frac{\cos \theta_r}{d_{throat}} - \frac{\cos \theta_a}{d_h^m|_{larger}} \right) \cdot \frac{1}{\cos \theta} \tag{3.22}$$

Note that these values of Ca_{mob}^* are significantly above the upper limit of Ca_{ff}^* for which fiber washout is initiated, i.e., above 5.4×10^{-2} . Therefore an efficient mobilization of voids trapped in transverse fiber tows is rather difficult to initiate only by increasing the flow rate or by decreasing the surface tension of the resin. Other void transport mechanisms based on high local pressures such as gas compression, dissolution and diffusion into *a priori* degassed resin should rather be preferred [29, 34]. These observations on void content with respect to the injection conditions highlight the positive contribution of an efficient post-filling strategy. The next section will address the main industrial strategies of void minimization in LCM processes based on resin bleeding and mold packing during cure.

3.7.3 RTM post-filling strategies

RTM injections at constant flow rate with specific post-filling strategies were carried out at three flow rates of 0.05, 0.25 and 0.50 ml/s. The goal of this study was to investigate industrial post-filling strategies used to minimize the final void content in composite parts manufactured by LCM. Resins bleeding with or without mold pressure relief prior to cure and mold pressure packing during cure were investigated. As presented in Table 3-8, this set of experiments includes 21 RTM injections with 3 different post-filling strategies. The resin bleeding strategy

was carried out by allowing 74 ml of resin to flow out of the mold through the vent. This volume corresponded to the total estimated pore volume inside the fibrous preform for a sample length of 36 cm, a width of 10.5 cm, a cavity thickness of 3.175 mm and a nominal fiber volume content of 38.5%.

In order to investigate the impact of resin bleeding without mold pressure relief, the mold outlet and inlet were chronologically closed after the 77 g resin flow through the mold vent and the RTM injection system was stopped. This allows keeping a certain level of residual pressure inside the mold cavity. However, the evolution of this pressure could not be monitored in the absence of pressure transducers in direct contact with the reactive polymer in the mold cavity. On the other hand, the resin bleeding strategy with mold pressure relief was performed by first stopping the RTM injection system and then by chronologically closing the mold inlet and outlet after the resin flow of 77 g through the mold vent. This allows the pressure distribution developed inside the mold cavity reaching an equilibrium state around the atmospheric pressure. The mold packing procedure was carried out by first closing the mold outlet and by applying a constant inlet pressure on the reactive resin with unreactive polymers throughout the part curing process at room temperature. This latter packing pressure was actually the inlet pressure at the end of the injection when the resin reached the mold vent, namely 1, 3 and 4.8 bars for injections at 0.05, 0.25 and 0.50 ml/s respectively. Finally, after the post-curing, the characterization of void and fiber volume contents was carried out by *ASTM D2734* standard as shown in Figure 3-8 (see Table 3-8). The average void contents determined by *ASTM D2734* standard with respect to modified capillary number for the different post-filling strategies are presented in Figure 3-11. Note that the average value of fiber volume content V_f obtained for all the 21 plates fabricated was 38.4 ± 0.5 %. This value was consistent with the nominal fiber volume content calculated from the cavity thickness and the properties of the fibrous reinforcement.

Void content analysis with respect to post-filling strategies

First, it is worth noting from Table 3-8 that regardless the packing pressure applied or the injection flow rate used, no gradients of void content have developed in the composite parts along the main flow direction. Moreover, there were no significant differences in void content between

the three RTM injections performed with mold packing pressure during part cure. In almost all cases, the average void contents overlapped the null void content. For all these injections, it seems that the mold packing strategy cleared the residual voids as a result of wicking action inward fiber tows as well as gas compression, dissolution and diffusion into the surrounding resin. The dissolution of air entrapments caused by mold packing during cure was previously noticed [19]. In addition, this strategy seems to compensate for the resin volume shrinkage and the potential void generation during cure. Therefore, these observations qualitatively confirm the efficiency of the mold packing procedure to get rid of the microscopic voids entrapped inside the fiber tows. Note that the RTM injection at 0.50 ml/s with a packing pressure of 4.8 bars is considered as the reference injection for comparison purpose. Furthermore, the last capture frame of this reference injection is identified to the completely saturated state of the current fibrous preform in order to evaluate its dynamic saturation distribution by Visible Light Transmission in the next subsection.

The previous observations on the mold packing performance also hold for the nine RTM injections performed with resin bleeding without mold pressure relief. Indeed, no variations in void content appear between and within the composite parts for the injections performed at three different flow rates. Furthermore, these void content results were not different from the previous results obtained with injections followed by mold packing as shown in Figure 3-11. Thus, from a void content point of view, the bleeding strategy of an extra resin volume followed by mold clamping did not seem to offer a significant advantage over the mold packing strategy during cure in the case of the RTM process and for the fabric-resin pair under investigation. However, in terms of minimization of the total void content in composites, there is a benefit to perform injections with post-filling strategies in comparison to standard ones, namely injections without post-filling procedures. Indeed, the strategies of mold packing and resin bleeding through the mold vent have produced composite parts with significantly lower average void contents compared to standard injections as shown in Figure 3-11. Stable voids generated in the fiber tows at the flow front during filling were compressed, dissolved into the resin and advected by the flow or rather mobilized, pushed toward the vent and flushed out of the mold. These latter phenomena of void transport could contribute to the decrease of the total void content in composite parts manufactured by LCM processes.

Table 3-8 : Results of the third series of experiments
based on 21 injections with three post-filling strategies

	No.	Flow rate Q (ml/s)	Packing pressure P_{cons} (bar)	Void content %v by ASTM D2734 (%)			Fiber volume content V_f by ASTM D2734 (%)		
		measured Ca_{ff}^*		gate	center	vent	gate	center	vent
Mold packing (pressurization)	22	$\frac{0.05}{(4.4 \pm 0.4) \times 10^{-3}}$	1.0	0.1 ± 0.1	0.06 ± 0.03	0.10 ± 0.05	38.5 ± 0.3	37.8 ± 0.7	38.1 ± 0.9
	23	$\frac{0.25}{(2.2 \pm 0.2) \times 10^{-2}}$	3.0	0.09 ± 0.03	0.09 ± 0.01	0.1 ± 0.1	37.4 ± 0.5	37 ± 1	37.6 ± 0.9
	24	$\frac{0.50}{(4.4 \pm 0.4) \times 10^{-2}}$	4.8	0.07 ± 0.05	0.07 ± 0.05	0.05 ± 0.07	36.3 ± 0.2	35.5 ± 0.2	37 ± 1
Bleeding without pressure relief	25-27	$\frac{0.05}{(4.4 \pm 0.4) \times 10^{-3}}$	—	0.10 ± 0.04	0.04 ± 0.04	0.2 ± 0.1	39.1 ± 0.2	38.3 ± 0.2	38.3 ± 0.3
	28-30	$\frac{0.25}{(2.2 \pm 0.2) \times 10^{-2}}$	—	0.11 ± 0.02	0.08 ± 0.02	0.04 ± 0.01	37.6 ± 0.7	37 ± 1	37.7 ± 0.9
	31-33	$\frac{0.50}{(4.4 \pm 0.4) \times 10^{-2}}$	—	0.1 ± 0.1	0.09 ± 0.02	0.06 ± 0.07	39.0 ± 0.7	38.2 ± 0.6	38.5 ± 0.8
Bleeding with pressure relief	34-36	$\frac{0.05}{(4.4 \pm 0.4) \times 10^{-3}}$	—	0.11 ± 0.03	0.07 ± 0.04	0.2 ± 0.4	40.1 ± 0.3	39.7 ± 0.1	39.7 ± 0.5
	37-39	$\frac{0.25}{(2.2 \pm 0.2) \times 10^{-2}}$	—	0.14 ± 0.06	0.2 ± 0.1	1 ± 0.3	40.0 ± 0.5	39.6 ± 0.6	39.7 ± 0.2
	40-42	$\frac{0.50}{(4.4 \pm 0.4) \times 10^{-2}}$	—	0.11 ± 0.04	0.2 ± 0.1	1.1 ± 0.3	39.8 ± 0.4	39.6 ± 0.4	39.7 ± 0.5

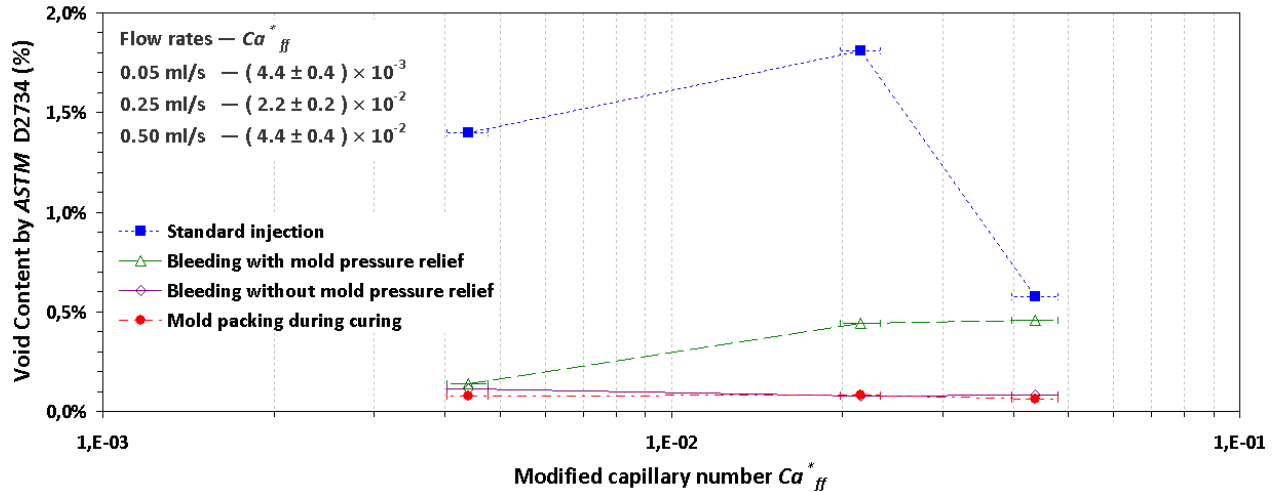


Figure 3-11 : Void content determined by ASTM D2734 standard with respect to the modified capillary number for the different post-filling strategies.

It is interesting to point out that the efficiency of the resin bleeding strategy followed by mold pressure relief seems to vary with the modified capillary number as highlighted in Figure 3-12. RTM injections at 0.05 ml/s followed by this latter post-filling strategy have produced spatial distributions of void content that were similar to the ones generated with the RTM injections at 0.25 ml/s and 0.50 ml/s followed by any kind of mold pressurization. Furthermore, the RTM injections at 0.05 ml/s, 0.25 ml/s and 0.50 ml/s followed by resin bleeding and mold pressure relief have produced similar void contents around the mold inlet (85 mm) and the center part (180 mm) as shown in Figure 3-12. However, in the low pressure zones around the mold outlet (275 mm), there was a significant variation of void content with respect to flow rate (see Table 3-8 and Figure 3-12), even if the bleeding volume of resin was the same for the nine injections performed, i.e., 74 ml. The RTM injections at 0.05 ml/s followed by resin bleeding have resulted in minimum formation of voids. This phenomenon appears because the Ca^*_{ff} is closer to the optimal value. The injections at higher flow rate did not result in minimum void contents even after bleeding. This clearly indicates that using an optimal injection flow rate followed by resin bleeding results in better part quality. This observation could be also related to the longer bleeding times, thus allowing diffusion of a larger amount of gas into the flowing resin. Moreover, the concentration gradient of dissolved gas in the resin from the inlet to the outlet gates could also play a role in the slow dissolution rate of microscopic voids entrapped

around the mold vent. Indeed, the resin is rich in dissolved gas coming from the voids entrapped near the mold inlet. These voids are gradually pushed toward the mold vent region. Then, this latter dissolved gas could in turn limit the dissolution/diffusion process of the microscopic voids stuck in this low pressure zone.

According to the previous series of experiments carried out at constant flow rate, a faster mold filling should generate a larger amount of air entrapment in fiber tows and a higher probability of void mobilization and dissolution. Consequently, the fastest RTM injections should produce the resin with the higher concentration of dissolved gas around the mold outlet. This hypothesis is in agreement with the void content results presented in Figure 3-12. However, further investigations should be carried out by microscopic analysis to count the voids entrapped in fiber tows. Special equipment for in-line measurement of gas solubility in polymers should also help to better understand these complex transport phenomena [53].

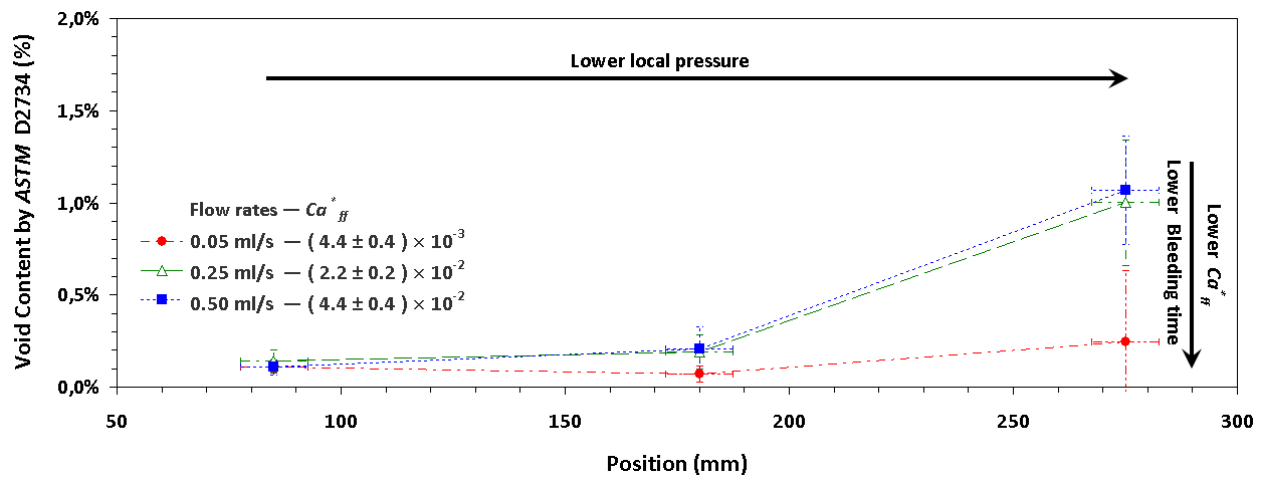


Figure 3-12 : Spatial distributions of void content determined by ASTM D2734 standard with respect to the modified capillary number for RTM injections followed by resin bleeding through the vent and mold pressure relief.

3.7.4 Analysis of saturation using Visible Light Transmission method

The RTM setup shown in Figure 3-4 was used to monitor the dynamic saturation using the Visible Light Transmission (VLT) technique. As mentioned previously, this 2D tomographic reconstruction method is based on two fundamentals of optics which allow investigating the evolution of unsaturated zone in fibrous reinforcements, thus the phenomena of void formation and transport with respect to injection conditions. A first qualitative validation carried out with this optical setup is presented in Figure 3-13. This validation is based on a RTM injection at constant flow rate of 0.10 ml/s, which was sequentially stopped four times and continued afterwards. Each time that the injection system was stopped, the flow front was spontaneously progressing by capillarity in the fiber tows. After the injection was restarted, areas of high saturation appeared and remained where the assisted progression of resin front was stopped. These contrasted areas result from the better dynamic wetting of fiber tows by the resin front at slow impregnation velocity. This visual contrast of localized zones shown in Figure 3-13 emphasizes the role of the impregnation velocity as a key parameter governing air entrapment at the flow front. Note that similar observations were also reported by Hayward and Harris [54] when vacuum is applied at the flow front. These authors were switching on and off the vacuum assistance during RTM injections, which generated zones of either negligible or significant air entrapment. Finally, Figure 3-13 shows a gradual increase in light transmission from the mold inlet to the outlet similar to the spatial distribution of void content. As proposed previously in the analysis of the second series of experiments, this phenomenon can be related to wicking action inward fiber tows as well as the compression and the dissolution of voids into the flowing resin. Therefore, this observation highlights the need to also consider also the pressure distribution as a key parameter in void transport phenomena.

Partial validations of this analysis tool based on Visible Light Transmission (VLT) were also performed as shown in Figure 3-14. The unsaturated volumes v_{unsat}^{VLT} derived from the VLT analysis were compared with the unsaturated volumes obtained v_{unsat}^{mass} by weighting measurements on the 21 plates previously manufactured in the second series of experiments. Firstly, the values

of v_{unsat}^{VLT} were estimated from the last capture frame of every injections by summing all the local void contents $\%v_i^{VLT}$ in the 105 REV cells (see Figure 3-4c) contained in these frames as follows:

$$v_{unsat}^{VLT} = v_{REV}^o \cdot \sum_{i=1}^{105} \%v_i^{VLT} \quad (3.23)$$

where

$$\%v_i^{VLT} = (1 - V_f^o) \cdot (1 - S_i^{VLT}) \quad (3.24)$$

and where S_i^{VLT} , V_f^o and v_{REV}^o are respectively the final saturation level of each REV cell, the nominal fiber volume content of the fibrous preform, i.e., 38.5%, and the reference volume of each REV cell, i.e., 714.375 mm³.

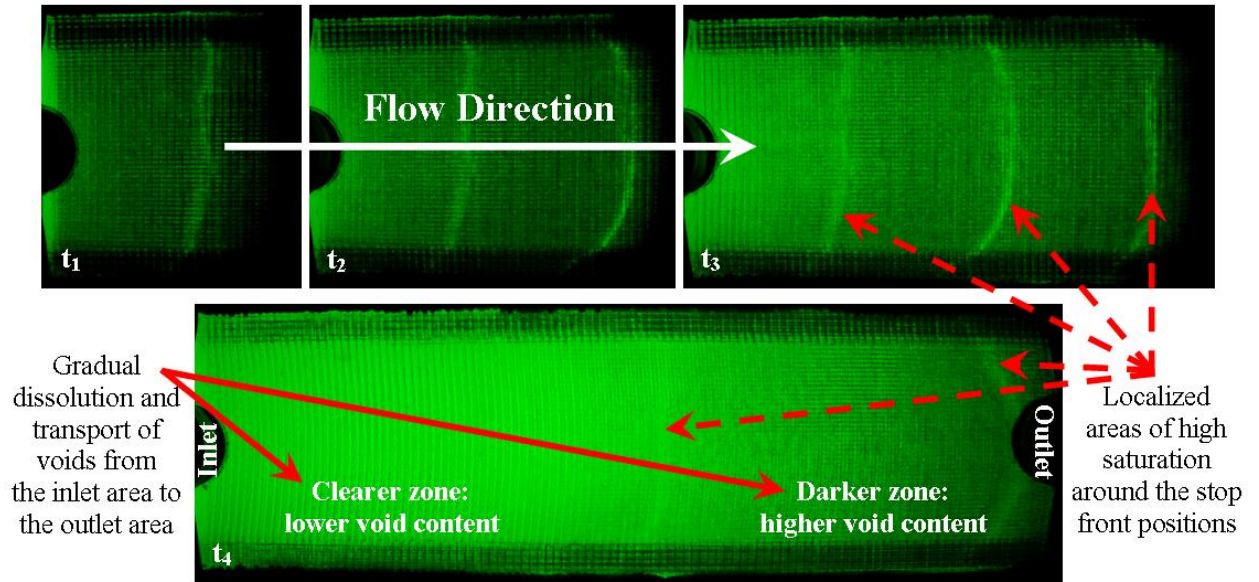


Figure 3-13 : Captured frames of a sequential RTM injection in which the flow front progression was stopped four times, leaving behind four areas of high saturation.

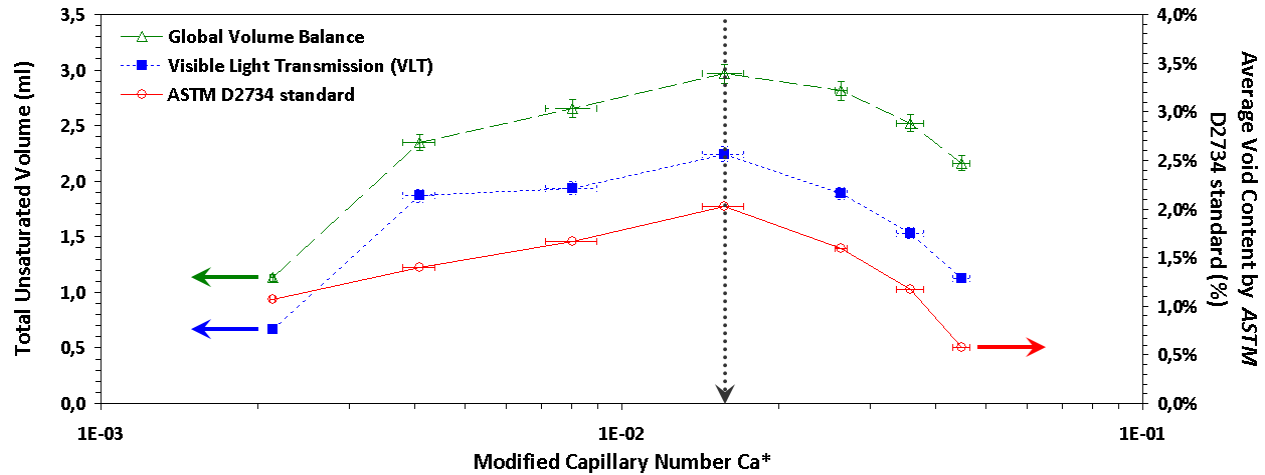


Figure 3-14 : Comparison of the VLT method with respect to void content determination by ASTM D2734 standard and to volume balance.

On the other hand, the total unsaturated volume in the plates was estimated from the difference between the total pore volume in the fibrous preforms and the real volume of resin injected in the parts. Note that the total pore volume of the preform is given by the average fiber volume content obtained by ASTM D2734 standard and the measurement of the plate dimensions. On the other hand, volume of resin injected was derived from the final resin mass in the part and the density of the cured resin. Besides, the unsaturated volumes derived from VLT analysis were also compared with the average void contents already determined by ASTM D2734 standard in the second series of experiments. It is worth noting that these three methods gave consistent qualitative trends as reported in Figure 3-14. Indeed, the VLT method was able to capture the injection conditions that minimize void formation, i.e., a Ca_{ff}^* value of $(2.13 \pm 0.02) \times 10^{-3}$ was identified. Furthermore, it was possible to evaluate the critical Ca_{ff}^* at the onset of void motion, i.e., $(1.6 \pm 0.1) \times 10^{-2}$.

Finally, the final saturation levels S_i^{VLT} of six RTM injections estimated by VLT were compared with the local saturation levels S_i^{ASTM} derived from the void content measurements by

ASTM D2734 standard ^a based on the *Eq. (3.16)*. As reported in Figure 3-15, there was a linear correlation between the local saturation levels obtained by both methods as evidenced by a R^2 correlation coefficient of 0.98. However, most of the 54 values were grouped in the same graph zone. Moreover, there was a deviation from the expected perfect match between both methods. Accordingly, it can be inferred that this latter deviation results from the simplifying assumptions used to obtain the mapping between the attenuation of visible light intensity through the fibrous preform and its saturation level. Among them, the linear relationship between the number of saturated pores in a REV of a dual scale fibrous preform and its saturation level as well as the idealised behavior of light beam in porous media without any optical diffraction could be reconsidered in future investigations [55]. Besides, the use of color intensity rather than its hue or saturation could be questioned [56]. Sources of experimental variability such as variations in fiber volume content or in cavity thickness could also result in scattering of the saturation levels obtained by VLT. Nevertheless, the one-to-one relationship already obtained is sufficient for the current study.

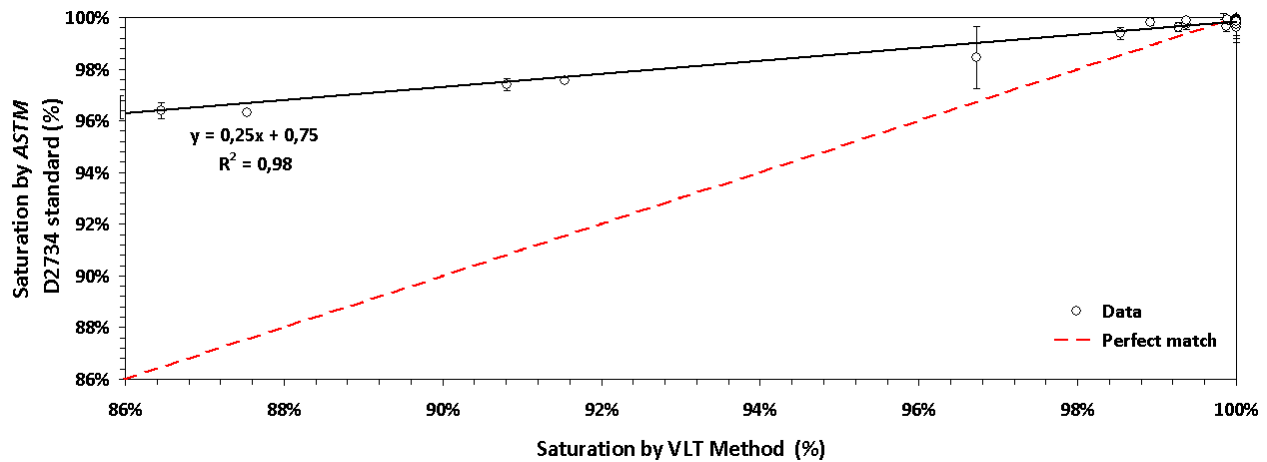


Figure 3-15 : Comparison of 54 estimations of saturation levels determined by VLT method with respect to local saturation levels measured with *ASTM D2734* standard.

^a The variations of void content as a result of resin shrinkage was lower than their respective experimental errors. Thus, the impact of this factor was not taken into account in the comparison with the LVT method.

Since the VLT method was validated, it was then used to track the evolution of the saturation front profile in time with respect to manufacturing conditions, using the inflection point of the saturation profile curve. These manufacturing conditions were investigated with respect to the key parameters of mold filling, namely the modified capillary number Ca_{ff}^* and the pressure distribution inside the mold. Firstly, it can be observed in Figure 3-16 that the saturation front profiles change in shape with respect to Ca_{ff}^* . Indeed, these saturation fronts showed step-like profiles that were more or less diffuse according to Ca_{ff}^* . These saturation front profiles were qualitatively similar to the ones obtained by other monitoring methods such as electrical conductivity for example [57]. Note also that this sigmoid-shaped profile of saturation in porous media was numerically modeled using a *Buckley–Leverett* type formulation with a diffusive term, thus a non-linear advection–dispersion equation (ADE), as reported by Pillai and Advani [58], Bréard et al. [59], García et al. [60] and Hussain et al. [61]. However, none of them explicitly modeled the compression and dissolution of the non-wetting phase, i.e., the gas here, into the wetting phase, which is the liquid resin. This phenomenon should be taken into account in further numerical models of dynamic saturation in dual scale porous media.

For the injections carried out in this work with the optimal impregnation conditions that minimize void formation, i.e., for a Ca_{ff}^* value of $(2.13 \pm 0.02) \times 10^{-3}$, the saturation profiles were more steep with respect to injection profiles at higher flow rates as highlighted in Figure 3-16. Furthermore, the levels of “breakthrough saturation” for optimal impregnation were higher than the “breakthrough saturation” levels for injections at higher flow rates, regardless of the front progression in the mold. Note that the “breakthrough saturation” level is the point where a change in trend of the saturation front profile occurs. Therefore, it could be related to residual air entrapment in fiber tows as a result of dual scale fingering phenomenon at flow front velocities higher than the optimal impregnation velocity. At the macroscopic scale, this dual scale fingering phenomenon of liquid resin within or between fiber tows was modeled as a hydrodynamic dispersion term in the ADE of saturation in porous media by Bréard et al. [59].

It is worth noting that the impact of local pressure on dynamic saturation could also be observed in Figure 3-16 which tracks saturation profiles in time. After the “breakthrough saturation” point, a shift occurs in the evolution of saturation. Indeed, the saturation profiles slowly evolve towards higher saturation levels as a result of pressure increase. This latter slow evolution can be related to wicking action inward fiber tows as well as void compression and gas dissolution into the flowing resin. Note that the gas transported by dissolution and diffusion is a transient phenomenon which is also influenced by several parameters, namely the initial size of voids, the initial gas pressure in voids, the conditions of resin flow, the initial concentration of dissolved gas in resin and the fluid temperature through the gas solubility coefficient and gas diffusion coefficients in liquid polymer. Therefore, all these parameters should be characterized in order to carry out further quantitative studies on this relatively complex topic.

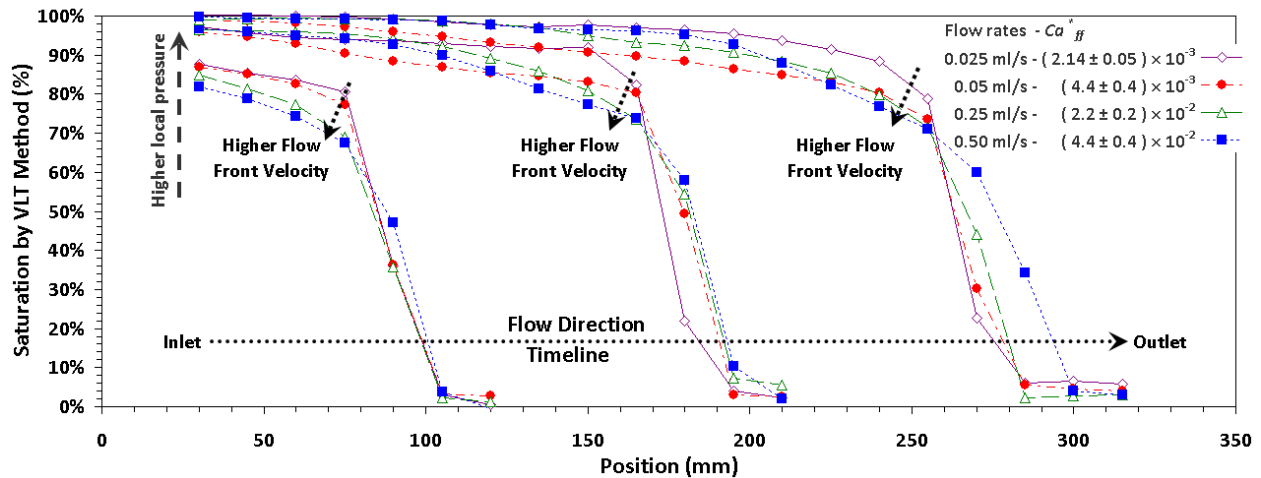


Figure 3-16 : Tracking of saturation front profiles by VLT method during mold filling progression from inlet zone (85 mm) to outlet zone (275 mm).

In this qualitative study on the impact of the packing pressure on dynamic saturation, the evolution of compressed voids was assumed stationary in first approximation. After a standard RTM injection carried out at a constant flow rate of 0.05 ml/s, the mold vent was closed and the mold packing pressure was increased incrementally from 0 to 6.9 bars. After each pressure increment followed by a stabilization period of 3 minutes, a capture frame of the unsaturated fibrous preform was acquired. Afterwards, the mold packing pressure was brought back to

atmospheric pressure. Each capture frame was then analyzed in order to estimate the final saturation distribution and the saturation range in this preform. Both values are plotted in Figure 3-17 with respect to the packing pressure applied. It is interesting to point out that a packing pressure slightly above 2 bars resulted in an average saturation level around 99% with a maximum variability below 1% throughout the fibrous preform. This average saturation level is equivalent to a void content of 0.6% according to the *Eq. (3.24)*. Therefore, such a packing pressure could possibly help to meet the void content requirement of less than 1% for primary aircraft structures [62-65]. However, efficient techniques of resin debulking and degassing followed by strategies of vacuum assistance in vacuum-tight mold should still be prioritized first to minimize the final void contents in LCM parts [19, 50].

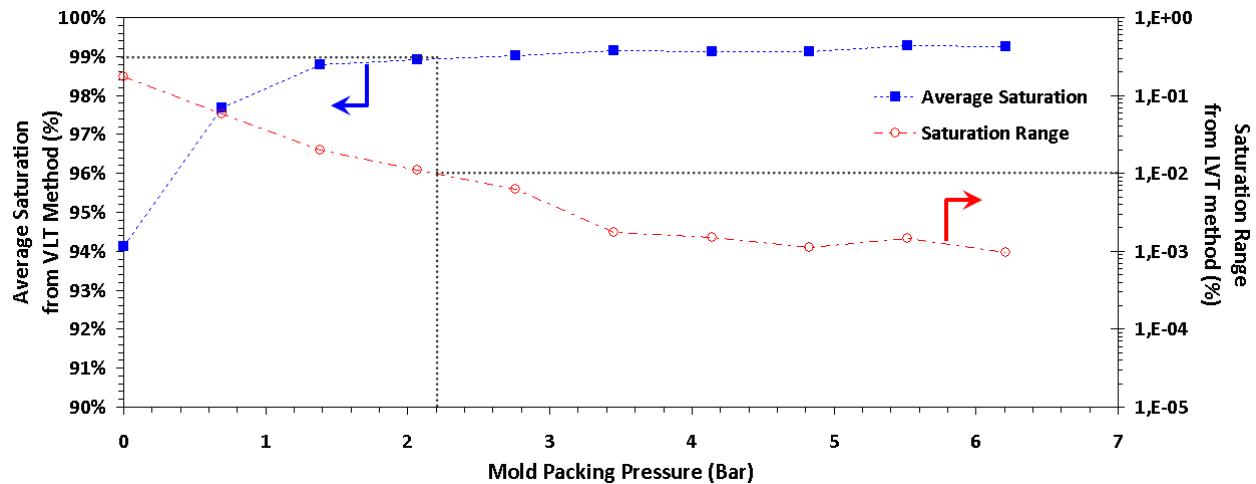


Figure 3-17 : Monitoring of the saturation range evolution of fibrous preform by the VLT method during a gradual and incremental increase of mold packing pressure.

The impact of several post-filling strategies on the final saturation distribution in fibrous preforms, also called saturation “footprint” of composite parts, can also be studied by the VLT method. Indeed, this approach can investigate in a semi-quantitative way the final distribution of void content in plates manufactured by standard RTM injections followed by different post-filling strategies. Note that four RTM injections were already performed in the second and the third series of experiments. Indeed, four RTM injections performed at a constant flow rate of 0.05 ml/s were selected and a fifth one, named “pack and bleed”, was carried out. Among these five

injections, four were followed by post-filling strategies, namely resin bleeding with or without mold pressure relief, the mold packing during cure and the industrial approach of resin bleeding coupled with mold packing. This latter “pack and bleed” cycle at 1 bar was repeated every 30 seconds until 77 g of resin was flushed out of the mold outlet to allow comparison with other resin bleeding techniques.

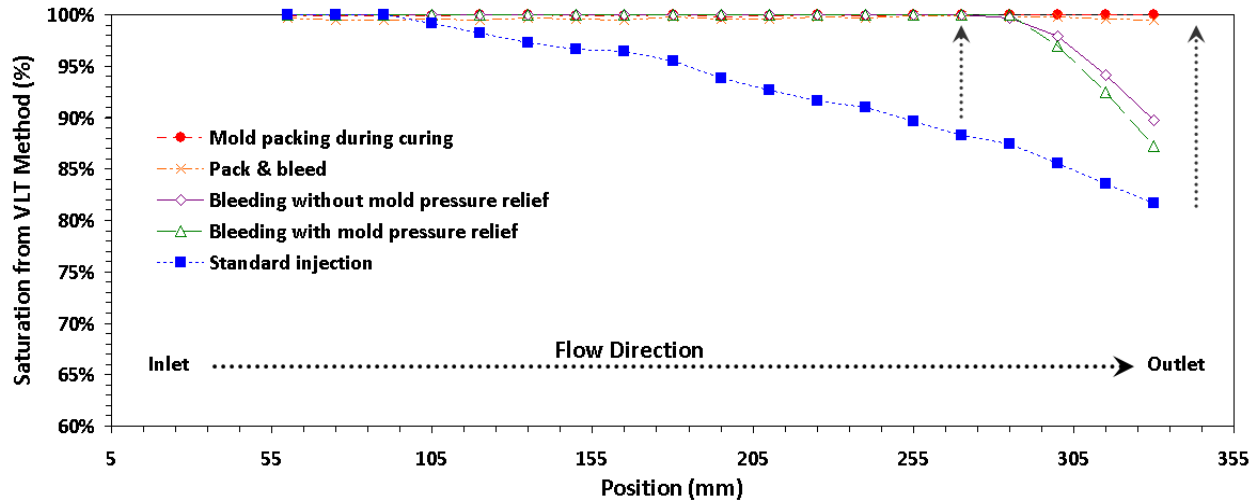


Figure 3-18 : Saturation “footprints” of 5 RTM injections carried out at 0.05 ml/s and followed by four different post-filling strategies.

As shown in Figure 3-18, this qualitative study highlighted the positive contribution of resin bleeding in order to reduce the total void content in composite parts manufactured by standard RTM injections, thus improve their saturation footprint. This reduction in void content as result of resin bleeding strategies was clearly evident in the mold outlet zone. The Figure 3-18 also reported a clear benefit in void content reduction for the mold packing strategy over standard bleeding strategies. This fact was already noticed in the third series of experiments from the void content analysis by ASTM D2734 standard of these composite parts. Finally, the strategy of “pack and bleed” allowed reducing the void content in parts with respect to standard bleeding strategies. As a matter of fact, the saturation footprint of the composite plate injected with the “pack and bleed” strategy was similar to the one of the plate injected with the mold packing strategy (see in Figure 3-18).

3.8 Discussion

The current investigation shows the benefit of controlling the impregnation velocity during mold filling in LCM. This approach allows minimizing void formation by air entrapment and mobilizing entrapped voids. Moreover, this control strategy can be adapted to the targeted time of process cycle. Indeed, for longer process cycle times typical of aerospace applications, it is appropriate to keep a constant flow front velocity around the optimal impregnation conditions that minimize air entrapment while not exceeding the resin gel time. On the other hand, for the much shorter process cycle times used in the automotive industry for example, the flow front velocity should be kept over the critical condition of void mobilization, but under the fiber washout constraint or the maximal pressure limit of the injection equipment and mold clamping system. Accordingly, with these optimal impregnation conditions, process engineers can optimize the moldability diagrams with further constraints that can lead to more robust composite manufacturing [9].

3.9 Conclusion

The three series of experiments carried out in this work confirmed that the modified capillary number of the flow and the pressure distribution inside the mold cavity are the two key injection parameters that control void formation by air entrapment and void transport during mold filling in LCM processes. In this regard, the analysis of composite plates with *ASTM D2734* standard (carbonization) allowed investigating the impact of these injection parameters on the final void content in the samples. It also allowed studying the performance of post-filling strategies devised to reduce the final void content. The observations and findings were compared with experimental data and analytical models published in the scientific literature. Moreover, the optimal impregnation conditions deducted from the second series of experiments were compared with previous predictions by capillary rise experiments. The good match obtained provides an additional validation of the capillary rise method based on fluorescence visualization to predict accurately the optimal impregnation conditions.

The monitoring technique of saturation in fibrous reinforcements developed in this paper, namely the tomographic reconstruction by Visible Light Transmission (VLT), was capable of measuring the dynamic saturation in fibrous reinforcements during mold filling. Indeed, the saturation levels obtained by VLT method were successfully compared with saturation values of void content determined by *ASTM D2734* standard. A linear correlation was obtained between both approaches. The VLT method was used to carry out quantitative studies on void formation and transport during mold filling while taking into account different post-filling strategies. This monitoring tool showed that the modified capillary number of the flow front and the pressure distribution inside the mold cavity are the two key parameters that govern void formation by air entrapment and void transport. It allowed also estimating optimal RTM impregnation conditions that minimize void formation for a given pair of glass fabric and resin. Finally, it provided a good insight on the relative performance of post-filling strategies such as resin bleeding, mold packing and pack and bleed.

3.10 Acknowledgements

The authors are grateful to the National Science and Engineering Research Council of Canada (NSERC) and the Canada Research Chair (CRC) for their financial support. The authors would also like to thank the Fonds Québécois de Recherche sur la Nature et la Technologie (FQRNT), the Chair on Composites of High Performance (CCHP) of École Polytechnique de Montréal and the Center for applied research on polymer and composites (CREPEC) for providing the research infrastructure and equipment. They are also grateful to JB Martin for donating the fibrous reinforcement used in the experiments and to Bürkert for the sponsorship of the flowmeter. As well, they want to thank Michel Gariépy from Magnum Venus Plastech and Michel Therrien from Lab Integration for their technical support at all times. Besides, the authors would like to express their appreciation to Catherine Billotte and Nadir Nchit for their support in the characterization work. Finally, the contributions of Amir Ershad Fanaei, Christian-Charles Martel, Alex Bourgeois, Antonin Leclair-Maréchal, Jean-Paul Lévesque, Paul Trudeau, Mouhcine Rifay, Matthieu Sola, Pier-Alexandre Pelletier, Mathieu Venne, Francis Carrier, Pascal Flynn-Robitaille, Julian Choquette, Éric Ruest, Sébastien Allard, Youssef Slassi-Moutabir, Benjamin Costa-Drolon, Gaston Francucci, Pol-Ewen Manac'h, Julien Barbo-Dumercy, Simon

Lynch, Farida Bensadoun, Julian Gutierrez, Nicolas Vernet, Philippe Causse and Vincent Achim are gratefully acknowledged.

3.11 References

1. F. Trochu, E. Ruiz, V. Achim, and S. Soukane, *Composites Part A*, **37**, 890 (2006).
2. J. García, L. Gascon, F. Chinesta, E. Ruiz, and F. Trochu, *Int. J. Mater. Form.*, **3**, 1295 (2010).
3. J. Leclerc, Master, École Polytechnique de Montréal, Montréal, Canada (2008).
4. J.S. Leclerc and E. Ruiz, *Composites Part A*, **39**, 1859 (2008).
5. S.R. Ghiorse, *SAMPE Quarterly*, **24**, 54 (1993).
6. N.C.W. Judd and W.W. Wright, *SAMPE J.*, **14**, 10 (1978).
7. J. Lambert, A.R. Chambers, I. Sinclair, and S.M. Spearing, *Compos. Sci. Tech.*, **72**, 337 (2012).
8. M. Haider, P. Hubert, and L. Lessard, *Compos. Sci. Tech.*, **67**, 3176 (2007).
9. V. Achim and E. Ruiz, *Int. J. Mater. Form.*, **3**, 1277 (2010).
10. E. Ruiz, V. Achim, S. Soukane, F. Trochu, and J. Bréard, *Compos. Sci. Tech.*, **66**, 475 (2006).
11. V.C. Tidwell and R.J. Glass, *Water Resour. Res.*, **30**, 2873 (1994).
12. M.R. Niemet and J.S. Selker, *Adv. Water Resour.*, **24**, 651 (2001).
13. N.T. Hoa, *Water Resour. Res.*, **17**, 41 (1981).
14. D. Abraham and R. McIlhagger, *Composites Part A*, **29**, 533 (1998).
15. N.R.L. Pearce, F.J. Guild, and J. Summerscales, *Composites Part A*, **29**, 19 (1998).
16. A.R. Chambers, J.S. Earl, C.A. Squires, and M.A. Suhot, *Int. J. Fatigue*, **28**, 1389 (2006).

17. L.K. Grunenfelder and S.R. Nutt, *Compos. Sci. Tech.*, **70**, 2304 (2010).
18. T.S. Lundström, B.R. Gebart, and C.Y. Lundemo, *J. Reinf. Plast. Compos.*, **12**, 1339 (1993).
19. T.S. Lundström and R. Gebart, *Polym. Comp.*, **15**, 25 (1994).
20. Y.-T. Chen, C.W. Macosko, and H.T. Davis, *AIChE Journal*, **41**, 2274 (1995).
21. S.G. Advani and P. Simacek, *MS&T-2008*, Pittsburgh, USA (2008).
22. R.S. Parnas, A.J. Salem, T.A.K. Sadiq, H.-P. Wang, and S.G. Advani, *Compos. Struct.*, **27**, 93 (1994).
23. R.C. Peterson and R.E. Robertson, *Mechanisms affecting void distribution and elimination in resin transfer molding*, Chicago, Illinois, USA (1992).
24. N. Patel, V. Rohatgi, and L.J. Lee, *Polym. Eng. Sci.*, **35**, 837 (1995).
25. L. Labat, J. Breard, S. Pillut-Lesavre, and G. Bouquet, *EPJ Applied Physics*, **16**, 157 (2001).
26. A.D. Mahale, R.K. Prudhomme, and L. Rebenfeld, *Polym. Eng. Sci.*, **32**, 319 (1992).
27. F. LeBel, A.E. Fanaei, E. Ruiz, and F. Trochu, *Open Journal of Inorganic Non-metallic Materials*, **In Press, Accepted Manuscript**, (2012).
28. B. Gourichon, C. Binetruy, and P. Krawczak, *Compos. Sci. Tech.*, **66**, 976 (2006).
29. T.S. Lundström, *Polym. Comp.*, **17**, 770 (1996).
30. N. Patel and L.J. Lee, *Polym. Comp.*, **17**, 104 (1996).
31. W.B. Haines, *J. Agric. Sci.*, **20**, 97 (1930).
32. V. Frishfelds, T.S. Lundstrom, and A. Jakovics, *Composites Part A*, **39**, 243 (2008).
33. N. Yamaleev and R. Mohan, *Int. J. Multiphase Flow*, **32**, 1219 (2006).
34. T.S. Lundström, *Composites Part A*, **28**, 201 (1997).

35. J.R. Wood and M.G. Bader, *Compos. Manuf.*, **5**, 139 (1994).
36. J.R. Wood and M.G. Bader, *Compos. Manuf.*, **5**, 149 (1994).
37. K.M. Pillai, *J. Compos. Mater.*, **38**, 2097 (2004).
38. C.H. Park and W. Lee II, *J. Reinf. Plast. Compos.*, **30**, 957 (2011).
39. L. Trevino, K. Rupel, W.B. Young, M.J. Liou, and L.J. Lee, *Polym. Comp.*, **12**, 20 (1991).
40. P. Ferland, D. Guittard, and F. Trochu, *Polym. Comp.*, **17**, 149 (1996).
41. C.F. Demaria, Ph.D., École Polytechnique de Montréal, Montréal (Canada) (2008).
42. C. Demaria, E. Ruiz, and F. Trochu, *Polym. Comp.*, **28**, 797 (2007).
43. R. Arbter, J.M. Beraud, C. Binetruy, L. Bizet, J. Breard, S. Comas-Cardona, C. Demaria, A. Endruweit, P. Ermanni, F. Gommer, S. Hasanovic, P. Henrat, F. Klunker, B. Laine, S. Lavanchy, S.V. Lomov, A. Long, V. Michaud, G. Morren, E. Ruiz, H. Sol, F. Trochu, B. Verleye, M. Wietgreffe, W. Wu, and G. Ziegmann, *Composites Part A*, **42**, 1157 (2011).
44. L. Wang, S. Pandita, V.R. Machavaram, S. Malik, D. Harris, and G.F. Fernando, *Compos. Sci. Tech.*, **69**, 2069 (2009).
45. J.P. Dunkers, F.R. Phelan, D.P. Sanders, M.J. Everett, W.H. Green, D.L. Hunston, and R.S. Parnas, *Opt. Laser Eng.*, **35**, 135 (2001).
46. S.H. Goodman, *Handbook of thermoset plastics*, Westwood, N.J. (1998).
47. F. Bensadoun, N. Kchit, C. Billotte, F. Trochu, and E. Ruiz, *J. Nanomater.*, **2011**, Article ID 406087 (2011).
48. F. Bensadoun, N. Kchit, C. Billotte, S. Bickerton, F. Trochu, and E. Ruiz, *International Journal of Polymer Science*, **2011**, Article ID 964193 (2011).
49. E. Ruiz, F. Waffo, J. Owens, C. Billotte, and F. Trochu, *FPCM-8*, Douai, France (2009).
50. M. Afendi, W.M. Banks, and D. Kirkwood, *Composites Part A*, **36**, 739 (2005).

51. N. Patel, Ph.D., The Ohio State University, Columbus, USA (1994).
52. B.R. Gebart, *J. Compos. Mater.*, **26**, 1100 (1992).
53. E.V. Richards, Master, University of Toronto, Toronto, Canada (2001).
54. J.S. Hayward and B. Harris, *Compos. Manuf.*, **1**, 161 (1990).
55. F. Rezanezhad, *Experimental Study of Fingering Flow in Porous Hele-Shaw Cells*, Heidelberg (2007).
56. C.J.G. Darnault, D.A. Dicarolo, T.W.J. Bauters, T.S. Steenhuis, J.Y. Parlange, C.D. Montemagno, and P. Baveye, *Ann. N. Y. Acad. Sci.*, **972**, 103 (2002).
57. L. Labat, M. Grisel, J. Breard, and G. Bouquet, *C. R. Mec.*, **329**, 529 (2001).
58. K.M. Pillai and S.G. Advani, *ASME winter meet -1996*, Atlanta, GA, USA (1996).
59. J. Bréard, A. Saouab, and G. Bouquet, *Composites Part A*, **34**, 517 (2003).
60. J.A. García, L. Gascon, and F. Chinesta, *Composites Part A*, **41**, 78 (2010).
61. F. Hussain, Y. Cinar, and P. Bedrikovetsky, *Transport Porous Med.*, **92**, 187 (2012).
62. H. Jeong, *J. Compos. Mater.*, **31**, 276 (1997).
63. M.L. Costa, S.F.M. De Almeida, and M.C. Rezende, *Compos. Sci. Tech.*, **61**, 2101 (2001).
64. M.L. Costa, S.F.M. De Almeida, and M.C. Rezende, *AIAA Journal*, **43**, 1336 (2005).
65. L. Liu, B.-M. Zhang, D.-F. Wang, and Z.-J. Wu, *Compos. Struct.*, **73**, 303 (2006).

3.12 Appendix

This appendix shows the expression that maps the evaluation of Visible Light Transmission through a translucent porous medium to the local saturation of this porous medium is derived. Indeed, starting from the *Beer-Lambert's* and *Fresnel's* laws previously introduced and after

some simplifying assumptions and mathematical manipulations, a fair mapping between the Visible Light Transmission T and the local saturation S in a translucent porous medium is obtained. First, the *Beer-Lambert's* law is defined as follows:

$$T = \frac{I - B}{I_o} = e^{(-\rho \alpha(\lambda) x)} \quad (I.1)$$

where I , I_o , B , x , ρ and α and are respectively the transmitted light intensity, the incident light intensity, the background intensity (i.e. intensity when no light is transmitted), the medium thickness, the medium bulk density and the light absorption coefficient which is wavelength-dependent λ . Then, the *Fresnel's* law is expressed as follows:

$$\tau = \frac{4n}{(n+1)^2} \quad (I.2)$$

where n is the ratio of refractive indices of the two phases at the diopter interface. If both optical laws are combined, the following general form is obtained:

$$I - B = \left(\prod_{j=1}^m \tau_j \right) I_o e^{-\sum_{i=1}^n (\rho_i \alpha_i x_i)} \quad (I.3)$$

where τ_j and $(\rho_i \alpha_i x_i)$ are respectively the light transmission factor of each j diopter interface, namely the interfaces of fabric glass-air $\tau_{glass-air}$ and fabric glass-resin $\tau_{glass-resin}$, and the light attenuation contribution of each phase i , namely the two mold walls in glass, the fabric in glass, the resin and the air phases. Assuming that the visible light rays are crossing filaments and pores of uniform sizes respectively and that each pore has two interfaces through the thickness as well as a binary state which is either completely dry or completely saturated, the following visible light transmission ratios are obtained respectively for completely dry state T_{dry} , for unsaturated state T_{unsat} and for completely saturated state T_{sat} :

$$T_{dry} = \frac{I_{dry} - B}{I_o} = \tau_{glass-air}^{2P_{air-dry}} \cdot e^{-\left(\rho_{glass} \alpha_{glass} x_{glass} + \rho_{air} \alpha_{air} x_{air-dry} + 2\rho_{wall} \alpha_{wall} x_{wall} \right)} \quad (I.4)$$

$$T_{unsat} = \frac{I_{unsat} - B}{I_o} \quad (I.5)$$

$$T_{unsat} = \tau_{glass-resin}^{2P_{resin-unsat}} \cdot \tau_{glass-air}^{2P_{air-unsat}} \cdot e^{-\left(\rho_{glass} \alpha_{glass} x_{glass} + \rho_{air} \alpha_{air} x_{air-unsat} + \rho_{resin} \alpha_{resin} x_{resin-unsat} + 2\rho_{wall} \alpha_{wall} x_{wall}\right)}$$

$$T_{sat} = \frac{I_{sat} - B}{I_o} = \tau_{glass-resin}^{2P_{resin-sat}} \cdot e^{-\left(\rho_{glass} \alpha_{glass} x_{glass} + \rho_{resin} \alpha_{resin} x_{resin-sat} + 2\rho_{wall} \alpha_{wall} x_{wall}\right)} \quad (I.6)$$

where $P_{air-dry}$, $P_{air-unsat}$, $P_{resin-unsat}$ and $P_{resin-sat}$ are respectively the number of pores completely filled with air in the dry and in the unsaturated states as well as the number of pores completely filled with resin in the unsaturated and saturated states. Note that the total number of connected pores available P_{total} for resin flow remains the same throughout the mold filling step:

$$P_{dry} + P_{sat} = P_{total} \quad (I.7)$$

where P_{dry} and P_{sat} are respectively the total number of pores completely filled by air and by resin at a specific position and time of the mold filling step. Moreover, using the expressions of the transmitted light intensity for completely dry reinforcement I_{dry} , in unsaturated reinforcement I_{unsat} and completely saturated reinforcement I_{sat} defined in Eqs. (I.4), (I.5) and (I.6), the relative degree of transmitted light intensity can be represented as follows:

$$I_{RE} = \left[\frac{(I_{unsat} - B) - (I_{dry} - B)}{(I_{sat} - B) - (I_{dry} - B)} \right] = \left[\frac{I_{unsat} - I_{dry}}{I_{sat} - I_{dry}} \right] \quad (I.8)$$

where the background intensity B cancels out. Note that some variations of the transmitted light intensity in the porous medium can be attributed to instantaneous variations of the light source intensity or variations of the CCD camera sensitivity and not to the phenomenon of reinforcement saturation alone. Therefore, a correction ratio ω is applied on each evaluation of the transmitted light intensity for a given image in order to remove these unwanted light variations. This correction ratio ω is evaluated from the light intensity of reference pixels which come directly from an image of the light source. Thus, the new corrected expression for the relative degree of transmitted light intensity becomes:

$$I_{RE} = \left[\frac{\omega_{unsat} \cdot I_{unsat} - \omega_{dry} \cdot I_{dry}}{I_{sat} - \omega_{dry} \cdot I_{dry}} \right] \quad (I.9)$$

where ω_{dry} and ω_{unsat} are the correction ratios obtained by dividing the light source intensity for the reference image of the completely saturated state I_{sat}^{ref} with respect to the light source intensities for the completely dry state I_{dry}^{ref} and the several unsaturated states I_{unsat}^{ref} respectively:

$$\omega_{dry} = \frac{I_{sat}^{ref}}{I_{dry}^{ref}} ; \omega_{unsat} = \frac{I_{sat}^{ref}}{I_{unsat}^{ref}} \quad (I.10)$$

Afterwards, considering that the reinforcement is stationary, unstretchable and incompressible during part filling by RTM manufacturing, the following expression for conservation of volumes, thus conservation of thickness in 1D, is derived:

$$x_{air-dry} = x_{air-unsat} + x_{resin-unsat} \quad (I.11)$$

which can be also expressed according to the local saturation levels of air S_a and resin S_r of the fibrous reinforcement as follows:

$$\frac{x_{air-dry}}{x_{air-dry}} = 1 = \frac{x_{air-unsat}}{x_{air-dry}} + \frac{x_{resin-unsat}}{x_{air-dry}} = S_a + S_r \quad (I.12)$$

Then, starting from the ratio of Eq. (I.5) on Eq. (I.4) and simplifying the exponent expressions using the Eqs. (I.7) and (I.11), the following development is obtained:

$$\frac{I_{unsat} - B}{I_{dry} - B} = \frac{\tau_{glass-resin}^{2P_{resin-unsat}} \cdot \tau_{glass-air}^{2P_{air-unsat}} \cdot e^{-\left(\rho_{glass} \alpha_{glass} x_{glass} + \rho_{air} \alpha_{air} x_{air-unsat} + \rho_{resin} \alpha_{resin} x_{resin-unsat} + 2\rho_{wall} \alpha_{wall} x_{wall}\right)}}{\tau_{glass-air}^{2P_{air-dry}} \cdot e^{-\left(\rho_{glass} \alpha_{glass} x_{glass} + \rho_{air} \alpha_{air} x_{air-dry} + 2\rho_{wall} \alpha_{wall} x_{wall}\right)}} \quad (I.13)$$

$$\frac{I_{unsat} - B}{I_{dry} - B} = \underbrace{\left(e^{-(K_{resin} - K_{air})x_{resin-unsat}} \right)}_{\text{light absorbance}} \cdot \underbrace{\left(\frac{\tau_{glass-resin}}{\tau_{glass-air}} \right)^{2P_{resin-unsat}}}_{\text{light transmission}} \quad (I.14)$$

where K_{resin} and K_{air} are respectively the resin and the air absorption modulus of light. Note that both light absorption modulus values are small ($\approx 10^{-5} \text{m}^{-1}$) and the difference between them is

usually considered negligible [13]. Thus, the phenomenon of light attenuation is here mainly due to decrease in light transmission from each diopter interface rather than light absorption from each phase. The following simplified expression is then obtained:

$$\frac{I_{unsat} - B}{I_{dry} - B} = \left(\frac{\tau_{glass-resin}}{\tau_{glass-air}} \right)^{2P_{sat}} \quad (I.15)$$

Ideally, at the macroscopic scale, a visible light ray is statistically crossing the same amount of pores n_{total} on average and these pores will generally have the same size (diameter) in a REV of the reinforcement, wherever the entering light ray will hit the porous media. This additional hypothesis is based on the fact that there is not a perfect alignment of the reinforcement ply stacking. So, locally on a REV, the amount of saturated pores could be hypothesized as proportional to the relative degree of saturation of the reinforcement, in first approximation:

$$P_{sat} \propto S_r \rightarrow P_{sat} = n_{total} S_r \quad (I.16)$$

In order to obtain a better quantitative match between the saturation level estimated by Visible Light Transmission method and the saturation level derived from void content determination, this relationship could be further calibrated using a simple linear correlation such as the following:

$$P_{sat} = n_{total} (\psi_1 \cdot S_r + \psi_0) \quad (I.17)$$

where ψ_1 and ψ_0 denote fitting parameters of the linear correlation obtained from void content determination using another independent method of characterization. Moreover, this Eq. (I.16) could be also substituted by an empirical polynomial fitting from experimental data. Then, from the substitution of Eqs. (I.15) and (I.16) into the definition of relative degree of transmitted light intensity proposed in Eq. (I.9), the following expression is obtained:

$$I_{RE} = \left[\frac{\omega_{unsat} \cdot (I_{dry} - B) \cdot \left(\frac{\tau_{glass-resin}}{\tau_{glass-air}} \right)^{2P_{sat}} - \omega_{dry} \cdot (I_{dry} - B)}{(I_{dry} - B) \left(\frac{\tau_{glass-resin}}{\tau_{glass-air}} \right)^{2n_{total}} - \omega_{dry} \cdot (I_{dry} - B)} \right] = \left[\frac{\omega_{unsat} \cdot \left(\frac{\tau_{glass-resin}}{\tau_{glass-air}} \right)^{2n_{total} S_r} - \omega_{dry}}{\left(\frac{\tau_{glass-resin}}{\tau_{glass-air}} \right)^{2n_{total}} - \omega_{dry}} \right] \quad (I.18)$$

In the previous *Eq.* (I.18), the local saturation level of resin S_r in the fibrous reinforcement can be isolated as follows:

$$S_r = \frac{\ln \left(\frac{I_{RE}}{\omega_{unsat}} \left[\left(\frac{\tau_{glass-resin}}{\tau_{glass-air}} \right)^{2n_{total}} - \omega_{dry} \right] + \frac{\omega_{dry}}{\omega_{unsat}} \right)}{\ln \left(\frac{\tau_{glass-resin}}{\tau_{glass-air}} \right)^{2n_{total}}} \quad (I.19)$$

However, there is still an unknown in the *Eq.* (I.19) that must be characterized in order to estimate the local saturation level of resin S_r in the fibrous reinforcement. This can be circumvented using *Eqs.* (I.15) and (I.16) and considering that $S_r = 1$ for the completely saturated state:

$$\left(\frac{I_{sat} - B}{I_{dry} - B} \right) = \left(\frac{\tau_{glass-resin}}{\tau_{glass-air}} \right)^{2n_{total}} \quad (I.20)$$

Finally, the substitution of the equations (I.9), (I.10) and (I.20) in the equation (I.19) gives the final mapping that allows evaluating the local saturation level of resin in fibrous reinforcement only from transmitted light intensities, reference intensities of the light source and the background intensity:

$$S_r = \frac{\ln \left(\left[\frac{I_{unsat} - \left(\frac{I_{unsat}^{ref}}{I_{dry}^{ref}} \right) \cdot I_{dry}}{I_{sat} - \left(\frac{I_{sat}^{ref}}{I_{dry}^{ref}} \right) \cdot I_{dry}} \right] \cdot \left[\left(\frac{I_{sat} - B}{I_{dry} - B} \right) - \left(\frac{I_{sat}^{ref}}{I_{dry}^{ref}} \right) \right] + \frac{I_{unsat}^{ref}}{I_{dry}^{ref}} \right)}{\ln \left(\frac{I_{sat} - B}{I_{dry} - B} \right)} \quad (I.21)$$

CHAPITRE 4 ARTICLE 2 : EXPERIMENTAL CHARACTERIZATION BY FLUORESCENCE OF CAPILLARY FLOWS IN THE FIBER TOWS OF ENGINEERING FABRICS

François LeBel, Amir Ershad Fanaei, Édu Ruiz and François Trochu¹

*Department of Mechanical Engineering and Chair on Composites of High Performance.
Centre de recherche en plasturgie et composites (CREPEC), École Polytechnique de Montréal,
P.O. Box 6079, Station « Centre-Ville », Montréal, Canada, H3C 3A7*
¹*Corresponding author's email : trochu@polymtl.ca*

4.1 Présentation du chapitre

Ce chapitre est un article soumis et accepté par la revue *Open Journal of Inorganic Non-metallic Materials (OJINM)*. Cet article présente une étude des mécanismes d'imprégnation des renforts fibreux à l'échelle microscopique pendant la mise en forme par les procédés LCM. Plus spécifiquement, cette analyse porte sur l'imbibition par capillarité dans les mèches de fibres d'un renfort fibreux. Cette analyse permet d'identifier les propriétés structurales de la mèche de fibres qui influencent l'imprégnation capillaire. À cette fin, un montage expérimental a été développé pour étudier et caractériser les écoulements capillaires dans les mèches de fibres. Le principe de fonctionnement de ce montage s'appuie sur la méthode de montée capillaire déjà employée pour étudier les écoulements capillaires dans les sols, les textiles et les renforts fibreux. Toutefois, certains problèmes techniques sont apparus dans le passé tels qu'un suivi imprécis de la progression du front capillaire dans le milieu poreux (affaiblissement progressif du contraste), une altération géométrique du renfort ou même un changement des propriétés du fluide de filtration dû à l'évaporation d'une composante volatile durant les essais. Afin de pallier ces faiblesses, trois modifications sont proposées dans ce chapitre : (1) l'usage d'un fluide pénétrant totalement mouillant, léger, non volatil et stable; (2) l'utilisation de la fluorescence (DPI) pour maintenir un contraste visuel adéquat; (3) l'emploi d'algorithmes de traitement d'images pour un suivi répétable et reproductible de la position du front capillaire. Dans la présente approche, le

suivi visuel automatisé du front capillaire avec une caméra numérique est couplé à une acquisition continue de la masse absorbée à l'aide d'une balance de haute résolution.

Il faut noter aussi que cette méthode de suivi de la montée capillaire nécessite moins d'investissements en temps et argent comparativement à d'autres techniques plus standards de caractérisation souvent utilisées dans les milieux poreux. De plus, cette approche permet de recueillir des données représentatives sur les propriétés d'imbibition par capillarité des mèches de fibres et des renforts fibreux en s'appuyant sur les lois de *Lucas-Washburn* pour la hauteur du front capillaire et pour la masse de fluide absorbée par le milieu poreux. Ces propriétés d'imbibition par capillarité des mèches de fibres sont ensuite étudiées en fonction de leurs caractéristiques morphologiques. À cette fin, les caractéristiques morphologiques des mèches de fibres étudiées sont leur porosité microscopique, la surface totale de leur section transversale, leur surface spécifique, la taille et l'arrangement géométrique de leurs filaments. Ces propriétés sont aussi déterminées à l'aide de méthodes de caractérisation standards afin de comparer les résultats obtenus avec les valeurs déduites à partir des expériences de montée capillaire. Les méthodes de caractérisation standards utilisées dans cette partie du travail sont la gravimétrie, la microscopie, l'analyse par la méthode *B.E.T.* et la porométrie. La cohérence des résultats obtenus par les deux approches est confirmée, validant ainsi le choix de la méthode de montée capillaire pour effectuer cette étude sur les mécanismes d'imprégnation des renforts fibreux. Par la suite, le montage de montée capillaire permet de caractériser la perméabilité axiale et la pression capillaire des mèches de fibres. Finalement, ce montage peut aussi mesurer l'impact de la solution d'ensimage des fibres sur la qualité de l'imprégnation du renfort. Noter que cette solution d'ensimage est généralement employée pour la lubrification et la protection des fibres lors du tissage du renfort fibreux ainsi que pour permettre une bonne adhésion (agent de pontage) entre la matrice polymère et les fibres lors de leur imprégnation.

4.2 Abstract

Liquid Composite Molding (LCM) is an increasingly used class of processes to manufacture high performance composites. A study of wicking behaviour in fiber tows was carried out in order to

better understand the mechanisms that govern the impregnation of fibrous reinforcements in LCM. The experimental approach is based on capillary rise experiments which allow gathering representative data on the wicking properties of fiber tows as a function of their morphological characteristics such as micro-porosity, total cross-section area, specific surface area, filament diameter and packing configuration. The morphological properties of the fiber tows were also characterized by gravimetry for the micro-porosity and fiber mass density, microscopic analysis to measure the filament diameter, cross-section area and packing configuration of the filaments and porometry to evaluate the equivalent pore diameter. To avoid fluid evaporation and improve flow observation in capillary rise experiments, a monitoring technique based on fluorescent dye penetration inspection (DPI) and CCD image acquisition is proposed in this investigation. Visual monitoring of the capillary front is coupled with real-time fluid mass acquisition using a high resolution balance. Experimental observations on the height of the capillary front and the fluid mass absorbed by the fiber tows were analyzed by two imbibition models for which the gravity contribution could be neglected. Finally, the impact of fiber sizing on the tow wicking behavior was also investigated.

KEYWORDS

Liquid Composite Molding, wicking, fiber tow, *Lucas-Washburn* model, permeability, sizing

4.3 Introduction

In processes such as *Resin Transfer Molding* (RTM), *Compression Resin Transfer Molding* (CRTM) and *Vacuum Assisted Resin Infusion* (VARI), a reactive liquid resin is injected or infused inside a mold cavity containing a dry fibrous reinforcement. In order to produce high performance composites, the fibers must be completely saturated prior to resin gelation.^{1, 2} Indeed, impregnation defects have a detrimental impact on the mechanical properties of composite parts such as the maximum compression, flexural and shear inter-laminar strengths.³⁻⁶ It has also a substantial effect on crack initiation and fatigue life, on moisture absorption and surface finish.^{7, 8} Hence developing practical strategies to produce high quality composite parts becomes a critical industrial goal.^{9, 10}

In order to better understand fabric impregnation mechanisms at the microscopic level and minimize void formation in dual scale fibrous reinforcements, the study of capillary flows inside fiber tows is becoming critical for high performance LCM applications. Over the last decades, the capillary rise approach has been used to characterize the permeability, the architecture of porous media and the capillary pressure at equilibrium in different soils. Researchers have also studied by this method the microscopic and macroscopic properties of fibrous reinforcements used in high performance composites.^{11, 12} However, for composite materials, this characterization technique suffered from a lack of precision, repeatability and robustness. These limitations arise from three main problems: (1) textile alterations during capillary rise tests may result either from fiber tow encasing, packing and fraying or from tension during the liquid uptake; (2) significant changes in the properties of the infiltration fluids often occur because of solvent evaporation; (3) the progression of the capillary front during long wicking tests cannot be followed accurately because of front fading in time, even with dyes.¹²⁻¹⁷ To circumvent these technical limitations, a new monitoring technique based on fluorescent *dye penetration inspection* (DPI) and CCD image acquisition has been developed in this work. This visual monitoring of the capillary front is coupled with a fluid mass acquisition using a high resolution scale.

The new capillary rise setup is presented and compared with other standard characterization methods. Wicking characterization was carried out on the warp and weft tows of a non-crimp fabric. This experimental approach allows characterizing the microscopic porosity, axial permeability, capillary pressure at equilibrium and global saturation of the fiber tows. The impact of fiber sizing on tow wicking was also investigated. This sets the stage for a future investigation on wicking characterization for engineering fabrics.

4.4 Bibliography

Over the last decades, several experimental studies have been carried out on capillary flows in fiber tows based on the capillary rise method. In this regard, Batch et al., Bayramli and Powell, Chwastiak, Scher as well as Pillai and Advani have all characterized wicking in fiber tows by measuring the uptake fluid mass.^{11, 16, 18-20} Batch et al. carried out a review on the uptake fluid mass monitoring technique to characterize the wicking behavior of compacted powders, soils and other solid porous media.¹¹ Bayramli and Powell, Chwastiak and Scher have also used this technique to characterize the wicking behavior along carbon fiber tows encased in PTFE tubes or held between adhesive tapes.^{16, 18, 19} This strategy based on the uptake fluid mass was well suited for carbon fiber tows because of the difficulty in monitoring visually the transparent capillary front between opaque filaments. Indeed, these authors used transparent infiltration fluids such as alkanes. Note that alkanes are usually considered to be totally wetting fluids with respect to different kinds of surface chemistry, which allow perfect liquid spreading over the fiber surface. However, some of these alkanes are volatile. This can lead to ambiguous interpretations of the uptake fluid mass due to mass losses by evaporation and capillary condensation.¹⁹ In this respect, pure hexadecane was the infiltration fluid selected to carry out the current wicking investigation because of its totally wetting behavior, its low volatility and non-hygroscopic behavior.

In the work of Pillai and Advani, glass fiber tows were encased between polycarbonate plates whereas, in the work of Batch et al., they were held in PTFE tubes, in order to characterize their transversal and axial wicking behavior by measuring the uptake fluid mass.^{11, 20} The infiltration fluids used for these capillary rise tests were several kinds of industrial fluids. Among

these liquids, some are more prone to natural ageing such as corn syrup; others are not of high purity, such as motor oil. Thus, caution must be paid to the liquid quality; fluids with stable properties over time should be selected. In particular, fluid or dye particulates that could clog the tow microscopic pores must be avoided. The dye selected in this study was highly soluble in alkanes. In addition, the uptake fluid mass monitoring allows only a rough estimation of the capillary front position, because the filament packing is rarely uniform and no plug-like flows without saturation gradient take place in industrial fibers.¹⁶

Williams et al. were among the first to monitor visually the capillary front rise in fiber tows.²¹ These author studied the capillary progression of many oils and polymers along glass fiber tows at various temperatures. The tows were encased in glass tubes to control the fiber volume content. This visual procedure was carried out successfully, because the porous medium studied was transparent, such as the E-glass fiber tows of the current investigation. Indeed, the infiltration fluids provided sufficient visual contrast with glass fiber tows, thus allowing a proper monitoring of the capillary front on short wicking distances. However, the visual monitoring procedure developed by Williams was carried out manually, unlike in the previous work of Hamdaoui et al. or in the current wicking study based on automated tracking of the capillary front with a digital camera and by image analysis.^{21, 22} This latter approach is less prone to the experimental subjectivity of the operator and therefore can be considered as more robust. In addition, the new approach proposed here of fluorescence visualization offers a better contrast between the infiltration fluids and the fiber tows. It also avoids the problem of flow front fading over time reported by Amico and Lekakou.^{12, 14} Accordingly, this approach provides a greater resolution in positioning the capillary front, even in long wicking tests. Note that this visualization method with a fluorescent dye added to organic liquids with an appropriate wavelength light (black light) was also applied successfully by Kamath et al. to follow the wicking front in polymer fiber tows.²³ Using these dyes does not have any measurable effects on the wicking test results.²⁴ Before describing the capillary rise setup used in this investigation, the capillary flow models that will be implemented in the wicking analysis will first be presented.

4.5 Modeling of capillary flows in fiber tows

In order to analyze the progression of the capillary front in fiber tows, four imbibition models are presented and detailed in this section. These models give the evolutions of the capillary rise including gravity (model I) or without gravity (model II), and of the uptake capillary mass with or without gravity (model III, IV respectively).

4.5.1 Wetting and wicking

Surface tension γ characterizes the effect of interfacial forces as a result of intermolecular cohesion within each phase in contact. As a result of the balance of interfacial forces, the liquid tends to form drops of spherical shape on a solid surface. On the other hand, the imbalance of interfacial forces leads the liquid molecules to spread over this solid surface. This relative ability of solids to attract (wetting) or to repel (non wetting) liquids at some degree is called wettability and is characterized by the equilibrium contact angle θ of the liquid with the solid surface.²⁵ For example, for a perfectly wetting fluid, $\theta = 0^\circ$. The wetting phenomenon can occur on different solid geometries such as a capillary tube. The relationship between interfacial forces follows Young's equation (4.1):

$$\gamma_{sv} - \gamma_{sl} - \gamma_{lv} \cos \theta = 0 \quad (4.1)$$

where θ is the contact angle where the liquid-vapor and solid-liquid interfaces meet and γ_{lv} , γ_{sv} , γ_{sl} are the liquid-vapour, solid-vapour and solid-liquid interfacial tensions.

The adhesion tension, defined as $\gamma_{lv} \cos \theta$, promotes the liquid rise through capillary pores in a porous medium. This capillary phenomenon in porous media is also called the “wicking”. Considering the geometry of the pores, the driving force of the capillary flow in a tube of radius r can be described by a capillary pressure p_{cap} evaluated by the standard Young-Laplace's law across the liquid interface as follows:

$$p_{cap} = -\frac{2}{r} \cdot \gamma_{lv} \cos \theta \quad (4.2)$$

4.5.2 Jurin's law

The capillary rise in a tube tends asymptotically towards an equilibrium height z_{eq} , for which the capillary and gravitational forces are in static equilibrium. The equilibrium height z_{eq} is such that the liquid pressure p_B under the meniscus is given by Pascal's law:

$$p_B = p_{atm} - \Delta\rho g z_{eq} \quad (4.3)$$

where p_{atm} , g and $\Delta\rho$ denote respectively the atmospheric pressure, the gravity and the difference in mass density between the liquid and the vapour/gas. Usually, the vapor mass density is neglected and the mass density difference $\Delta\rho$ is replaced by the liquid mass density ρ . The liquid pressure p_B at equilibrium obeys the following balance:

$$p_B = p_{atm} + p_{cap} \quad (4.4)$$

where p_{cap} denotes the pressure that drives the capillary rise. Equations (4.3) and (4.4) together with equation (4.2) give the capillary height z_{eq} (also noted z_{jurin}) in static equilibrium:

$$z_{Jurin} = z_{eq} = \frac{4}{d_h} \cdot \frac{\gamma_{lv} \cos \theta}{\rho g} \quad (4.5)$$

where d_h is the equivalent hydraulic diameter of the capillary canal. Equation (4.5) is called the *Jurin's law*. If A and P denote respectively the cross-sectional area of the capillary canal and its wetted perimeter, the hydraulic diameter of a cylindrical tube is defined as follows:

$$d_h = \frac{4A}{P} = \frac{4(\pi d^2/4)}{\pi d} = d = 2r \quad (4.6)$$

In a porous medium, the equivalent hydraulic diameter is defined by equation (4.6) after evaluating the average cross-sectional area A of the pores and their wetted perimeter P .

Below a characteristic capillary length denoted l_{cap} and generally of the order of a few millimetres, the deformation of the spherical-shaped meniscus as a result of gravity is not

significant. This length can be estimated by comparing *Young-Laplace's* capillary pressure p_{cap} defined by equation (4.2), in which the equivalent hydraulic diameter d_h of the capillary canal is equal to l_{cap} , to the hydrostatic pressure $\rho g l_{cap}$ at a depth l_{cap} in a liquid of density ρ . Equation (4.2) becomes then:

$$p_{cap} = \frac{4}{l_{cap}} \cdot \gamma_{lv} \cos \theta \quad (4.7)$$

The above *Young-Laplace's* pressure is balanced by the hydrostatic pressure at equilibrium. Hence the capillary length l_{cap} can be defined as follows for a perfectly wetting fluid, namely when the wetting angle θ is zero:²⁵

$$l_{cap} = 2 \sqrt{\frac{\gamma_{lv}}{\rho g}} \quad (4.8)$$

The impact of gravity can be neglected for capillary canal sizes of equivalent hydraulic diameter $d_h < l_{cap}$. This is validated through a dimensionless number called *Bond* number and defined as follows:

$$Bo = \frac{\Delta \rho g d_h^2}{16 \gamma_{lv}} \quad (4.9)$$

When, the *Bond* number is high, $d_h > l_{cap}$ and the impact of gravity cannot be neglected.

4.5.3 Modified *Jurin's* law

Woven fibrous reinforcements (see Figure 4-1a) are porous media composed of oriented fiber bundles (see Figure 4-1b). Such materials can be modeled as a statistical set of cylindrical capillary tubes parallel and tortuous.²⁶ The equivalent hydraulic diameters of these capillary tubes inside the fiber bundles are defined by the ratio between the cross-sectional area of the flow canals and the wetted perimeter. If V_f denotes the fiber volume content of the fiber bundle and d_f is the average filament diameter, the theory of porous media gives the following expression for the equivalent hydraulic diameter:²¹

$$d_h = \frac{d_f (1 - V_f)}{V_f} \quad (4.10)$$

From this definition, a modified expression of *Jurin's* law (4.5) can be proposed in fiber tows:

$$z_{Jurin} = \frac{P_{cap}}{\rho g} = \underbrace{\left(\frac{F_{geo}}{d_h} \right)}_{\approx S_{pv}} \cdot \left(\frac{\gamma_{lv} \cos \theta}{\rho g} \right) \quad (4.11)$$

where F_{geo} is a constant depending on the pore size distribution and the flow direction with respect to the capillary medium.²⁷ In this regard, the traction and the twist of the fiber bundles can have a significant impact on its pore size distribution, thus on F_{geo} and other structural parameters of the fiber tows.²⁸ The first right term in the modified *Jurin's* law (4.11) can be estimated by the theoretical specific surface area S_{pv} of the fiber bundles per unit pore volume by assuming the fibers to be smooth parallel cylinders in a regular array.²⁹ This latter property of the fiber bundles can be evaluated from their fiber volume content and their specific surface area per unit mass S_m . In a porous medium, this parameter S_m represents the ratio of the total surface of the pores to the solid mass and can be characterized experimentally by *Brunauer-Emmett-Teller* (*B.E.T.*) analysis technique, a method based on the multilayer adsorption of gas molecules on solid surfaces.³⁰

The tow specific surface area per unit mass S_m can be also estimated from the filament diameter and the glass mass density ρ_{glass} by assuming the filaments to be smooth cylinders packed in a regular array (although it is rarely the case for real tow filaments):

$$S_m = \frac{s_f}{m_f} = \frac{s_f}{\rho_{glass} v_f} = \frac{S_f}{\rho_{glass}} = \frac{N_f \pi d_f L}{\rho_{glass} (N_f \pi d_f^2 L / 4)} = \frac{4}{\rho_{glass} d_f} \quad (4.12)$$

where s_f , m_f and v_f are respectively the surface, mass and volume of all the filaments of the fiber tow, L is the length of the fiber tow, N_f is the number of filaments per tow and S_f is the specific surface area of a fiber tow per unit fiber volume defined as follows:

$$S_f = \frac{S_f}{v_f} \quad (4.13)$$

If the microscopic pore volume v_{pore} in a fiber tow is given by:

$$v_{pore} = \frac{v_f (1 - V_f)}{V_f} \quad (4.14)$$

the specific surface area S_{pv} per unit of pore volume can be estimated from the filament diameter and the tow fiber volume content as follows:

$$S_{pv} = \frac{S_f}{v_{pore}} = S_f \cdot \frac{V_f}{(1 - V_f)} = \rho_{glass} \cdot S_m \cdot \frac{V_f}{(1 - V_f)} = \frac{4}{d_f} \cdot \frac{V_f}{(1 - V_f)} = \frac{4}{d_h} \quad (4.15)$$

Knowing S_{pv} , *Jurin's* capillary height can thus be evaluated by equation (4.11). According to the global curvature of the meniscus, default values for F_{geo} are respectively 4 and 2 for capillary-driven flows parallel and perpendicular to the fiber tows.¹² However, capillary flows in fiber tows are rather complex and tridimensional interactions occur between the axial and perpendicular flows. Thus these geometrical factors F_{geo} have been generalized in tensorial form by Ahn et al.²⁷ A value of the geometrical parameter F_{geo} between 2 and 4 is usually obtained by non linear fitting of the capillary height evolution in time for long wicking tests.²⁷ In order to separate explicitly the geometrical parameter F_{geo} from the specific surface area S_{pv} in (4.11), a new expression of *Jurin's* height in fiber bundles may be introduced as follows:

$$z_{Jurin} = \frac{P_{cap}}{\rho g} = f_{geo} \cdot S_{pv} \cdot \left(\frac{\gamma_{lv} \cos \theta}{\rho g} \right) \quad (4.16)$$

where the constant f_{geo} , $0 \leq f_{geo} \leq 1$, is a linear scale factor of F_{geo} . This parameter depends on the pore size distribution and the flow direction with respect to the fiber tows.

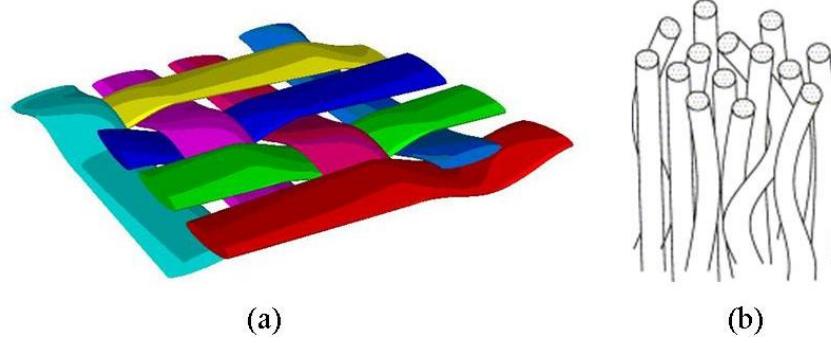


Figure 4-1 : Origin of the tortuosity of fiber bundles and filaments in fibrous reinforcements; (a) woven pattern of a 2D reinforcement; (b) intra-bundle tortuosity and tortuous capillary tube.¹³

Furthermore, as defined by Bear, another concept called tortuosity must be introduced to take into account the non rectilinear path of the fiber bundles and filaments in woven fabrics resulting from the woven architecture of the fabric (see Figure 4-1a) and from the twisting of fiber bundles (see Figure 4-1b).²⁹ Tortuosity represents the ratio between the real distance $L_e(t)$ covered by the fluid during imbibition and the equivalent distance $L(t)$ or $z(t)$ if measured along a straight line:

$$\tau = \frac{L_e(t)}{L(t)} \quad (4.17)$$

In summary, the fiber bundles in a woven fabric can be modeled by a porous system of parallel capillary channels of hydraulic diameter d_h and tortuosity τ .¹³

4.6 Capillary creeping flow and imbibition models

During isothermal capillary rise experiments in immobile, non stretchable and tortuous fiber tows, the fluids used are considered incompressible and Newtonian. In this respect, Figure 4-2 shows the typical capillary height evolution in time of such a liquid through a porous medium. The progression of the capillary front tends asymptotically towards an equilibrium height z_{eq} , for which the capillary and gravitational forces balance each other in static equilibrium. Figure 4-2 highlights also the linear flow regime of *Lucas-Washburn* for which the gravity contribution can

be neglected at the beginning of the capillary rise. In that situation, capillary forces are balanced only by viscous forces.

By summing up along the z direction the forces driving a *Hagen-Poiseuille* flow in a tortuous fiber bundle, the balance of capillary, gravity and viscous forces gives:²⁶

$$\underbrace{\pi \frac{d_h^2}{4} \rho \tau^2 z \frac{d^2 z}{dt^2}}_{\text{inertia}} = \underbrace{\pi \frac{d_h^2}{4} P_{cap}}_{\text{capillarity}} - \underbrace{8\pi \mu \tau^2 z \frac{dz}{dt}}_{\text{viscous drag}} - \underbrace{\pi \frac{d_h^2}{4} \rho g z}_{\text{gravity}} \quad (4.18)$$

where μ , P_{cap} , d_h and τ denote respectively the fluid dynamic viscosity, the capillary pressure in the fiber tow, the equivalent hydraulic diameter (4.10) and the tortuosity of the fiber bundle. The inertia term and the transient wettability term are relevant only during the first microseconds of imbibition through the largest pores ($d_h \gg 100 \mu\text{m}$) and for low viscosity liquids such as low molecular weight alkanes.³¹ Neglecting inertia and using the modified *Jurin's* law of equation (4.11) to express the capillary pressure, equation (4.18) becomes:

$$0 = \pi \frac{d_h^2}{4} \underbrace{\rho g z_{Jurin}}_{P_{cap}} - 8\pi \mu \tau^2 z \frac{dz}{dt} - \pi \frac{d_h^2}{4} \rho g z \quad (4.19)$$

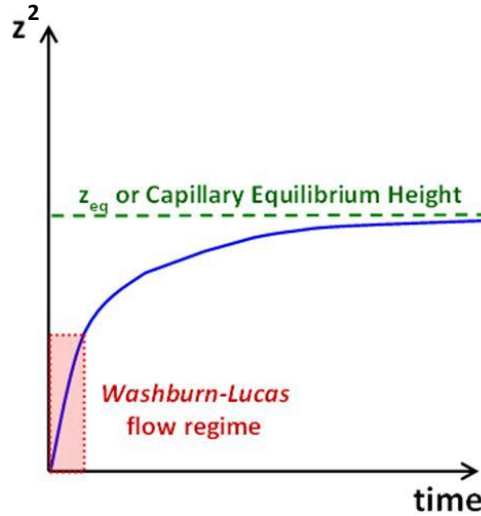


Figure 4-2 : Schematic view of the flow front evolution during a typical capillary rise through a porous medium.

4.6.1 *Lucas-Washburn* imbibition models

Imbibition model I

By rearranging and simplifying equation (4.19), an ordinary differential equation (ODE) describing the axial progression in time of the capillary height in fiber tows is obtained:

$$\frac{dz}{dt} = \beta_h \left(\frac{z_{Jurin}}{z} - 1 \right) \quad (4.20)$$

where

$$\beta_h = \frac{d_h^2 \rho g}{32 \mu \tau^2} \quad (4.21)$$

As a result, a first imbibition model (model I) arises from the space-time integration of equation (4.20) as follows:

$$-\frac{\beta_h t}{z_{Jurin}} = \ln \left(1 - \frac{z}{z_{Jurin}} \right) + \frac{z}{z_{Jurin}} \quad (4.22)$$

Imbibition model II.

If the gravity contribution is neglected, i.e., for short imbibition distances ($z(t) \ll z_{Jurin}$), the previous ODE (4.20) reduces to the following evolution model of velocity:

$$\frac{dz}{dt} = \beta_h \left(\frac{z_{Jurin}}{z} \right) \quad (4.23)$$

The integration of this ODE results in imbibition model II, known as the classical *Lucas-Washburn* law of capillary height evolution for short imbibition distances:³²

$$z^2 = B_h t \quad (4.24)$$

where

$$B_h = 2 \beta_h z_{Jurin} \quad (4.25)$$

Parameter B_h represents the *Lucas-Washburn (LW)* slope of the square of the capillary height evolution during the linear *Lucas-Washburn* flow regime (see Figure 4-2). It was also referred as a diffusion or capillary rate coefficient (m^2/s).²² This parameter B_h can be obtained by linear regression on the evolution of the square of the capillary front height in time.

Imbibition model III

On the other hand, the evolution of the capillary uptake fluid mass $m(t)$ can also be considered through immobile tortuous fiber bundles of constant cross-section. Under the hypothesis of constant saturation, the following expression can be used to evaluate the fluid mass absorbed by capillary effects:

$$m(t) = \rho \left[A_{cs} (1 - V_f) s \tau \right] \cdot z(t) \quad (4.26)$$

where A_{cs} denotes the effective tow cross-sectional area normal to the flow direction and s , $0 \leq s \leq 1$, is the global level of tow saturation. The following equation can be obtained for the capillary height:

$$z(t) = \frac{m(t)}{\rho A_{cs} (1 - V_f) s \tau} \quad (4.27)$$

By substituting equation (4.27) into the ODE of the first imbibition model (4.20), in case of significant gravity the uptake wicking mass can be modeled by the following ODE:

$$\frac{dm}{dt} = \left[\rho A_{cs} (1 - V_f) s \tau \right] \beta_h \left(\frac{z_{Jurin} \left[\rho A_{cs} (1 - V_f) s \tau \right]}{m} - 1 \right) \quad (4.28)$$

The integration of this ODE results in a new model describing the evolution in time of the capillary mass (imbibition model III):

$$-\frac{\beta_h t}{z_{Jurin}} = \ln \left(1 - \frac{m}{m_{Jurin}} \right) + \frac{m}{m_{Jurin}} \quad (4.29)$$

where

$$m_{Jurin} = \rho \left[A_{cs} (1 - V_f) s \tau \right] \cdot z_{Jurin} \quad (4.30)$$

Imbibition model IV

However, if gravity can be neglected, a simpler imbibition model is derived from the previous one by substituting equation (4.27) into the ODE (4.23) of imbibition model II:

$$\frac{dm}{dt} = \beta_m \left(\frac{z_{Jurin}}{m} \right) \quad (4.31)$$

where

$$\beta_m = \rho^2 \underbrace{\left[A_{cs} (1 - V_f) s \tau \right]}_{c_v}^2 \beta_h = (\rho c_v)^2 \beta_h \quad (4.32)$$

Parameter c_v in the above equation is referred to as the volumetric fluid-holding capacity per unit length (m^3/m) of the fiber tow.²⁸ It depends only on the architecture of the fiber bundles. The integration of this ODE results in the new imbibition model IV, which describes the evolution in time of the uptake fluid mass for short imbibition distances (without gravity):

$$m^2 = B_m t \quad (4.33)$$

where

$$B_m = (\rho c_v)^2 B_h \quad (4.34)$$

Parameter B_m is the *LW* slope for the square of the capillary mass evolution during the linear *Lucas-Washburn* flow regime (see Figure 4-2). It can be obtained by linear regression on the evolution of the square uptake wicking mass in time for short imbibition distances.

Capillary rise measurement

Special caution must be given to the interpretation of the uptake fluid mass measured in the standard capillary rise method. Firstly, significant saturation gradients can develop along the fiber bundles as a result of the pore size distribution such that the constant saturation flow hypothesis may become questionable. Secondly, the meniscus and buoyancy forces participate also in the evolution of the total measured mass m_{total} . Indeed, when a fiber bundle is dipped into a liquid, an

interfacial force $F_{meniscus}$ develops at the meniscus contact line along the wetted perimeter P_w of the bundle. According to the balance of interfacial forces along the contact line described by equation (4.1), the dipped fiber bundle can be pulled or pushed off by the liquid. Moreover, according to Archimedes' principle, a buoyancy force $F_{buoyancy}$ develops along the submerged part of the dipped bundle. The mass offset from these two forces must be taken into account as follows in order to evaluate the net uptake fluid mass $m(t)$:²⁰

$$m(t) = m_{total}(t) - m_{meniscus} + m_{buoyancy} \quad (4.35)$$

where $m_{meniscus}$ and $m_{buoyancy}$ denote respectively the meniscus and buoyancy mass contributions. This offset explains the discontinuity observed in the total measured mass when the fiber bundle comes in contact with the liquid. The buoyancy force can be minimized by limiting the dipping depth of the fiber tow under the liquid surface. This can be achieved by slowly approaching the fiber bundle on to the liquid surface and by automatically stopping the displacement when contact is detected between the fiber bundle and the liquid.

By selecting a characterized probe fluid with a totally wetting behavior to conduct the wicking tests, the contribution of the fabric micro-structure geometry to imbibition can be isolated and quantified.¹³ For instance, if the initial bundle mass and all the properties of the infiltration fluid are known, it is possible to evaluate the tow porosity ϕ_{tow} from the final uptake fluid mass after the capillary rise experiment (mass at the end of wicking test):

$$1 - V_f = \phi_{tow} \approx \frac{m(t_{end})/\rho_{fluid}}{(m_{tow}/\rho_{glass}) + (m(t_{end})/\rho_{fluid})} \quad (4.36)$$

Furthermore, as mentioned in the work of Hsieh and Yu, the apparent contact angle θ of the meniscus can be deduced from the initial or the final mass jump and from the fluid and tow characteristics.¹⁵ If $F_{meniscus}$ denotes the force necessary to expel a fiber bundle out of a liquid, the corresponding final mass jump $m_{meniscus}$ observed when the fluid loses contact with the fiber bundle is given by:

$$m_{meniscus} = \frac{F_{meniscus}}{g} = \frac{P_w \gamma_{lv} \cos \theta}{g} \quad (4.37)$$

where P_w and γ_{lv} are respectively the wetted perimeter (contact line) and the liquid-vapor interfacial tension. The contact angle is obtained readily from equation (4.37) as follows:

$$\theta = \arccos \left(\frac{m_{meniscus} g}{P_w \gamma_{lv}} \right) \quad (4.38)$$

4.6.2 Global tow saturation

The global tow saturation s can be evaluated from the slopes of the height (4.25) and mass (4.34) evolutions as computed by *Lucas-Washburn* laws (4.24) and (4.33).^{12, 14} Indeed, dividing B_m by B_h and substituting the corresponding expression of c_v defined in equation (4.32), the tow saturation s can be computed as follows:

$$s = \frac{1}{\rho(1-V_f) A_{cs} \tau} \sqrt{\frac{B_m}{B_h}} \quad (4.39)$$

where A_{cs} denotes the effective tow cross-section area in a normal direction to the flow. The instantaneous tow saturation $s(t)$ can also be evaluated from the evolutions of the capillary height and weight as follows:

$$s(t) = \frac{z_{mass}(t)}{z(t)} \quad (4.40)$$

where $z(t)$ and $z_{mass}(t)$ denote respectively the measured height of capillary rise and the height of capillary front interpolated as follows from the evolution of the wicking mass:

$$z_{mass}(t) = \frac{m(t)}{m(t_{end})} \cdot l_{total} \quad (4.41)$$

In the above equation, l_{total} is the total length of the fiber tow, while $m(t)$, $m(t_{end})$, denote respectively the current wicking mass and the final uptake fluid mass. This estimation approach

of the saturation in a porous medium with significant polydispersivity of its pore size distribution was already considered in the work of Bico and Quéré.³³

Equation (4.39) can be modified to provide a rough approximation (underestimation) of the total cross-sectional area of microscopic pores $A_{\mu\phi}$ normal to the flow direction:

$$A_{\mu\phi} = (1 - V_f) A_{cs} \quad s = \frac{1}{\rho \tau} \sqrt{\frac{B_m}{B_h}} \approx \phi_{tow} A_{tow} \quad (4.42)$$

where A_{tow} is the total cross-section area of the fiber tow. This leads to the following estimation of the anisotropy ratio R_a^{tow} of the microscopic pore areas between the two fiber tow directions (with the same stitching/weaving pattern, and thus the same tortuosity):

$$R_a^{tow} = \frac{\tau_{tow}^{weft}}{\tau_{tow}^{warp}} \cdot \frac{\sqrt{B_m/B_h}|_{warp}}{\sqrt{B_m/B_h}|_{weft}} \approx \frac{\phi_{tow}^{warp} \cdot A_{tow}^{warp}}{\phi_{tow}^{weft} \cdot A_{tow}^{weft}} \quad (4.43)$$

4.6.3 Axial permeability of the fiber tows

The permeability of a porous medium can usually be approximated by analytical models such as *Blake-Kozeny-Carman* equation.²⁹ This model has often been used to predict the axial permeability of aligned unidirectional fiber tows with a reasonable consistency with experimental values.³⁴ Let $r_f = d_f/2$ denote the radius of the tow filaments. Equation (4.20) can be rewritten as an unidirectional *Darcy's* law using *Blake-Kozeny-Carman* model.^{21, 34} This yields the following analytical expression of the axial permeability of the fiber tow:

$$K_{Kozeny} = \frac{r_f^2}{4 k_{KC}} \cdot \frac{(1 - V_f)^3}{V_f^2} = \frac{1}{k_{KC}} \cdot \frac{1 - V_f}{S_{pv}^2} \quad (4.44)$$

where

$$S_{pv} = \frac{4}{d_h} = \frac{4}{d_f} \frac{V_f}{(1 - V_f)} = \frac{2}{r_f} \frac{(1 - \phi_{tow})}{\phi_{tow}} \quad (4.45)$$

and *Kozeny* constant k_{KC} defined as follows as a function *Kozeny* geometrical constant k_o :²⁹

$$k_{KC} = k_o \tau^2 \quad (4.46)$$

Using equations (4.44) and (4.46), equation (4.21) becomes:

$$\beta_h = \frac{K_{Kozeny}}{(1-V_f)} \frac{\rho g}{\mu} = \frac{1}{k_o \tau^2 S_{pv}^2} \cdot \frac{\rho g}{\mu} = \frac{d_h^2}{16 k_o \tau^2} \cdot \frac{\rho g}{\mu} \quad (4.47)$$

Thus, substituting equations (4.16), (4.45) and (4.47) in equation (4.25) gives a new theoretical prediction of the *LW* slope B_h^{theo} as follows:

$$B_h^{theo} = \frac{2 f_{geo}}{k_o \tau^2 S_{pv}} \cdot \frac{\gamma_{lv} \cos \theta}{\mu} = \frac{f_{geo}}{2 k_o} \cdot \frac{d_h}{\tau^2} \cdot \frac{\gamma_{lv} \cos \theta}{\mu} = \frac{f_{geo}}{2 k_o} \cdot \frac{d_f \phi_{tow}}{\tau^2 (1-\phi_{tow})} \cdot \frac{\gamma_{lv} \cos \theta}{\mu} \quad (4.48)$$

The experimental axial permeability of fiber tows can be deduced by substituting equations (4.11) and (4.47) into equation (4.25) and by isolating the permeability term as follows:

$$K_{exp} = \frac{B_h (1-V_f) \mu}{2 P_{cap}} \quad (4.49)$$

The experimental permeability given by equation (4.49) can be compared to the analytical permeability derived from equation (4.44). This comparison allows estimating the experimental *Kozeny* constant k_{KC}^{exp} as follows:

$$k_{KC}^{exp} = k_o^{exp} \tau^2 = \frac{\frac{d_f^2}{16} \cdot \frac{(1-V_f)^3}{V_f^2}}{K_{exp}} \quad (4.50)$$

In order to evaluate the experimental permeability, the capillary pressure P_{cap} at equilibrium in a fiber tow needs to be characterized. This issue is addressed in the next section.

4.6.4 Capillary pressure at equilibrium

The capillary equilibrium height z_{eq} or the capillary pressure P_{cap} at equilibrium can be predicted from the mass and height data acquired during capillary rise tests.¹² As shown in Figure 4-2, the capillary rise is a very slow asymptotic phenomenon. Thus capillary tests must last a significant time, otherwise the evaluation of the equilibrium capillary height or pressure is underestimated.¹⁴ Indeed, in very long tests, it was observed that the experimental values of the equilibrium capillary height converge asymptotically to the theoretical value. Therefore, imbibition models would be more reliable if the equilibrium capillary height or pressure were computed from the properties of the fiber tow, of the fluid and of the fiber-fluid interface that would be derived experimentally from other characterization tests. The equilibrium capillary pressure in the fiber tows can be evaluated by the modified *Young-Laplace's* law of equation (4.16) as follows:¹¹

$$P_{cap} = f_{geo} \cdot S_{pv} \cdot \gamma_{lv} \cdot f(\theta) \quad (4.51)$$

$$\approx \cos \theta$$

Both nonlinear imbibition models I and III are put aside for further wicking analysis because the slow asymptotic behavior of the capillary rise leads to a systematic underestimation of the equilibrium capillary height z_{Jurin} and of the capillary pressure P_{cap} at equilibrium. Therefore imbibition models II and IV are combined with modified *Young-Laplace's* law (4.51) to characterize wicking flows in fiber tows, evaluate their axial permeability and global saturation.

4.7 Material characterization

4.7.1 Fiber tow characterization

In order to validate the morphological and wicking characterization of fiber tows by capillary rise, tests were carried out with a non crimp fabric and hexadecane as infiltration fluid. Fiber tows taken from a bidirectional non crimp fabric (NCF) were tested in this investigation (see Figure 4-3a). This fibrous reinforcement is made of *Vetrotex*TM glass warp (735 tex) and weft (275 tex) tows by *JB Martin*[®] (TG15N60A / #3028) stitched together by polyester binder filaments (17 tex). The polyester filaments hold the untwisted glass strands together as shown in Figure 4-3b. This unbalanced fabric has 45% of glass filaments along the warp and 55% along

the weft direction. The results of the fabric characterization are summed up in Table 4-1 and in Table 4-2. Note that the information provided by suppliers appear in parentheses in both tables.

Microscopic image analysis

In order to prepare fiber tows for microscopic analysis, laminates were made by capillary impregnation with *D.E.R.383* epoxy resin mixed with 30 PHR of amine hardener in order to cure at room temperature with low shrinkage. After the resin is fully cured, samples were cut out with a diamond saw, cast in epoxy and polished with sanding papers (60,120, 240, 400 - 15 μm grains) as well as polishing pastes (9 μm and 1 μm grains). The samples were analyzed by a *JEOL JSM840* scanning electron microscope (SEM), an optical microscope from *Nikon Japan LU1176C-Clemex* and an *Olympus SZ61* binocular microscope. The filament diameters and the total cross-sectional areas of the fiber tows were measured by boundary detection and ellipse fitting algorithms available in *Matlab*. The mean diameters of the warp and weft filaments turned out to be about 14.9 μm and 13.1 μm respectively. The average cross-sectional areas of the warp and weft tows of elliptical shape were found to be respectively 0.54 mm^2 (2.20 mm $\times$ 0.32 mm) and 0.178 mm^2 (1.347 mm $\times$ 0.168 mm).

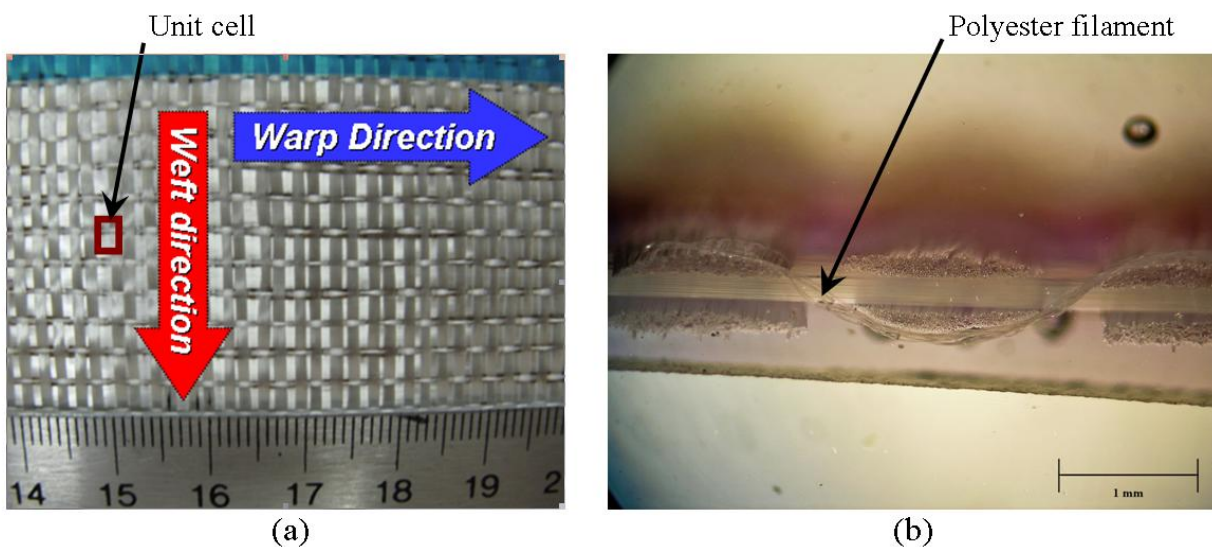


Figure 4-3 : Pictures of the *TG15N60A* E-glass NCF from *JB Martin®*:
 (a) picture showing the warp and weft directions and fabric unit cell;
 (b) binocular microscopic image along the weft showing a polyester binding filament.

The filament tow packing, tow porosity and the number of filaments per tow were also evaluated from the microscopic images (see Figure 4-4a). From this analysis, the warp and weft tows turn out to possess around 1660 and 780 filaments respectively. The filament tow packing follows more a square rather than hexagonal configuration. Local tow porosities showed significant variability in the microscopic images. Indeed, the warp and weft tows gave approximate values of porosity around 49% and 50% respectively with 20% relative variability. Thus, it would be more convenient to characterize the wicking properties of fiber tows and get the LW slopes (4.25) and (4.34) from the imbibition of a significant number of fiber tows. It was observed that for the same tow porosity, two experiments can give different rates of impregnation if they exhibit different levels of heterogeneity in pore size distribution.¹⁶

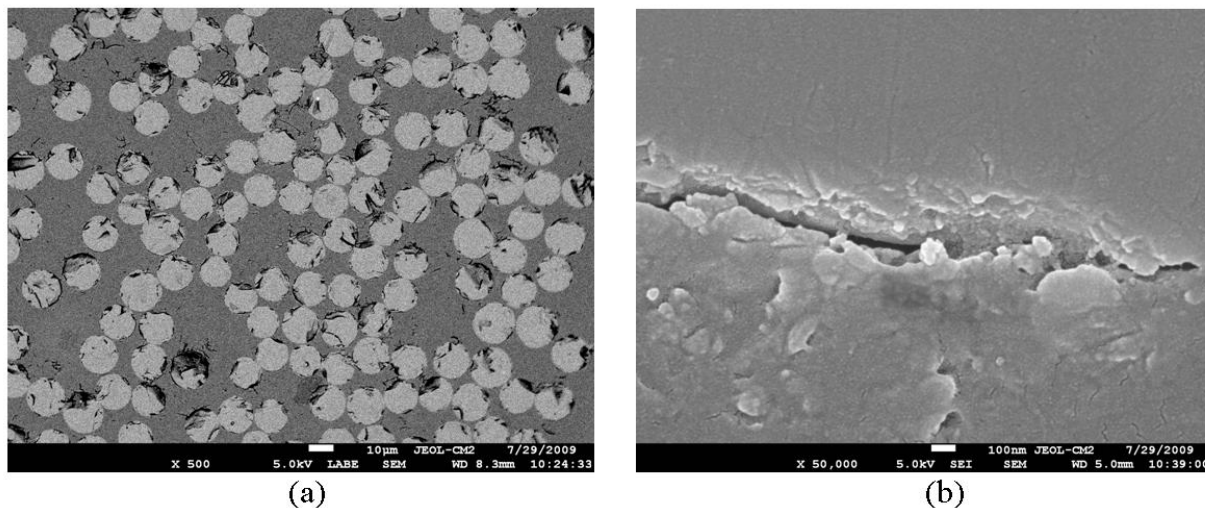


Figure 4-4 : Microscopic (SEM) image of fiberglass tow:
 (a) showing the filament distribution;
 (b) SEM image of the resin-fiber interface.

Thermogravimetric analysis

A Q500 thermogravimetric analyzer (TGA) from TA Instruments was used to measure the degradation temperature T_{sizing} of the sizing and the sizing mass fraction R_{sizing} in the fiber tows. As shown in Table 4-1, the fabric starts to degrade at 245°C due to the presence of this fiber sizing.

A pyrolytic oven was used to evaluate the sizing mass fraction of the fiber tows, which turned out to be around 0.4%.

Analysis of the final uptake fluid mass

The final uptake fluid mass in the fiber tows was characterized from the capillary rise experiments using a *CP225D Sartorius* micro-balance (10 μg resolution) and a totally wetting fluid of low volatility (*Sigma-Aldrich*® 99% pure hexadecane). The tow porosity was calculated from the known fiber volume of the tow samples and the total volume of fluid absorbed by capillarity. The final uptake fluid mass measured after capillary rise experiments gave values of the warp and weft tow porosity around 45% and 44% respectively. These analyses showed to have a lower variability than the 2D microscopy analyses. Finally, the mass density of glass ρ_{glass} measured by buoyancy principle was of 2.57 g/cm^3 , which is close to the value of 2.6 g/cm^3 given by the manufacturer.

Specific surface area of the fiber tows

The specific surface areas of the weft and warp tows were measured with an *Autosorb-1 B.E.T.* characterization apparatus from *Quantachrome*®. As mentioned previously, the *B.E.T.* characterization method is based on the multilayer adsorption theory of gas molecules on a solid surface. This technique can be used to measure the specific surface area S_m per unit mass of porous materials by evaluating the molar volume of adsorbed gas on the surface of the porous material.²⁵ Nitrogen was used in the current surface analysis. Unfortunately, the specific surface areas of the current glass tows were too low to be accurately characterized with nitrogen. For this range of specific surface areas, krypton would have been more appropriate than nitrogen, but this gas was not available to conduct the analysis.³⁵

Table 4-2 gives the tow specific surface areas, which confirmed the already high variability of tow properties observed by visual and microscopic image analysis. Indeed, the warp and weft tow specific surface areas S_m per unit mass were found to be around 0.09 m^2/g and 0.11 m^2/g with a relative variability of 20%. Moreover, assuming the fibers to be smooth cylinders

packed in a regular array, the tow specific surface areas S_m per unit mass can be estimated by equation (4.12). The estimated values confirmed those obtained by *B.E.T.* characterization. As reported in Table 4-2, the specific areas S_m calculated by equation (4.12) for the warp and weft tows were $0.104 \text{ m}^2/\text{g}$ and $0.119 \text{ m}^2/\text{g}$ respectively. Finally, the values of the specific surface area S_{pv} per unit of pore volume estimated by equation (4.15) overlapped once again in the warp and weft directions as reported in Table 4-2. Indeed, the calculation of S_{pv} based on 2D microscopic characterization of the tow porosity and filament diameter gave $2.8 \times 10^5 \text{ m}^{-1}$ and $3 \times 10^5 \text{ m}^{-1}$ for the warp and weft tows respectively. Furthermore, the calculation of S_{pv} based on 3D *B.E.T.* tow characterization was consistent with a lower variability with the analysis of the final uptake fluid mass in the warp and weft tows. According to this 3D characterization, S_{pv} values of the warp and weft tows were found to be $2.8 \times 10^5 \text{ m}^{-1}$ and $3.6 \times 10^5 \text{ m}^{-1}$ respectively.

Porometry analysis

The range of the hydraulic diameters of the weft and warp tows was investigated on samples of fabric ply with a *Porometer 3Gzh* from *Quantachrome*. Pore size measurements were carried out by in-plane capillary flow porometry by expulsion of a totally wetting liquid (*Porofil™* from *Beckman Coulter Corp.*). This method gives the microscopic pore size distribution of the fabric. As reported in Table 4-2, a wide range of pore sizes between $8.76 \text{ }\mu\text{m}$ and $16.04 \text{ }\mu\text{m}$ with an average value of $12 \text{ }\mu\text{m}$ was obtained. This result is consistent qualitatively with microscopic observations. Applying equation (4.10) to the tow microscopic porosity and filament diameter gives equivalent hydraulic diameters of $12 \text{ }\mu\text{m}$ and $10 \text{ }\mu\text{m}$ for the warp and weft tows respectively.

Discussion

The results of Table 4-2 show also that the total cross-sectional areas of the warp and weft tows evaluated by microscopic image are consistent with the values obtained by tow imbibition and gravimetric measurements. Indeed, in both directions and for both characterization strategies, the tow cross-sectional areas overlap. According to the microscopic analysis, the warp tow area was approximately three times (3.0 ± 0.9) larger than the weft tow area. This is consistent with the

experimental results of Table 4-1 obtained from total tow imbibition experiment (2.9 ± 0.3). Note that the tortuosity τ of the fiber tows is considered to be close to unity, because of the non-crimp structure of the current fabric. Finally, the nearly quadratic filament packing implies that *Kozeny* geometrical constant k_o should be around $57/32$.³⁴ Note that the warp and weft tows have similar specific surface areas and tow porosity. Thus the experimental values of fiber tow permeability derived from further wicking characterization should be close. It is worth recalling that the information that appears in parentheses in Table 4-1 and Table 4-2 are provided by the fabric supplier.

Table 4-1 : Properties of the JB Martin TG15N60A non-crimp fabric

Properties ¹		values from standard characterization methods ²	values from capillary rise method or supplier ³	units
Fabric	Vetrotex® glass mass density ρ_{glass}	2.57 ± 0.06	(2.6)	g/cm^3
	Sizing mass ratio R_{sizing}	0.4 ± 0.1	(0.55 ± 0.15)	%
	Sizing degradation temperature T_{sizing}	245	—	°C
	Anisotropy ratio of pores R_a^{tow} (4.43)	3.0 ± 0.9	2.9 ± 0.3	—

¹ All characterizations were carried out at room temperature ($22.5 \pm 2.5^\circ\text{C}$) with a relative humidity of $22 \pm 5\%$.

² Standard methods are microscopy, porometry by liquid expulsion, *B.E.T.* analysis and gravimetry.

³ Information provided by the fabric supplier are given in parentheses.

Table 4-2 : Properties of fiber tows of the JB Martin TG15N60A non-crimp fabric

Properties ¹		values from standard characterization methods ²	values from capillary rise method or supplier ³	units
Warp direction	Filament diameter d_f	14.9 ± 0.1	(15)	μm
	Number of filaments per tow N_f	1660 ± 60	(1600)	—
	Total cross-section area A_{tow}	0.54 ± 0.03 $2.20 \pm 0.02 \times 0.32 \pm 0.01$	0.52 ± 0.02	mm^2
	Microscopic porosity ϕ^{warp} (4.36)	49 ± 8	45 ± 2	%
	Specific surface area per unit mass S_m (4.12)	0.09 ± 0.01	0.104 ± 0.003	m^2/g
	Specific surface area per unit pore volume S_{pv} (4.15)	2.8 ± 0.9	2.8 ± 0.4	$\times 10^5$ m^{-1}
	Hydraulic diameter d_h (4.10)	12 ± 2 ; 8.76 to 16.04	12 ± 1	μm
	LW slope with hexadecane B_h^{theo} (4.48)	4 ± 1	2.7 ± 0.2	$\times 10^{-5}$ m^2/s
Weft direction	Filament diameter d_f	13.1 ± 0.2	(13)	μm
	Number of filaments per tow N_f	780 ± 40	(800)	—
	Total cross-section area A_{tow}	0.178 ± 0.009 $1.347 \pm 0.007 \times 0.168 \pm 0.007$	0.186 ± 0.009	mm^2
	Microscopic porosity ϕ^{weft} (4.36)	50 ± 10	44 ± 4	%
	Specific surface area per unit mass S_m (4.12)	0.11 ± 0.02	0.119 ± 0.003	m^2/g
	Specific surface area per unit pore volume S_{pv} (4.15)	3 ± 1	3.6 ± 0.7	$\times 10^5$ m^{-1}
	Hydraulic diameter d_h (4.10)	12 ± 2 ; 8.76 to 16.04	10 ± 2	μm
	LW slope with hexadecane B_h^{theo} (4.48)	3 ± 1	2.3 ± 0.3	$\times 10^{-5}$ m^2/s

¹ All characterizations were carried out at room temperature ($22.5 \pm 2.5^\circ\text{C}$) with a relative humidity of $22 \pm 5\%$.² Standard methods are microscopy, porometry by liquid expulsion, B.E.T. analysis and gravimetry.³ Information provided by the fabric supplier are given in parentheses.

4.7.2 Characterization of the infiltration fluid

A probe liquid with fluorescent tracer has been selected to carry out the capillary rise tests on fiber tows. These experiments allow investigating the wicking properties of the fiber tows. A 99% pure hexadecane from *Sigma-Aldrich*® was used in this work as infiltration fluid. This fluid was chosen because of its totally wetting behavior, its low volatility (low vapor pressure) and its non-hygroscopic behavior. This liquid was blended with a fluorescent tracer (0.1g/liter) to improve the impregnation traceability. This increased the contrast between the capillary front and the glass fibers and prevented the fading of the flow front in time. The UV-excited *Pyrromethene 567A* from *Exciton*® was chosen for its high solubility in the fluid. This visual monitoring approach is based on a non destructive testing method called the *Dye Penetration Inspection (DPI)*.

All the properties were characterized at room temperature ($22.5 \pm 2.5^{\circ}\text{C}$) at a relative humidity (RH) of $22 \pm 5\%$. The mass density was measured with a 25 ml pycnometer from *Fisher Scientific*® and a *CP225D* balance from *Sartorius*®. The dynamic viscosity was measured with a double Couette geometry, at a constant shear rate of 10 s^{-1} , by a *MCR-501* rheometer from *Anton-Paar*®. The surface tension was evaluated with a *K14* force tensiometer from *Krüß*® and a platinum-iridium *Wilhelmy*'s plate of known wetted perimeter.

Based on equation (4.37), the same tensiometer allowed measuring the dynamic contact angle and the wetted perimeter on glass filaments. For this purpose, the measurement speed was set to 3 mm/min in order to minimize the viscous and inertial effects and remain close to the range of capillary flow velocity. Moreover, segments only 3 to 4 mm long were used to ensure the rigidity of the filaments during the measurement.¹⁵ Tensiometry was preferred over optical goniometric measurements, because the curved surface of the filaments makes it more difficult to evaluate the contact angle by an optical method.¹⁹ The dynamic contact angle of hexadecane on glass filaments was estimated to zero degree, thus exhibiting totally wetting behavior for a typical range of spontaneous imbibition velocity.

Tensiometric measurements were also used to evaluate the apparent contact angle between the fiber bundles of the fibrous reinforcement and the probe fluid. Indeed, equation (4.38) gives the contact angle from the mass jump during the initial contact between the fibers and pure hexadecane. Warp tows were chosen for their significantly larger wetted perimeter than weft tows, thus the corresponding mass jump reading was higher, which improves the relative resolution of the micro-balance measurement. The characterization setup was first used in conjunction with a reference fluid of known properties such as a 99% pure hexane to evaluate the average wetted perimeter of warp tows, and then with the infiltrating hexadecane to measure by equation (4.38) the contact angle with warp tows. Finally, for comparison purpose, a static contact angle analysis between a reference surface of clean glass and the hexadecane probe fluid was also conducted with a *NRL-100* optical goniometer from *Ramé-Hart®*. The measured physical properties are reported in Table 4-3. Both measurements of apparent static contact angle between hexadecane and fiber tows or a clean glass surface gave zero degree, thus confirming the totally wetting behavior of the probe fluid. Finally, it is worth noting that all the properties of the probe fluid characterized here and reported in Table 4-3 were consistent with data from hexadecane supplier (*Sigma-Aldrich®*) and with the scientific literature.³⁶

Table 4-3 : Probe fluid and interfacial properties

	density (kg/m ³)	dynamic viscosity (mPa·s)	surface tension (mN/m)	advancing dynamic contact angle (degree)	static contact angle (degree)
<i>Sigma-Aldrich®</i> 99% pure hexadecane	767,1948 ± 0.0004	3.51 ± 0.01	27.50 ± 0.03	~ 0	~ 0

4.7.3 Characterization of the fiber tow variability

It is important to point out that the perimeter of the filaments and interfacial properties such as the advancing and static contact angles (which depend also on the fiber characteristics) exhibit a significant variability. This arises from variations in the filament size, local morphological

heterogeneity of the filaments and irregular surface roughness generated by abrasion from the spinning and weaving fabrication process. A wetted perimeter analysis by force tensiometry with 99% pure hexane yielded warp and weft filament diameters of $15 \pm 2 \mu\text{m}$ and $13 \pm 6 \mu\text{m}$ respectively.

An additional variability stems from the chemical heterogeneity resulting from surface contamination of the filaments during manual handling of the fiber tows and from the high speed surface coating process (2-4 km/min).^{19, 37} Indeed, during the treatment in the sizing bath, all the filaments are not coated in the same fashion. Actually, they are not treated one by one, but rather in bundles. Consequently, two types of filaments arise from this process. Firstly, outer filaments are covered by sizing and have been grafted to atmospheric contaminants that decrease their surface energy.³⁸ On the other hand, inner filaments are held together by the film forming agent. When pulled out of the bundle, their surfaces exhibit patches of higher surface energy. This variation in sizing distribution on the fiber surface results in inhomogeneous wicking, preferential wetting, and thus microscopic void formation inside the fiber bundles.³⁷ This non uniform flow has been noticed in long-run wicking tests, during which the capillary front exhibits a parabolic shape inside the fiber tows (see Figure 4-7a for an example of such a capillary front in a fiber bundle).

For these reasons, the characterization of morphological and interfacial properties from single filament analysis can become cumbersome and non representative of the fabric-polymer interactions.¹⁹ It is more appropriate and efficient to characterize this kind of properties on a bundle of filaments by the capillary rise method.¹⁵ In this respect, the LW slopes B_h of the capillary rise of hexadecane in warp and weft tows can be estimated by equation (4.48), considering the tow tortuosity equal to unity. These values of LW slopes were calculated with the fiber tow properties of Table 4-1 and Table 4-2 together with the hexadecane properties of Table 4-3. These values were computed either from the mass density of glass ρ_{glass} , the tow specific surface area S_m and the tow microscopic porosity ϕ obtained by image analysis or rather from the filament diameter and the tow microscopic porosity ϕ obtained by analysis of the final uptake fluid mass. The B_h slope values are reported in Table 4-2. The slope predictions for the warp and

weft tows were respectively $4 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ and $3 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ with the first strategy and $2.7 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ and $2.3 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ with the second one. These values were calculated for sake of comparison with the capillary rise results of the next section.

4.8 Experimental setup

An experimental setup based on uptake fluid mass monitoring coupled with fluorescence visualization of the capillary front was developed to study the microscopic impregnation inside fiber tows by the capillary rise method. Although this approach was already used to study colloid transport in granular porous media, fluorescence visualization is used here for the first time with engineering fabrics. After describing the experimental setup, examples of capillary front analysis by image processing are presented.

4.8.1 Capillary rise experimental setup

A capillary rise setup has been developed to monitor simultaneously the flow front position and the uptake fluid mass by spontaneous imbibition during 24 hours. It is composed of a 14.7 megapixels *Powershot G10* digital camera from *Canon*® and a high resolution scale *CP225D* from *Sartorius*®. The digital camera was remotely controlled via the *GB Timelapse* software from *Granite Bay Software*® and each capture of the capillary rise progression was taken at a specific rate of 1 image per 5 seconds. The liquid containers used here were standard rheometer capsules of 63.0 mm in diameter by 9.6 mm deep. The high surface area of the liquid containers with respect to the total fluid uptake volume absorbed by the fiber tows allows minimizing buoyancy force variations during wicking tests as a result of a decrease in the liquid level.

In order to control the fiber tow velocity when it comes in contact with the liquid surface, a motorized linear stage from *Newport*® moves the liquid container as shown in Figure 4-5. The model of motorized stage chosen was the *UTM100CC* with a minimal velocity of $0.1 \text{ } \mu\text{m/s}$, which is in the order of magnitude of commercial tensiometers. A control software was developed to stop the motor once the fiber tow touches the liquid surface, which translates in a

mass jump on the scale reading. The aluminum frame of the *YDK01 Sartorius*® density kit was used to perform the capillary rise tests on fiber bundles as shown in Figure 4-6. The fiber tows were characterized in their natural state without any glass sleeve or mass preloading by weight attachment to avoid tow fraying or edge effect possibly caused by fiber tow alterations.¹⁷ One of the fiber tow tips was sandwiched between two small stripes of adhesive tape. This modified tip of the fiber tow was then installed on the support ring of the balance frame in order to maintain the fiber bundle vertically during the capillary rise tests. At the end of each imbibition test, the length of the fiber tows was measured by image analysis on the last pictures recorded. Two 15 Watts UV-black light bulbs from *Phillips*® were used to follow the progression of the fluids blended with the fluorescent dye. The complete setup was installed in a darkroom to facilitate the recording of the capillary rise.

4.8.2 Image post-treatment

After a capillary rise test, the images recorded at constant time step are post-processed by a *Matlab* program devised as follows:

1. Fluorescent-coloured pictures are converted into gray levels by Hue-Saturation-Intensity (*HIS*) algorithm.
2. In order to track the capillary front, the program performs a binary conversion using *Otsu*'s thresholding algorithm.³⁹
3. Finally, edge filtering is applied on binary pictures in order to discard noisy pixels. The pixels are removed on each pixel column except the pixel of maximum height.

This automated strategy was found to be robust and efficient to track the capillary front despite the variable brightness of the images recorded. Two factors contributed to this variable brightness: (1) the variable shutter speeds of the semi-automatic camera; and (2) the total increase in brightness resulting from the use of fluorescent liquids. Figure 4-7 illustrates the tracking process on images of the capillary front. Figure 4-7a shows a typical raw image recorded by the remote control software. Figure 4-7b gives the successive capillary front positions evaluated by

Otsu's algorithm and edge filtering. The average flow front positions and standard deviations were computed at each time step from the pixel images.

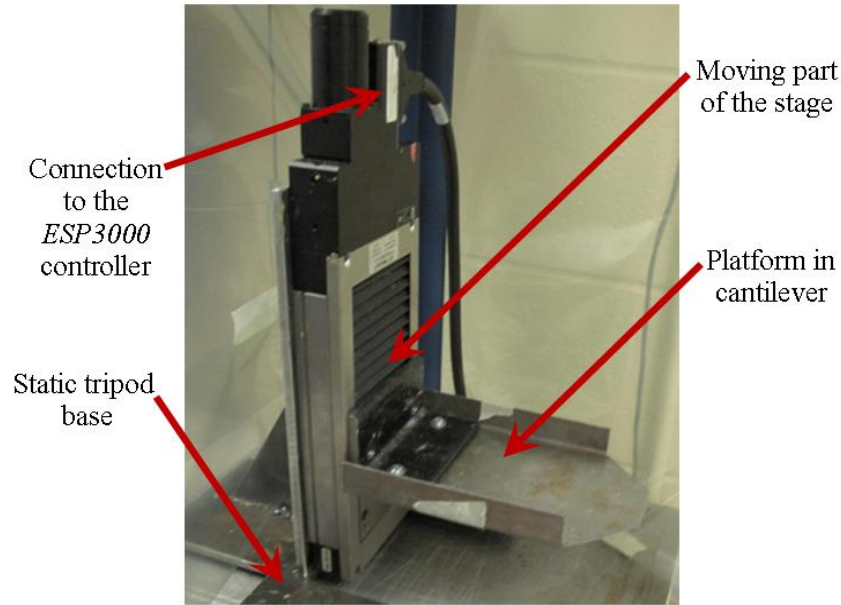


Figure 4-5 : Newport® motorized stage with a rigid platform in cantilever configuration bolted on its moving part.

4.9 Experimental results

4.9.1 Verification of basic assumptions

The capillary rise experiments were conducted at room temperatures ($22.5 \pm 2.5^\circ\text{C}$ and $22 \pm 5\%$ relative humidity) and atmospheric pressure ($95 \pm 6 \text{ kPa}$) on warp and weft fiber tows with fluorescent hexadecane. From these wicking tests, the *Young-Laplace's* equation (4.2) was validated by comparing the characteristic capillary length l_{cap} defined by equation (4.8) with the equivalent hydraulic diameters d_h in both fiber directions reported in Table 4-2. Note that l_{cap} was estimated from the properties of hexadecane of Table 4-3. Accordingly, the characteristic capillary length was found to be around 4 mm, which is significantly larger than the hydraulic diameters of the warp and weft tows estimated respectively around $12 \mu\text{m}$ and $10 \mu\text{m}$ (see Table

4-2). The liquid columns in both fiber tow directions exhibit also *Bond* numbers that can be estimated by equation (4.9) to be about 10^{-6} , thus the capillary effect dominates over gravity.

Besides, the experimental *Reynolds* number of the current capillary flows inside fiber tows was evaluated to verify the hypothesis of creeping flow modeled by *Darcy's* law. Indeed, they were evaluated using a length scale equal to the hydraulic diameter of fiber tows, the mass density and the dynamic viscosity of hexadecane and a characteristic velocity v evaluated for a penetration distance equal to a capillary length l_{cap} of 4 mm. Note that v was obtained by differentiation of *Lucas-Washburn* model of capillary front evolution in equation (4.24). Thus, the range of experimental *Reynolds* numbers defined by:

$$Re = \frac{\rho v d_h}{\mu} \quad (4.52)$$

was evaluated from the following expression of the characteristic velocity v :

$$v = \frac{B_h}{2z}, \quad z \in [l_{cap}, l_{total}] \quad (4.53)$$

As reported in Table 4-4, the capillary flows inside fiber tows gave experimental *Reynolds* numbers below 10^{-2} . Accordingly, *Darcy's* law can be applied to these creeping flows, i.e., inertial effects can be neglected.²⁹ Finally, as shown in Figure 4-8, the capillary rise setup has allowed investigating and covering a wide spectrum of capillary numbers, as reported in Table 4-4. This dimensionless number is defined as follows:

$$Ca = \frac{\mu v}{\gamma_{lv}} \quad (4.54)$$

where the characteristic velocity v is still given by equation (4.53). Two orders of magnitude of capillary numbers are covered by this setup, starting from around 10^{-3} down to about 10^{-5} , which is considered close to the equilibrium state.²⁷ For this range of capillary numbers, the viscous drag is expected to affect only slightly the contact angle.^{19, 27} Thus, the dynamic wettability term can be neglected.

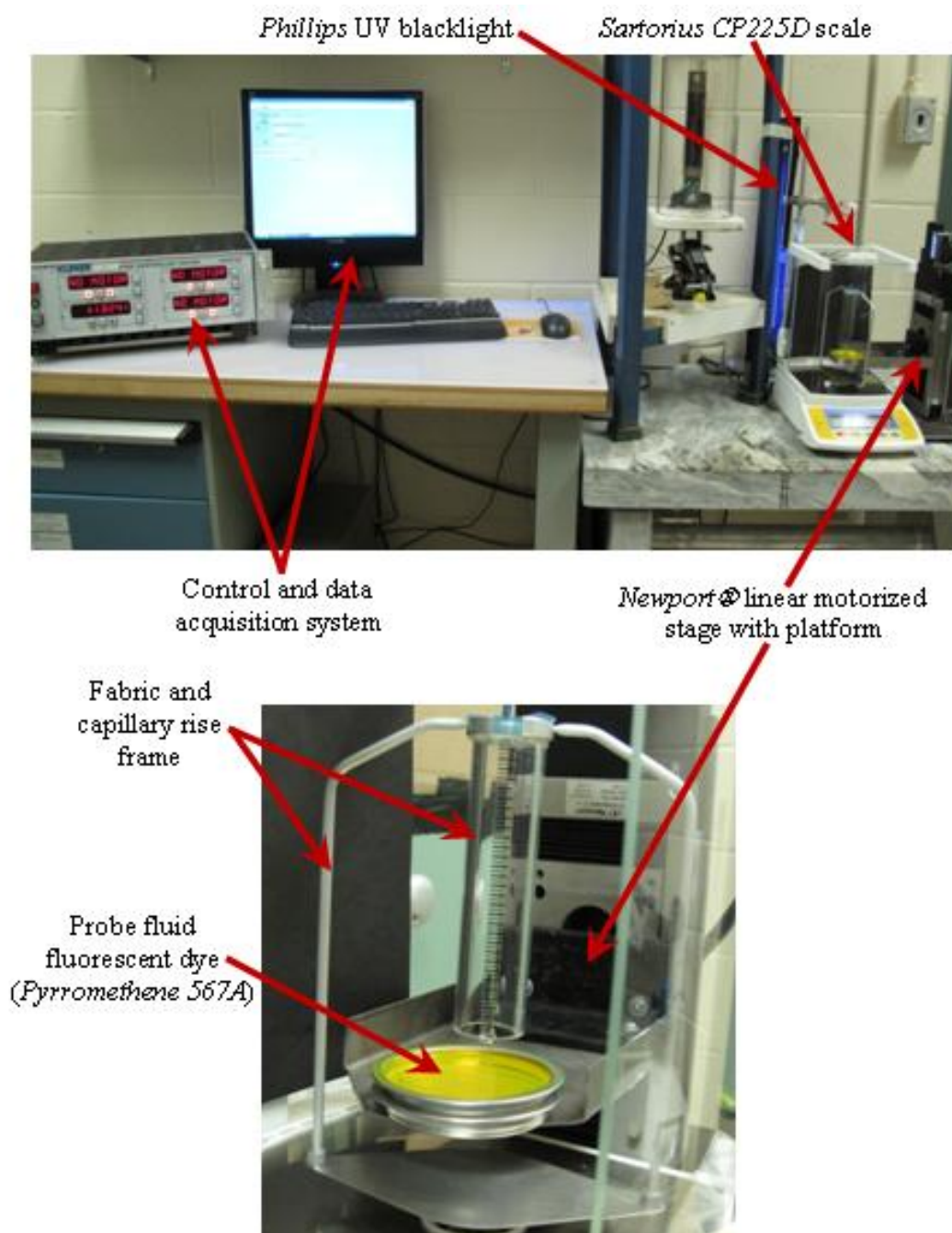


Figure 4-6 : Capillary rise setup devised to follow the capillary front positions and the total uptake UV-dyed fluid mass.

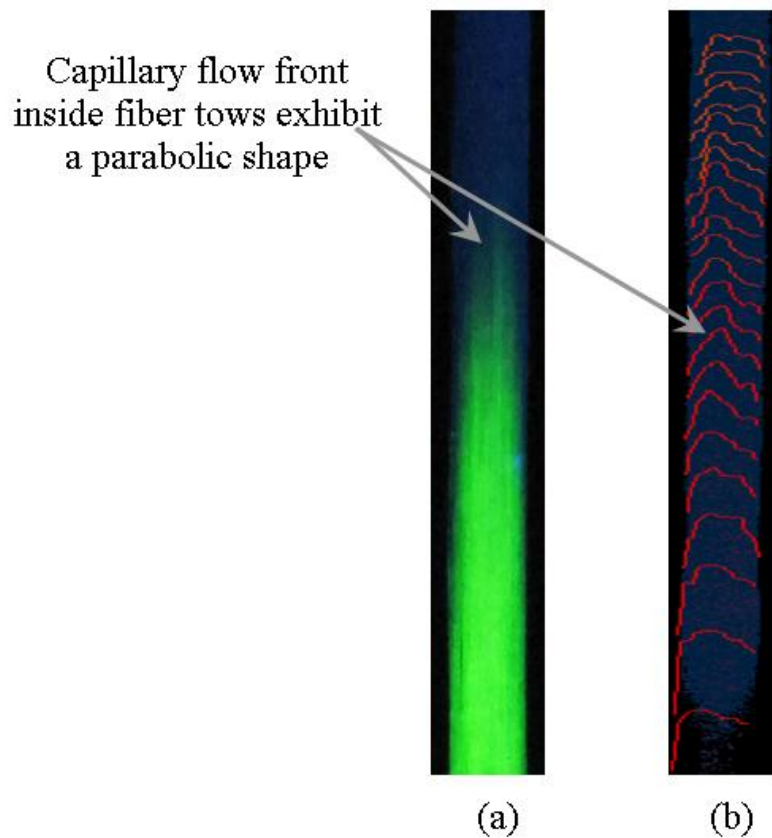


Figure 4-7 : Capillary flow front tracking inside a fiber bundle with *Otsu's* algorithm.

(a) raw picture of capillary flow without image post-treatment;

(b) successive flow front positions inside a fiber bundle plotted by *Matlab*.

Table 4-4 : Dimensionless numbers in warp and weft imbibition tests with hexadecane

Properties	warp fiber tow	weft fiber tow	units
Capillary length l_{cap} (4.8)	$3,823 \pm 0.002$		mm
Bond number Bo (4.9)	2.2 ± 0.2	2.3 ± 0.2	$\times 10^{-6}$
Range of Reynolds number Re (4.52)	[0.02 – 0.50]	[0.02 – 0.50]	$\times 10^{-2}$
Range of Capillary number Ca (4.54)	[0.01 – 0.35]	[0.01 – 0.35]	$\times 10^{-3}$

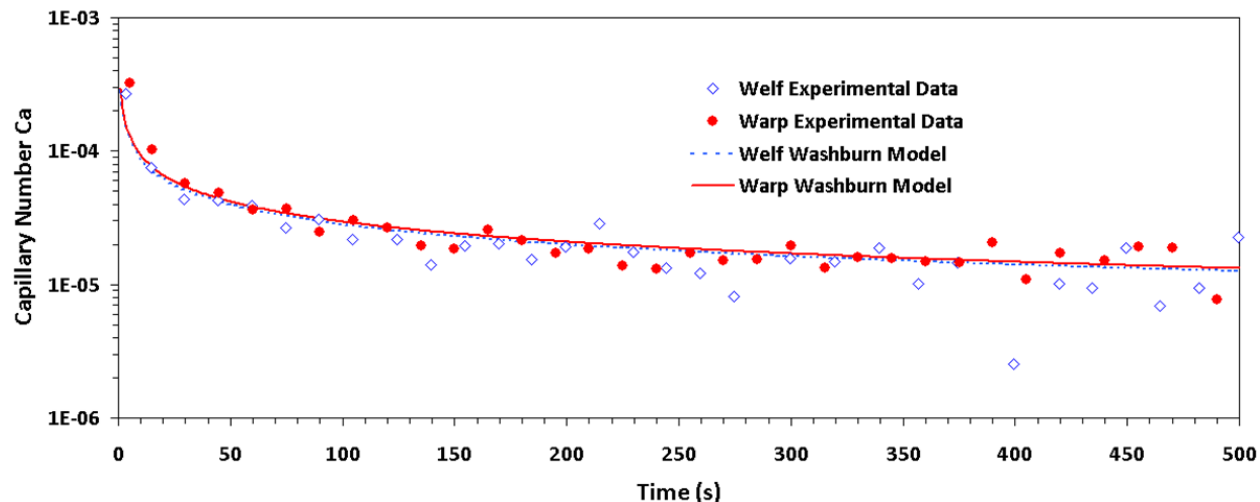


Figure 4-8 : Evolution of the capillary number during capillary rise tests in fiber tows.

4.9.2 Wicking along fiber tows with sizing

As presented in Figure 4-8, the evolution of the wicking mass was monitored and used to compute the total uptake fluid volumes into the fiber warp and weft tows. These values in conjunction with equation (4.36) give the average microscopic porosity of the warp and weft tows of 43% and 47% respectively (see Table 4-5). In Figure 4-9, the warp tow has sucked up more fluid than the weft tow, because its average effective cross-section for capillary flow is larger than the weft one. Indeed, as reported in Table 4-1 and in Table 4-2, each warp tow features more microscopic flow openings than the weft tow. Hence, the capillary channels in the warp direction have larger hydraulic diameters than along the weft. Furthermore, the theoretical warp and weft specific surface areas S_{pv} per unit pore volume have been evaluated by equation (4.15). These theoretical values of specific surface area for the warp and weft tows were calculated from data on tow filament diameter and tow microscopic porosity reported respectively in Table 4-2 and Table 4-5. The theoretical values for the warp and weft tows were found to be respectively $(3.45 \pm 0.09) \times 10^5 \text{ m}^{-1}$ and $(3.52 \pm 0.06) \times 10^5 \text{ m}^{-1}$. The latter values are overlapping and will be used in the sequel to estimate the capillary pressure at equilibrium by *Young-Laplace's* equation (4.51) and *Jurin's* height by the modified *Jurin's* law (4.11).

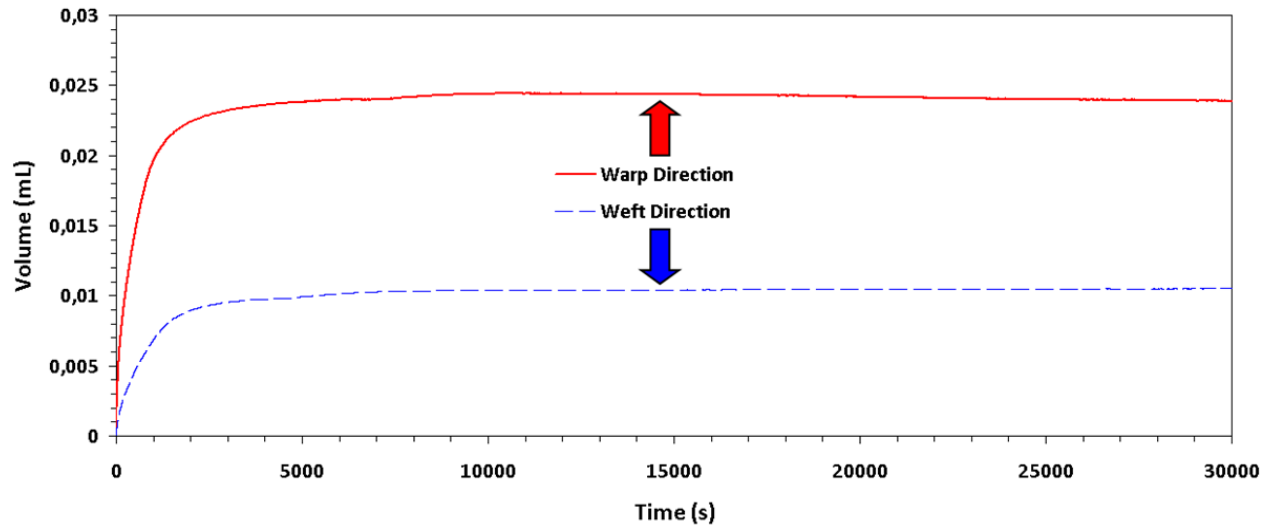


Figure 4-9 : Imbibition volume evolution in time during capillary rise tests with hexadecane on fiber tows along the warp and weft directions.

Figure 4-10 and Figure 4-11 show the wicking mass and height evolutions along the warp and weft fiber bundles with sizing, which follow closely the linear model of *Lucas-Washburn* (*LW*) for capillary flows. The *LW* height (4.24) and weight (4.33) slopes and the fiber tow properties evaluated from these wicking tests are reported in Table 4-5. These *LW* slopes were obtained by fitting the imbibition models of capillary height and uptake fluid mass experimental data by a least-square regression algorithm. Despite their distinctive microscopic architectural properties, the warp and weft tows with sizing exhibit a similar wicking behavior as reported in Table 4-5. First, the height imbibition rates B_h (4.25) of the warp and weft tows were around $2.14 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ and $1.95 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ respectively. The relative difference between both values is less than the typical experimental error of 10%. Furthermore, these experimental results are consistent with previous analytical predictions of height imbibition rates B_h^{theo} carried out in the material characterization section and reported in Table 4-2. Indeed, the predictions of height imbibition rates for the warp and weft tows were respectively $(2.7 \pm 0.3) \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ and $(2.3 \pm 0.3) \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$. Given their respective uncertainties, the analytical and experimental values of *LW* slopes almost overlapped.

Two additional capillary rise tests were carried out on fiber tows with sizing to check the measurement repeatability of the LW slopes along the warp and weft directions. The new LW slopes of the capillary height evolution for warp and weft tows were found to be $(2.21 \pm 0.04) \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ and $(1.9 \pm 0.1) \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ respectively, which is very close than the previous result. Moreover, the new LW slopes of uptake fluid mass evolution for the warp and weft tows were respectively $(24.6 \pm 0.1) \times 10^{-14} \text{ kg}^2/\text{s}$ and $(2.22 \pm 0.04) \times 10^{-14} \text{ kg}^2/\text{s}$. Based on the final uptake fluid mass after imbibition, the microscopic porosity of the warp and weft tows was found to be $44 \pm 1\%$ and $48 \pm 1\%$ respectively. This second set of experimental values overlaps the first set of experimental microscopic porosity and LW slopes B_h and B_m reported in Table 4-5. Thus, a good repeatability of the experimental LW slopes was obtained, which confirms the robustness of the fluorescence approach to characterize wicking flows in fiber tows by capillary rise experiments. Note that a repeatability error below 5% on tow wicking rates was reported by Scher in a previous investigation.¹⁹

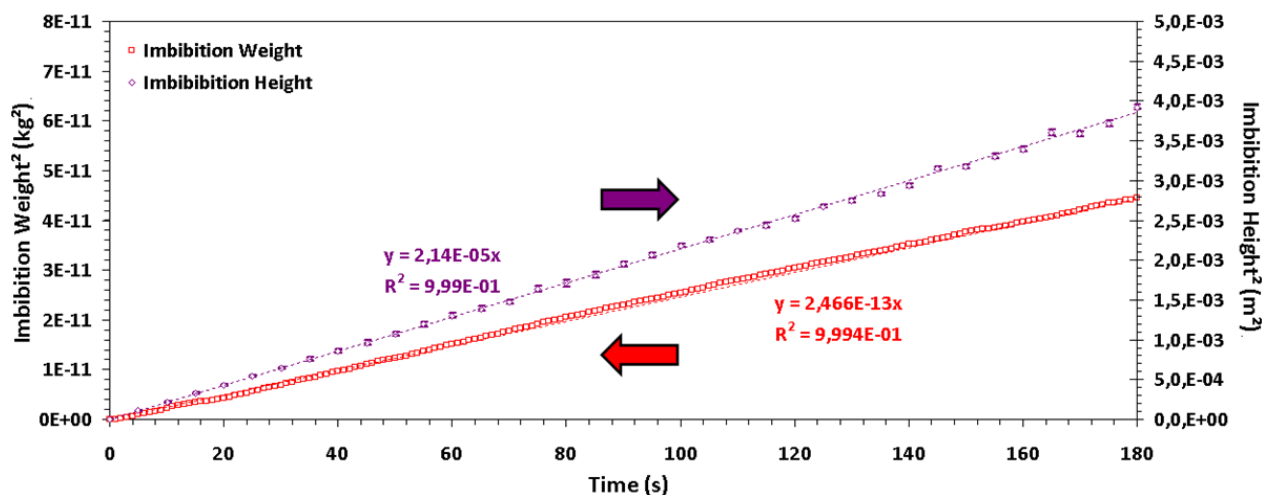


Figure 4-10 : *Lucas-Washburn* fits on height and mass evolutions of hexadecane in warp fiber tows.

The warp and weft tows exhibit values similar to the theoretical capillary pressure as computed by equation (4.51). Indeed, their respective values were 9.7 kPa and 9.5 kPa, and thus overlap. The same kind of result is observed for *Jurin* heights (4.16) in the warp and weft tows

that are respectively 1.28 m and 1.26 m. These results confirm the conclusion of the previous section showing a similar wicking behavior along the warp and weft tows. Finally, the *Jurin* heights computed in Table 4-5 confirm a consequence of *Lucas-Washburn* law (4.24), which states that imbibition heights are much lower than equilibrium heights.

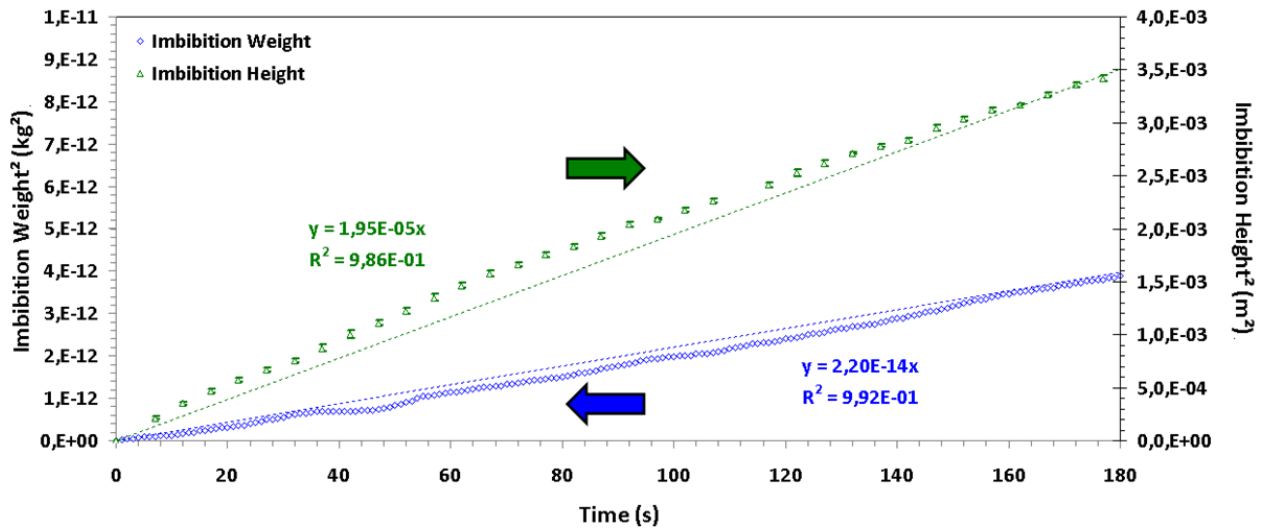


Figure 4-11 : *Lucas-Washburn* fits on height and mass evolutions of hexadecane in weft fiber tows.

Table 4-5 : Results extracted directly from warp and weft imbibition tests with hexadecane

Properties	with sizing		without sizing (<i>LOI</i>)		units
	warp	weft	warp	weft	
Microscopic porosity (4.36)	43 ± 1	47 ± 1	51.2 ± 0.4	51 ± 1	%
Height <i>LW</i> slope B_h (4.24)	2.14 ± 0.05	1.95 ± 0.07	3.4 ± 0.1	2.24 ± 0.03	$\times 10^{-5}$ m^2/s
Weight <i>LW</i> slope B_m (4.33)	24.66 ± 0.08	2.20 ± 0.03	76 ± 1	3.08 ± 0.07	$\times 10^{-14}$ kg^2/s
Capillary pressure P_{cap} (4.51)	9.7 ± 0.4	9.5 ± 0.4	7.0 ± 0.1	8.1 ± 0.3	kPa
<i>Jurin's</i> height z_{Jurin} (4.16)	1.28 ± 0.05	1.26 ± 0.05	0.93 ± 0.02	1.07 ± 0.04	m

By assuming the tortuosity of the fiber tows in both directions to be equal to unity, the warp to weft anisotropy ratio R_a^{tow} of microscopic pore area $A_{\mu\phi}$ can be computed from equation (4.43) as follows:

$$R_a^{tow} = \frac{\sqrt{B_m/B_h}|_{warp}}{\sqrt{B_m/B_h}|_{weft}} = 3.2 \pm 0.1 \quad (4.55)$$

The warp to weft ratio of the microscopic pore area is consistent with the value of (3.0 ± 0.9) obtained from image analysis (previously presented in Table 4-1) and (2.9 ± 0.3) derived from the capillary rise experiments. In addition, Table 4-6 displays similarities between the axial permeability of the warp and weft tows with sizing evaluated by equation (4.49) and the experimental *Kozeny* constants k_o^{exp} introduced in equation (4.50). Firstly, the experimental axial permeability of the warp and weft tows turned out to be about 1.7 darcy, namely $1.7 (\mu\text{m})^2$. Then, considering a tow tortuosity equal to unity, the experimental constants k_o^{exp} overlap for the warp and weft tows. Indeed, the experimental values of k_o^{exp} for the warp and weft tows were about 2.1 and 2.3 respectively. Over the small range of porosity investigated, these values of k_o^{exp} can be considered as independent of the microscopic porosity. This is consistent with the literature on permeability characterization when polymer liquids are used as infiltration fluids³⁴. However, experimental values of k_o^{exp} were slightly greater than the theoretical value of k_o that was inferred as equal to $57/32$ in the material characterization section (as a result of a quadratic packing of the tow filaments).

It is also interesting to point out in Table 4-6 that the experimental values of axial permeability are similar to the theoretical predictions of *Blake-Kozeny-Carman* equation (4.44) using the filament diameter of Table 4-2 and the tow porosity of Table 4-5. Indeed, decoupling the capillary and viscous effects shows that the experimental and theoretical values generally overlap with a discrepancy lower than 15%. The experimental axial permeability of the warp and

weft tows and *Blake-Kozeny-Carman* permeability predictions were respectively around 1.7 darcy and 2.0 darcy in both tow directions.

Firstly, this discrepancy of 15% between the experimental and analytical values of the axial tow permeability could be explained by a non uniform filament packing arising from the spinning/stitching fabrication process. Such a heterogeneous filament packing can generate a complex tridimensional capillary flow in fiber tows due to the interactions between the axial and perpendicular flows, resulting in a deviation from the hypothesis of perfect parallel flows. This hypothesis is used to evaluate the equilibrium capillary pressure in fiber tows by *Young-Laplace's* equation (4.51) in conjunction with the tow specific surface areas per unit pore volume. On the other hand, the discrepancy between the experimental and analytical values of axial tow permeability can also arise from underestimating the fiber tow tortuosity. Indeed, the fiber tow tortuosity was assumed here to be equal to unity because of the non crimp architecture of the current fabric. In this regard, the fiber tow tortuosity is difficult to characterize directly. Recent investigations reported promising ways to estimate the tow tortuosity from computational fluid dynamics, image analysis, nuclear magnetic resonance or other measurement techniques.

As presented in Figure 4-12, current global saturation levels in the warp and weft tows were evaluated by equation (4.40) from the height and weight evolutions. Within short imbibition distances, the warp and weft tow saturations converge to quasi-stationary values of about 60% and 50% respectively. These observations seem to confirm, as assumed in equation (4.26), the previous hypothesis of constant saturation flow for short imbibition distances. Indeed, from the tow properties of Table 4-2 and the results of tow imbibition experiments, warp and weft tow saturation levels of $62 \pm 3\%$ and $50 \pm 4\%$ respectively could be evaluated by equation (4.39). These values are consistent with the evolution of saturation levels for hexadecane reported in Figure 4-12 and Table 4-6. Further study of saturation would require advanced digital camera and appropriate image analysis tools.

Table 4-6 : Results derived from warp and weft imbibition tests with hexadecane

Properties	with sizing		without sizing (<i>LOI</i>)		units
	warp	weft	warp	weft	
Experimental axial permeability K_{exp} (4.49)	1.70 ± 0.09	1.7 ± 0.1	4.4 ± 0.2	2.5 ± 0.1	darcy (0.987 (μm)²)
Blake-Kozeny-Carman permeability K_{Kozeny} (4.44)	2.0 ± 0.2	2.0 ± 0.3	4.5 ± 0.2	3.4 ± 0.3	darcy (0.987 (μm)²)
Experimental Kozeny constant ³⁴ k_{KC} (4.50)	2.1 ± 0.1	2.3 ± 0.1	1.8 ± 0.1	2.4 ± 0.1	—
Stationary saturation s (4.40)	61.4 ± 0.2	49.7 ± 0.4	63.3 ± 0.1	45.0 ± 0.4	%

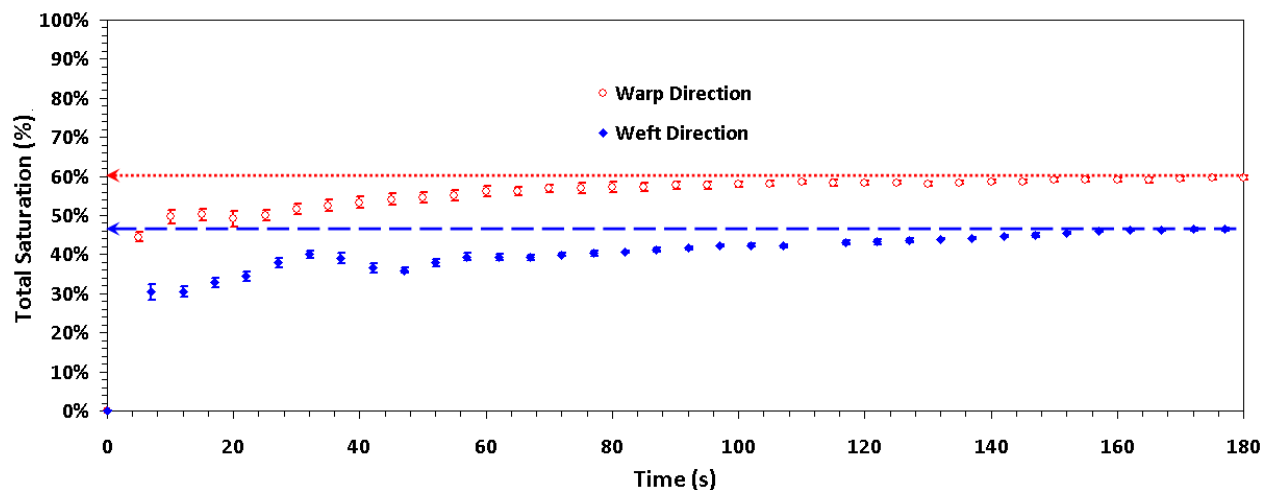


Figure 4-12 : Total tow saturation evolutions in time with hexadecane along the warp and weft directions.

4.9.3 Wicking along fiber tows without sizing

The capillary setup has also been used to investigate the impact of fiber coating on tow wicking. Sizing has been removed from the fiber tows by carbonization (*LOI*). For this purpose, the pyrolysis oven has been set to the sizing degradation temperature (see Table 4-1) during three hours. Afterwards, fiber tows have been put under vacuum at -85 kPa for 15 minutes to remove

residual ashes, after which they were ready for imbibition tests. According to Figure 4-13 and Figure 4-14, the height and weight wicking rates were higher for warp fiber tows without sizing than with sizing. The same behavior was observed for weft tows. The results summarized in Table 4-6 confirm that the removal of sizing increases the tow microscopic porosity, and thus their hydraulic diameter. The increase in hydraulic diameter for the warp and weft fiber tows was about 25%, which is consistent with previous studies from the literature.¹³ Therefore, it is clear that fiber sizing hinders the wicking flow. This clogging effect has been previously observed by other researchers.¹³

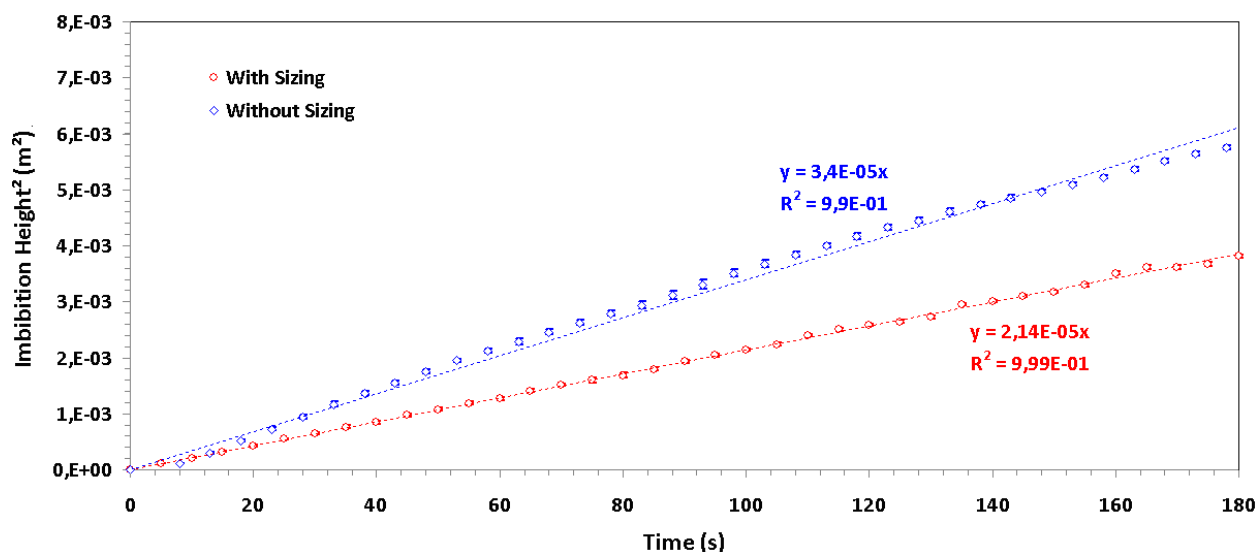


Figure 4-13 : Comparison of square imbibition height evolutions in time for sized and unsized warp fiber tows with hexadecane.

Thus the tow alteration was mainly architectural rather than chemical and could originate from a loss of tow integrity due to degradation of the film forming agent included in the sizing. Under the hypothesis of similar tow size and radial convergent sizing flows during the surface coating process, distances of sizing penetration from the tow exterior surface have been estimated to a few tens of microns, which is consistent with literature data.^{37, 40} Indeed, these estimations of sizing penetration distances in fiber tows are carried out by assuming that their cross-section area is not modified by *LOI* and by measuring variations in the tow microscopic porosity before and after *LOI*.

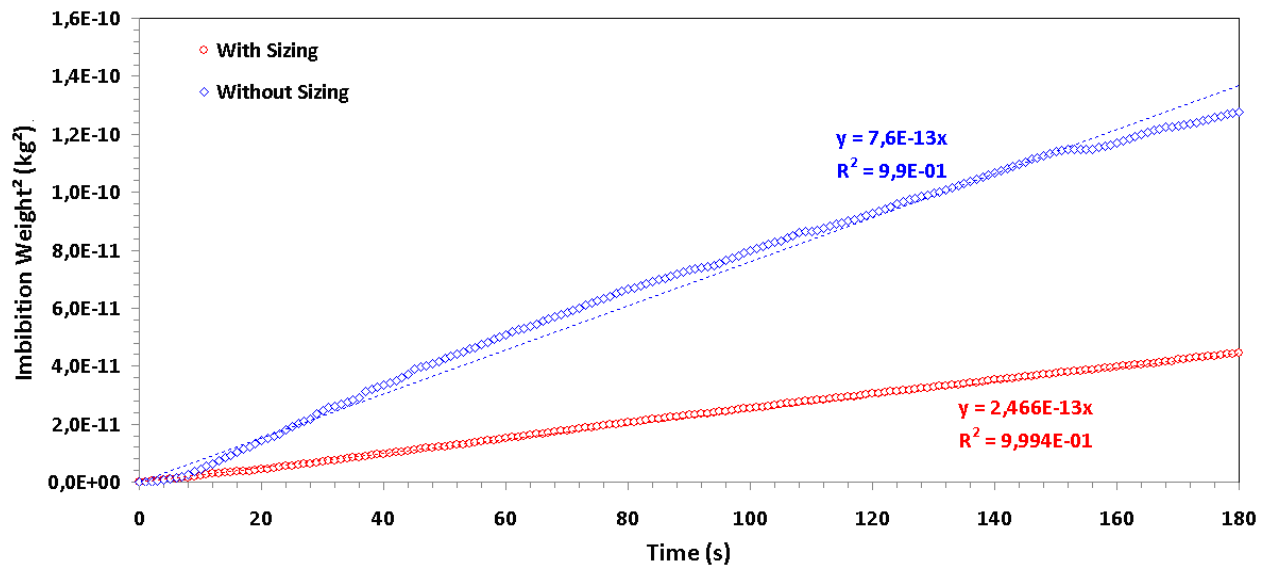


Figure 4-14 : Comparison of square imbibition weight evolutions in time for sized and unsized warp fiber tows with hexadecane.

4.10 Conclusion

Despite a microscopic variability in porosity of about 10%, different characterization methods were implemented to evaluate the fiber tow microscopic porosity, the tow cross-sectional area and the equivalent hydraulic diameter. The various experimental techniques implemented, namely microscopic image analysis, porometry by liquid expulsion and capillary rise monitoring, gave consistent results. Indeed, the capillary rise method gave a tow porosity of 45% and a tow cross-sectional area of 0.52 mm^2 for warp tows, while a tow porosity of 49% and a tow cross-sectional area of 0.54 mm^2 were obtained by image analysis. Similarly, the capillary rise experiments yielded a hydraulic diameter of $12 \text{ }\mu\text{m}$ in the warp tows, which turned out to be the average value of the results obtained by porometry between 8.76 and $16.04 \text{ }\mu\text{m}$. The same consistency in characterization results was confirmed for weft tows. Thus it is not surprising that the anisotropy ratios of microscopic pores between the warp and weft tows obtained by image analysis and by the capillary rise technique were also similar. This exhaustive comparison of tow

wicking characterization proves the reliability of the capillary rise method developed in this investigation.

Furthermore, the experimental values of the axial tow permeability obtained by the capillary rise method were consistent with predictions of *Blake-Kozeny-Carman* model and with the scientific literature. Experimental results from tow wicking characterization have also confirmed the capability of the proposed *Lucas-Washburn* model to predict tow imbibition rates from the properties of the fiber tows and of the infiltration fluid. Besides, the experiments have shown a similar wicking behavior in the warp and weft tows. Finally, the effect of sizing was investigated and shown to reduce the capillary flow during fiber bundle imbibition.

The experimental results obtained by the capillary rise technique with fluorescence visualization have demonstrated the robustness of this characterization method for fiber tows. The wicking behavior of the whole fibrous reinforcement can now be investigated by the same experimental approach for several ply configurations and the results compared with tow imbibition data. Of special interest in the future will be the study of dual scale engineering fabrics in order to evaluate the relative importance of microscopic versus macroscopic pores on the wicking behavior. The final goal of this investigation is to provide a better understanding of the mechanisms governing the impregnation of a fibrous reinforcement by a liquid resin in order to identify the optimal processing conditions of high performance composites by *Liquid Composite Molding* (LCM).

4.11 Acknowledgments

The authors are grateful to the National Science and Engineering Research Council of Canada (NSERC) and the Canada Research Chair (CRC) for their financial support. The authors would also like to thank the Fonds Québécois de Recherche sur la Nature et la Technologie (FQRNT), the Chair on Composites of High Performance (CCHP) of École Polytechnique de Montréal and

the Center for applied research on polymer and composites (CREPEC) for providing the research infrastructure and equipment. They are also very grateful to JB Martin for donating the fiber reinforcement used in the experiments. Furthermore, the authors would like to express their deep appreciation to Suzie Poulin, Yves Bédard, Régina Zamojska and Catherine Billotte for their support in the characterization work. Finally, the contributions of Christian-Charles Martel, Alex Bourgeois, Antonin Leclair-Maréchal, Michael Cantin, Nadir Nchit, Mickéal Leduc, Simon Dulong, Frédérick Marcil St-Onge, Francisco Doyon, Matthieu Sola, Farida Bensadoun, Julian Gutierrez, Philippe Causse and Vincent Achim are gratefully acknowledged.

4.12 References

1. Trochu F, Ruiz E, Achim V and Soukane S. Advanced numerical simulation of liquid composite molding for process analysis and optimization. *Composites Part A*. 2006; 37: 890-902.
2. García J, Gascon L, Chinesta F, Ruiz E and Trochu F. An efficient solver of the saturation equation in liquid composite molding processes. *Int J Mater Form*. 2010; 3: 1295-1302.
3. Leclerc J. *Amélioration du procédé RTM par l'optimisation des paramètres d'injection*. Master, Ecole Polytechnique, Canada, 2008.
4. Leclerc JS and Ruiz E. Porosity reduction using optimized flow velocity in Resin Transfer Molding. *Composites Part A*. 2008; 39: 1859-1868.
5. Ghiorse SR. Effect of void content on the mechanical-properties of carbon epoxy laminates. *SAMPE Quarterly*. 1993; 24: 54-59.
6. Judd NCW and Wright WW. Voids and their effects on the mechanical properties of composites - An appraisal. *SAMPE J*. 1978; 14: 10-14.

7. Lambert J, Chambers AR, Sinclair I and Spearing SM. 3D damage characterisation and the role of voids in the fatigue of wind turbine blade materials. *Compos Sci Tech.* 2012; 72: 337-343.
8. Haider M, Hubert P and Lessard L. An experimental investigation of class A surface finish of composites made by the resin transfer molding process. *Compos Sci Tech.* 2007; 67: 3176-3186.
9. Ruiz E, Achim V, Soukane S, Trochu F and Breard J. Optimization of injection flow rate to minimize micro/macro-voids formation in resin transfer molded composites. *Compos Sci Tech.* 2006; 66: 475-486.
10. Achim V and Ruiz E. Guiding selection for reduced process development time in RTM. *Int J Mater Form.* 2010; 3: 1277-1286.
11. Batch GL, Chen Y-T and Macosko CW. Capillary impregnation of aligned fibrous beds: experiments and model. *J Reinf Plast Compos.* 1996; 15: 1027-1050.
12. Amico SC and Lekakou C. Axial impregnation of a fiber bundle. Part 1: Capillary experiments. *Polym Comp.* 2002; 23: 249-263.
13. S  n  cot J-M. *  tude de l'impr  gnation capillaire de tissus de verre*. Doctorat Thesis, Universit   de Haute Alsace, France, 2002.
14. Amico SC and Lekakou C. Axial impregnation of a fiber bundle. Part 2: Theoretical analysis. *Polym Comp.* 2002; 23: 264-273.
15. Hsieh Y-L and Yu B. Liquid wetting, transport, and retention properties of fibrous assemblies part I: water wetting properties of woven fabrics and their constituent single fibers. *Text Res J.* 1992; 62: 677-685.

16. Bayramli E and Powell RL. Experimental investigation of the axial impregnation of oriented fiber-bundles by capillary forces. *Colloids Surf.* 1991; 56: 83-100.
17. Amico SC. *Permeability and capillary pressure in the infiltration of fibrous porous media in Resin Transfer Moulding*. PhD Thesis, University of Surrey, UK, 2000.
18. Chwastiak S. Wetting of carbon yarns from wicking rate measurements. *J Colloid Interface Sci.* 1971; 31: 437-442.
19. Scher KE. *Comparison of wicking and single filament techniques for determining contact angles*. Master of Science, University of Washington, USA, 1983.
20. Pillai KM and Advani SG. Wicking across a fiber-bank. *J Colloid Interface Sci.* 1996; 183: 100-110.
21. Williams JG, Morris CEM and Ennis BC. Liquid flow through aligned fiber beds. *Polym Eng Sci.* 1974; 14: 413-419.
22. Hamdaoui M, Fayala F and Nasrallah SB. Dynamics of capillary rise in yarns: influence of fiber and liquid characteristics. *J Appl Polym Sci.* 2007; 104: 3050-3056.
23. Kamath YK, Hornby SB, Weigmann H-D and Wilde MF. Wicking of spin finishes and related liquids into continuous filament yarns. *Text Res J.* 1994; 64: 33-40.
24. Hollies NRS, Kaessinger MM and Bogaty H. Water transport mechanisms in textile materials¹ Part I: The role of yarn roughness in capillary-type penetration. *Text Res J.* 1956; 26: 829-835.
25. Adamson AW and Gast AP. *Physical chemistry of surfaces*. 6th ed. New York ; Chichester, England: Wiley, 1997, p.784.

26. Johnson RW. *The handbook of fluid dynamics*. Boca Raton: CRC Press, 1998, p.1 v. Various
27. Ahn KJ, Seferis JC and Berg JC. Simultaneous measurements of permeability and capillary-pressure of thermosetting matrices in woven fabric reinforcements. *Polym Comp*. 1991; 12: 146-152.
28. Hollies NRS, Kaessinger MM, Watson BS and Bogaty H. Water transport mechanisms in textile materials: Part II: Capillary-type penetration in yarns and fabrics. *Text Res J*. 1957; 27: 8-13.
29. Bear J. *Dynamics of fluids in porous media*. New York: American Elsevier Pub. Co., 1972, p.764.
30. Brunauer S, Emmett PH and Teller E. Adsorption of gases in multimolecular layers. *J Am Chem Soc*. 1938; 60: 309-319.
31. Siebold A, Nardin M, Schultz J, Walliser A and Oppliger M. Effect of dynamic contact angle on capillary rise phenomena. *Colloids Surf A*. 2000; 161: 81-87.
32. Washburn EW. The dynamics of capillary flow. *Phys Rev*. 1921; 18: 273-283.
33. Bico J and Quere D. Precursors of impregnation. *Europhys Lett*. 2003; 61: 348-353.
34. Gebart BR. Permeability of unidirectional reinforcements for RTM. *J Compos Mater*. 1992; 26: 1100-1133.
35. Yanazawa H, Ohshika K and Matsuzawa T. Precision evaluation in Kr adsorption for small BET surface area measurements of less than 1 m². *Adsorption*. 2000; 6: 73-77.

36. Weber MJ. Handbook of optical materials [Internet]. Boca Raton: CRC Press; 2003 [cited 2012 February 17]. Available from: www.crcnetbase.com/isbn/9781420050196.
37. Thomason JL and Adzima LJ. Sizing up the interphase: An insider's guide to the science of sizing. *Composites Part A*. 2001; 32: 313-321.
38. Saidpour SH. *The effect of fibre/matrix interfacial interactions on the mechanical properties of unidirectional e-glass reinforced vinyl ester composites*. PhD Thesis, Loughborough University of Technology, UK, 1991.
39. Otsu N. Threshold selection method from gray-level histograms. *IEEE Trans Syst Man Cybern*. 1979; SMC-9: 62-66.
40. Wolff V, Perwuelz A, Achari AE, Caze C and Carlier E. Determination of surface heterogeneity by contact angle measurements on glassfibres coated with different sizings. *J Mat Sci*. 1999; 34: 3821-3829.

CHAPITRE 5 ARTICLE 3 : EXPERIMENTAL CHARACTERIZATION BY FLUORESCENCE OF CAPILLARY FLOWS IN DUAL SCALE ENGINEERING FABRICS

François LeBel, Amir Ershad Fanaei, Édu Ruiz and François Trochu¹

*Department of Mechanical Engineering and Chair on Composites of High Performance.
Centre de recherche en plasturgie et composites (CREPEC), École Polytechnique de Montréal,
P.O. Box 6079, Station « Centre-Ville », Montréal, Canada, H3C 3A7*
¹*Corresponding author's email : trochu@polymtl.ca*

5.1 Présentation du chapitre

Ce chapitre est un article soumis à la revue *Textile Research Journal*. Cet article présente une étude des mécanismes d'imprégnation des renforts fibreux à l'échelle mésoscopique pendant la mise en forme par les procédés LCM. Plus spécifiquement, cette analyse porte sur l'imbibition par capillarité dans les laminés de renforts fibreux. Cette étude expérimentale est réalisée afin de comprendre les phénomènes physiques expliquant que la vitesse d'imprégnation fait partie des paramètres qui contrôlent la qualité des pièces composites fabriquées par les procédés d'injection sur renforts. Cette analyse permet également d'identifier les propriétés structurales du renfort fibreux qui influencent l'imprégnation capillaire. À cette fin, un montage expérimental a été développé pour étudier et caractériser les écoulements capillaires dans les renforts fibreux. Le principe de fonctionnement de ce montage s'appuie sur la méthode de montée capillaire déjà employée pour étudier les écoulements capillaires dans les sols, les textiles et les renforts fibreux. Toutefois, certains problèmes techniques sont apparus dans le passé tels qu'un suivi imprécis de la progression du front capillaire dans le milieu poreux (affaiblissement progressif du contraste), une altération géométrique du renfort ou même un changement des propriétés du fluide de filtration dû à l'évaporation d'une composante volatile durant les essais. Afin de pallier ces faiblesses, trois modifications sont proposées dans cette thèse : (1) l'usage d'un fluide pénétrant totalement mouillant, léger, non volatil et stable; (2) l'utilisation de la fluorescence (DPI) pour maintenir un contraste visuel adéquat; (3) l'emploi d'algorithmes de traitement d'images pour un

suivi répétable et reproductible de la position du front capillaire. Dans la présente approche, le suivi visuel automatisé du front capillaire avec une caméra numérique est couplé à une acquisition continue de la masse absorbée à l'aide d'une balance de haute résolution.

Il faut noter aussi que cette méthode de suivi de la montée capillaire nécessite moins d'investissements en temps et argent comparativement à d'autres techniques plus standards de caractérisation souvent utilisées dans les milieux poreux. De plus, cette approche permet de recueillir des données représentatives sur les propriétés d'imbibition par capillarité des renforts fibreux en s'appuyant sur les lois de *Lucas-Washburn* pour la hauteur du front capillaire et pour la masse de fluide absorbée par le milieu poreux. Ces propriétés d'imbibition par capillarité des laminés sont ensuite étudiées en fonction de leurs caractéristiques morphologiques. À cette fin, les caractéristiques morphologiques des renforts fibreux considérées sont le taux volumique de fibres et le motif de couture/tissage. Ces propriétés sont aussi déterminées à l'aide de méthodes de caractérisation standards afin de comparer les résultats obtenus avec les valeurs déduites à partir des expériences de montée capillaire. Les méthodes de caractérisation standards utilisées dans cette partie du travail sont la gravimétrie, la microscopie et la porométrie. La cohérence des résultats obtenus par les deux approches est confirmée, validant ainsi le choix de la méthode de montée capillaire pour effectuer cette étude sur les mécanismes d'imprégnation des renforts fibreux. Par la suite, le montage de montée capillaire permet de mesurer l'impact du taux volumique de fibres et de l'ensimage des fibres sur la qualité de l'imprégnation du renfort ainsi qu'à étudier l'anisotropie naturelle du renfort.

5.2 Abstract

Liquid Composite Molding (LCM) is an increasingly used family of processes to manufacture composite parts. In LCM, the fibrous reinforcement is first laid in a mold cavity. After closure of the mold or covering of the reinforcement with a plastic bag, a liquid polymer resin is injected or infused under vacuum through the fiber bed. A key issue and novel feature of this investigation lies in the dual scale architecture of engineering fabrics: microscopic pores exist between the filaments of the fiber tows, while macroscopic pores are created between the tows as a result of

the stitching/weaving process. On a microscopic scale, capillary flows in fiber tows and gaps between tows play a major role on the quality of impregnation of the fiber bed by the liquid resin. In order to better understand the mechanisms that govern the impregnation of fibrous reinforcements in LCM, an experimental study of wicking behavior was carried out based on capillary rise experiments. A new monitoring technique based on fluorescent *dye penetration inspection (DPI)* and digital imaging was implemented in this investigation to track the capillary flow front. Visual monitoring of the capillary front is coupled with *Wilhelmy's* approach based on real-time fluid mass acquisition with a high resolution balance. Experimental observations of the height of the capillary front and the uptake fluid mass absorbed by the fabric were analyzed by two different imbibition models.

KEYWORDS: *Liquid Composite Molding*, porosity, wicking, dual scale fibrous reinforcement, *Lucas-Washburn* model.

5.3 Introduction

One key issue in composite manufacturing by resin injection (LCM) is related to the impregnation of the fibrous reinforcement by the liquid reactive resin. In processes such as *Resin Transfer Molding (RTM)*, *Compression Resin Transfer Molding (CRTM)* and *Vacuum Assisted Resin Infusion (VARI)*, a reactive liquid resin is injected or infused inside a mold cavity containing a dry fibrous reinforcement. In order to produce high performance composite, the fibers must be completely saturated prior to resin gelation.^{1, 2} Indeed, impregnation defects have a detrimental impact on the mechanical properties of composite parts such as the maximum compression, flexural and shear inter-laminar strengths.³⁻⁶ It has also a substantial effect on crack initiation and fatigue life, as well as on moisture absorption and surface finish.^{7, 8} Hence developing practical strategies to produce composite parts of high impregnation quality becomes a critical industrial goal.^{9, 10}

In order to better understand fabric impregnation mechanisms at the microscopic level and minimize void formation in dual scale fibrous reinforcements during part manufacturing by

LCM, the study of capillary flows inside engineering fabrics is becoming necessary. Indeed, a comprehensive, repeatable and less time-consuming wicking characterization for dual scale fibrous reinforcements can be of great help to identify optimal processing conditions. Such characterization must take into account a key feature of engineering fabrics, namely their dual scale porosity. As a matter of fact, microscopic pores exist inside the fiber bundles, whereas macroscopic pores are created between the bundles as a result of the stitching/weaving process.

Among the experimental procedures presented in the literature to characterize wicking in fibrous reinforcements, the capillary rise method seems adequate. Over the last decades, this approach has been used to characterize the permeability, the architecture of porous media and the capillary pressure at equilibrium in different soils, of polymer wicks, of paper-like porous media and of engineering textiles. Researchers such as Amico and Lekakou, Batch et al., S  n  cot as well as Mhetre and Parachuru have also studied by this method the microscopic and macroscopic properties of industrial fabrics used as fibrous reinforcements in high performance composites.¹¹⁻¹⁵ However, for composite materials, this characterization technique suffered from a lack of precision, repeatability and robustness. These problems arise from different technical difficulties, among which three major ones have been identified: (1) textile alterations may occur during capillary rise tests; (2) significant changes in the properties of the infiltration fluids may happen as a result of solvent evaporation; (3) the progression of the capillary front cannot be followed accurately during long wicking tests because of front fading in time, even when dyes are used.^{14, 16-19}

To circumvent these limitations, a new monitoring technique based on fluorescent *dye penetration inspection (DPI)* and charge-coupled device (CCD) image acquisition has been implemented in this investigation. This visual monitoring of the capillary front by fluorescence was coupled with real-time acquisition of the fluid mass absorbed by capillarity with a high resolution balance. This coupled approach allows gathering automatically and simultaneously the capillary front position and the uptake fluid mass in time with a high degree of resolution and repeatability. The consistency of the experimental procedure is discussed and demonstrated on a single ply laminate configuration cut from an E-glass non-crimp fabric. The results obtained

along the warp and weft directions are compared with those of other standard characterization methods such as microscopic analysis and wicking characterization in individual fiber tows.

This new capillary setup allowed investigating the impact of sizing and of fiber volume content on the wicking behavior in fibrous reinforcements. The fabric wicking behavior was characterized for a significant sample size (*Representative Elementary Volume*) in the final stacking configuration of the laminate, which depends on upstream manufacturing steps such as stitching, weaving, draping and preforming (compaction). In this work, two imbibition models are introduced that consider the evolutions of the capillary height and of the uptake fluid mass without gravity. The *Lucas-Washburn* models were selected to complete the wicking characterization for several laminate configurations. After presentation of the capillary rise setup based on fluorescence visualization, this new approach is validated by comparison with other standard characterization methods. The wicking experiments are carried out along the warp and weft directions for a single ply configuration of a non-crimp fabric. This characterization provides also an evaluation of the impact of sizing and fiber volume content on wicking.

5.4 Bibliography

Over the last decades, several experimental studies have been carried out on capillary flows in fiber tows based on the capillary rise method. Indeed, this characterization setup was used to investigate wicking phenomena along and across the fiber tows of engineering fabrics used in polymer composite manufacturing.^{18, 20, 21} However, few experimental investigations focused on capillary flows in dual scale fabrics and none addressed the impact of fiber volume content on the wicking flow behavior in fibrous reinforcements of dual scale porosity. In order to track capillary flows in engineering fabrics, visual monitoring of the visual tracking of the capillary front and monitoring of the uptake fluid mass have long been used by researchers. In this regard, S  n  cot and Kissa developed experimental setups to monitor visually with cameras, but without edge detection algorithms or other numerical tools, the vertical and horizontal progressions of the capillary flow in engineering fabrics.^{14, 22} Other researchers such as Tagaya et al. have used a method based on electrical capacitance to monitor the front position during the capillary rise of

liquid electrolytes in fabrics.²³ However, according to Law, these electrical methods exhibit some drawbacks: the liquid impurity and the uneven distribution of chemicals on the surface of the textile may affect the electrical capacitance and resistance of the porous medium, which in turn reduces the accuracy.²⁴

Sénécot has focused its wicking study on short and medium terms capillary rise experiments in various glass fibrous reinforcements.¹⁴ This author carried out capillary rise tests with several dyed liquids such as bromonaphtalene, silicone oil and alkanes. Significant deviations of the wicking flow behavior from the linear *Lucas-Washburn* model have been observed with highly volatile alkanes in unsaturated and uncontrolled atmospheres. New approaches have been considered to circumvent this limitation. First, the evaporation phenomenon can be explicitly taken into account in the fabric wicking model. Another alternative consists of avoiding or limiting the fluid evaporation during the capillary rise tests by using non volatile alkanes and/or a closed transparent cavity. These technical improvements allowed following visually the wicking front and recovering the typical *Lucas-Washburn* flow trend from the experimental data. Besides, Sénécot carried out two sets of experiments in order to investigate the impact of the fabric tension and the fibrous stripe width on the wicking behavior of a single fabric ply.¹⁴ No significant impact of these two factors has been noticed. However, a significant coupling has been observed between the faster interbundle flow and the slower intrabundle flow in dual scale fabrics. This flow coupling has been also noticed visually by Miller, by Bico and Quéré as well as by Zhuang et al.²⁵⁻²⁷ Sénécot found that significant fluid transfer was taking place at each fiber tow crossover.¹⁴ This fluid transfer results in a slowdown of the leading wicking front inside longitudinal fiber tows and in the development of a lagging wicking front along transversal fiber bundles.

Pezron et al. and Hsieh and Yu were among the first researchers to study the vertical imbibition of liquids based on the uptake fluid mass analysis inside complete textile fabrics of various materials such as cotton and polyethylene terephthalate.^{17, 28, 29} They have chosen an electronic tensiometer or a microbalance to monitor the wicking mass evolution over time in short fabric samples, i.e., for sample lengths between 0.25 and 3 cm. Pezron et al. carried out

their capillary rise experiments on one inch wide fabric stripes with non volatile fluids such as silicone oil, decane, dodecane, hexadecane and decanol in order to prevent evaporation, thus unwanted losses of liquid mass.²⁸ According to this author, with hexadecane the deviation of the imbibition behavior from single linearity could be explained by the occurrence of two coupled capillary flows: a microscopic intrabundle flow and a macroscopic flow in superficial fabric alveolus. In this regard, Pezron et al. succeeded in separating and isolating the contributions from both capillary flows by blocking the superficial wicking with a coating.²⁸ These authors highlighted that the isolated intrabundle flow was following closely the linear model of *Lucas-Washburn* and the fast wicking flow in the superficial alveolus was exchanging fluid with the intra-bundle flow. Note also that no measurable effect of the dye on the absorption process in textile fabrics was noticed.²⁸ On the other hand, Hsieh and Yu carried out their capillary rise experiments with distilled and deionized water, as well as hexadecane, on 6.35 mm wide fabric stripes of 100% cotton cut with a die cutter.²⁹ They used a fabric approach velocity of 1 $\mu\text{m/s}$ with respect to the liquid reservoir in order to detect properly the initial contact force and minimize the immersion depth of the fabric-liquid interface. This experimental strategy has been reused here to carry out the fabric imbibition. According to the work of Hsieh and Yu, the wetting characteristics of their cotton fabric were independent of the fabric length, of the liquid-fabric immersion depth and of the fabric orientation with respect to the liquid surface.²⁹ Thus, wetting characteristics depend on the wettability of the fabrics and are not affected by their configuration.

5.5 Modeling of capillary rise through dual scale fabrics

The *Lucas-Washburn* imbibition models are based on the modified *Jurin's* law and the global force balance for creeping flows.³⁰⁻³³ These models are recalled in this section in order to study capillary flows inside dual scale fibrous reinforcements. These mathematical models of capillary flows have already allowed characterizing the wicking phenomenon inside individual fiber tows and dual scale fibrous reinforcements.^{15, 20} The current characterization is based on capillary rise experiments with a perfectly wetting probe fluid, i.e., pure hexadecane. The *Lucas-Washburn* imbibition models selected here consider the evolution of the capillary height and of the uptake fluid mass without gravity. In order to introduce these two models, the main concepts related to

the porous structure of dual scale fibrous reinforcements must be presented: the microscopic and macroscopic pore distributions, the equivalent hydraulic diameter of the capillary channels, the pore surface area per unit mass and the tortuosity of the fiber bundles.

5.5.1 Modified *Jurin*'s law for dual scale fabrics

Microscopic pores in fiber tows

Woven fibrous reinforcements are porous media composed of oriented fiber tows that contain microscopic pores inside the fiber bundles and macroscopic pores between the fiber tows created as a result of the stitching/weaving fabrication process (see Figure 5-1a). Such materials can be modeled as a statistical bimodal set of parallel and tortuous capillary tubes of circular section (see Figure 5-1b).¹⁴ The equivalent hydraulic diameter d_h^m of the parallel capillary tubes inside the fiber bundles is defined as the ratio between the cross-sectional area of the flow canals and their wetted perimeters. If V_f^{tow} denotes the fiber volume content of the fiber bundle, ϕ_{tow} is the porosity of the fiber tow and d_f is the average filament diameter, the theory of porous media gives the following expression of the equivalent hydraulic diameter d_h^m :²⁰

$$d_h^m = \frac{d_f (1 - V_f^{tow})}{V_f^{tow}} = \frac{d_f \phi_{tow}}{(1 - \phi_{tow})} \quad (5.1)$$

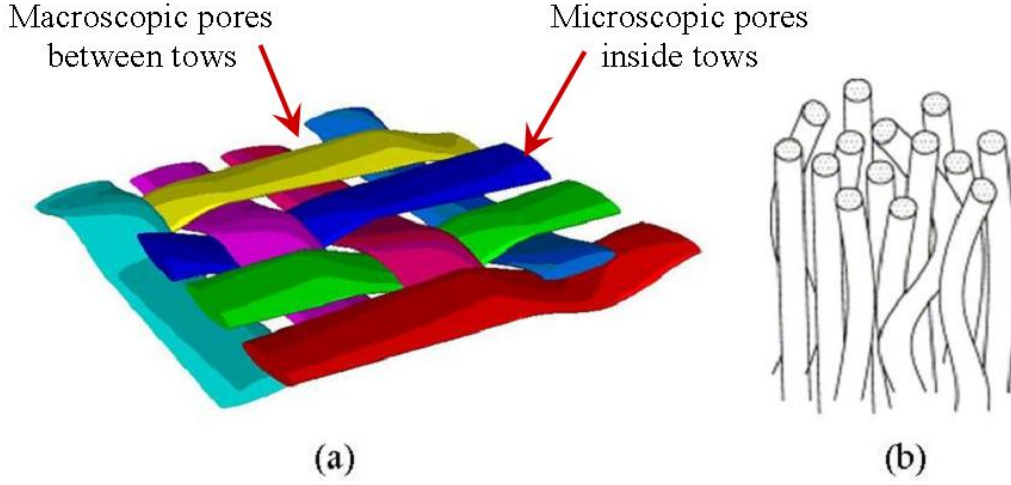


Figure 5-1 : Origin of the tortuosity of fiber bundles and filaments in fibrous reinforcements: (a) woven pattern of a 2D reinforcement; (b) tortuous capillary tube.¹⁴

It was previously observed that flows inside vertical capillary tubes stopped at a given equilibrium height when gravitational force are balanced by capillary force.³³ As reported by de Gennes, Brochard-Wyart et al., this equilibrium height in capillary pores can be evaluated *a priori* by the standard *Jurin's* law derived from the *Young-Laplace* equation.³⁴ From this standard *Jurin's* law and the definition of the hydraulic diameter d_h^m of microscopic pores inside fiber tows of equation (5.1), a modified expression of *Jurin's* law can also be proposed in fiber tows as follows:^{12, 33, 35}

$$z_{Jurin}^m = f_{geo} \cdot \left(\frac{4}{d_h^m} \right) \cdot \left(\frac{\gamma_{lv} \cos \theta}{\rho g} \right) = f_{geo} \cdot S_{pv} \cdot \left(\frac{\gamma_{lv} \cos \theta}{\rho g} \right) \quad (5.2)$$

where f_{geo} , S_{pv} , γ_{lv} , ρ , θ , and g are respectively a geometrical constant, the specific surface area of the fiber bundles per unit pore volume, the surface tension and mass density of the wicking liquid, the contact angle between the liquid-vapor interface and the fibers and the gravity acceleration. The geometrical constant f_{geo} , $0 \leq f_{geo} \leq 1$, depends only on the pore size distribution and on the flow direction with respect to the fiber tows.³⁶ On the other hand, the theoretical specific surface area S_{pv} of the fiber bundle per unit pore volume can be estimated in a first approximation by assuming that the fibers are smooth parallel cylinders in a regular array.^{37,}

³⁸ This latter property of the fiber bundles can be calculated from the fiber volume content and the specific surface area S_m per unit mass of the fiber tow. S_m in a porous medium represents the ratio of the total surface of the pores to the solid volume. It can be characterized experimentally by *Brunauer-Emmett-Teller (B.E.T.)* analysis, a technique based on the multilayer adsorption of gas molecules on solid surfaces.^{39, 40} S_m can be also estimated from the filament diameter and the glass mass density ρ_{glass} by assuming that the filaments are smooth cylinders packed in a regular array in the following form:

$$S_m = \frac{s_f}{m_f} = \frac{s_f}{\rho_{glass} v_f} = \frac{S_f}{\rho_{glass}} = \frac{N_f \pi d_f L}{\rho_{glass} (N_f \pi d_f^2 L / 4)} = \frac{4}{\rho_{glass} d_f} \quad (5.3)$$

where s_f , m_f , v_f and L denote respectively the surface, mass, volume and length of a fiber tow, N_f is the number of filaments per fiber tow and S_f is the specific surface area per unit fiber volume of a tow defined by:

$$S_f = \frac{s_f}{v_f} \quad (5.4)$$

Regarding S_{pv} , it can be estimated from the filament diameter and the tow fiber volume content as follows:

$$S_{pv} = \frac{s_f}{v_{pore}} = S_f \cdot \frac{V_f}{(1-V_f)} = \rho_{glass} \cdot S_m \cdot \frac{V_f}{(1-V_f)} = \frac{4}{d_f} \cdot \frac{V_f}{(1-V_f)} = \frac{4}{d_h^m} \quad (5.5)$$

In the above equation, the pore volume v_{pore} in a fiber tow is defined by the following standard relationship in porous media:

$$v_{pore} = \frac{v_f (1-V_f)}{V_f} \quad (5.6)$$

The value of the geometrical constant f_{geo} in equation (5.2) depends on the global curvature of the liquid meniscus. Default values for f_{geo} are respectively 1 and 0.5 for capillary-driven flows parallel and perpendicular to the fiber tows.^{11, 36, 41} However, capillary flows in fiber tows are rather complex and tridimensional interactions may occur between the axial and

perpendicular flows. Thus, these geometrical factors f_{geo} have been generalized in tensorial form by Ahn et al.³⁶ A value of the geometrical parameter f_{geo} between 0.5 and 1 is usually obtained by nonlinear fitting of the capillary height evolution in time for long wicking tests in fiber tows.⁴¹ Furthermore, following Bear, the concept of tortuosity needs to be introduced to take into account the non rectilinear path of the fiber bundles and the filaments in woven fabrics (see Figure 5-1).³⁷ Tortuosity represents the ratio between the distance $L_e(t)$ covered by the fluid during imbibition and the equivalent distance $L(t)$ along a straight line:

$$\tau_{tow} = \frac{L_e(t)}{L(t)} \quad (5.7)$$

Macroscopic pores between fiber tows

The hydraulic diameter of the macroscopic pores d_h^M is usually one or two orders of magnitude larger than the hydraulic diameter of the microscopic pores d_h^m inside the fiber bundles and it can be estimated as follows:

$$d_h^M = \frac{4A_{gap}}{P_{gap}} \quad (5.8)$$

where the cross-sectional area A_{gap} and the wetted perimeter P_{gap} of these rectangular gap channels between fiber tows were calculated using the gap width values and the thicknesses h_{tow} of the warp and weft tows:

$$A_{gap} = h_{tow} \cdot w_{gap} \quad (5.9)$$

$$P_{gap} = 2(h_{tow} + w_{gap}) \quad (5.10)$$

Accordingly, the equilibrium capillary height z_{Jurin}^m in the microscopic pores is about one or two orders of magnitude larger than in the macroscopic pores. In this regard, the standard expression of Jurin's law allowed estimating the equilibrium height z_{Jurin}^M in macroscopic pores between fiber tows as follows:

$$z_{Jurin}^M = \left(\frac{4}{d_h^M} \right) \cdot \left(\frac{\gamma_{lv} \cos \theta}{\rho g} \right) \quad (5.11)$$

Thus, the capillary flow contribution of the macroscopic pores in the porous medium to the medium and long-term imbibition behavior in dual scale fabrics can be neglected compared to the wicking contribution inside fiber tows.^{15, 42} However, as a result of their larger hydraulic diameter, the capillary flows in macroscopic pores can be significant in the initial wicking behavior of a dual scale fabric.^{14, 25} In summary, the fiber tows and the macroscopic pores between the tows in a woven fabric can be modeled by a bimodal (dual scale) system of parallel capillary channels with a microscopic hydraulic diameter d_h^m and tortuosity τ_{tow} of the fiber tows and a macroscopic hydraulic diameter d_h^M and tortuosity τ_{gap} for the macroscopic pores.¹⁴ In this regard, the dual scale nature of fibrous reinforcements must be taken into account in order to interpret properly experimental data from capillary rise experiments.

5.5.2 *Lucas-Washburn* imbibition models

Usually, during isothermal capillary rise experiments in immobile and unstretchable fibrous reinforcements, the infiltration fluid is considered incompressible and Newtonian. Figure 5-2 shows a typical capillary rise through a porous medium. The progression of the capillary front tends asymptotically towards an equilibrium height z_{eq} , for which the capillary and gravitational forces balance each other in static equilibrium. The equilibrium capillary height z_{eq} can be estimated by the modified *Jurin's* law (5.2) using the fiber tow properties. Figure 5-2 highlights also the linear *Lucas-Washburn* flow regime, for which the gravity contribution can be neglected with respect to viscous and capillary forces at the beginning of the capillary rise, i.e., for short imbibition distances ($z(t) \ll z_{Jurin}$). At this point, capillary forces are balanced only by viscous forces.

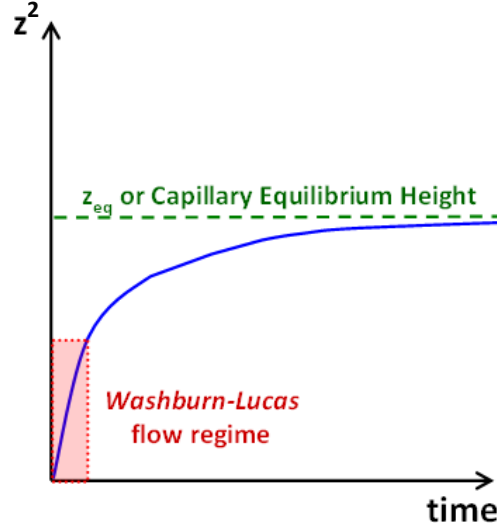


Figure 5-2 : Schematic view of the flow front evolution during a typical capillary rise through a porous medium.

Furthermore, the inertia and the transient wettability terms can be considered as relevant only during the first microseconds of the imbibition phenomena through the largest pores ($d_h \gg 100 \mu\text{m}$) and for low viscosity liquids such as low molecular weight alkanes.^{43, 44} By neglecting the inertia term, the capillary flows through the macroscopic and microscopic pores of tortuosity τ are governed in dual scale fabrics by *Hagen-Poiseuille* equation for *Reynolds* numbers that do not exceed a value between 1 and 10.³⁷ From the balance between capillary, viscous and gravitational forces, the following form of the *Hagen-Poiseuille* equation for the flow in a capillary tube is obtained:

$$0 = \underbrace{\pi \frac{d_h^2}{4} \rho g z_{Jurin}}_{\text{capillarity}} - \underbrace{8\pi\mu\tau^2 z \frac{dz}{dt}}_{\text{viscous drag}} - \underbrace{\pi \frac{d_h^2}{4} \rho g z}_{\text{gravity}} \quad (5.12)$$

inertia
capillarity
viscous drag
gravity

The medium and long-term imbibition behaviors in dual scale fabrics are dominated by the capillary flow contribution of the microscopic pores inside the fiber bundles.^{15, 42} However, the capillary flow contribution of the macroscopic pores can be significant during the short-term imbibition of dual scale fabrics. This contribution can even outperform the initial wicking

contribution of fiber tows alone as a result of the high permeability of the macroscopic pores (lower viscous forces) compared to the lower axial permeability of fiber tows.^{14, 25} Therefore, a synergy between the macroscopic and the microscopic pores is taking place during the initial wicking stage of a dual scale fibrous reinforcement.²⁵ This results in a flow regime with a higher wicking performance than in fiber tows alone.¹⁵ Accordingly, imbibition models already implemented for wicking in individual fiber tows are still valid for wicking in dual scale fabrics, but only for short imbibition distances, i.e., as long as $z(t) \ll z_{Jurin}$ (see equation (5.2) for the introduction of the term z_{Jurin}).

Imbibition model I

By rearranging and simplifying equation (5.12), an ordinary differential equation (ODE) describing the progression in time of the flow height in a capillary tube is obtained:

$$\frac{dz}{dt} = \beta_h \left(\frac{z_{Jurin}}{z} - 1 \right) \quad (5.13)$$

where

$$\beta_h = \frac{d_h^2 \rho g}{32 \mu \tau^2} \quad (5.14)$$

As a result, a first imbibition model (model I) arises from the space-time integration of equation (5.13) as follows:

$$-\frac{\beta_h t}{z_{Jurin}} = \ln \left(1 - \frac{z}{z_{Jurin}} \right) + \frac{z}{z_{Jurin}} \quad (5.15)$$

Imbibition model II

Neglecting the gravity contribution, i.e., for short imbibition distances ($z(t) \ll z_{Jurin}$), the velocity of the capillary front during the *Lucas-Washburn* flow regime results in the following equation derived from the *Jurin's* law (5.11) or the modified *Jurin's* law (5.2):

$$\frac{dz}{dt} = \beta_h \left(\frac{z_{Jurin}}{z} \right) \quad (5.16)$$

where

$$\beta_h = \frac{(d_h^M)^2}{16 k_o \tau_{gap}^2} \cdot \frac{\rho g}{\mu} \quad (5.17)$$

or

$$\beta_h = \frac{(d_h^m)^2}{16 k_o \tau_{tow}^2} \cdot \frac{\rho g}{\mu} = \frac{1}{k_o \tau_{tow}^2 S_{pv}^2} \cdot \frac{\rho g}{\mu} \quad (5.18)$$

where k_o is the *Kozeny* geometrical constant of *Blake-Kozeny-Carman* model.²⁰ Integrating the equation (5.16) results in the imbibition model II, namely the classical *Lucas-Washburn* law of capillary height evolution:³⁰

$$z^2 = B_h t \quad (5.19)$$

where

$$B_h = 2\beta_h z_{Jurin} \quad (5.20)$$

Parameter B_h represents the *Lucas-Washburn* (LW) slope of the square of the capillary height evolution during the linear *Lucas-Washburn* flow regime (see Figure 5-2). It has also been referred to as a diffusion coefficient (m^2/s) or capillary rate coefficient by Hamdaoui et al.⁴⁵ The parameter B_h can be obtained by linear regression on the evolution of the square height of the capillary front in time. For fiber tows, this parameter B_h can be estimated analytically using the properties of fiber tows and of the infiltration fluid as follows:

$$B_h^{theo} = \frac{f_{geo}}{2 k_o} \cdot \frac{d_f \phi_{tow}}{\tau_m^2 (1 - \phi_{tow})} \cdot \frac{\gamma_{lv} \cos \theta}{\mu} \quad (5.21)$$

Imbibition model III

The initial evolution of the capillary uptake fluid mass $m(t)$ can be considered homogeneous through all pores, namely the macroscopic and microscopic pores of a dual scale fabric. This

saturated imbibition flow in a bidirectional fabric is observed before the end of the capillary rise in the axial gaps between axial fiber tows as a result of the static force balance between gravity and capillarity effects in these macroscopic pores (for an equilibrium height z_{Jurin}). This initial capillary uptake behavior on a fabric strip of width w_{fabric} and thickness h_{fabric} can be modeled as follows:

$$m(t) = \rho w_{fabric} h_{fabric} (1 - V_f^{fabric}) s z(t) \quad (5.22)$$

where V_f^{fabric} and s denote respectively the fiber volume content of the fabric and its saturation level. For a saturated flow, s is considered equal to one. The following equation can thus be obtained for the capillary height:

$$z(t) = \frac{m(t)}{\rho w_{fabric} h_{fabric} (1 - V_f^{fabric})} \quad (5.23)$$

By substituting equation (5.23) into the second imbibition model (5.16), if gravity can be neglected, the uptake wicking mass can be modeled by the following ODE:

$$\frac{dm}{dt} = \beta_m \left(\frac{z_{Jurin}}{m} \right) \quad (5.24)$$

where

$$\beta_m = \rho^2 \underbrace{\left[w_{fabric} h_{fabric} (1 - V_f^{fabric}) \right]}_{c_v}^2 \beta_h = (\rho c_v)^2 \beta_h \quad (5.25)$$

Parameter c_v in the above equation is referred to as the volumetric fluid-holding capacity per unit length (m^3/m) of the fabric. It depends only on the architecture of the fiber bundles and the gaps between fiber tows. The integration of this ODE results in the new imbibition model III, which describes the evolution in time of the uptake fluid mass for short imbibition distances (without gravity):

$$m^2 = B_m t \quad (5.26)$$

where

$$B_m = (\rho c_v)^2 B_h \quad (5.27)$$

Parameter B_m is the LW slope for the square of the capillary mass evolution during the linear *Lucas-Washburn* flow regime. It can be obtained by linear regression on the evolution of the square uptake wicking mass in time for short imbibition distances.

On the other hand, when the capillary flow stops in the macroscopic pores, wicking still continues its rise only through axial fiber bundles in dual scale fibrous reinforcements. Wicking will also sustain fluid transfer from axial to transversal fiber tows.¹⁵ This typical medium and long-term imbibition of the fabric will leave behind all the macroscopic pores empty. Thus, the real fluid volume $V_{real}(t)$ and the apparent fluid volume $V_{app}(t)$ contained in a rigid mold cavity of given cross-sectional area can be used to evaluate the saturation level of the fabric in time $s(t)$, $0 \leq s \leq 1$, as follows:

$$s(t) = \frac{V_{real}(t)}{V_{app}(t)} \quad (5.28)$$

where

$$V_{real}(t) = \frac{m(t)}{\rho} \quad (5.29)$$

and

$$V_{app}(t) = w_{fabric} h_{fabric} (1 - V_f^{fabric}) z(t) \quad (5.30)$$

where V_f^{fabric} is the fiber volume content of the fabric. This experimental approach was already used by researchers to estimate the evolution of unsaturated volume in time during impregnation of fibrous reinforcements.⁴⁶

Capillary rise measurement

When fabrics are dipped into a liquid, interfacial forces develop at the meniscus contact line along the wetted perimeter P_w of the fiber tows. According to the balance or the imbalance of interfacial forces along the contact line, the dipped fiber bundles can be pulled or pushed off by the liquid. Moreover, along the submerged part of the dipped bundles, buoyancy forces $F_{buoyancy}$

may develop. The mass offset from these two forces must be taken into account as follows in order to get the net uptake fluid mass:²¹

$$m(t) = m_{total}(t) - m_{meniscus} + m_{buoyancy} \quad (5.31)$$

where $m_{meniscus}$ and $m_{buoyancy}$ represent respectively the meniscus and buoyancy force contributions in the total measured mass. The buoyancy force can be cancelled by limiting the dipping depth of the fabric under the wicking liquid surface.

5.5.3 Fabric anisotropy and pore volume ratio

The total effective cross-sectional area of the pores in the fabric plays an important role in the establishment of the capillary flow in both the microscopic and macroscopic pores. This parameter can be derived from the results of the capillary rise experiments. Indeed, an approximation of the total cross-sectional area of the pores A_ϕ normal to the flow direction can be evaluated from the slopes B_h and B_m of the height and mass evolutions respectively obtained by *Lucas-Washburn* laws (5.19) and (5.26). In this regard, dividing B_m given by equation (5.27) by B_h given by equation (5.20) and substituting the corresponding expression of c_v introduced in equation (5.25) gives the following expression of A_ϕ :

$$A_\phi = w_{fabric} h_{fabric} (1 - V_f^{fabric}) = \frac{1}{\rho \tau} \sqrt{\frac{B_m}{B_h}} \quad (5.32)$$

This parameter can also be evaluated by 2D microscopic image analysis or derived from the final uptake fluid mass as follows:

$$A_\phi = [n_{tows} A_{tow} \phi_{tow} \tau_m + n_{gaps} A_{gap} \tau_M]_{axial} + [h_{tow} \phi_{tow} \tau_m]_{trans} \quad (5.33)$$

where A_{tow} , A_{gap} , n_{tows} and n_{gaps} are respectively the cross-sectional area of the axial fiber tows, the cross-sectional area of the axial gaps between fiber bundles, number of axial fiber tows per centimeter as well as the number of axial gaps between fiber tows per centimeter along the fabric width. On the other hand, h_{tow} is the thickness of the transversal fiber tow with respect to the capillary flow direction. Finally, the tortuosities of fiber tows τ_m and gaps τ_M of a typical non crimp fabric such as the one studied here are the same, i.e., τ , and equal to one. The

approximation of the total cross-sectional area of the pores A_ϕ in both flow directions can be used to estimate the warp/weft anisotropy ratio R_a^ϕ of the pore areas (with the same fabric width and the same stitching/weaving pattern, thus the same tortuosity):

$$R_a^\phi = \frac{\sqrt{B_m/B_h}|_{\text{warp}}}{\sqrt{B_m/B_h}|_{\text{weft}}} \approx \frac{(n_{\text{tows}}^{\text{warp}} A_{\text{tow}}^{\text{warp}} \phi_{\text{tow}}^{\text{warp}} + n_{\text{gaps}}^{\text{warp}} A_{\text{gap}}^{\text{warp}} + h_{\text{tow}}^{\text{weft}} \phi_{\text{tow}}^{\text{weft}})}{(n_{\text{tows}}^{\text{weft}} A_{\text{tow}}^{\text{weft}} \phi_{\text{tow}}^{\text{weft}} + n_{\text{gaps}}^{\text{weft}} A_{\text{gap}}^{\text{weft}} + h_{\text{tow}}^{\text{warp}} \phi_{\text{tow}}^{\text{warp}})} \rightarrow 1 \quad (5.34)$$

Again, this anisotropy ratio R_a^ϕ can be evaluated from the results of microscopic image analysis or by capillary rise experiments. It must be equal to one for saturated flows along both fabric directions. From the properties of the fiber tows and of the fibrous reinforcement in its natural configuration, the ratio R_{REV}^m of the microscopic pore volume to the total pore volume available in a *Representative Elementary Volume (REV)* can be estimated as follows:

$$R_{REV}^m = \frac{V_{\text{micropores}}}{V_{REV}} = \frac{[n_{\text{tows}}^{\text{warp}} \cdot A_{\text{tow}}^{\text{warp}} \cdot \phi_{\text{tow}}^{\text{warp}} + n_{\text{tows}}^{\text{weft}} \cdot A_{\text{tow}}^{\text{weft}} \cdot \phi_{\text{tow}}^{\text{weft}}]}{h_{\text{fabric}} \cdot (1 - V_f^{\text{fabric}})} \quad (5.35)$$

where $V_{\text{micropores}}$ and V_{REV} are respectively the total volume of microscopic pores in the *REV* and the total pore volume of the *REV*. This ratio represents the volumetric contribution of the microscopic pores to the overall porosity of the fibrous reinforcement. For higher compaction levels, this ratio changes as result of gap pore reduction, nesting/slippage effects, tow bending and bundle deformation.⁴⁷ The ratio R_{REV}^m of the microscopic pore volume to the total pore volume was also introduced by Pillai and Advani as a key parameter connected to the saturation of dual scale porous media.⁴⁸

5.6 Material characterization

5.6.1 Fabric characterization

The bidirectional glass non crimp fabric (NCF) of *JB Martin®* (TG15N60A / #3028) tested in this investigation (see Figure 5-3a) is a glass fabric made by *Vetrotex™* warp (735 tex) and weft (275 tex) tows stitched together by polyester binder filaments (17 tex). The polyester filaments hold the untwisted glass strands together as shown in Figure 5-3b. This unbalanced fabric has

45% of its glass filament volume along the warp and 55% along the weft. Each fabric ply consists of two weft and one warp layers. The characterization results for the fiber tows are summed up in Table 5-1 and they were carried out by Lebel et al.⁴⁹ The characterization of the filament average diameter d_f , of the total cross-sectional area of fiber tows A_{tow} and of the fiber tow porosity ϕ_{tow} were firstly evaluated by microscopic image analysis along the warp and weft directions. On the other hand, the equivalent hydraulic diameter d_h^m of fiber tows along the warp and weft directions was evaluated by capillary flow porometry. Note that the values of ϕ_{tow} and A_{tow} derived from the analysis of the final uptake fluid mass in fiber tows and the information provided by the fabric supplier are given in parentheses in Table 1. These properties of fiber tows were used to estimate their *Lucas-Washburn* slopes with hexadecane using equation (5.21).

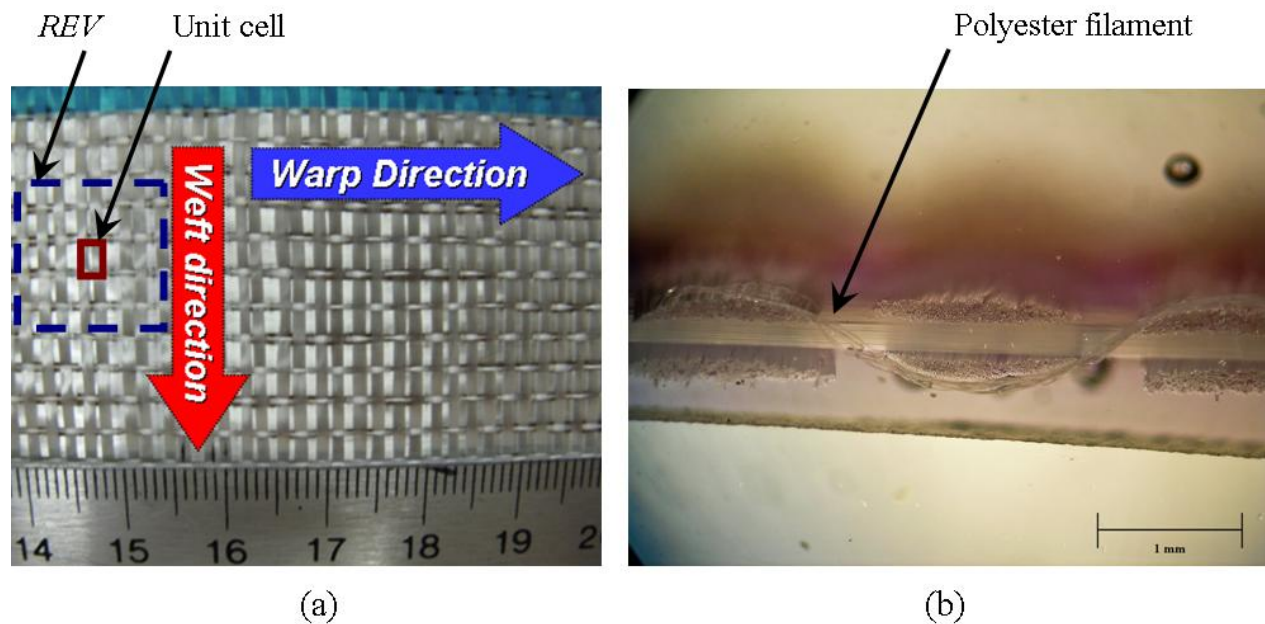


Figure 5-3 : Pictures of the *TG15N60A* E-glass NCF from *JB Martin®*:

- (a) the unit cell and the *REV* definitions;
- (b) binocular microscopic image of the fabric along the weft showing a polyester binding filament.

Table 5-1 : Properties of fiber tows in JB Martin TG15N60A non crimp fabric ⁴⁹

Properties ¹		values from standard characterization methods ²	values from capillary rise method or supplier ³	units
Warp direction	Filament diameter d_f	14.9 ± 0.1	(15)	μm
	Total cross-section area A_{tow}	0.54 ± 0.03 $2.20 \pm 0.02 \times$ 0.32 ± 0.01	0.52 ± 0.02	mm^2
	Microscopic porosity ϕ^{warp}	49 ± 8	45 ± 2	%
	Hydraulic diameter d_h^m (5.1)	12 ± 2 ; 8.76 to 16.04	12 ± 1	μm
	LW slope with hexadecane B_h^{theo} (5.21)	4 ± 1	2.7 ± 0.2	$\times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$
Weft direction	Filament diameter d_f	13.1 ± 0.2	(13)	μm
	Total cross-section area A_{tow}	0.178 ± 0.009 $1.347 \pm 0.007 \times$ 0.168 ± 0.007	0.186 ± 0.009	mm^2
	Microscopic porosity ϕ^{weft}	50 ± 10	44 ± 4	%
	Hydraulic diameter d_h^m (5.1)	12 ± 2 ; 8.76 to 16.04	10 ± 2	μm
	LW slope with hexadecane B_h^{theo} (5.21)	3 ± 1	2.3 ± 0.3	$\times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$

a) Fabric thickness

The fabric thickness h_{fabric} was measured 50 times at rest following *ASTM D1777-96* (2007) standard. The experimental device consisted of a calibrated gage and presser foots used to apply a uniform pressure on the fibrous reinforcement placed on a marble table. The thickness

¹ All characterizations were carried out at room temperature ($22.5 \pm 2.5^\circ\text{C}$) with a relative humidity of $22 \pm 5\%$.

² Standard methods are microscopy, porometry by liquid expulsion, *B.E.T.* analysis and gravimetry.

³ Information provided by the fabric supplier is given in parentheses.

measurements were carried out $22.5 \pm 2.5^\circ\text{C}$ with a relative humidity (RH) of $22 \pm 5\%$. According to the option 1 of the *ASTM D1777-96* (2007) standard, a compaction pressure of 4.14 kPa has to be applied on woven fabrics by the gage in order to measure the fabric thickness. This compaction pressure resulted in a fabric thickness of 0.614 mm. However, in the case of glass fiber mats (option 4 of the standard), a compaction pressure of 18.9 kPa must be applied to measure the fabric thickness. Under this condition, the measured fabric thickness was of 0.543 mm.

b) Microscopic image analysis

Procedures based on microscopic image analysis were devised to evaluate the morphological and topological properties of the fibrous reinforcement along the warp and weft directions. In order to prepare fabric plies for two-dimensional (2D) microscopic analysis, laminates were made by capillary impregnation with *D.E.R.383* epoxy resin mixed with 30 PHR of amine hardener in order to cure at room temperature with low shrinkage. After the resin is fully cured, samples were cut out with a diamond saw, cast in epoxy and polished with sanding papers (60,120, 240, 400 - 15 μm grains) as well as polishing pastes (9 μm and 1 μm grains). Cured glass epoxy samples were analyzed with a *JEOL JSM840* scanning electron microscope (SEM), an optical microscope from *Nikon Japan LU1176C-Clemex* and an *Olympus SZ61* binocular microscope. The fiber tow centers were measured by ellipse fitting and centroid determination algorithms from *Matlab* functions.

The mean distances L_c between the centers of fiber tows along the warp and weft directions were about 1.94 mm and 3.26 mm respectively. The measured fiber tow counts per centimeter n_{tow} in the warp and weft directions were 3.07 tows/cm and 10.31 tows/cm respectively, which is consistent with the specifications of the fabric manufacturer. The width of the gaps between the fiber tows along the warp w_{gap}^{warp} and weft w_{gap}^{weft} directions were found to be about 1.08 mm and 0.61 mm respectively. The cross-sectional area A_{gap} and the wetted perimeter P_{gap} of the rectangular gap channels were calculated in the warp and weft directions using the gap width values and the thicknesses h_{tow} of the warp and weft tows (respectively 0.32 mm and 0.168 mm in

Table 5-1). The equivalent hydraulic diameters of the macroscopic pores in the warp and weft directions were found to be respectively 490 μm and 260 μm using equation (5.8). All the data obtained by image analysis are reported in Table 5-2.

c) Thermogravimetric analysis

The degradation temperatures of the polyester filaments $T_{\text{polyester}}$ and of the fabric sizing T_{sizing} as well as the polyester mass fraction $R_{\text{polyester}}$ in fibrous reinforcement were evaluated by thermogravimetric analysis. The results are also presented in Table 5-2. The degradation of the polyester filaments was observed around 385°C with a *Q500* thermogravimetric analyzer (*TGA*) from *TA Instruments*®. The same apparatus was also used to measure the degradation temperature of the fabric sizing which was around 245 °C. A pyrolytic oven was used to evaluate the polyester mass fraction of the fabric samples because their size was too large for the *TGA*. Knowing the initial mass of the sample and the remaining mass above 385°C, the polyester mass fraction was measured for several samples cut out from the fibrous reinforcement. The bottom curve in Figure 5-4 shows the polyester mass fraction for several sample sizes. The polyester mass fraction in the fabric starts to converge for a sample area larger than 225 mm². The average polyester mass fraction of the fibrous reinforcement turned out to be around 1.72%.

d) Fiber volume content and mass density

The macroscopic properties of the fibrous reinforcement such as the superficial density ρ_s , the porosity ϕ_{fabric} , the fiber volume content V_f^{fabric} and the mass density ρ_{fabric} of the fabric were evaluated by scanner imagery and buoyancy principle from 25 disk-shaped samples larger than the *Representative Elementary Volume (REV)* of the fabric. The characterization results are reported in Table 5-2.

- A *CanoScan 4400F* scanner from *Canon*® coupled with an edge detection algorithm in *Matlab* were used to measure the surface area of the fibrous reinforcement samples. The procedure was calibrated with high precision shims of known dimensions, thus known surface areas.

- The mass of fabric samples and polyester binder were measured in air with a *CP225D Sartorius* micro-balance of 10 μg resolution. The volume of the fibers was evaluated by buoyancy. A superficial density of 517 g/m^2 was derived for the fibrous reinforcement from the weight of the samples.
- The porosity ϕ_{fabric} , the fiber volume content V_f^{fabric} and the mass density ρ_{fabric} were computed from the thickness, mass and fiber volume of the fabric samples. The mass density of the fibrous reinforcement is 2.54 g/cm^3 . The fiber volume content varies between 33.1% (option 1) and 37.7% (option 4) depending on the thickness measurement option (see Table 5-2). Accordingly, the fabric porosity in its natural configuration turned out to vary from 62.3% (option 4) to 66.9% (option 1). The mass density of the polyester binder was found to be around 1.61 g/cm^3 .

e) Analysis of the Representative Elementary Volume (REV)

The size of the fabric *REV* was evaluated by plotting in Figure 5-4 the fabric porosity and the polyester mass fraction for fabric samples of different areas. These results show that the *REV* area is about 225 mm^2 . The 95% confidence intervals for the average values of the polyester mass fraction and the porosity are also shown in Figure 5-4. As illustrated in Figure 5-3a, the area of the *REV* is significantly larger than that of the unit cell, because the former must take into account the intrinsic variability of the fabric structure.

f) Evaluation of the microscopic pore volume to REV volume ratio and the anisotropy ratio

- The fiber tow properties of Table 5-1 obtained by wicking characterization and the experimental data of Table 5-2 for the uncompacted fabric allow estimating the ratio R_{REV}^m of the microscopic pore volume with respect to the total pore volume of the *REV*. This ratio R_{REV}^m was calculated by equation (5.35) for the two different compaction levels considered:

$$R_{\text{REV}}^m \Big|_{V_f^{\text{fabric}}=37.7\%} = 46 \pm 4 \% \quad (5.36)$$

$$R_{REV}^m \Big|_{V_f^{fabric}=33.1\%} = 38 \pm 3 \% \quad (5.37)$$

The values of this ratio show that the microscopic pore volume represents a significant contribution to the overall porosity of the fibrous reinforcement.

- The anisotropy ratio R_a^ϕ of the total pore area between the two fabric directions was evaluated by equation (5.34) using two different approaches: a) by image analysis and b) by capillary rise. The results of both approaches stand as follows:

$$R_a^\phi \Big|_{capillary\ rise} = 1.0 \pm 0.1 \quad (5.38)$$

$$R_a^\phi \Big|_{image\ analysis} = 1.0 \pm 0.3 \quad (5.39)$$

Note that the anisotropy ratio of the total pore area is not significantly different from unity, which means that the fibrous reinforcement has a nearly isotropic structure in terms of porosity.

5.6.2 Fabric variability

Fabric variability depends on two factors: (1) variability of the fiber bundles, and (2) variability of the fabric architecture. Figure 5-4 shows the fabric porosity and polyester mass fraction as a function of sample size for the confidence interval. Variations in porosity of about 3% were observed, while the variability of the polyester mass fraction remains less than 1%. Similar variabilities can be observed in Table 5-2. Due to the intrinsic variability of fibers, characterization of fabric properties such as *Lucas-Washburn* slopes for capillary height evolution (5.20) and uptake fluid mass (5.27) has to be carried out in a *Representative Elementary Volume (REV)*. Indeed, it was already noticed that even for the same porosity, two experiments can show different rates of impregnation if they have different pore size distributions.^{18, 19} For all these reasons, the mold and the fabric should be at least 15 mm wide to minimize the variability effect and thus allow a comprehensive and robust wicking characterization of dual scale fibrous reinforcements.

Table 5-2 : Properties of JB Martin TG15N60A non crimp fabric

Properties		values	units
Global fabric	Fabric mass density ρ_{fabric}	2.54 ± 0.01	g/cm^3
	Polyester mass fraction $R_{polyester}$	1.72 ± 0.03	%
	Polyester degradation temperature $T_{polyester}$	385	$^{\circ}\text{C}$
	Thickness h_{fabric}	0.543 ± 0.004 ¹ 0.614 ± 0.003 ²	mm
	Superficial density ρ_s	517 ± 6 (518) ³	g/m^2
	Fiber volume content V_f^{fabric}	37.7 ± 0.7 ¹ 33.1 ± 0.6 ²	%
	Ratio of total volume of microscopic pores to REV volume R_{REV}^m (5.35)	46 ± 7 ¹ 38 ± 6 ²	%
	Anisotropy ratio of total pore area R_a^{ϕ} (5.34)	1.0 ± 0.3 (1.0 ± 0.1)	–
Warp direction	Tow count n_{tows}	3.07 (3.1)	tows/cm
	Center-to-center tow distance L_c	1.94 (1.92)	mm
	Width of gap between fiber tows w_{gap}	1.08 ± 0.03	mm
	Hydraulic diameter of macropores d_h^M (5.8)	490 ± 30	μm
	Total effective pore area A_{ϕ} (5.32)	9 ± 2 (8.4 ± 0.8)	mm^2
Weft direction	Tow count n_{tows}	10.31 (10.4)	tows/cm
	Center-to-center tow distance L_c	3.26 (3.23)	mm
	Width of gap between fiber tows w_{gap}	0.61 ± 0.02	mm
	Hydraulic diameter of macropores d_h^M (5.8)	260 ± 30	μm
	Total effective pore area A_{ϕ} (5.32)	9 ± 2 (8.5 ± 0.8)	mm^2

¹ ASTM D1777-96 standard (option 4; applied pressure of 18.9 ± 0.7 kPa); compacted.

² ASTM D1777-96 standard (option 1; applied pressure of 4.14 ± 0.21 kPa); uncompacted.

³ Values derived from final uptake fluid mass and information provided by the fabric supplier are given in parentheses.

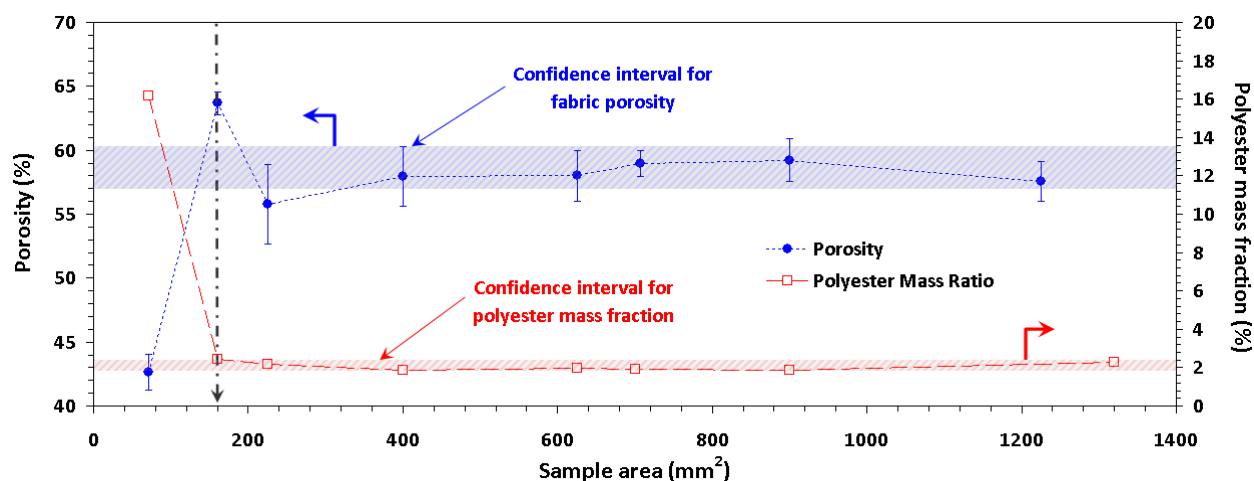


Figure 5-4 : Porosity of the fibrous reinforcement and polyester mass fraction plotted as a function of the area of fabric samples.

5.6.3 Fluid characterization

A 99% pure hexadecane from *Sigma-Aldrich*® was chosen as infiltration fluid because of its totally wetting behavior, its low volatility (low vapor pressure) and its non hygroscopic behavior. This liquid was mixed with a fluorescent tracer (0.1g/liter) to improve the impregnation traceability. This increased the contrast between the capillary front and the glass fibers and prevented the fading of the flow front in time. The UV-excited *Pyrromethene 567A* from *Exciton*® was chosen for its high solubility in hexadecane. This visual monitoring approach is based on a non destructive testing method called the *Dye Penetration Inspection (DPI)*.

All the properties were characterized at room temperature ($22.5 \pm 2.5^\circ\text{C}$) at a relative humidity (RH) of $22 \pm 5\%$. The mass density was measured with a 25 ml pycnometer from *Fisher Scientific*® and a *CP225D* balance from *Sartorius*®. The dynamic viscosity was measured with a double Couette geometry, at a constant shear rate of 10 s^{-1} , by a *MCR-501* rheometer from *Anton-Paar*®. The surface tension was evaluated with a *K14* force tensiometer from *Krüß*® and a platinum-iridium *Wilhelmy's* plate of known wetted perimeter. The same tensiometer allowed measuring the dynamic contact angle and the wetted perimeter on glass

filaments. For this purpose, the measurement speed was set to 3 mm/min in order to minimize the viscous and inertial effects and remain close to the range of capillary flow velocity. Moreover, segments only 3 to 4 mm long were used to ensure the rigidity of the filaments during the measurement. Tensiometry was preferred over optical goniometric measurements, because the curved surface of the filaments makes it more difficult to evaluate the contact angle by an optical method. The dynamic contact angle of hexadecane on glass filaments was estimated to be zero degree, thus exhibiting totally wetting behavior for a typical range of spontaneous imbibition velocity.

Tensiometric measurements were also used to evaluate the apparent contact angle between the fiber bundles of the fibrous reinforcement and the probe fluid. Indeed, the contact angle was evaluated from the mass jump during the initial contact between the fibers and pure hexadecane. Warp tows were chosen for their significantly larger wetted perimeter than weft tows, thus the corresponding mass jump reading was higher, which improves the relative resolution of the micro-balance measurement. The characterization setup was first used in conjunction with a reference fluid of known properties such as a 99% pure hexane to evaluate the average wetted perimeter of warp tows, and then with the infiltrating hexadecane to measure the contact angle with warp tows. Finally, for comparison purpose, a static contact angle analysis between a reference surface of clean glass and the hexadecane probe fluid was also conducted with a *NRL-100* optical goniometer from *Ramé-Hart*®. The measured physical properties are reported in Table 5-3. Both measurements of apparent static contact angle between hexadecane and fiber tows or a clean glass surface gave zero degree, thus confirming the totally wetting behavior of the probe fluid. The results of this comprehensive characterization are summarized up in Table 5-3.

Table 5-3 : Characterization results of hexadecane fluid

	Fluid properties		Interfacial properties		
	density (kg/m ³)	dynamic viscosity (mPa·s)	surface tension (mN/m)	advancing dynamic contact angle (degree)	static contact angle (degree)
<i>Sigma-Aldrich®</i> 99% pure hexadecane	767.1948 ± 0.0004	3.51 ± 0.01	27.50 ± 0.03	~ 0	~ 0

5.7 Experimental setup

5.7.1 Capillary rise experimental setup

An experimental setup was developed in this study to monitor simultaneously the flow front position and the total uptake mass by spontaneous imbibition during 24 hours. As shown in Figure 5-5, it is composed of a motorized platform, a transparent glass mold, a data acquisition unit, a 14.7 megapixels *Powershot G10* digital camera from *Canon®* and a high-resolution balance from *Sartorius®* (CP225D). The liquid containers used here were standard rheometer capsules of 63.0 mm in diameter by 9.6 mm depth. This high surface area of the liquid containers with respect to the total fluid uptake volume allows minimizing buoyancy force variations during wicking tests that result from a decrease of the liquid level.

To properly control the initial contact of the fabric and hexadecane, a motorized platform from *Newport®* (*UTM100CC*) moves the mold that contains the fibrous reinforcement. The *UTM100CC* motorized platform has a minimal velocity of 0.1 $\mu\text{m/s}$ (order of magnitude of commercial tensiometers), which is appropriate to position the mold with respect to the liquid container. The *UTM100CC* was controlled via a *LabView* program that allows users setting the velocity and mass thresholds for resin/fabric contact detection. When this mass threshold is

reached, a signal is sent to stop the motor and trigger the CCD digital camera as well as the CP225D balance for data acquisition.

Two rectangular molds made of glass were used to encapsulate the fabric in order to follow visually the capillary rise of the fluid inside the fibrous reinforcement while keeping the fabric straight and controlling the fiber volume content during imbibition. These molds were supported in vertical position by specimen bottle forceps. These molds were also held inside the *Sartorius CP225D* glass chamber that can be closed as required in order to minimize air convection interference. A mold thickness of 3.18 mm was used for multiple ply laminate analysis, while a mold thickness of 0.56 mm was reserved for single ply analysis. Glass was the only material that could offer simultaneously the required specific rigidity, transparency as well as the necessary chemical and thermal resistance. The molds are equipped with self-adhesive rulers to provide a visual reference during the capillary impregnation. A level board was used to ensure that the mold remains vertical and perfectly perpendicular to the liquid container.

The 3.18 mm thick mold was loaded with several plies of fabric strips, i.e., 4, 5, 6 or 7 plies. The thickness of this mold was significantly larger than the hydraulic diameters d_h^m and d_h^M of the microscopic and macroscopic pores of the fibrous reinforcement (see Table 5-1 and Table 5-2). The 0.56 mm thick mold was used with a single fabric ply. Capillary flow as a result of the mold cavity alone was limited to less than 5 mm. Both mold cavities were 25.4 mm wide by 305 mm long, sealed on the side with vacuum grease and closed with miniature clamps. Both molds possessed vents on their top edges. Each border of the mat strips was first held in place with an adhesive tape to facilitate their handling. Then they were cut roughly with electrical chisel and finished off with a steel cutting die and hydraulic press to get a reproducible and straight clean cut without using tape on the fabric edges. At the end of each imbibition test, the length of the fibrous reinforcement was measured by image analysis on the last pictures recorded. Two 15 Watts UV black lights were used to follow the progression of the hexadecane blended with the fluorescent dye. The complete setup (see Figure 5-5) was installed in a darkroom to facilitate the visualization of the capillary rise.

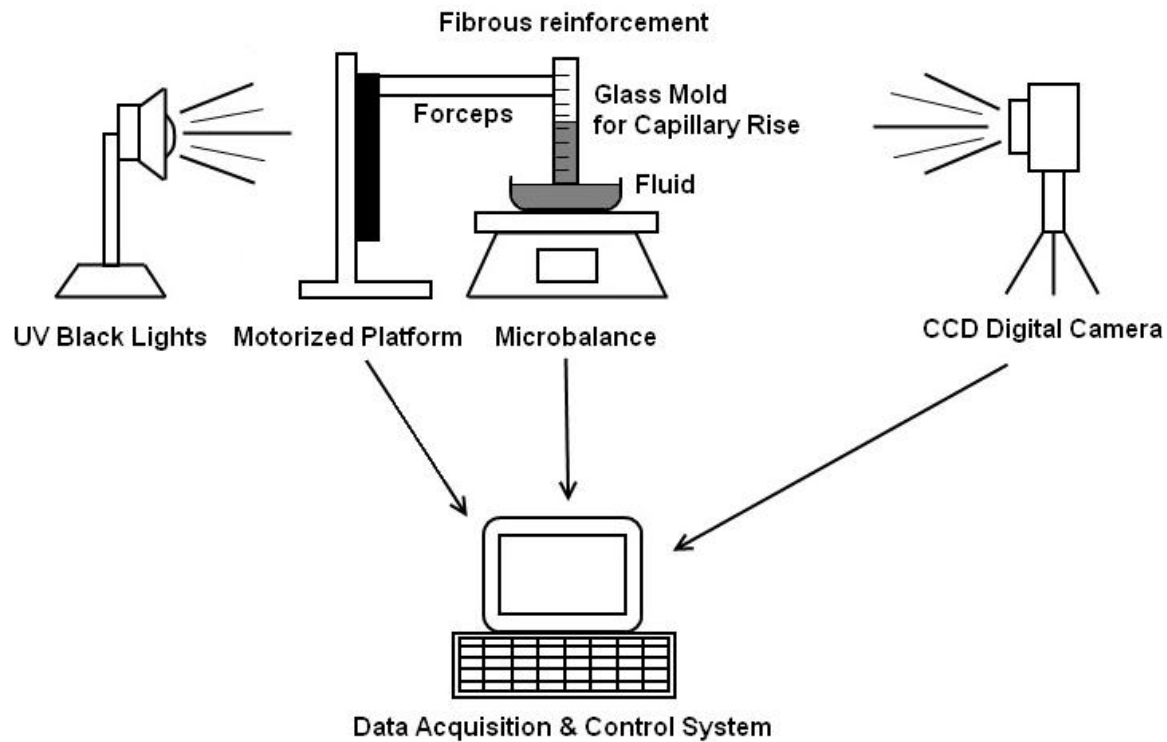


Figure 5-5 : Schematic representation of the capillary rise setup for fibrous reinforcements.

5.7.2 Image post-treatment

An automated tracking of the capillary front was developed in *Matlab*. This tracking of the fluid front was found to be robust and efficient despite the variable brightness of the recorded images. Two factors contributed to this variable brightness: (1) the variable shutter speeds of the semi-automatic camera; and (2) the global increase in brightness resulting from the use of a fluorescent dye. Figure 5-6 illustrates the tracking of the capillary front. Figure 5-6a shows a typical image recorded with the CCD camera. Figure 5-6b shows the successive capillary fronts evaluated by *Otsu's* thresholding and edge filtering algorithms.⁵⁰ The average flow front position and standard deviations were computed at each time step from these pixel images. This approach gives an average position of the wicking front through the thickness of the laminate.

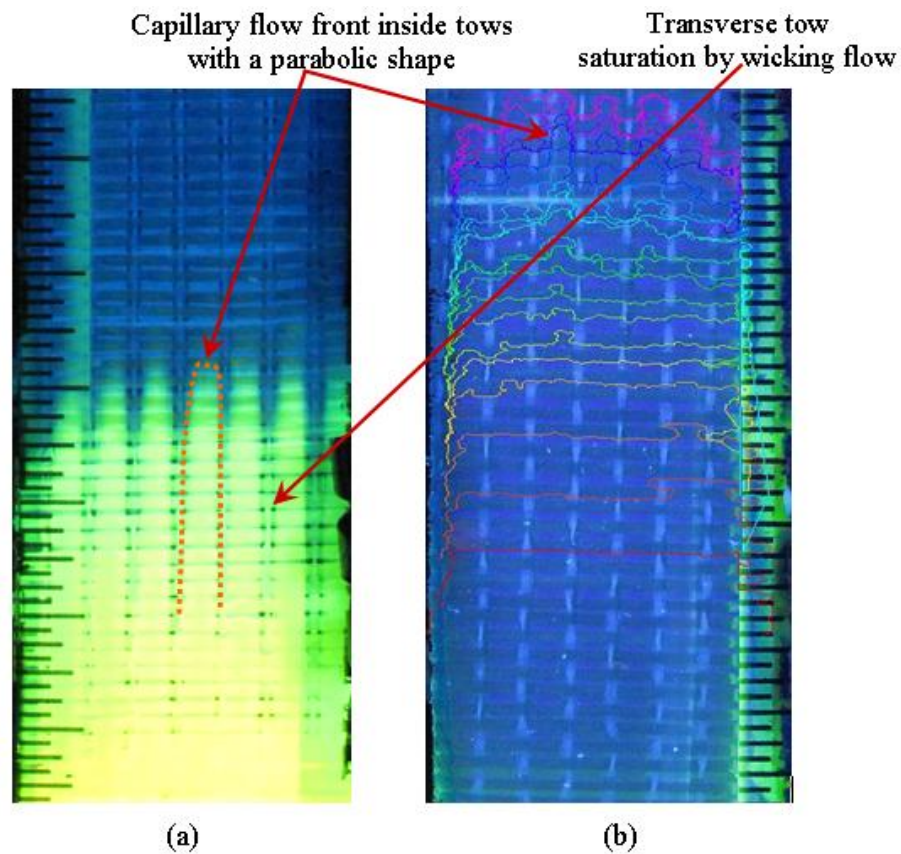


Figure 5-6 : Capillary flow front tracking inside a fabric ply with *Otsu's* algorithm:
 (a) raw picture of capillary flow; (b) successive flow front positions along the fabric ply plotted with *Matlab*.

5.8 Experimental results

5.8.1 Verification of basic assumptions

In order to validate the experimental setup and verify the basic underlying assumptions, the capillary rise experiments were conducted at room temperature and atmospheric pressure¹ on

¹ All wicking tests were conducted at room temperature, i.e., $22.5 \pm 2.5^\circ\text{C}$, for a relative humidity (RH) of $22 \pm 5\%$ and an atmospheric pressure of $95 \pm 6 \text{ kPa}$.

single ply fabrics in the warp and weft directions. The validity of *Young-Laplace's* equation, thus of the modified *Jurin's* law introduced in equation (5.2), was established when the deformation of the spherical-shaped meniscus as a result of gravity is neglected. This hypothesis can be verified by comparing the hydraulic diameter d_h^m of the fiber tows (see Table 5-1) and the hydraulic diameter d_h^M of the macroscopic pores (see Table 5-2) with a characteristic capillary length l_{cap} defined as follows:⁵¹

$$l_{cap} = 2\sqrt{\frac{\gamma_{lv}}{\rho g}} \quad (5.40)$$

The above equation allows estimating l_{cap} from the properties of hexadecane listed in Table 5-3. The negligible impact of gravity on the meniscus shape, thus the validity of *Young-Laplace's* equation and the modified *Jurin's* law, can be confirmed for capillary canal sizes of equivalent hydraulic diameter $d_h < l_{cap}$. A characteristic capillary length of the order of 4 mm was found (see Table 5-4), which is significantly larger than the hydraulic diameter d_h^m of the warp and weft tows (12 μm and 10 μm respectively). This capillary length is also larger than the hydraulic diameter d_h^M of the macroscopic pores in the warp and weft directions estimated to 490 μm and 260 μm respectively (see Table 5-4). Moreover, an additional dimensionless criterion can also be introduced to check the validity of the *Young-Laplace's* equation, thus the modified *Jurin's* law. When capillary effects dominate, the liquid column in capillary tubes exhibits a low *Bond* dimensionless number defined as follows:

$$Bo = \frac{\Delta\rho g d_h^2}{16 \gamma_{lv}} \quad (5.41)$$

Values of the *Bond* number were calculated for the fiber tows and for the gaps between the fiber bundles (see Table 5-4). Low *Bond* numbers were obtained, i.e., lower than 10^{-2} , confirming the negligible impact of gravity on the meniscus shape, thus the validity of the modified *Jurin's* law.

Reynolds number Re of the capillary flow inside fiber tows and in the macroscopic pores can be calculated to validate the hypothesis of creeping flow modeled by *Darcy's* law. Re was first evaluated for a length scale equal to the hydraulic diameter of the gaps between fiber tows

d_h^M . Then, it was also evaluated for a length scale equal to the hydraulic diameter of capillary channels inside fibers tows d_h^m . The characteristic velocity v was obtained by differentiation of *Lucas-Washburn* model of capillary front of equation (5.19) as follows:

$$v = \frac{B_h}{2z}, \quad z \in [l_{cap}, l_{total}] \quad (5.42)$$

As reported in Table 5-4, Re for capillary flows inside the fiber tows as well as in the gaps between fiber bundles remain below 10, which validate the use of the *Darcy's* law.³⁷ On the other hand, the capillary number is defined as follows:

$$Ca = \frac{\mu v}{\gamma_{lv}} \quad (5.43)$$

where the characteristic velocity v is given by equation (5.42). Table 5-4 gives the range of capillary numbers covered in this investigation. Ca varies in two orders of magnitude from 10^{-3} down to 10^{-5} , which is close to the equilibrium state where inertia effects are neglected and the dynamic wettability term disappears in the balance of forces that governs imbibition in a porous medium.^{36, 38 51, 52}

Table 5-4 : Dimensionless numbers for single ply imbibition with hexadecane
along the warp and weft directions

Properties	gap between tows		fiber tow		unit
	warp	weft	warp	weft	
Capillary length l_{cap} (5.40)			3.823 ± 0.002		mm
Bond number Bo (5.41)	4100 ± 300	1200 ± 100	2.2 ± 0.2	2.3 ± 0.2	$\times 10^{-6}$
Range of Reynolds numbers Re	[0.05 – 5.82]	[0.04 – 5.12]	[0.001–0.14]	[0.001–0.20]	$\times 10^{-1}$
Range of capillary numbers Ca (5.43)	[0.003–0.69]	[0.002–1.15]	[0.003–0.69]	[0.002–1.15]	$\times 10^{-3}$

Finally, the capillary rise in fiber tows (microscopic pores) and in the gaps between fiber tows (macroscopic pores) was estimated *a priori* using the imbibition model I developed in equation (5.15) for closed capillary tubes. The capillary rise in both kinds of pores was first considered separately using their respective hydraulic diameters reported in Table 5-1 and in Table 5-2 and the hexadecane properties of Table 5-3. These analytical estimations of the imbibition behavior are presented in Figure 5-7. Figure 5-7 shows that the initial imbibition behavior of the fabric was driven by the macroscopic pores, but on a limited distance. Indeed, the equilibrium capillary heights z_{Jurin} in the gaps between fiber tows along the warp and weft directions were reached after a few minutes. These z_{Jurin} heights for the macroscopic pores along the warp and the weft direction were below six centimeters. Thereafter, there was a crossing point where the capillary flow progression in the microscopic pores of the fiber tows took over the imbibition in the fabric. Before this crossing point, the interactions between the capillary flows in the fiber tows and in the gaps between fiber tows are considered significant.²⁵ However, the analytical imbibition model I for closed capillary tubes did not consider any synergy or transversal flow between the microscopic and the macroscopic pores of the fabric. Accordingly, one must remember that a dual scale fabric is not an assembly of closed capillary pores but rather a complex porous medium with open and interconnected pores.¹⁵

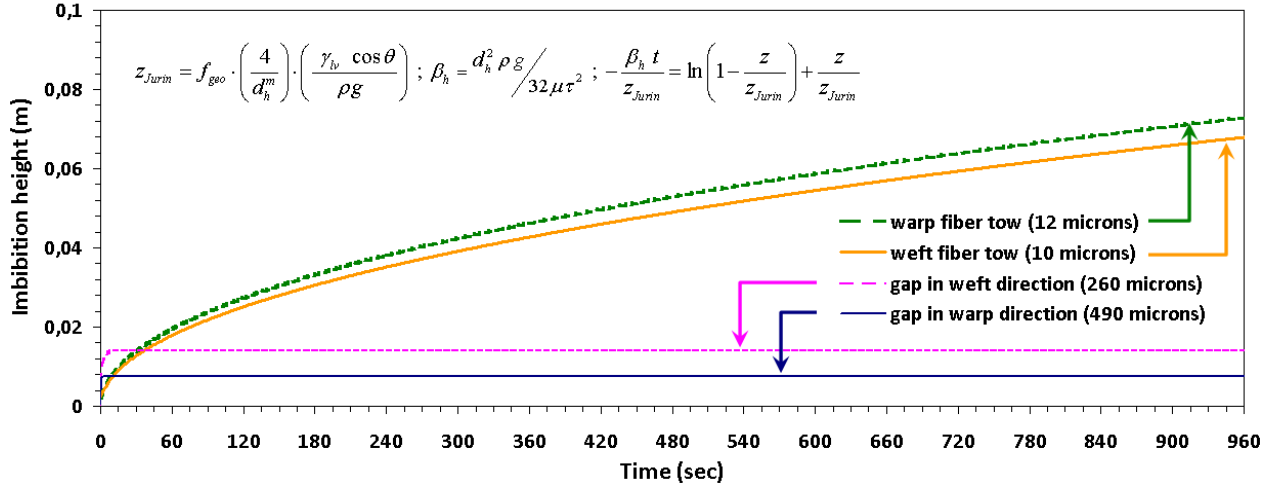


Figure 5-7 : Capillary rise modeling in closed capillary tubes of diameters equal to the hydraulic diameters of fiber tows and of the gaps between fiber tows.

These analytical predictions of the imbibition behavior of a dual scale fabric have been qualitatively confirmed by a capillary rise experiment in a single fabric ply with two supplies of hexadecane of different colors. The first infiltration fluid was hexadecane with a yellow fluorescent dye, whereas the second one was hexadecane with a blue fluorescent dye. This qualitative experiment presented in Figure 5-8 highlights the contribution of the macroscopic pores during the initial imbibition of the fabric and the contribution of the microscopic pores during the medium and long term imbibitions. Indeed, Figure 5-8 shows that the gaps between fiber tows were filled with the blue fluorescent hexadecane whereas axial and transversal fiber tows were filled with the yellow fluorescent hexadecane. Furthermore, the capillary rise in the gaps between fiber tows stopped above a height of two centimeters, leaving all the macroscopic pores empty above this equilibrium height (see Figure 5-8). This observation confirms the analytical predictions on the imbibition of a dual scale fabric carried out previously with the imbibition model I developed in equation (5.15) and presented in Figure 5-7.

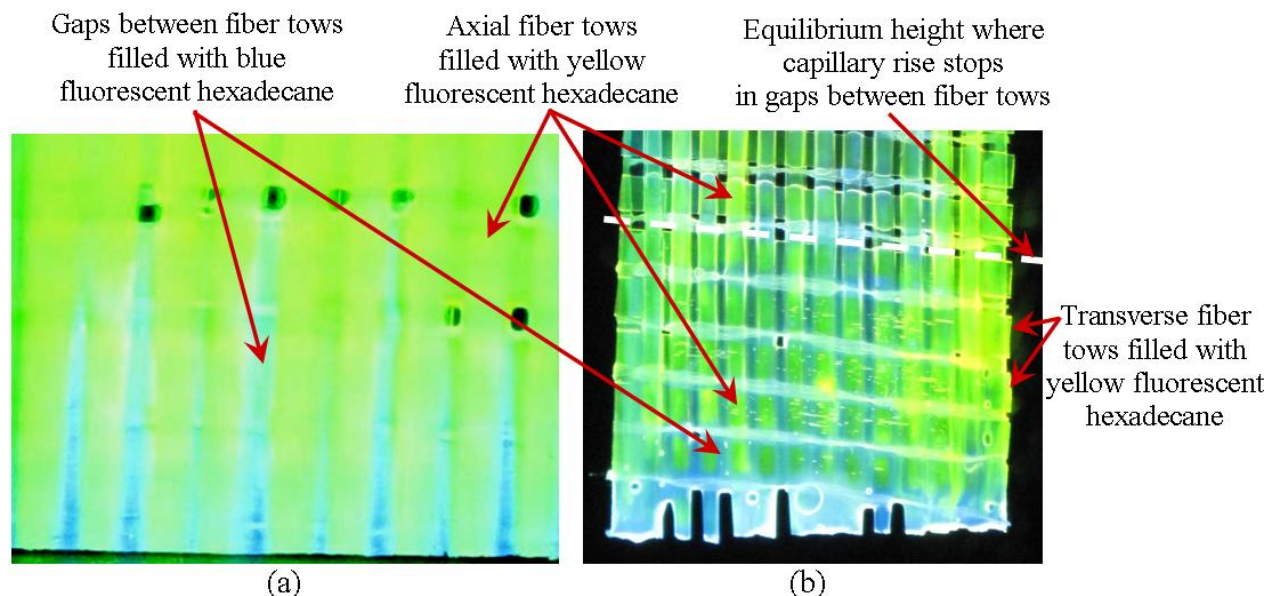


Figure 5-8 : Qualitative imbibition test in a single fabric ply along the weft direction with two successive alkanes of different colors (yellow and blue fluorescent dyes):
(a) during imbibition; (b) after imbibition.

5.8.2 Wicking in single ply with sizing

Quantitative analysis of the uptake fluid mass and capillary height evolution

The first tests were conducted on a single ply fabric with fiber sizing. The results are presented in Figure 5-9, where the square of the capillary height along the warp and weft directions respectively is plotted with respect to imbibition time. The error bars on the imbibition heights were computed from the standard deviations of the flow front positions at each time step. In both experiments, *Lucas-Washburn* mass evolutions exhibited non linear behaviors after five seconds. This phenomenon can be first explained by the heterogeneous imbibition progression (fingering in fiber tows) across the fabric ply as a result of the capillary rise stop in the macroscopic pores. It can be also explained by the mass transfer coming from transversal wicking at the tow/stitch cross-overs.^{14, 16, 28} For imbibitions in a single ply, this transversal wicking flow can be tracked visually by fluorescence via the saturation of transversal tows (see Figure 5-6a). The initial *LW* weight slopes B_m for single ply imbibitions were $1.9 \times 10^{-9} \text{ kg}^2/\text{s}$ and $3.9 \times 10^{-9} \text{ kg}^2/\text{s}$ in the warp and weft directions respectively.

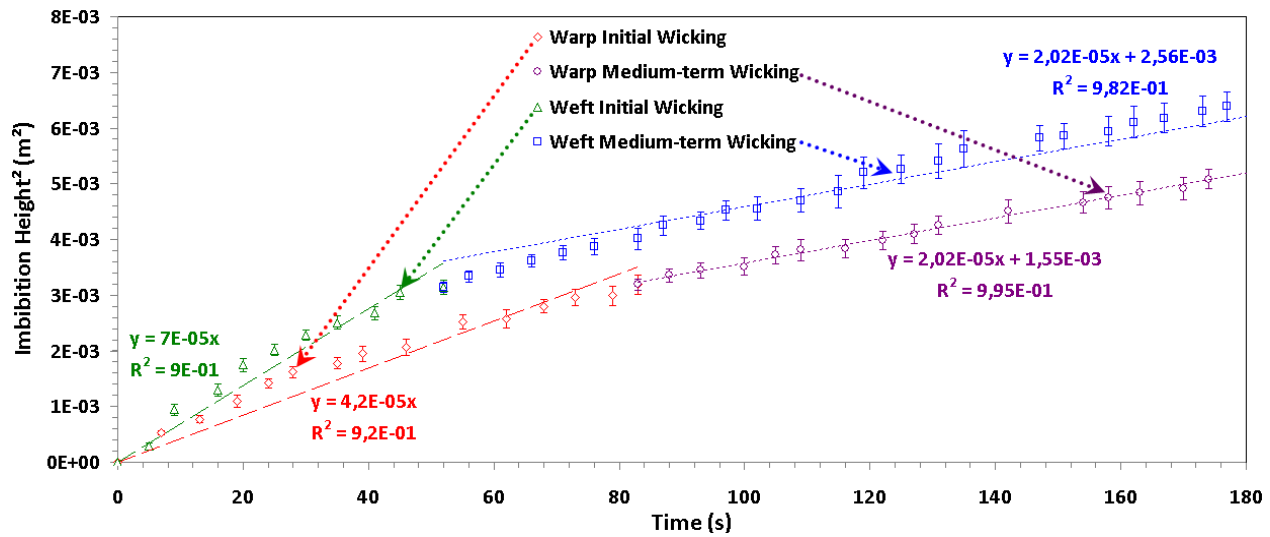


Figure 5-9 : Comparison of the *Lucas-Washburn* fits on the square height evolutions in time of hexadecane imbibitions of a single fabric ply in the warp and weft directions for initial and medium term wicking behaviors.

The values of parameter B_h for the initial wicking behavior of a single ply are larger than those obtained in single fiber tows (see Table 5-5).⁴⁹ Indeed, the height *LW* slopes B_h for single plies were $4.2 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ and $7 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ in the warp and weft directions respectively. This represents a relative increase in B_h of 100% and 260% with respect to single fiber tow imbibition along the warp and the weft directions respectively (see Table 5-5). This upward shift in the imbibition behavior can be mainly attributed to the synergetic interaction between capillary flows in microscopic and macroscopic pores.^{15, 25} As a matter of fact, because of the dual scale pore structure of the fabric, the gaps between the fiber tows play a major role during the initial wicking stage of the fibrous reinforcement.^{14, 53} Figure 5-9 showed also that the slopes B_h of the medium term imbibition of a single ply in the warp and weft directions converged to the previous wicking slopes B_h for single fiber tows after a transition period. Indeed, as reported in Table 5-5, the slope B_h for medium term imbibition of single plies was about $2.02 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ in both fabric directions, a value consistent with the tow wicking slopes B_h of $2.14 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ and $1.95 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ in the warp and weft directions respectively. Besides, the slopes B_h of the *LW* square height

reported in Table 5-6 for the initial imbibition of single plies in the warp and weft directions were significantly different. This demonstrates the distinct wicking behavior in the warp and weft directions that arise from the distribution of macroscopic pores. This is consistent with the microscopic image analysis that gave different values of the hydraulic diameter d_h^M in both directions.

Table 5-5 : Results of warp and weft fiber tow imbibitions with hexadecane ⁴⁹

Properties	with sizing		without sizing		units
	warp	weft	warp	weft	
Microscopic porosity	43 ± 1	47 ± 1	51.2 ± 0.4	51 ± 1	%
Height LW slope B_h (5.20)	2.14 ± 0.05	1.95 ± 0.07	3.4 ± 0.1	2.24 ± 0.03	$\times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$
Weight LW slope B_m (5.27)	24.66 ± 0.08	2.20 ± 0.03	76 ± 1	3.08 ± 0.07	$\times 10^{-14} \text{ kg}^2/\text{s}$
Jurin's height z_{Jurin} (5.2)	1.28 ± 0.05	1.26 ± 0.05	0.93 ± 0.02	1.07 ± 0.04	m

Table 5-6 : Results of single ply imbibitions with hexadecane

Properties	warp direction	weft direction	units
Initial Weight LW slope B_m (5.27)	1.9 ± 0.3	3.9 ± 0.8	$\times 10^{-9} \text{ kg}^2/\text{s}$
Initial Height LW slope B_h (5.20)	4.2 ± 0.6	7 ± 1	$\times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$
Relative Increase in B_h with respect to Single Fiber Tow Imbibition	100 ± 30	260 ± 60	%
Medium term Height LW slope B_h (5.20)	2.02 ± 0.09	2.02 ± 0.09	$\times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$

From the acquisition of the capillary flow height and uptake fluid mass, the evolution of the saturation of the fabric ply along the warp and the weft directions could be estimated by equation (5.28). The evolution of the saturation of the fabric in both directions was plotted with respect to the imbibition height as reported in Figure 5-10. The saturation of the fabric converges to 42% in both fabric directions. This value is consistent with the ratio R_{REV}^m estimated by equation (5.35) and obtained for a fabric ply thickness h_{fabric} of 0.56 mm and a fabric fiber volume content V_f^{fabric} of 36.3%. Indeed, this ratio R_{REV}^m was equal to $44 \pm 4\%$. This confirms that the capillary flow was only progressing through axial and transversal fiber tows, thus leaving behind all the macroscopic pores empty, during the medium and the long-term imbibition behaviors of the dual scale fabric. Furthermore, the total void content $\%V_{void}(t)$ was estimated as follows from the saturation of the fabric $s(t)$:

$$\%V_{void}(t) = (1 - V_f^{fabric})(1 - s(t)) \quad (5.44)$$

The evolution of the total void content in single ply fabrics along the warp and the weft directions was plotted in Figure 5-11 with respect to capillary number defined in equation (5.43). This showed that the total void content in both fabric directions converges to an asymptotic value of 38% when the capillary rise slowed down. Indeed, this value of the total void content corresponds to a situation in which all the macroscopic pores are empty as observed for flow progression around the equilibrium state below $Ca = 10^{-5}$. This asymptotic behavior of the total void content in dual scale fabrics with respect to capillary number is consistent with previous results published in the scientific literature.⁵⁴

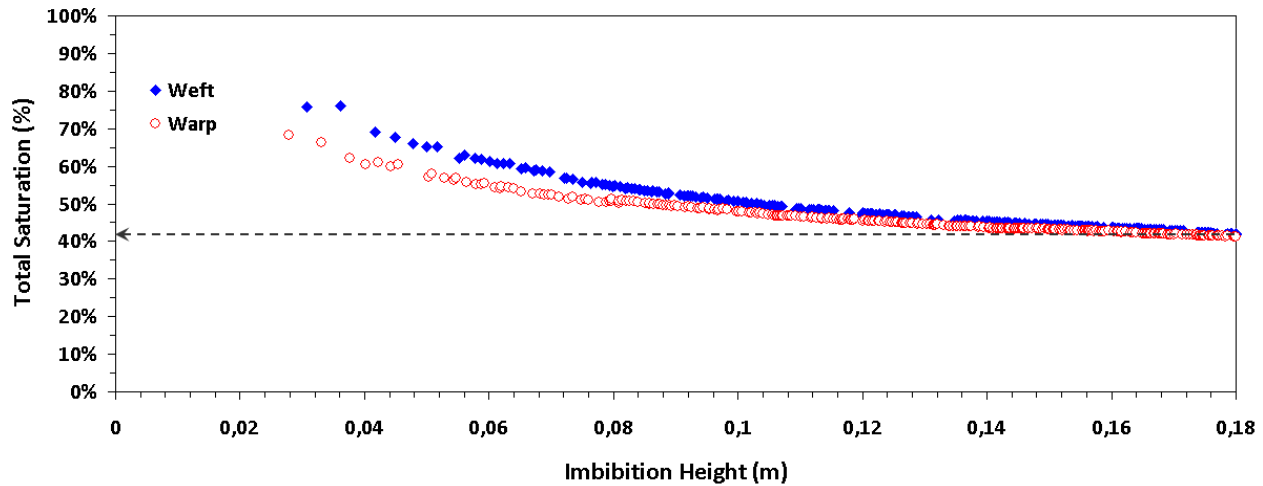


Figure 5-10 : Saturation evolution along the warp and weft directions in single ply fabrics with respect to imbibition height.

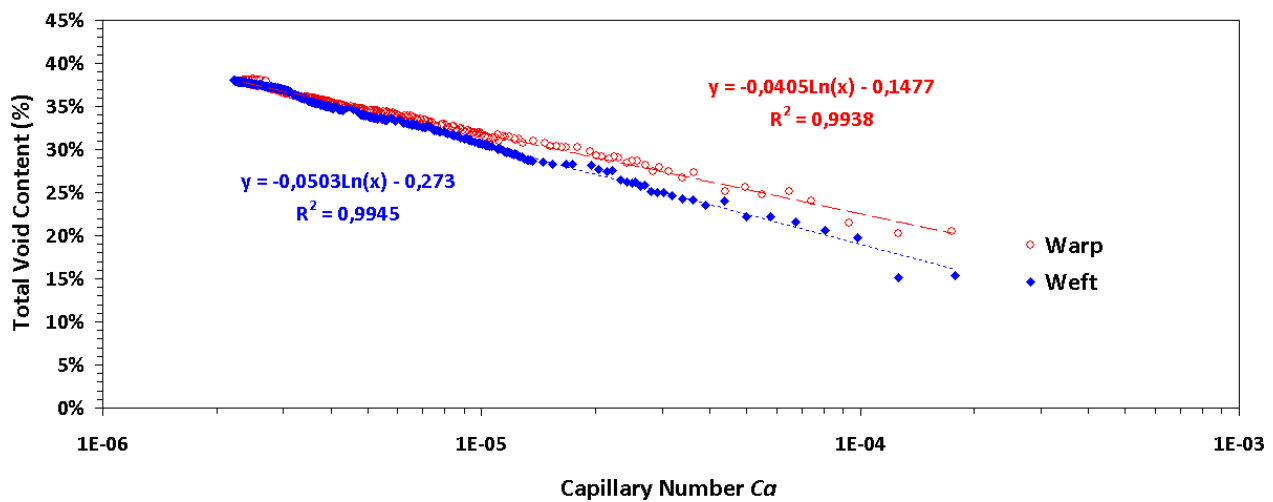


Figure 5-11 : Total void content evolution along the warp and the weft directions in single ply fabrics with respect to the capillary number.

For the fabric structure studied here, the tortuosity of fiber tows in both directions is assumed to be equal to unity for this non crimp fabric. From ply imbibition data in Table 5-6, the total effective cross-sectional area of the pores A_ϕ in the fabric was estimated by equation (5.32) using B_m and B_h values. The values of A_ϕ along the warp and the weft directions were respectively $8.8 \pm 0.2 \text{ mm}^2$ and $10 \pm 1 \text{ mm}^2$. These values were consistent with the ones reported

in Table 5-2 and obtained by microscopic image analysis or by analysis of the final uptake fluid mass. These values were also consistent with the A_ϕ value of $9.1 \pm 0.1 \text{ mm}^2$ evaluated by equation (5.32) based on current fabric properties, namely V_f^{fabric} , h_{fabric} and w_{fabric} . This confirms that the capillary rise was a homogeneous saturated flow through all the pores, namely the macroscopic and microscopic pores, during the initial imbibition of the current dual scale fabric. Furthermore, the warp to weft anisotropy ratio R_a^ϕ of the total pore area A_ϕ (equation (5.34)) was equal to 0.9 ± 0.2 . This ratio was consistent with the values of 1.0 evaluated from microscopic image analysis or from the analysis of the final uptake fluid mass as reported in Table 5-2.

5.8.3 Wicking in single ply without sizing

In order to study the impact of sizing on imbibition behavior, the fabric sizing was removed by carbonization (*LOI*) at 245°C during three hours. Afterwards, plies were kept under vacuum at -85 kPa for 15 minutes to remove residual ashes. The uptake fluid masses in time with and without sizing are compared in Figure 5-12. The capillary front positions in time with and without sizing are compared in Figure 5-13. The fabric without sizing sucks spontaneously a significantly larger fluid mass than the one with sizing. Moreover, this fluid mass is rising faster in fabric without sizing than with sizing. The removal of the sizing seems to increase significantly the tow microscopic porosity, thus the average hydraulic diameters of the capillary channels in the fiber bundles. The alteration of the fabric is more of geometrical nature than chemical and originates from a loss of bundle integrity due to the degradation of the film forming agent.⁵⁵

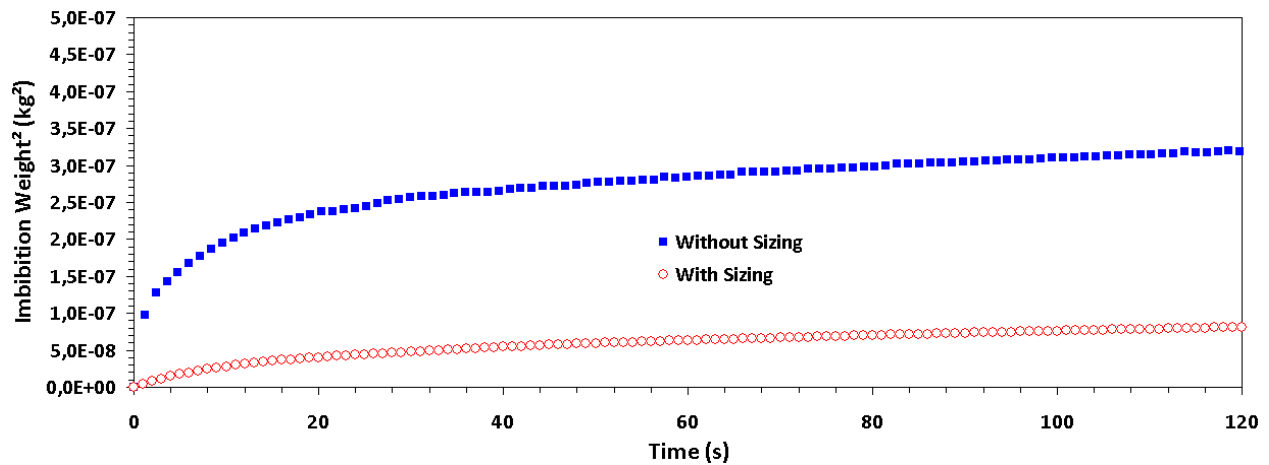


Figure 5-12 : Comparison of weight evolutions of hexadecane for weft imbibition in a single ply fabric with and without sizing.

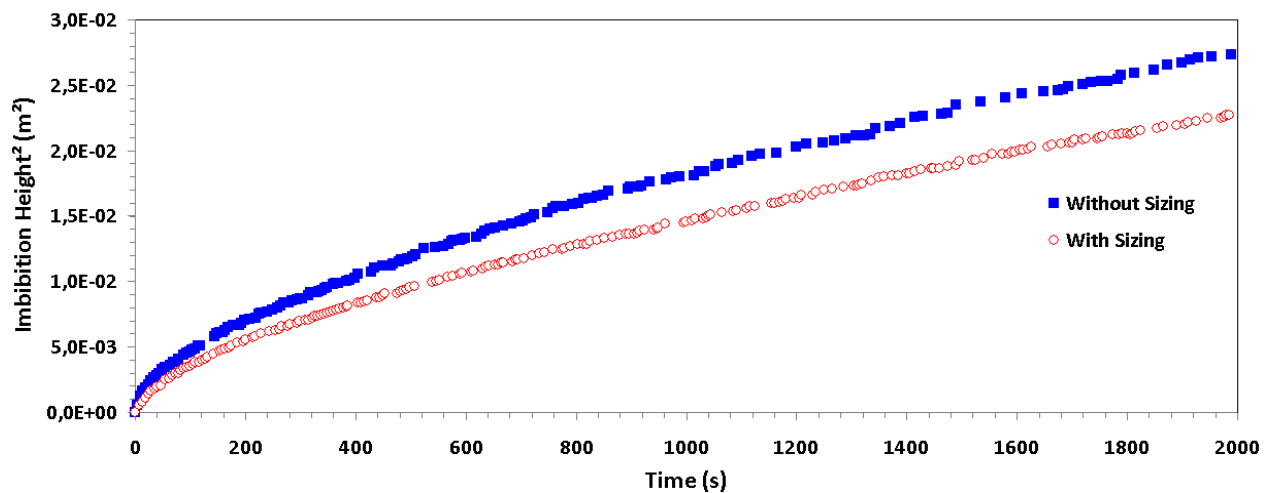


Figure 5-13 : Comparison of height evolutions of hexadecane for weft imbibition in a single ply fabric with and without sizing.

5.8.4 Wicking in multiple ply laminates

As mentioned previously, single and multiple ply imbibition behaviors are complex and more difficult to predict than tow imbibitions for several reasons: (1) transversal flows are created at the fiber/stitch intersections; (2) part of the fluid mass is absorbed in the macroscopic pores; and

(3) complex flow interactions exist between the microscopic and macroscopic pores. Moreover, during fabric compaction, phenomena such as pore reorganization, nesting/slippage, tow bending and bundle deformation affect the pore structure and distribution. Because these phenomena have an influence on the microscopic and macroscopic wicking flows inside fiber tows and in the gaps between the fiber bundles, wicking analysis can bring useful information to characterize the dual scale porosity structure of engineering fabrics and better understand the evolution of porosity after compaction as a function of fiber volume content. The glass mold was used to investigate multiple ply fibrous reinforcements for fiber volume contents between 25% and 45%.

Qualitative analysis of the uptake fluid mass evolution

The uptake fluid mass was monitored for several multiple ply laminates. As presented in Figure 5-14, laminates of higher fiber volume contents with several plies contain more fiber tows and hence more microscopic pores, and should therefore exhibit a superior fluid uptake capacity in medium term imbibitions. However, by zooming on the first minute of the wicking tests, the evolution of the uptake fluid mass was non linear. Furthermore, there was an inversion of the uptake fluid mass evolution in Figure 5-14. Indeed, a laminate with less plies exhibits the fastest initial uptake wicking flow in macroscopic pores, but possesses a lower total fluid uptake capacity. This can be explained by the existence of larger channels between the ply layers. As shown previously for fabrics without sizing, the reinforcements with larger macroscopic channels and with fiber tows of higher porosity exhibit a higher permeability. This facilitates the initial uptake fluid mass by wicking. However, this behaviour holds on a short term basis only. Such inversions between short and medium term imbibition evolutions have already been noticed in porous media.¹⁴

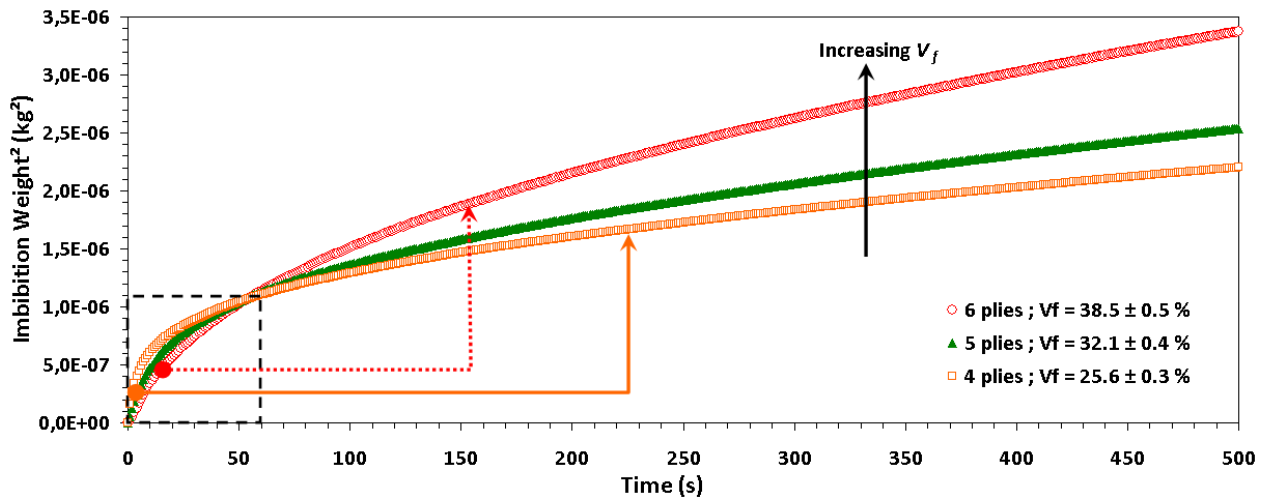


Figure 5-14 : Impact of fiber volume content on the square weight evolutions of hexadecane in multiple ply fabrics (weft).

Quantitative analysis of capillary height evolution

By monitoring the wicking height in laminates, interesting features appear as illustrated in Figure 5-15. For both laminates at negligible compaction levels (4 and 5 plies), i.e., for fiber volume contents less than 35%, the medium term wicking height evolutions are approximately similar. Indeed, in Figure 5-15, the curves of square height evolution for 4 and 5 plies are superposed. From the previous analysis on medium term imbibitions, it turns out that the fiber tows of both laminates have similar microscopic architectural properties. In addition, their macroscopic channels were too large to sustain long-term wicking. No fiber tow deformations nor gap restructuring could be observed before and during the wicking tests.

However, for the 6 ply laminate, the medium term wicking behavior is significantly different from the two previous ones. In this configuration, it seems that inter-layer slippage and gap/pore reduction have generated channels of high permeability between the fiber bundles of each single ply. These macroscopic capillary channels seem to interact with tow wicking and thus promoted the medium term imbibition in contrast with the 4 and 5 ply laminates. In that respect, the wicking height evolutions for the single ply and the 6 ply laminates are very close, which is

consistent with the small difference in fiber volume content (around 2%) between the two samples.

A wicking test has also been conducted on a 7 ply laminate. As shown in Figure 5-15, the medium term wicking capacity remains below that of the 6 ply laminate. This lower wicking result for the 7 ply laminate could be explained by two factors: (1) smaller channels appear because of increased inter-layer slippage and macroscopic gap reduction; (2) the size of the microscopic pores is also reduced as a result of fiber tow compaction and filament packing reorganization. These wicking height results and their interpretations are consistent with previous observations of the uptake fluid mass. Furthermore, several studies on the impact of fabric compaction on the microscopic architecture of fabrics and the morphological reorganization of non crimp fibrous reinforcements confirm this analysis.⁵⁶⁻⁵⁸ This complex behavior could be further investigated as a function of fabric compaction by *in situ* measurements of tribological effects and pore size distribution analysis by capillary flow porometry or liquid expulsion technique.

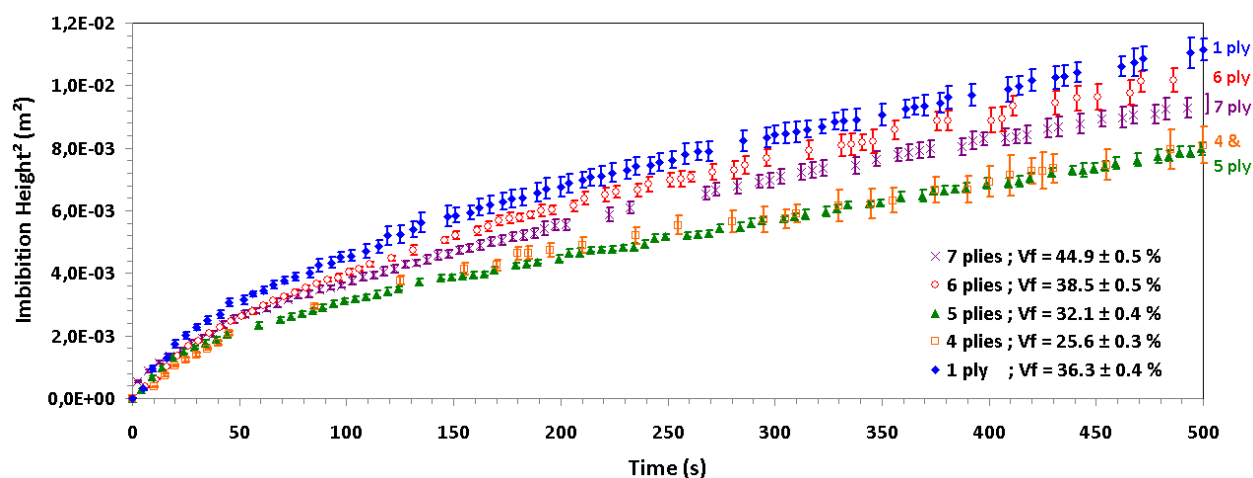


Figure 5-15 : Impact of fiber volume content on the evolutions of square imbibition height of hexadecane in multiple ply fabrics (weft).

Discussion

The multiple ply imbibition *Lucas-Washburn* (*LW*) results are summarized in Table 5-7. For the 4 and 7 ply laminate configurations, the *LW* slopes of capillary height evolution for initial wicking behavior were both about $5 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$. On the other hand, for the 5 and 6 ply configurations, the *LW* slopes of capillary height evolution for the initial wicking behavior were both about $6 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$. Note that for multiple ply laminates, the wicking front positions were harder to pinpoint with accuracy through the laminate thickness, because the imbibitions takes place simultaneously in several layers. Concurrent wicking in multiple layers results in an uneven and blurred three-dimensional capillary front. Therefore, technological enhancements are required to improve the observation and understanding of these complex phenomena.

From the acquisition of capillary flow height and uptake fluid mass progression, the evolution of the saturation of multiple ply laminates along the weft direction was estimated by equation (5.28). The evolution of saturation was plotted with respect to the imbibition height in Figure 5-16. Saturation levels in the laminates converged to different asymptotic values according to the fiber volume content of the laminate. Indeed, when the fiber volume content increases, a higher saturation was obtained at the end of the capillary rise experiment. The saturation levels estimated were 27%, 35% and 44% for laminates of 4, 5 and 6 plies respectively. These asymptotic values of the saturation were consistent with the ratios R_{REV}^m estimated by equation (5.35) for each multiple ply laminate. Indeed, these ratios R_{REV}^m were equal to $27 \pm 2\%$, $36 \pm 3\%$ and $48 \pm 3\%$ for laminates of 4, 5 and 6 plies respectively. This confirms again that the capillary flow was only progressing through axial and transversal fiber tows, thus leaving behind all the macroscopic pores empty during the medium and the long-term imbibition behaviors of the laminates.

As shown by the wicking results of Table 5-6 and Table 5-7, the imbibition behavior of a single ply configuration can be extended to low and medium compaction levels as long as the tow architecture and tortuosity remain undisturbed. However, for higher compaction levels, this is no

longer true, because significant tow deformation and slippage can take place. Note that upstream manufacturing steps such as stitching, weaving, draping and preforming have also an impact on the fabric architecture, thus on the microscopic flow progression. Accordingly, it is justified to characterize the reinforcement wicking properties in their final stacking configurations and on a significant sample size (*REV*).

Table 5-7 : Results of the initial wicking behavior of fabric multiple ply imbibition tests with hexadecane in the weft direction

Laminate properties	4 ply	5 ply	6 ply	7 ply	Units
Initial Height LW slope B_h (5.20)	5 ± 1	6 ± 1	6.2 ± 0.8	4.9 ± 0.9	$\times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$

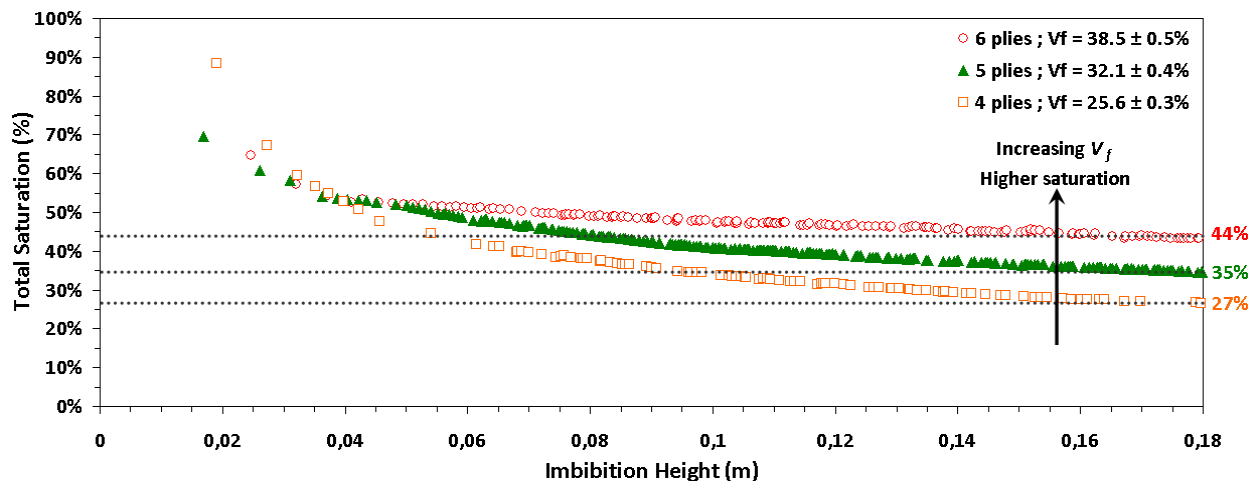


Figure 5-16 : Impact of fiber volume content on the saturation of multiple ply fabrics along the weft direction.

Microstructural reconfiguration after compaction of woven and non crimp fabrics have recently been studied by optical/scanning electron microscopy and x-ray micro-CT tools.^{57, 58} According to these authors, the permanent and elastic deformations during fabric compaction are mainly related to changes in the bundle cross-sectional shape and size. It was also suggested that

time-dependent deformations are related to the evolution of bundle tortuosity in time that result from tow nesting and slippage. However, for low compaction levels, the non crimp fabric showed low or even no nesting. As compaction increased, the layers of reinforcement adjust together by slippage as a result of the non crimp fabric architecture, so the tortuosity of the fiber tows remains low, i.e., close to one. Compaction ensured that no rich resin areas are created and that the pore volume is reduced to a minimum, leaving few small pores for the resin flow. The reason why the pore volume does not decrease further is related to the residual pores that remain between the fiber tows in a single ply. These residual pores are difficult to reduce further as bundle layers are stitched together, thus inhibiting the relative motion of fiber tows.

The laminate wicking analysis carried out clearly shows that fabric wicking properties such as height LW slopes depend on the tow morphology and on the initial reinforcement stitching/weaving pattern at low and medium fabric compaction levels. However, for higher compaction levels of the fibrous reinforcement, this behavior no longer holds. Tow deformation, nesting and slippage must also be taken into account in order to obtain representative wicking characterizations.

5.9 Conclusion

The new capillary rise setup proposed in this investigation was used for tracking the capillary flow progression in a bidirectional glass fabric. Visualization based on fluorescence coupled with monitoring of the uptake fluid mass ensured a representative and a reproducible characterization of wicking behavior of the fibrous reinforcement. For these tests, an initial evaluation of the *Representative Elementary Volume (REV)* was carried out : a representative area of 250 mm^2 is required for proper wicking characterization of the fabric. The molds used for the capillary rise setup were conceived in glass and took into account this fabric *REV* size.

Dimensionless numbers, namely the *Reynolds*, capillary and *Bond* numbers, were calculated for each experiment condition in order to validate the flow hypotheses. *Reynolds* numbers below 10 and capillary numbers between 2×10^{-6} and 1×10^{-3} were obtained for fiber tows

and gaps between fiber tows along warp and weft directions. Imbibition tests were first carried out on a single ply fabric with the proposed capillary setup. Results along warp and weft directions show a non linearity of the squared imbibition weights with respect to time. This is due to an heterogeneous imbibition (fingering along fiber tows) across the fabric ply as a result of the capillary rise stop in the macroscopic pores and to the contribution of transversal wicking flows at the tow/stitch cross-overs. The capillary front position measured with the CCD camera during these imbibition tests was used to estimate the apparent fluid volume in time contained inside the fabric ply. This estimated apparent fluid volume was compared to the real fluid mass sucked in by the fabric and measured by the microbalance. From the comparison between the real and apparent imbibition volumes, the saturation levels in the single ply fabric were found to converge to 42% for the warp and weft directions. This value is consistent with the ratio R_{REV}^m of the microscopic pore volume to the total pore volume available in a *REV* that was equal to $44 \pm 4\%$. This confirms that the capillary flow progressing only through axial and transversal fiber tows, thus leaving behind all the macroscopic pores empty during the medium and the long-term imbibitions. However, significant flow contributions from the gaps between fiber tows were also noticed during the initial imbibition behavior of this fabric. Indeed, this generated a synergy between the macroscopic and the microscopic pores, thus increasing the imbibition performance of the fabric compared to the fiber tow alone.

Finally, capillary rise experiments were carried out on several fabric plies to study the impact of fiber volume content on fabric imbibition. It was concluded from these imbibition tests that for increasing fiber volume content of the laminate, higher saturation of the laminate was obtained at the end of the capillary rise experiment. The saturation levels of 27%, 35% and 44% were measured for laminates of 4, 5 and 6 plies respectively. These asymptotic values of saturation were consistent with the ratios R_{REV}^m for each multiple ply laminate as follows : ratios R_{REV}^m were $27 \pm 2\%$, $36 \pm 3\%$ and $48 \pm 3\%$ respectively. This confirms that the capillary flow was only progressing through axial and transversal fiber tows, thus leaving behind all the macroscopic pores empty during the medium and the long-term imbibition behaviors in the laminates.

This study on fibrous laminate wicking confirmed the results of other investigations reported in the scientific literature on the compaction and microscopic architecture of fabrics, and on their reorganization under compaction in the case of non crimp reinforcements. This complex behavior of fibrous reinforcements could be further investigated by carrying out *in situ* measurements of tribological effects and pore size distributions by capillary flow porometry.

5.10 Acknowledgements

The authors are grateful to the National Science and Engineering Research Council of Canada (NSERC) and the Canada Research Chair (CRC) for their financial support. The authors would also like to thank the Fonds Québécois de Recherche sur la Nature et la Technologie (FQRNT), the Chair on Composites of High Performance (CCHP) of École Polytechnique de Montréal and the Center for applied research on polymer and composites (CREPEC) for providing the research infrastructure and equipment. They are also very grateful to JB Martin for donating the fiber reinforcement used in the experiments. Furthermore, the authors would like to express their deep appreciation to Suzie Poulin, Yves Bédard, Régina Zamojska and Catherine Billotte for their support in the characterization work. Finally, the contributions of Christian-Charles Martel, Alex Bourgeois, Antonin Leclair-Maréchal, Michael Cantin, Nadir Nchit, Mickéal Leduc, Simon Dulong, Frédérick Marcil St-Onge, Francisco Doyon, Matthieu Sola, Farida Bensadoun, Julian Gutierrez, Philippe Causse and Vincent Achim are also gratefully acknowledged.

5.11 References

1. Trochu F, Ruiz E, Achim V and Soukane S. Advanced numerical simulation of liquid composite molding for process analysis and optimization. *Composites Part A*. 2006; 37: 890-902.
2. García J, Gascon L, Chinesta F, Ruiz E and Trochu F. An efficient solver of the saturation equation in liquid composite molding processes. *Int J Mater Form*. 2010; 3: 1295-1302.

3. Leclerc J. *Amélioration du procédé RTM par l'optimisation des paramètres d'injection*. Master, Ecole Polytechnique, Canada, 2008.
4. Leclerc JS and Ruiz E. Porosity reduction using optimized flow velocity in Resin Transfer Molding. *Composites Part A*. 2008; 39: 1859-1868.
5. Ghiorse SR. Effect of void content on the mechanical-properties of carbon epoxy laminates. *SAMPE Quarterly*. 1993; 24: 54-59.
6. Judd NCW and Wright WW. Voids and their effects on the mechanical properties of composites - An appraisal. *SAMPE J*. 1978; 14: 10-14.
7. Lambert J, Chambers AR, Sinclair I and Spearing SM. 3D damage characterisation and the role of voids in the fatigue of wind turbine blade materials. *Compos Sci Tech*. 2012; 72: 337-343.
8. Haider M, Hubert P and Lessard L. An experimental investigation of class A surface finish of composites made by the resin transfer molding process. *Compos Sci Tech*. 2007; 67: 3176-3186.
9. Achim V and Ruiz E. Guiding selection for reduced process development time in RTM. *Int J Mater Form*. 2010; 3: 1277-1286.
10. Ruiz E, Achim V, Soukane S, Trochu F and Breard J. Optimization of injection flow rate to minimize micro/macro-voids formation in resin transfer molded composites. *Compos Sci Tech*. 2006; 66: 475-486.
11. Amico SC and Lekakou C. Axial impregnation of a fiber bundle. Part 1: Capillary experiments. *Polym Comp*. 2002; 23: 249-263.

12. Amico SC and Lekakou C. Axial impregnation of a fiber bundle. Part 2: Theoretical analysis. *Polym Comp*. 2002; 23: 264-273.
13. Batch GL, Chen Y-T and Macosko CW. Capillary impregnation of aligned fibrous beds: experiments and model. *J Reinf Plast Compos*. 1996; 15: 1027-1050.
14. S  n  cot J-M. *  tude de l'impr  gnation capillaire de tissus de verre*. Doctorat Thesis, Universit   de Haute Alsace, France, 2002.
15. Mhetre S and Parachuru R. The effect of fabric structure and yarn-to-yarn liquid migration on liquid transport in fabrics. *Journal of The Textile Institute*. 2010; 101: 621-626.
16. Amico SC. *Permeability and capillary pressure in the infiltration of fibrous porous media in Resin Transfer Moulding*. PhD Thesis, University of Surrey, UK, 2000.
17. Hsieh Y-L. Liquid transport in fabric structures. *Text Res J*. 1995; 65: 299-299.
18. Bayramli E and Powell RL. Experimental investigation of the axial impregnation of oriented fiber-bundles by capillary forces. *Colloids Surf*. 1991; 56: 83-100.
19. Bayramli E and Powell RL. Impregnation dynamics of carbon-fiber tows. *J Compos Mater*. 1992; 26: 1427-1442.
20. Williams JG, Morris CEM and Ennis BC. Liquid flow through aligned fiber beds. *Polym Eng Sci*. 1974; 14: 413-419.
21. Pillai KM and Advani SG. Wicking across a fiber-bank. *J Colloid Interface Sci*. 1996; 183: 100-110.

22. Kissa E. Capillary sorption in fibrous assemblies. *J Colloid Interface Sci.* 1981; 83: 265-272.
23. Tagaya H, Haikata J, Nakata K and Nishizawa K. Measurement of capillary rise in fabrics by electric capacitance method. *Sen'i Gakkaishi.* 1987; 43: 422-430.
24. Law YMMY. *A study of water transport through clothing fabrics.* University of Leeds (United Kingdom), University of Leeds (United Kingdom), 1988.
25. Bico J and Quere D. Precursors of impregnation. *Europhys Lett.* 2003; 61: 348-353.
26. Zhuang Q, Harlock SC and Brook DB. Longitudinal Wicking of Weft Knitted Fabrics: Part II: Wicking Mechanism of Knitted Fabrics Used in Undergarments for Outdoor Activities. *Journal of the Textile Institute.* 2002; 93: 97-107.
27. Miller B. Critical Evaluation of Upward Wicking Tests. *The International Nonwovens Journal.* 2000; INJ Spring 2000: 35-40.
28. Pezron I, Bourgain G and Quere D. Imbibition of a fabric. *J Colloid Interface Sci.* 1995; 173: 319.
29. Hsieh Y-L and Yu B. Liquid wetting, transport, and retention properties of fibrous assemblies part I: water wetting properties of woven fabrics and their constituent single fibers. *Text Res J.* 1992; 62: 677-685.
30. Washburn EW. The dynamics of capillary flow. *Phys Rev.* 1921; 18: 273-283.
31. Masoodi R. *Modeling imbibition of liquids into rigid and swelling porous media.* 3437981, The University of Wisconsin - Milwaukee, United States -- Wisconsin, 2010.

32. Patnaik A, Rengasamy RS, Kothari VK and Ghosh A. Wetting and Wicking in Fibrous Materials. *Textile Progress*. 2006; 38: 1 - 105.
33. Marmoret L, Beji H and Perwuelz A. Determination of the Pore Sizes and their Influence on the Capillary Imbibition into Glass Wool. *Defect and Diffusion Forum*. 2011; 312-315: 812-817.
34. Gennes P-Gd, Brochard-Wyart F and Quéré D. *Capillarity and wetting phenomena : drops, bubbles, pearls, waves*. New York: Springer, 2004, p.xv, 291.
35. White LR. Capillary rise in powders. *J Colloid Interface Sci*. 1982; 90: 536-538.
36. Ahn KJ, Seferis JC and Berg JC. Simultaneous measurements of permeability and capillary-pressure of thermosetting matrices in woven fabric reinforcements. *Polym Comp*. 1991; 12: 146-152.
37. Bear J. *Dynamics of fluids in porous media*. New York: American Elsevier Pub. Co., 1972, p.764.
38. Verrey J, Michaud V and Manson JAE. Dynamic capillary effects in liquid composite moulding with non-crimp fabrics. *Composites Part A*. 2006; 37: 92-102.
39. Barrett EP, Joyner LG and Halenda PP. The Determination of Pore Volume and Area Distributions in Porous Substances. I. Computations from Nitrogen Isotherms. *J Am Chem Soc*. 1951; 73: 373-380.
40. Brunauer S, Emmett PH and Teller E. Adsorption of gases in multimolecular layers. *J Am Chem Soc*. 1938; 60: 309-319.

41. Amico S and Lekakou C. Mathematical modelling of capillary micro-flow through woven fabrics. *Composites - Part A: Applied Science and Manufacturing*. 2000; 31: 1331-1344.
42. Hollies NRS, Kaessinger MM and Bogaty H. Water transport mechanisms in textile materials1 Part I: The role of yarn roughness in capillary-type penetration. *Text Res J*. 1956; 26: 829-835.
43. Siebold A, Nardin M, Schultz J, Walliser A and Oppliger M. Effect of dynamic contact angle on capillary rise phenomena. *Colloids Surf A*. 2000; 161: 81-87.
44. Chwastiak S. A wicking method for measuring wetting properties of carbon yarns. *J Colloid Interface Sci*. 1973; 42: 298-309.
45. Hamdaoui M, Fayala F and Nasrallah SB. Dynamics of capillary rise in yarns: influence of fiber and liquid characteristics. *J Appl Polym Sci*. 2007; 104: 3050-3056.
46. Gourichon B, Binetruy C and Krawczak P. Experimental investigation of high fiber tow count fabric unsaturation during RTM. *Compos Sci Tech*. 2006; 66: 976-982.
47. Lekakou C, Edwards S, Bell G and Amico SC. Computer modelling for the prediction of the in-plane permeability of non-crimp stitch bonded fabrics. *Composites Part A*. 2006; 37: 820-825.
48. Pillai KM and Advani SG. A model for unsaturated flow in woven fiber preforms during mold filling in resin transfer molding. *J Compos Mater*. 1998; 32: 1753-1783.
49. LeBel F, Fanaei AE, Ruiz E and Trochu F. Experimental characterization by fluorescence visualization of capillary flows in the fiber tows of engineering fabrics. *Open Journal of Inorganic Non-metallic Materials*. 2012; In Press, Accepted Manuscript.

50. Otsu N. Threshold selection method from gray-level histograms. *IEEE Trans Syst Man Cybern.* 1979; SMC-9: 62-66.
51. Fick AD and Borhan A. Numerical simulation of the spontaneous penetration of liquids into cylindrical capillaries. *Interdisciplinary Transport Phenomena in Microgravity and Space Sciences IV*, 7-12 Aug. 2005. Oxford, UK: Blackwell Publishing, 2006, p. 426-442.
52. Stange M, Dreyer ME and Rath HJ. Capillary driven flow in circular cylindrical tubes. *Physics of Fluids.* 2003; 15: 2587-2601.
53. Van den Brekel LDM and De Jong EJ. Hydrodynamics in packed textile beds. *Text Res J.* 1989; 59: 433-440.
54. Patel N. *Micro-scale flow behavior, fiber wetting and void formation in liquid composite molding*. Ph.D., The Ohio State University, United States -- Ohio, 1994.
55. Saidpour SH. *The effect of fibre/matrix interfacial interactions on the mechanical properties of unidirectional e-glass reinforced vinyl ester composites*. PhD Thesis, Loughborough University of Technology, UK, 1991.
56. Chen B, Lang EJ and Chou T-W. Experimental and theoretical studies of fabric compaction behavior in resin transfer molding. *Materials Science and Engineering A.* 2001; 317: 188-196.
57. Somashekar AA, Bickerton S and Bhattacharyya D. Compression deformation of a biaxial stitched glass fibre reinforcement: Visualisation and image analysis using X-ray micro-CT. *Composites Part A.* 2011; 42: 140-150.

58. Saunders RA, Lekakou C and Bader MG. Compression in the processing of polymer composites 1. A mechanical and microstructural study for different glass fabrics and resins. *Compos Sci Tech.* 1999; 59: 983-993.

CHAPITRE 6 ARTICLE 4 : PREDICTION OF OPTIMAL FLOW FRONT VELOCITY TO MINIMIZE VOID FORMATION IN DUAL SCALE FIBROUS REINFORCEMENTS

François LeBel, Amir Ershad Fanaei, Édu Ruiz and François Trochu¹

*Department of Mechanical Engineering and Chair on Composites of High Performance.
Centre de recherche en plasturgie et composites (CREPEC), École Polytechnique de Montréal,
P.O. Box 6079, Station « Centre-Ville », Montréal, Canada, H3C 3A7*

¹*Corresponding author's email : trochu@polymtl.ca*

6.1 Présentation du chapitre

Ce chapitre est un article soumis à la revue *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*. Cet article identifie les propriétés du fluide de filtration qui gouvernent les mécanismes d'imprégnation, soit la viscosité dynamique, la tension de surface et la mouillabilité apparente (affinité chimique des phases en contact). Par la suite, un nouveau modèle mécanistique prédictif est proposé pour estimer *a priori* les conditions optimales d'imprégnation des renforts fibreux à porosité bimodale. Ces conditions optimales d'imprégnation permettent de minimiser la formation de bulles par emprisonnement d'air en contrôlant la vitesse d'avancée du front de résine. Les deux paramètres qui gouvernent ce modèle mécanistique dérivé de la loi de *Lucas-Washburn* sont le nombre capillaire modifié optimal du renfort fibreux utilisé et la pénétrativité des résines thermodurcissables étudiées. Ces deux paramètres sont caractérisés à l'aide du montage de montée capillaire développé et validé dans les chapitres 5 et 6 de cette thèse. La pénétrativité des résines et des additifs/agents de polymérisation est évaluée à partir de techniques standards de caractérisation comme la spectrométrie, la rhéométrie, la tensiométrie et la goniométrie. Les fluides considérés dans le présent chapitre sont une résine vinyl ester, une résine époxy, un solvant de type styrène (monomère) et un agent de polymérisation de type anhydride. Les valeurs de pénétrativité obtenues par les techniques standards de caractérisation sont cohérentes avec les valeurs évaluées à partir de la méthode de montée capillaire. Ceci confirme l'intérêt de la méthode de montée capillaire pour étudier les mécanismes

d'imprégnation des renforts fibreux. L'impact de la température sur la pénétrativité des résines a aussi été exploré à l'aide de techniques standards de caractérisation, mettant ainsi en lumière l'influence des transferts thermiques sur la qualité de l'imprégnation des renforts fibreux.

Finalement, des essais de montée capillaire sont effectués avec la résine vinyl ester pour un composite laminé constitué de six plis du renfort fibreux bidirectionnels de verre sans ondulation (NCF). Ces deux matériaux ont déjà été utilisés dans le premier chapitre de la présente thèse portant sur la saturation des renforts. La caractérisation capillaire des conditions optimales d'imprégnation donne des résultats consistants avec ceux obtenus précédemment. La vitesse d'imprégnation optimale est prédite pour un couple renfort-résine donné sans avoir à exécuter des simulations numériques complexes d'écoulements diphasiques dans un milieu poreux à porosité bimodale. Utilisée en amont, cette approche permet également de réduire le nombre d'essais de caractérisation et de fabrication. Cette caractérisation de montée capillaire prend en compte la variabilité des propriétés du renfort et de la résine, ce qui n'est pas toujours possible avec les techniques standards de caractérisation. Cette prédiction des conditions optimales d'imprégnation pour un couple de matériaux donnés permet d'optimiser les procédés d'injection sur renforts et donc de produire des pièces composites plus performantes.

6.2 Abstract

Liquid Composite Molding (LCM) is an increasingly used class of processes to manufacture high performance composites. Engineering fabrics commonly used in LCM generally have a dual scale architecture in terms of porosity: microscopic pores exist between the filaments in the fiber tows, while macroscopic pores appear between the tows. Capillary flows in fiber tows play a major role on the quality of composites made by resin injection through fibrous reinforcements. This paper reports on an investigation on fabric imbibition characterization and subsequent evaluation of the optimal flow front velocity during resin injection through fibrous reinforcements. The goal is to devise more robust LCM processes and improve part quality. In order to evaluate *a priori* the injection conditions that minimize void formation, an impregnation model is developed based on imbibition characterization. This approach allows predicting the

optimal front velocity without having to model complex dual scale flows through fibrous reinforcements and without performing expensive and time-consuming fabrication tests. After a summary of previous imbibition results obtained with a probe fluid, the optimal modified capillary numbers are computed by the new predictive model and the values are compared with results reported in the literature on void formation in LCM processes. Afterwards, capillary rise measurements are carried out with four infiltration fluids in order to evaluate the range of optimal flow front velocity that minimizes void formation. This characterization is implemented with vinyl ester resin, epoxy anhydride resin, styrene and anhydride. Finally, the optimal flow front velocity is evaluated for several fabric configurations.

KEYWORDS: *Liquid Composite Molding*, capillary rise, modified capillary number, penetrativity, void formation.

6.3 Introduction

One key issue in composite manufacturing by resin injection is related to the impregnation of the fibrous reinforcement by the liquid reactive resin. This is especially true in the fabrication of thermosetting matrix composites by *Liquid Composite Molding* (LCM). In processes such as *Resin Transfer Molding* (RTM), *Compression Resin Transfer Molding* (CRTM) and *Vacuum Assisted Resin Infusion* (VARI), a reactive liquid resin is injected or infused inside a mold cavity containing a dry fibrous reinforcement. In order to produce high performance composites, the fibers must be completely saturated prior to resin gelation [1,2]. Indeed, impregnation defects have a detrimental impact on mechanical properties of composite parts such as the maximum compression, flexural and shear inter-laminar strengths [3-6]. It has also a substantial effect on crack initiation and fatigue life, as well as on moisture absorption and surface finish [7,8]. Hence developing practical strategies to produce composite parts of high impregnation quality becomes a critical industrial goal [9,10].

In order to better understand fabric impregnation mechanisms at the microscopic level and minimize void formation in dual scale fibrous reinforcements during part manufacturing by

LCM, the study of capillary flows inside fibrous reinforcements is becoming increasingly important for high performance industrial applications. Indeed, a comprehensive, repeatable, low cost and less time-consuming imbibition characterization methodology in engineering fabrics would be of great help to identify optimal processing conditions. Among the experimental procedures presented in the literature to characterize imbibition inside fibrous reinforcement, the capillary rise method seems adequate. Indeed, this approach has been successfully implemented by several researchers to study the microscopic and macroscopic properties of fibrous reinforcements used in high performance composites.

In this regard, a monitoring technique based on fluorescent *dye penetration inspection (DPI)* and CCD image acquisition has been used in the current study. This visual monitoring of the capillary front by fluorescence is coupled with a method based on real-time fluid mass acquisition with a high resolution balance. This coupled approach allows gathering automatically and simultaneously the capillary front position and uptake fluid mass over time in fiber tows and fibrous reinforcements with a high degree of resolution and repeatability. This investigation proposes to use the results of capillary rise experiments in order to predict the optimal impregnation conditions that minimize void formation by air entrapment in dual scale fibrous reinforcements.

The paper starts by a short bibliographical review on air entrapment mechanisms that generate voids and on the impact of voids on the final mechanical properties of composite parts. Then, in order to carry out a comprehensive characterization of the impregnation conditions that minimize void formation by air entrapment, the *Lucas-Washburn* mechanistic imbibition model was applied to engineering fabrics. Mathematical derivations are performed from this model in order to determine the key parameters that control the spontaneous impregnation phenomena of a liquid polymeric resin in dual scale fibrous reinforcements. In this respect, two key parameters that appear to be responsible of void formation by air entrapment will be introduced: the optimal modified capillary number Ca_{opt}^* of the fabric and the penetrativity R_{fluid} of the infiltration fluid.

These two key parameters were evaluated for the E-glass non crimp fabric investigated and four infiltration fluids, namely vinyl ester resin, epoxy anhydride resin, styrene monomer and anhydride hardener alone. A state of the art literature review on void formation mechanisms is first presented in order to state the problem of porosity in high performance composites made by resin injection through fibrous reinforcements.

6.4 Bibliography

6.4.1 Sources of void formation

The anisotropy and variability of textile reinforcements are considered as the major source of race tracking, incomplete filling or dry spot formation in LCM manufacturing. These macroscopic defects can result from a wrong mold design, an inappropriate gate and/or vent positioning, a poor injection strategy and/or inaccurate preform cutting and draping [11]. Furthermore, some authors such as Leclerc [3] as well as Leclerc and Ruiz [4] have also noticed that smaller defects such as microscopic and macroscopic voids in composite parts have a detrimental impact on their mechanical properties. According to Lundström and Gebart [12], these voids may be created by air mechanical entrapment at the flow front, by volatile gases created during the chemical reaction of polymerization, by volume changes during cure as a result of resin shrinkage and increase in temperature, by bubble nucleation from dissolved air or water vapor in the resin or by bubble creation following in-line mixing with curing agents.

6.4.2 Void formation by air mechanical entrapment

Many authors such as Kardos et al. [13] have investigated void formation and growth during resin cure of autoclave processed laminates. Other researchers such as Ruiz, Achim et al. [10] as well as Hayward and Harris [14] have rather studied the void formation by air mechanical entrapment in RTM. Park and Lee [15] have recently published an exhaustive state-of-the-art article on this typical problem in LCM. These studies indicate that developing practical strategies to limit void formation by air entrapment becomes a critical industrial goal. Several solutions to this issue have been proposed such as choosing optimal gate and vent positions or adopting

optimized injection strategies [16]. Other solutions have also been implemented such as mixing surfactants and wetting agents in the resin formulation [17], choosing optimal coupling agents between the fiber tows and the resin [18,19], degassing the resin prior to injection [20], increasing the consolidation pressure during resin cure [12] or purging the resin through the vent after injection [21]. A new approach has also been developed to control the average impregnation velocity of the flow front by Trochu, Ruiz et al. [1], Leclerc and Ruiz [4] and Ruiz, Achim et al. [10]. The experimental investigation presented in this work aims to determine a priori the optimal flow velocity of the resin front so as to minimize the void content in high performance composites. A new characterization methodology based on capillary rise experiments is proposed in this article in order to provide a predictive model of the optimal velocity of the flow front in LCM. This new approach allows predicting the optimal impregnation conditions without having to perform expensive and time-consuming fabrication tests or carrying out complex numerical modeling of dual scale flows through fibrous reinforcements.

6.4.3 Air entrapment by dual scale fingering

During mold filling, tow impregnation and saturation are considered as mainly driven by capillary forces (microscopic flow front), while the macroscopic flow front progression is governed by the pressure gradient established in the cavity between the injection gate(s) and vent(s) [22]. Depending on the injection conditions, for a given combination of reinforcement and resin, as described by Pillai [23] lead-lag front profiles arise as a result of the dual scale architecture of the fibrous reinforcement. This phenomenon that occurs on the flow front is also called “fingering effect”. The fingering behavior is considered as a risk factor of void formation because the leading resin front can entrap air by overpassing the microscopic flow front in crosswise tows of low permeability [24]. This leading flow front can also create voids inside lengthwise tows by crossing over these longitudinal tows, ahead of the lagging microscopic front. These microscopic voids appear because of radial flows through preferential capillary channels and through local high permeability paths between bundle filaments [25]. These microscopic voids are often difficult to predict because they result from intrinsic tow variability, randomly packed fiber beds, heterogeneous pore size distribution and local defects of the reinforcement according to [26] and [27]. In this respect, capillary flows across fiber tows are more vulnerable

to air entrapment than capillary flows along fiber tows as a result of flow fluctuations caused by changes in the meniscus curvature and spacing variability between tow filaments [28]. Moreover, in infusion processes with low viscosity resins or when large parts are injected, Patel [29] have shown that capillary fingering inside the tows can entrap air and generate macroscopic voids.

For many researchers, the air mechanical entrapment mechanisms that result from dual scale porosity can be mainly related to the impregnation velocity of the reinforcement by the liquid resin [30]. Figure 6-1a shows that for low impregnation velocity in a dual scale fabric, capillary forces are leading viscous forces [10]. Consequently, the resin impregnates more rapidly the fiber bundles than the open space between them. This flow scenario represents a risk of macroscopic void formation between fiber tows. On the other hand, Figure 6-1b shows that for high impregnation velocity the viscous force contribution becomes more important than the capillary one. Accordingly, the resin bypasses and surrounds the tows because the filament bundles represent obstacles to the viscous flow. This situation creates delayed tow saturation and results in residual microscopic void formation inside the fiber bundles. Therefore an intermediate range of impregnation velocity exists for which the porosity is minimized for a given combination of reinforcement and resin. Hence, it is relevant to characterize *a priori* this optimal range of velocity for such a pair of fibrous reinforcement and resin with respect to the thermal manufacturing conditions of the part.

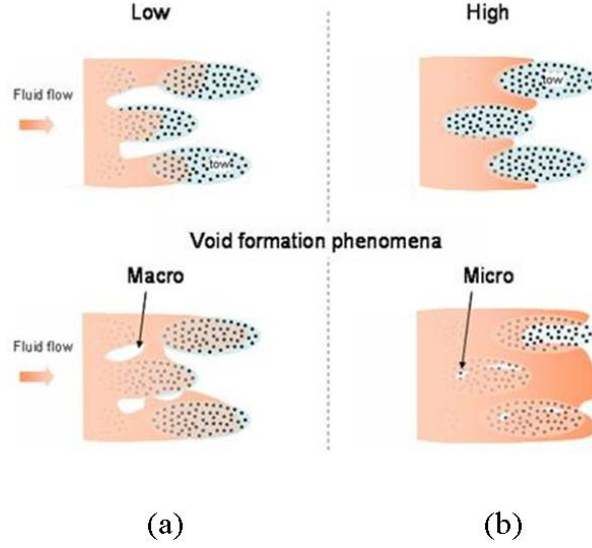


Figure 6-1 : Microscopic and macroscopic void formation due to resin fingering [10]:
 (a) microscopic flows through intra-tow pores ; (b) macroscopic flows through inter-tow pores.

6.4.4 Key parameters impacting air entrapment

Some researchers have succeeded to link experimentally specific injection conditions (also called the “processing window”) with microscopic/macroscopic air entrapment. This processing window was first introduced by Chen, Macosko et al. [24] as a function of the dimensionless velocity of the flow front as follows:

$$v^* = \frac{v_x}{v_{cap}} = \left(\frac{K_m \phi_b}{K_b \phi_m} \right) \cdot \left(\frac{r \Delta P}{2\gamma_{lv} \cos \theta} \right) \quad (6.1)$$

where v_x , v_{cap} , K_m , K_b , ϕ_m , ϕ_b , r , ΔP , γ_{lv} and θ denote respectively the macroscopic front velocity, the capillary velocity in the fiber bundles, the macroscopic permeability, the fiber bundle permeability, the macroscopic porosity, the fiber bundle porosity, the radius of the average pore size between fiber filaments, the global pressure differential, the fluid surface tension and the apparent contact angle of the meniscus between the fluid and the pore walls. According to these authors, void formation is minimized for a dimensionless velocity of the flow front around unity, thus for a macroscopic front velocity equal to the capillary velocity.

The processing window is also defined by Verrey, Michaud et al. [31] with respect to the dynamic capillary pressure ΔP_γ , based on the *Hoffman-Voinov-Tanner (HVT)* law, as follows:

$$\Delta P_\gamma = -S_{pv} \gamma_{lv} \cos\left(\sqrt[3]{c_T Ca + \theta_0^3}\right) \quad (6.2)$$

where the capillary number Ca is defined by:

$$Ca = \frac{\mu v_{ff}}{\gamma_{lv}} \quad (6.3)$$

and

$$S_{pv} = S_f \cdot \frac{V_f}{(1-V_f)} \approx \frac{4}{d_f} \cdot \frac{V_f}{(1-V_f)} \quad (6.4)$$

In the above Eqs. (6.2) to (6.4), S_{pv} is the specific surface area with respect to the unitary pore volume of the porous medium, c_T is the experimentally determined *HVT* coefficient, θ_0 is the contact angle at thermodynamic equilibrium, μ is the resin viscosity, v_{ff} is the liquid velocity, S_f is the specific surface area of tow filaments, d_f is the filament diameter, and V_f is the fiber volume content. According to these authors, the minimization of void formation is correlated to the capillary number Ca for which the resin flow in fibrous reinforcements undergoes a wettability transition from wetting to non-wetting behavior (the dynamic capillary pressure ΔP_γ undergoes a sign change as result of a transition in dynamic contact angle).

On the other hand, the processing window was also defined by Patel [29] and Ruiz et al. [10] by the modified capillary number Ca^* defined as follows:

$$Ca^* = \frac{\mu v_s}{\gamma_{lv} \cos \theta} \quad (6.5)$$

where

$$v_s = \phi v_p \quad (6.6)$$

and v_s , v_p and ϕ are respectively the superficial velocity (*Darcy flux*), the interstitial velocity (also called the pore velocity or the velocity of the flow front) and the porosity of the porous medium. According to Slade et al. [32], the modified capillary number Ca^* based on the interstitial (pore) velocity of the flow front is a key parameter directly connected with the sink effect from fiber tows, thus with the evolution in time of the injection pressure and the saturation of the fabric. Indeed, a drooping pressure profile that deviates from the typical Darcian pressure profile for saturated flows has been observed during the impregnation of dual scale fibrous reinforcements. Furthermore, the intensity of this deviation depends on the modified capillary number. Consequently, with respect to the previous state of the art, the modified capillary number Ca^* is a key parameter to study void formation by air entrapment in dual scale fibrous reinforcements. Therefore, it will be natural to rely on this dimensionless number to develop a new predictive model for air entrapment minimization.

After this bibliographical review, focus will be set on the mathematical development of the model, which is derived from the equation that governs the spontaneous imbibition of a liquid resin through a fibrous reinforcement. The proposed experimental methodology is based on capillary rise experiments. This approach will be validated by comparison with other characterization techniques of fibrous reinforcements and infiltration fluids in porous media. Finally, the predictive model of optimal flow front velocity will be used to characterize the conditions of optimal microscopic impregnation for several configurations of laminates. Knowledge on the fluid penetrativity of thermosetting resins is also required to define an optimal injection window that minimizes resin fingering and thus void formation.

6.5 Modeling of capillary rise through dual scale fabrics

The *Lucas-Washburn* imbibition models, already developed elsewhere [33-35] on the basis of the modified *Jurin's* law and the global force balance for creeping flows, are recalled in this section in order to study capillary flows of thermosetting resins inside dual scale fibrous reinforcements. The modeling of capillary flows to characterize imbibition phenomena inside fiber tows and in dual scale fibrous reinforcements is based on capillary rise experiments with a probe fluid which

is perfectly wetting, i.e., pure hexadecane. The *Lucas-Washburn* imbibition models selected here consider the evolution of the capillary height without gravity contribution.

6.5.1 Modified *Jurin's* law for dual scale fabrics

Microscopic pores in fiber tows

Woven fibrous reinforcements are porous media composed of oriented fiber tows that contain microscopic pores inside the fiber bundles and macroscopic pores between the tows (see Figure 6-2a). Such materials can be modeled as a statistical bimodal set of cylindrical capillary tubes parallel and tortuous [36,37,29,23] (see Figure 6-2b). The equivalent hydraulic diameter of the capillary tubes inside fiber bundles and parallel to their axis is defined by the ratio between the cross-sectional area of their flow canals and their wetted perimeters. If V_f denotes the fiber volume content of the fiber bundle, ϕ_{tow} is its porosity and d_f is the average filament diameter, the theory of porous media gives the following expression of the equivalent hydraulic diameter d_h^m [38,39]:

$$d_h^m = \frac{d_f (1 - V_f)}{V_f} = \frac{d_f \phi_{tow}}{(1 - \phi_{tow})} \quad (6.7)$$

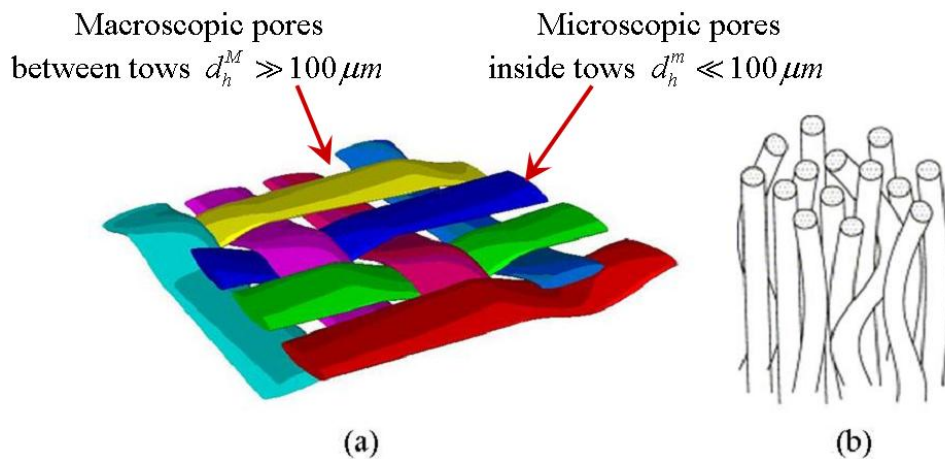


Figure 6-2 : Origin of the tortuosity of fiber bundles and filaments in fibrous reinforcements:
(a) woven pattern of a 2D reinforcement; (b) tortuous capillary tube [36].

It was previously observed that flows inside vertical capillary tubes stopped at a given equilibrium height when gravitational force was balancing capillary force [35]. As reported by de Gennes, Brochard-Wyart et al. [40], this equilibrium height in capillary pores can be evaluated *a priori* by the standard *Jurin's* law. Furthermore, from this standard *Jurin's* law and the definition of the hydraulic diameter d_h^m of microscopic pores inside fiber tows, a modified expression of *Jurin's* law [35,41,42] can be also proposed in fiber tows as follows:

$$z_{Jurin} = f_{geo} \cdot \left(\frac{4}{d_h^m} \right) \cdot \left(\frac{\gamma_{lv} \cos \theta}{\rho g} \right) = f_{geo} \cdot S_{pv} \cdot \left(\frac{\gamma_{lv} \cos \theta}{\rho g} \right) \quad (6.8)$$

where γ_{lv} , ρ , θ , f_{geo} , S_{pv} and g are respectively the surface tension of the imbibition liquid, its mass density, the contact angle where liquid-vapor interface and the fabric pore wall met, a geometrical constant, the specific surface area of the fiber bundle with respect to the unitary pore volume and gravity acceleration. The geometrical constant f_{geo} depends only on the pore size distribution and on the flow direction with respect to the fiber tows ($0 \leq f_{geo} \leq 1$) [43].

On the other hand, the theoretical specific surface area S_{pv} of the fiber tow with respect to a unitary pore volume can be estimated as a first approximation by assuming the fibers to be smooth parallel cylinders in a regular array [44,31]. This property of the fiber tows can be computed from their fiber volume content, their specific surface area S_m per unit mass and the density of glass ρ_{glass} :

$$S_{pv} = \frac{S_f}{v_{pore}} = \frac{S_f}{v_f (1 - V_f) / V_f} = S_f \cdot \frac{V_f}{(1 - V_f)} = \rho_{glass} \cdot S_m \cdot \frac{(1 - \phi_{tow})}{\phi_{tow}} \approx \frac{4}{d_h^m} \quad (6.9)$$

where S_f , s_f , m_f , v_f and v_{pore} denote the filament specific surface area per unit volume, the filament surface, its mass, its volume and the pore volume respectively. In the above equation, the specific surface area S_m per unit represents the ratio of the total surface of the pores over the solid volume of the porous medium. This parameter can be characterized experimentally by *Brunauer-Emmett-Teller* (*B.E.T.*) analysis technique, a method based on the multilayer adsorption of gas molecules on solid surfaces [45]. This *B.E.T.* characterization of the specific surface area S_m per unit mass takes implicitly into account the roughness of the filaments [31]. In

this respect, some authors [46] have already noticed the impact of this morphological property of the filament surface on the performance of imbibition in fiber tows.

The tow specific surface areas S_m per unit mass can be also estimated from the filament diameter and the glass mass density ρ_{glass} by assuming the fibers to be smooth cylinders packed in a regular array. Although this is rarely the case for real tow filaments, under this assumption S_m writes as follows:

$$S_m = \frac{s_f}{m_f} = \frac{s_f}{\rho_{glass} v_f} = \frac{S_f}{\rho_{glass}} = \frac{\pi d_f L}{\rho_{glass} (\pi d_f^2 L / 4)} = \frac{4}{\rho_{glass} d_f} \quad (6.10)$$

According to the global curvature of the meniscus, default values for f_{geo} in Eq.(6.8) are respectively 1 and 0.5 for capillary-driven flows parallel and perpendicular to the fiber tows [47,42]. However, capillary flows in fiber tows are rather complex and tridimensional interactions usually occur between the axial and perpendicular flows. Thus, this geometrical factor f_{geo} has been generalized in tensorial form [43]. A value of the geometrical parameter f_{geo} between 0.5 and 1 is usually obtained by nonlinear fitting of the capillary height evolution in time during long imbibition tests in fiber tows [43,47,42].

Furthermore, as defined by Bear [44] and Johnson [37], another concept needs to be introduced to take into account the non rectilinear path of the fiber bundles and the filaments in woven fabrics resulting respectively from stitching/weaving and twisting (see Figure 6-2). Tortuosity represents the ratio between the real distance $L_e(t)$ covered by the fluid during imbibition and its equivalent distance $L(t)$ along a straight line:

$$\tau = \frac{L_e(t)}{L(t)} \quad (6.11)$$

Macroscopic pores between fiber tows

The modified expression of *Jurin's* law (6.8) can be also extended to the macroscopic pores between the fiber tows. However, the hydraulic diameter of macroscopic pores d_h^M is usually two

orders of magnitude larger than the hydraulic diameter d_h^m of fiber tow pores. Accordingly, the equilibrium capillary height of the latter should also be of two orders of magnitude larger than the one of the macroscopic pores. Thus, the capillary flow contribution of the macroscopic pores to the medium and long-term imbibition behaviors of a dual scale fabric can be neglected compared to the imbibition contribution inside fiber tows [46]. However, this capillary flow contribution of the macroscopic pores can be significant in the initial imbibition behavior of a dual scale fabric [36].

In summary, the fiber tows and the macroscopic pores between these tows in a woven fabric can be modeled by a bimodal (dual scale) system of parallel capillary channels with a microscopic hydraulic diameter d_h^m and tortuosity τ_m for the fiber tows and a macroscopic hydraulic diameter d_h^M and tortuosity τ_M for the macroscopic pores. In this respect, the dual scale nature of the fibrous reinforcements must be taken into account in order to interpret properly experimental data from the capillary rise experiments and isolate the linear *Lucas-Washburn* (LW) flow regime.

6.5.2 *Lucas-Washburn* imbibition models

During isothermal capillary rise experiments in the macroscopic pores of fibrous reinforcements and in immobile, unstretchable and tortuous fiber tows, the fluids used are considered incompressible and Newtonian. In this respect, Figure 6-3 shows the typical capillary height evolution in time of such a liquid through a porous medium. The progression of the capillary front tends asymptotically towards an equilibrium height z_{eq} for which the capillary and gravitational forces balance each other in static equilibrium. In this regard, the equilibrium capillary height z_{eq} can be estimated by the modified *Jurin's* law (6.8) using the fiber tow properties. Figure 6-3 highlights also the LW linear flow regime for which the gravity contribution can be neglected in front of the viscous and capillary contributions at the beginning of the capillary rise, i.e., for short imbibition distances ($z(t) \ll z_{Jurin}$) [40,34]. In that situation, capillary forces are balanced only by viscous forces.

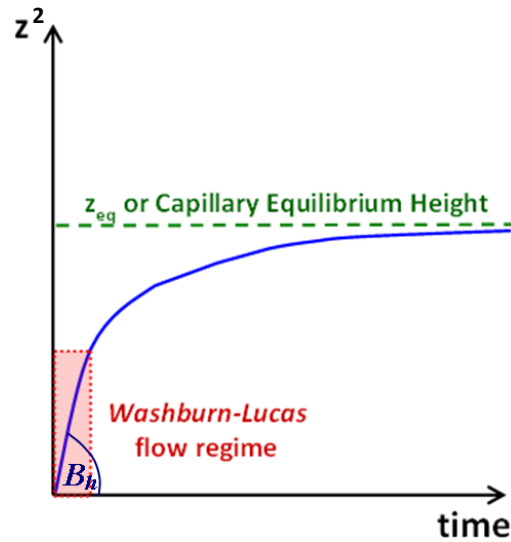


Figure 6-3 : Schematic view of the flow front evolution during a typical capillary rise through a porous medium.

Inertia and dynamic wettability terms are also considered relevant during the first microseconds of the imbibition phenomena through the largest pores ($d_h \gg 100\mu m$) and for low viscosity liquids such as low molecular weight alkanes [48,49]. Accordingly, if inertia term is neglected, capillary creeping flow through the macroscopic and microscopic pores of dual scale fabrics are governed by *Hagen-Poiseuille* equation. The creeping flow hypothesis is only valid if the *Reynolds* number based on the equivalent hydraulic diameter does not exceed a value between 1 and 10 [44]. *Reynolds* number Re in channel flows is defined as follows:

$$Re = \frac{\rho v d_h}{\mu} \quad (6.12)$$

where μ is liquid dynamic viscosity and v is a characteristic capillary flow velocity defined from the capillary height z as follows:

$$v = dz/dt \quad (6.13)$$

As mentioned in the previous section, the medium and long term imbibition behaviors in dual scale fabrics are dominated by the capillary flow contribution of the microscopic pores in the fiber tows (see Figure 6-1a) [46]. However, the capillary flow contribution in the macroscopic

pores can be significant on the short term. The imbibition contribution in fiber tows can even be neglected as a result of the high permeability of the macroscopic pores compared to the lower axial permeability of fiber tows [36] (see Figure 6-1b). This faster imbibition in the dual scale fibrous reinforcement during the initial imbibition stage may temporarily result in a deviation from the usually observed LW linear flow regime. Therefore, the imbibition characterization tests on fibrous reinforcements at low fiber volume content should last for sufficient time to develop representative capillary flows in the fiber tows and thus allow discard the initial non linear imbibition stage in the macroscopic pores of the fabric. Accordingly, LW imbibition models developed for individual fiber tows are still valid in dual scale fabrics, but only for short imbibition distances, i.e., $z(t) \ll z_{Jurin}$.

Imbibition model for the capillary height

As mentioned previously, if gravity can be neglected, i.e., for short imbibition distances ($z(t) \ll z_{Jurin}$), the velocity of the capillary front during the LW flow regime of Figure 6-3 can be calculated as a function of the capillary height from the modified *Jurin's* law (6.8) as follows:

$$\frac{dz}{dt} = \beta_h \left(\frac{z_{Jurin}}{z} \right) \quad (6.14)$$

where

$$\beta_h = \frac{1}{k_o \tau^2 S_{pv}^2} \cdot \frac{\rho g}{\mu} = \frac{(d_h^m)^2}{16 k_o \tau^2} \cdot \frac{\rho g}{\mu} \quad (6.15)$$

and where k_o is *Kozeny* geometrical constant [38,39]. Integration of the above Eq.(6.14) results in the classical LW law of capillary height evolution [50]:

$$z^2 = B_h t \quad (6.16)$$

where

$$B_h = 2\beta_h z_{Jurin} \quad (6.17)$$

Parameter B_h represents the *Lucas-Washburn (LW)* slope of the square of the capillary height evolution during the LW linear flow regime (see Figure 6-3). It is also referred to as a diffusion

coefficient (m^2/s) or a capillary rate coefficient elsewhere [51]. This parameter B_h can be obtained by linear regression on the evolution of the square height of the capillary front in time. By substituting Eqs.(6.8) and (6.15) in Eq.(6.17), another expression of B_h may be obtained:

$$B_h^{theo} = \frac{2 f_{geo}}{k_o \tau^2 S_{pv}} \cdot \frac{\gamma_{lv} \cos \theta}{\mu} = \frac{f_{geo}}{2 k_o} \cdot \frac{d_h}{\tau^2} \cdot \frac{\gamma_{lv} \cos \theta}{\mu} = \frac{f_{geo}}{2 k_o} \cdot \frac{d_f \phi_{tow}}{\tau^2 (1 - \phi_{tow})} \cdot \frac{\gamma_{lv} \cos \theta}{\mu} \quad (6.18)$$

6.6 Determination of optimal impregnation conditions

From the mathematical development of the *LW* imbibition models, a new predictive model can be derived to predict optimal impregnation conditions in engineering fabrics. The optimal impregnation conditions are considered to be the natural imbibition rate by the selected fluid on a characteristic length of the fabric. This concept leads to a predictive model that allows determining the optimal modified capillary number Ca_{opt}^* and the optimal flow front velocity v_{opt} that minimize void formation in the fibrous reinforcement considered for the selected thermosetting resin. The model allows also characterizing the fluid penetrativity R_{fluid} of a given thermosetting resin in its typical thermal manufacturing conditions. As mentioned earlier, the values of Ca_{opt}^* , v_{opt} and R_{fluid} can be determined either by work-intensive measurements based on standard characterization methods or by two simple and representative capillary rise experiments. This article will show that consistent results can be obtained by these two approaches.

6.6.1 Optimal impregnation velocity

The main hypothesis of this work considers that the optimal impregnation velocity in engineering fabrics can be predicted by the average natural imbibition rate on a characteristic length of dual scale fibrous reinforcements. The natural imbibition rate results from the equilibrium between the capillary and viscous forces in the creeping flow through the dual scale fabric. In this regard, the trapping of the non wetting phase, i.e., the air in the present case, in porous media results from a flow imbalance between the capillary and viscous forces [29,44]. This imbalance is connected with the heterogeneous distribution of the effective pore size in porous media. Thus,

characterizing directly the natural imbibition of the fabric will gather useful data to maximize the saturation of the fibrous reinforcement, i.e., minimize void formation during impregnation.

From the derivation of Eq.(6.16) from Eq.(6.18), the spatial evolution of the spontaneous imbibition rate of the fabric can be divided into three parts, which result from the contributions of the fluid, the interaction of the fluid with the fibers (wettability) and the fabric geometry, namely β_{fluid} , $\beta_{wettability}$ and $\beta_{geo}(z)$ respectively:

$$v_{front}(z) = \frac{dz}{dt} = \frac{B_h}{2z} = \beta_{fluid} \cdot \beta_{wettability} \cdot \beta_{geo}(z) \quad (6.19)$$

where

$$\beta_{fluid} = \frac{\gamma_{lv}}{\mu} ; \beta_{wettability} = \cos \theta ; \beta_{geo}(z) = \frac{f_{geo}}{k_o} \cdot \frac{d_f \phi_{tow}}{\tau^2 (1 - \phi_{tow})} \cdot \frac{1}{z} \quad (6.20)$$

Furthermore, it is interesting to point out that the product ($\beta_{fluid} \cdot \beta_{wettability}$) introduced in Eq.(6.19) has also been called the fluid penetrativity R_{fluid} by Washburn [50]:

$$R_{fluid} = \frac{\gamma_{lv} \cos \theta}{\mu} \quad (6.21)$$

Besides, the temporal evolution of the spontaneous imbibition rate of the fabric can be also obtained by substituting Eq.(6.16) into Eq.(6.19):

$$v_{front}(t) = \frac{dz}{dt} = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{B_h}{t}} \quad (6.22)$$

Thus, the imbibition flow in a fiber bundle can be modeled using Eqs.(6.19) or (6.22) as presented in Figure 6-3 and in Figure 6-4. However, the term depending on the fabric architecture $\beta_{geo}(z)$ still remains to be fully evaluated in order to compute the optimal impregnation velocity v_{opt} in the fiber bundle direction. A parameter L_c called the “characteristic mesoscopic distance” of the fabric weaving/stitching *unit cell* must be determined [15,29,52]. This parameter can be computed from the specification sheets of the fabric supplier or by characterization of the *Representative Elementary Volume (REV)* using standard porometry techniques [37,53]. Then, it

is hypothesized that the optimal filling time t_{opt} of the fabric *unit cell* is the “characteristic tow filling time” t_c . This t_c can be evaluated by *Lucas-Washburn* law (6.16) from the characteristic distance L_c as follows [15,52]:

$$t_{opt} = t_c = \frac{L_c^2}{B_h} \quad (6.23)$$

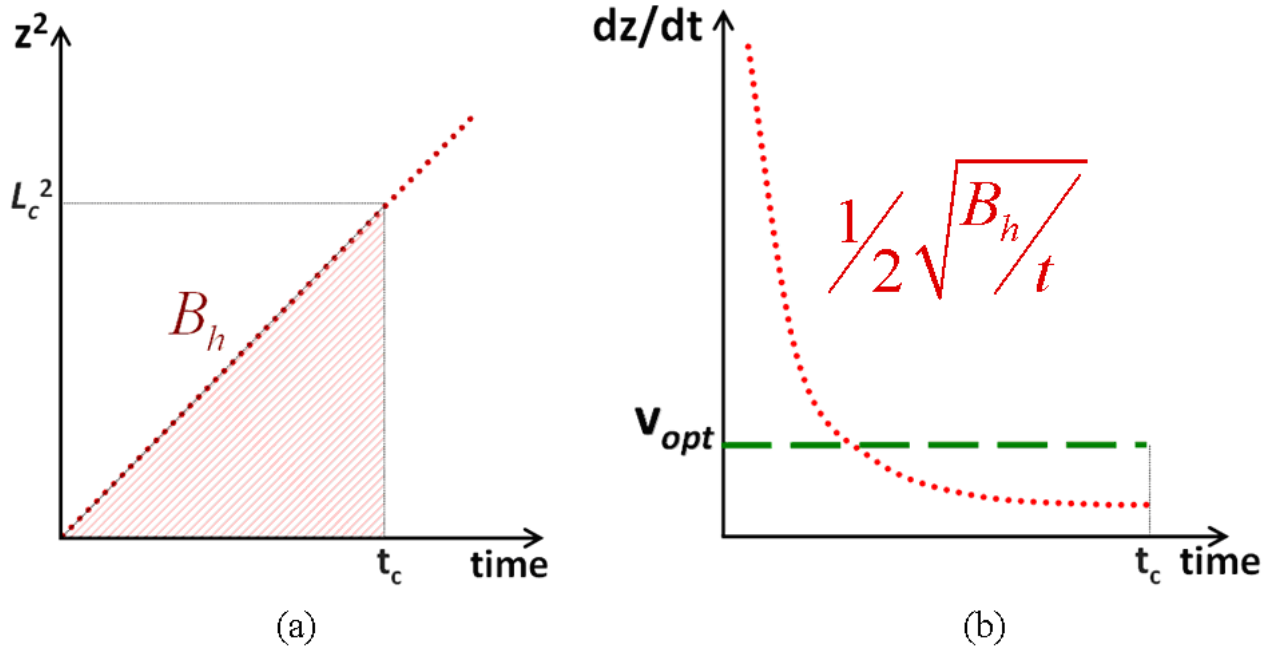


Figure 6-4 : Schematic views of imbibition evolution according to *Lucas-Washburn* law:
(a) square imbibition height evolution in time based on Eq.(6.16); (b) imbibition velocity evolution in time based on Eq.(6.22) and average optimal imbibition velocity (v_{opt}) on L_c .

Finally, from this characteristic time t_c (6.23) and Eq.(6.18), the optimal impregnation velocity v_{opt} parallel to fabric fiber bundle can be estimated *a priori* as follows:

$$v_{opt} = \frac{L_c}{t_{opt}} = \frac{B_h}{L_c} = 2 \cdot R_{fluid} \cdot \beta_{geo} \quad (6.24)$$

where

$$\beta_{geo} = \frac{f_{geo}}{k_o} \cdot \frac{1}{\tau^2 S_{pv} L_c} = \frac{f_{geo}}{4k_o} \cdot \frac{d_f \phi_{tow}}{\tau^2 (1 - \phi_{tow}) L_c} = \frac{f_{geo}}{4k_o} \cdot \frac{d_h^m}{\tau^2 L_c} \quad (6.25)$$

The above velocity represents the average rate of spontaneous imbibition of the fiber bundle on a representative length L_c as presented in Figure 6-4b. This optimal infiltration velocity of the wetting phase, i.e., the liquid resin, should minimize the entrapping phenomena of the non-wetting phase, i.e., air, in the double scale porous medium considered.

6.6.2 Optimal modified capillary number

To complete the above mathematical development, a dimensionless number previously mentioned, the modified capillary number, must be introduced based on the work of Patel [29]. If v_p is the interstitial velocity, the capillary number Ca is:

$$Ca = \frac{\mu v_p}{\gamma_{lv}} \quad (6.26)$$

and the modified capillary number is :

$$Ca^* = \frac{\mu v_p}{\gamma_{lv} \cos \theta} \quad (6.27)$$

By reorganizing Eq.(6.24) we get :

$$Ca_{opt}^* = 2 \beta_{geo} = \frac{2 f_{geo}}{k_o \tau^2 S_{pv} L_c} = \frac{f_{geo} d_h^m}{2 k_o \tau^2 L_c} = \frac{f_{geo}}{2 k_o} \cdot \frac{d_f \phi_{tow}}{\tau^2 (1 - \phi_{tow}) L_c} \quad (6.28)$$

As shown by Eq.(6.28), the optimal modified capillary number Ca_{opt}^* depends only on the morphological and topological properties of the fiber tows and fabric along a given fiber orientation. The main architectural properties of the fabric to determine Ca_{opt}^* are the fiber tow porosity, its tortuosity, the diameter of tow filaments and a characteristic stitching/weaving distance. Besides, the remaining architectural parameters of the fabric denoted k_o and f_{geo} vary with respect to the pore shape and connectivity, and with the heterogeneity of the pore size distribution between the bundle filaments. These parameters of the porous medium are usually considered very difficult to measure by standard characterization techniques. Indeed, as demonstrated by Michaud and Mortensen [54], the heterogeneity degree of pore size distribution

in a fibrous reinforcement, also called pore size distribution index λ elsewhere [55], can only be estimated by non-standard fabric characterization techniques such as porometry [56,53]. Parameters k_o and f_{geo} may be obtained together by permeability characterization tests or capillary rise experiments [43,42]. In this regard, the mechanistic model (6.28) can be rewritten according to the *Lucas-Washburn* slope B_h obtained directly from a capillary rise experiment with a probe fluid of known penetrativity R_{fluid} :

$$Ca_{opt}^* = 2\beta_{geo} = \frac{\mu}{\gamma_{lv} \cos \theta} \cdot \frac{B_h}{L_c} = \frac{1}{R_{fluid}} \cdot \frac{B_h}{L_c} \quad (6.29)$$

Knowing the Ca_{opt}^* obtained from the capillary rise experiment with the probe fluid and the β_{geo} contribution computed from the architectural properties of the fabric (Eqs.(6.25) and (6.29)), a second capillary rise experiment can be carried out with the fluid investigated such as a thermosetting resin to evaluate the penetrativity of the resin R_{resin} as follows:

$$R_{resin} = \frac{1}{Ca_{opt}^*} \cdot \left(\frac{B_h}{L_c} \right)_{resin} = R_{hexadecane} \cdot \frac{B_h|_{resin}}{B_h|_{hexadecane}} \quad (6.30)$$

Finally, the optimal fabric impregnation velocity v_{opt} with the liquid resin can be evaluated from two capillary rise experiments with the probe fluid as well as the resin and solving Eqs.(6.29) and (6.30). As noted earlier in the bibliography, radial tow impregnation is considered more vulnerable to air entrapment than axial tow impregnation as result of flow hesitation caused by meniscus curvature fluctuations and spacing variability between tow filaments [28]. The optimal injection window that minimizes resin fingering (lead-lag distance) and minimizes the risk of void formation in fiber tows parallel to flow direction can thus be computed by Eq.(6.24):

$$v_{opt} = R_{resin} \cdot Ca_{opt}^* \quad (6.31)$$

Note that the optimal transversal tow impregnation velocity is usually considered to be up to two orders of magnitude slower than the axial one [57]. Indeed, axial tow capillary pressure is considered twice radial value [43] and transversal tow permeability is one order of magnitude

lower than the axial one at least [58]. This latter fact comes from the “log jamming effect” between tow filaments and it can be amplified by fiber-to-fiber spacing variability of the tows in high fiber volume content parts [59]. Accordingly, for multidirectional fibrous reinforcements, there are two different optimal impregnation velocities that minimize void formation on each fiber tow direction, namely transversal and parallel to fiber tows. Similar to fabric permeability, there is an “optimal impregnation velocity” tensor that minimizes void formation.

6.7 Material characterization

This section presents the characterization of the fibrous reinforcement, the probe fluid, the thermosetting resins as well as the additives and curing agents used on this study. Material properties were characterized in order to carry out the capillary rise experiments and estimate the values of the two key parameters that control void formation by air entrapment, namely Ca_{opt}^* and R_{resin} . The fabric characterization was conducted by standard techniques such as image analysis, microscopy, capillary flow porometry, *B.E.T.* analysis and gravimetric technique based on measuring buoyancy variations. Further surface analysis by spectrometry and capillary rise measurements were also carried out. On the other hand, the characterization of the probe fluid (hexadecane) and the four infiltration fluids, namely the vinyl ester resin, the epoxy anhydride resin, the styrene monomer and the anhydride hardener, was carried out by pycnometry, rheometry, tensiometry and goniometry.

Properties of the glass fibrous reinforcement were characterized in warp and weft directions as reported in Table 6-1. The characterization of the natural fabric porosity by gravimetric technique and the polyester mass fraction by thermo-gravimetry for different sample sizes of fibrous reinforcement was also used to estimate the *Representative Elementary Volume (REV)* of the fabric.

6.7.1 Fabric characterization

A bidirectional non-crimp fabric (NCF) was selected for this investigation (see Figure 6-5a). This reinforcement is made by *JB Martin*® (TG15N60A / #3028) out of *Vetrotex*™ glass fibers. These fiber tows were already characterized in [60]. The warp (735 tex) and weft (275 tex) tows are stitched together by polyester binder filaments (17 tex). As shown in Figure 6-5b, the polyester filaments hold the untwisted glass strands together. This unbalanced fabric has 45% of its glass filament volume along the warp and 55% along the weft. Each fabric ply consists of 2 weft layers and 1 warp layer. This fabric has a mass density ρ_{fabric} of $2.54 \pm 0.01 \text{ g/cm}^3$ and a superficial density ρ_s of $517 \pm 6 \text{ g/m}^2$. The size of the fabric *REV* was evaluated to be 225 mm^2 by plotting the polyester mass fraction and the fabric porosity for different sample areas as presented in Figure 6-6. The characterization results of fiber tow and fabric are summed up in Table 6-1. Microscopy coupled with image analysis were used to evaluate the tow count, the center-to-center tow distance, the equivalent hydraulic diameter of macroscopic pores between fiber tows, the tow filament diameter and the tow porosity in both fabric directions. The specific surface area per unit mass of fiber tow was characterized by *B.E.T.* analysis. Capillary flow porometry was rather used to estimate the equivalent hydraulic diameter of microscopic pores in fiber tows. Finally, the optimal modified capillary numbers (6.28) for the warp and weft tows were estimated from the fiber tow properties and from the center-to-center tow distances in both fabric directions. Note that the information provided by the fabric supplier is given in parentheses in Table 6-1.

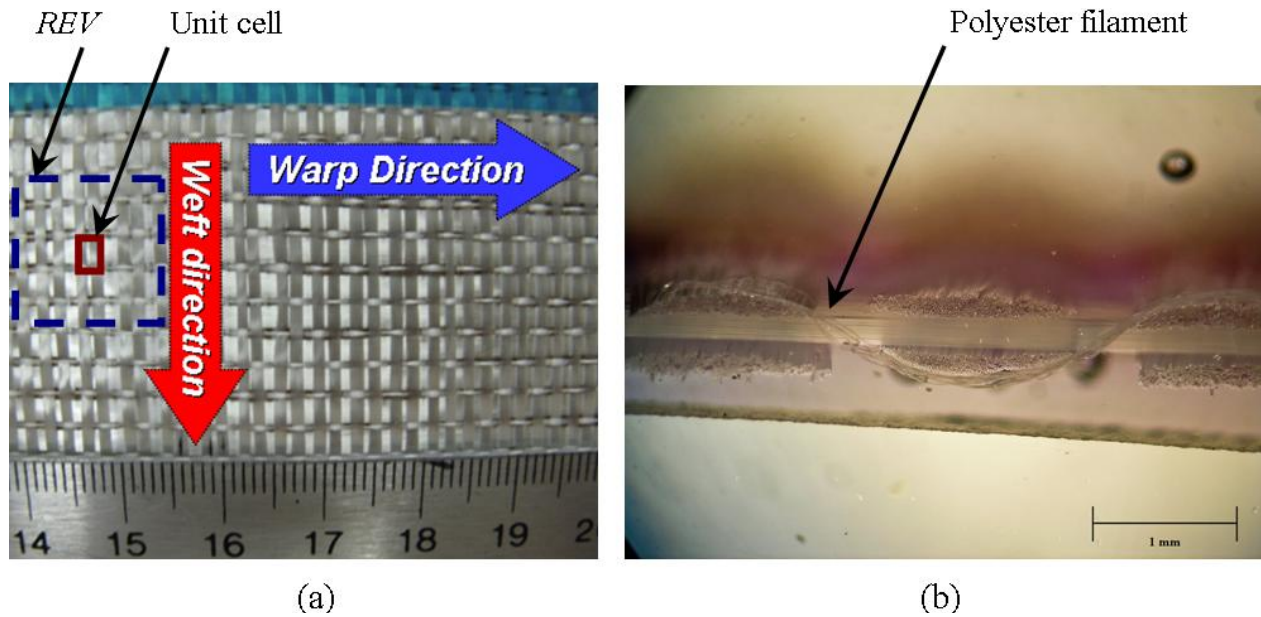


Figure 6-5 : Pictures of the *TG15N60A* E-glass NCF from *JB Martin®*:

- (a) fabric image showing its principal directions and the unit cell dimensions;
- (b) microscope image of the fabric along the weft showing the polyester binding filament.

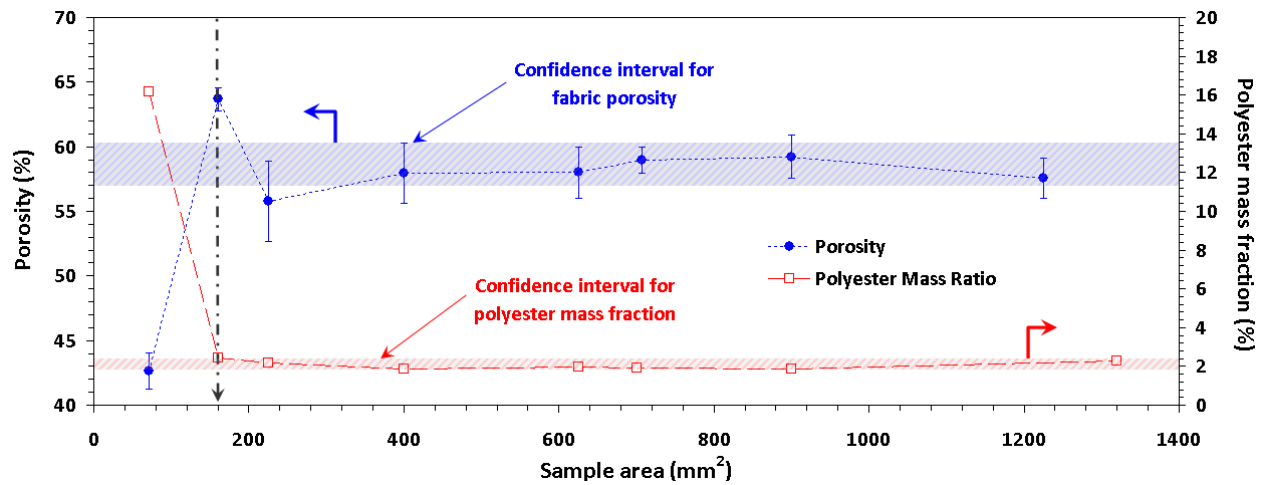


Figure 6-6 : *Representative Elementary Volume* analysis (*REV*) from porosity (gravimetry) and polyester mass fraction (thermo-gravimetry) plotted as a function of the area of fabric samples.

a) Spectroscopy analysis

The surface chemistry of the fibers and the sizing were investigated with an ESCALAB 3 MKII X-ray photoelectron spectrometer (XPS) from Thermo VG Scientific® [61,36]. According to this chemical analysis of filament surfaces, the P688 sizing from Vetrotex® is an octyltriethoxysilane used to alter the polarity of the aluminoborosilicate glass filaments and provide water repellency and other basic sizing features [62]. Thus, from the chemical composition of the sizing, its surface energy is expected to be between 25.5 mN/m for a pure octyltriethoxysilane solution and 30.2 mN/m for a 10% aqueous solution of octyltriethoxysilane [63]. In this respect, water is a critical ingredient of fiber sizing. Indeed, it allows diffusion of the silane coupling agent to the filament surface and efficient bonding of hydrophobic molecules of the polymer to the hydrophilic molecules of the mineral surface (glass) through the silane hydrolysis [18].

b) Surface energy characterization from imbibition analysis

Indirect characterization of the sizing surface energy was also carried on single filaments using tensiometry measurements. However, this analysis of individual tow filaments is work-intensive and does not represent the global fabric-polymer interactions. From a statistical point of view, it is more appropriate and efficient to characterize this kind of properties on a bundle of filaments or directly on the fabric itself by the capillary rise method [64]. Nevertheless, the heterogeneous coating of the fiber bundles makes difficult an accurate characterization of a single value of surface energy for the current fabric via the capillary penetration method with probe liquids [65]. In this regard, unfruitful attempts were carried out on warp tows with several fluids showing different dispersive and polar components. Indeed, surface energy values obtained from these fiber bundles were scattered and did not match typical results for untreated and treated E-glass fibers [66,18]. Surface energy characterization of fiber sizing should be carried out directly with reference polar and non polar fluids by the method of static contact angle measurement, namely the sessile drop method, on a smooth reference surface uniformly coated with the sizing [67].

Table 6-1 : Properties of JB Martin TG15N60A non-crimp fabric

Properties ¹		values from standard characterization methods ²	values from capillary rise method or supplier ³	units
Warp direction	Filament diameter d_f	14.9 ± 0.1	(15)	μm
	Microscopic porosity ϕ^{warp}	49 ± 8	45 ± 2	%
	Specific surface area per unit mass S_m (6.10)	0.09 ± 0.01	0.104 ± 0.003	m^2/g
	Specific surface area per unitary pore volume S_{pv} (6.9)	2.8 ± 0.9	2.8 ± 0.4	$\times 10^5 \text{ m}^{-1}$
	Hydraulic diameter d_h^m (6.7)	12 ± 2 ; 8.76 to 16.04	12 ± 1	μm
	Tow count n_{tows}	3.07	(3.1)	tows/cm
	Center-to-center tow distance L_c	1.94	(1.92)	mm
	Hydraulic diameter of macropores d_h^M	490 ± 30	—	μm
	Optimal modified capillary number Ca_{opt}^* (6.28)	2.4 ± 0.8	1.8 ± 0.1	$\times 10^{-3}$
Weft direction	Filament diameter d_f	13.1 ± 0.2	(13)	μm
	Microscopic porosity ϕ^{weft}	50 ± 10	44 ± 4	%
	Specific surface area per unit mass S_m (6.10)	0.11 ± 0.02	0.119 ± 0.003	m^2/g
	Specific surface area per unitary pore volume S_{pv} (6.9)	3 ± 1	3.6 ± 0.7	$\times 10^5 \text{ m}^{-1}$
	Hydraulic diameter d_h^m (6.7)	12 ± 2 ; 8.76 to 16.04	10 ± 2	μm
	Tow count n_{tows}	10.31	(10.4)	tows/cm
	Center-to-center tow distance L_c	3.26	(3.23)	mm
	Hydraulic diameter of macropores d_h^M	260 ± 30	—	μm
	Optimal modified capillary number Ca_{opt}^* (6.28)	1.2 ± 0.5	0.9 ± 0.1	$\times 10^{-3}$

¹ All characterizations were carried out at room temperature ($22.5 \pm 2.5^\circ\text{C}$) with a relative humidity of $22 \pm 5\%$.

² Standard methods are microscopy, porometry by liquid expulsion, *B.E.T.* analysis and gravimetry.

³ Information provided by the fabric supplier is given in parentheses.

6.7.2 Fabric variability

As presented in Table 6-1, the fiber tow characterization of porosity, specific surface area and hydraulic diameter as well as the evaluation of tow counts show a slight variability. For this reason, it is more convenient to characterize the imbibition properties of fabric plies for samples of size greater than the *REV*. Therefore the mold should be 15 mm wide at least to allow a representative and robust imbibition characterization of fibrous reinforcements. Indeed, it was already noticed that even for the same global porosity, two experiments can exhibit different rates of impregnation if the pore size heterogeneity of the samples is different [68,57].

6.7.3 Characterization of the infiltration fluids

The 99% pure hexadecane from *Sigma-Aldrich*® has been selected as probe infiltration fluid to carry out reference capillary rise experiments in fiber tows and plies. This fluid of known penetrativity R_{fluid} is chosen because of its totally wetting behavior and low volatility (low vapor pressure). These reference experiments allowed investigating the imbibition performance of fiber tows and of the complete fabric ply alone. Afterwards, capillary rise experiments were carried out with two thermosetting resins and two resin additives/curing agents in order to study their interaction with the current glass fabric and thus estimate directly their penetrativity. The two thermosetting resins selected for this work are typically used in LCM processes. The first one is the *Derakane*® 411-350 vinyl ester resin produced by *Ashland* inc., and the second one is the *D.E.R.*™ 383 epoxy resin produced by *Dow Chemical*®. This epoxy resin is blended with 80 PHR of anhydride curing agent. However, without any catalyst or initiator action, both resins can be considered as non reactive at room temperature. The latter anhydride curing agent and pure styrene from *Progress Plastiques co.* were also used individually to carry out capillary rise experiments in order to investigate their impact on the global imbibition behavior of the epoxy and vinyl ester resins respectively. Furthermore, all the liquids were blended with a fluorescent tracer (0.1g/liter) to increase the contrast between the capillary front and the glass fabric, and thus avoid imbibition flow front fading with time and improve the impregnation traceability. This UV-excited dye is the *Pyrromethene 567A* from *Exciton*®. It is chosen for its high solubility into all

the fluids introduced above. This visual monitoring approach is based on a non destructive testing approach called the *Dye Penetration Inspection (DPI)*.

For a matter of comparison, the key properties of the reference fluid, of both thermosetting resins and additives/curing agents were evaluated. Indeed, in order to compare the penetrativity values of these fluids estimated from capillary rise experiments with the penetrativity values computed from basic properties, standard characterization procedures were carried out. Dynamic viscosity and surface tension of these fluids were characterized respectively with a *MCR-501* rheometer from *Anton-Paar*® and a *K14* force tensiometer from *Krüß*® (*Wilhelmy's* plate method). The dynamic contact angle between these fluids and the tow filaments was also characterized with the force tensiometer. The static contact angle between the fluids and fiber tows and between the fluids and a reference surface were rather characterized respectively with the capillary rise setup and with a *NRL-100* optical goniometer from *Ramé-Hart*®. The mass density of these fluids was characterized using a 25 ml pycnometer from *Fisher Scientific*® and a *CP225D* balance from *Sartorius*®. All the experimental results were obtained at room temperature ($22.5 \pm 2.5^{\circ}\text{C}$) as presented in Table 6-2.

The characterization of dynamic viscosity and surface tension of styrene and anhydride at room temperature highlighted their thinning and surfactant contributions to the vinyl ester and epoxy anhydride resins. In addition to their reactive participation in the resin cross-linking, these resin additives and curing agents promote tow impregnation and fiber wet-out during the filling phase of the fibrous reinforcement. However, their concentration must be carefully controlled in order not to weaken the interfacial transfer between the resin and the fibers so as to ensure good mechanical properties of the composite.

Furthermore, the dynamic viscosity and the surface tension of the vinyl ester resin, epoxy anhydride resin, anhydride hardener alone and pure styrene monomer were characterized with respect to temperature. As presented in Figure 6-7, the dynamic viscosity of these four unreactive fluids follows an *Arrhenius*-law tendency. On the other hand, the evolution of surface tension of

liquid polymers usually follows a linear decreasing relationship with respect to temperature, known as the *Eötvös* or the *Guggenheim-Katayama* rules [69]. The four fluids studied exhibit in Figure 6-8 a decrease in surface tension between 293 K and 323 K. Moreover, the regression slopes in Figure 6-8 are the surface entropies of the polymers investigated [70].

Table 6-2 : Fluid and interfacial properties ¹

Fluids	Fluid properties		Interfacial properties		Imbibition properties	
	density (kg/m ³)	dynamic viscosity (mPa·s) ²	surface tension (mN/m)	advancing dynamic contact angle (degree)	static contact angle (degree)	penetrativity R_{fluid} (m/s) (6.21)
Sigma-Aldrich® 99% pure hexadecane	767.1948 ± 0.0004	3.51 ± 0.01	27.50 ± 0.03	~ 0	~ 0	7.83 ± 0.02
Pure styrene monomer	900.6840 ± 0.0004	0.773 ± 0.003	31.778 ± 0.003	~ 0	4 ± 1 ³ 0.0 ± 0.2 ⁴	41.0 ± 0.2 ³ 41.1 ± 0.2 ⁴
Anhydride curing agent	1197.4412 ± 0.0004	50.74 ± 0.07	40.923 ± 0.003	~ 0	13 ± 2 ³ 7.0 ± 0.2 ⁴	0.79 ± 0.01 ³ 0.801 ± 0.001 ⁴
Derakane® 411-350 vinyl ester resin	1045.4804 ± 0.0004	478.8 ± 0.4	34.34 ± 0.04	~ 0	44 ± 2 ³ 40.8 ± 0.2 ⁴	0.052 ± 0.002 ³ 0.0543 ± 0.0002 ⁴
Dow® D.E.R.™ . 383 epoxy resin with 80 PHR anhydride	1170.9008 ± 0.0004	895.6 ± 0.8	44.80 ± 0.06	50 ± 10	32.4 ± 0.7 ³ 30.5 ± 0.2 ⁴	0.0422 ± 0.0003 ³ 0.0431 ± 0.0001 ⁴

¹ All the properties were evaluated at room temperature (22.5 ± 2.5°C) and for a relative humidity (RH) of 22 ± 5%.

² The dynamic viscosity of hexadecane and styrene was characterized with a single Couette geometry. The other values of dynamic viscosity were measured with a double Couette geometry.

³ From *NRL-100* optical goniometer (*Ramé-Hart®*) measurements of equilibrium (static) contact angles.

⁴ From tensiometry (capillary rise setup) measurements of advancing contact angles on warp fiber bundles.

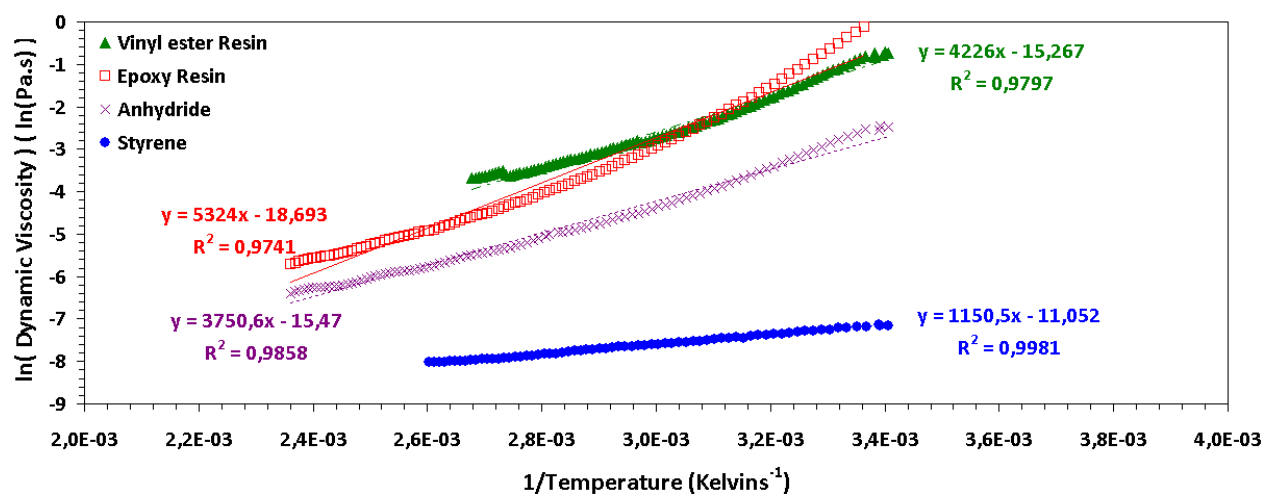


Figure 6-7 : Arrhenius plot of dynamic viscosity of resins and curing agents with respect to temperature (rheometer).

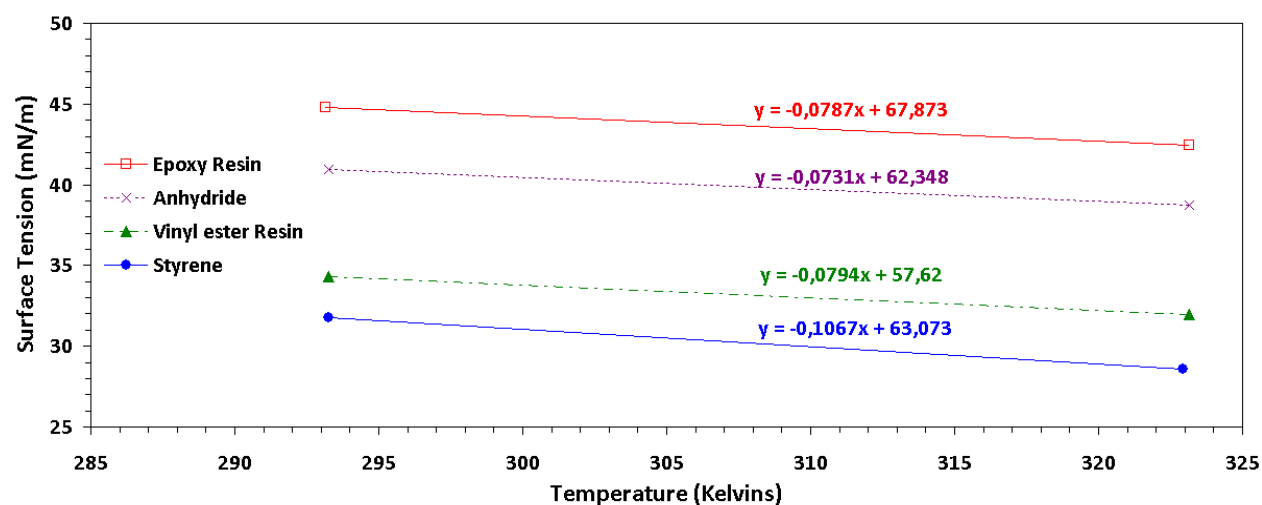


Figure 6-8 : Characterization of surface tensions of resins and curing agents with respect to temperature by tensiometry (force tensiometer).

Finally, previous experimental results on dynamic viscosity and surface tension with respect to temperature were used to compute the fluid parameter β_{fluid} of Eq. (6.20). Figure 6-9 shows a monotonic increase of β_{fluid} with temperature, which should in turn affect the penetrativity R_{fluid} .

R_{fluid} of the infiltration fluids, thus the imbibition results. Therefore, this must be considered during the imbibition tests by controlling the temperature of the environment.

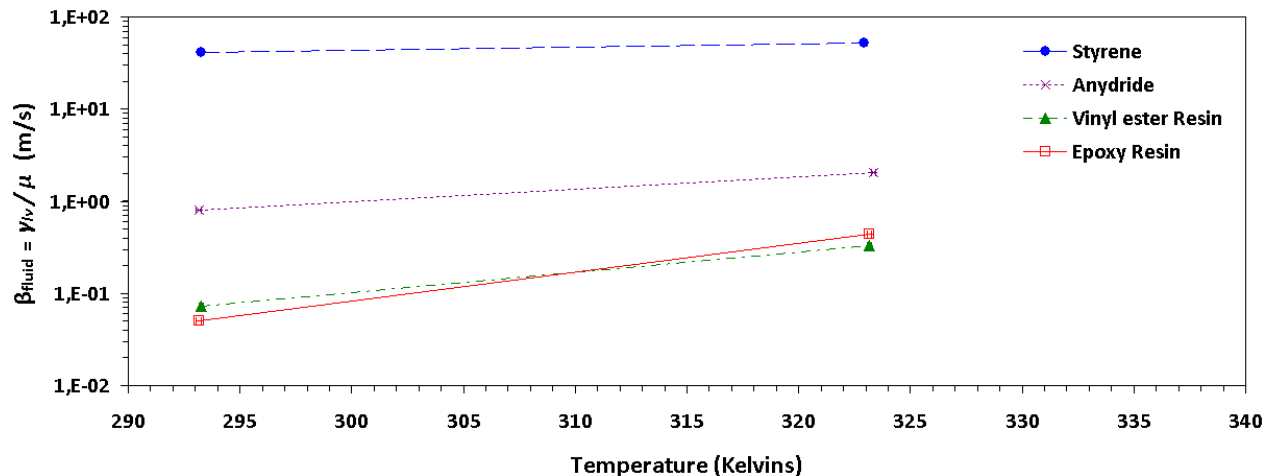


Figure 6-9 : Characterization of fluid parameter (6.20) of resins and curing agents with respect to temperature by rheometry and tensiometry.

6.8 Experimental setup

The experimental setup used to carry out the current imbibition study is based on capillary rise method with fluorescence visualization of the capillary front, CCD image acquisition and associated image post-treatment. The use of fluorescence visualization in fibrous reinforcements is novel. The complete experimental setup is shown schematically in Figure 6-10. This setup was developed to monitor simultaneously the flow front position and the total uptake mass by spontaneous imbibition during 24 hours. It is composed of a digital camera and a high-resolution balance. In order to emulate a load tensiometer and control the fiber tow/fabric velocity when it comes in contact with the liquid surface, a motorized linear stage moves the liquid container or the mold that contains the fibrous reinforcement. The motorized stage was controlled by a computer workstation via a control card and a controller. This workstation allows carrying out synchronized control and data acquisition of the balance, the motorized stage and the digital camera. A program allows user setting the approach velocity and a mass threshold for resin/fibrous reinforcement contact detection. When this mass threshold is reached or exceeded, a

signal is sent to the stage to stop immediately its run. This event triggers the start of the capillary rise test. At the end of each imbibition test, the length of the fibrous reinforcement (fiber tow or fabric) was measured by image analysis on the last pictures recorded.

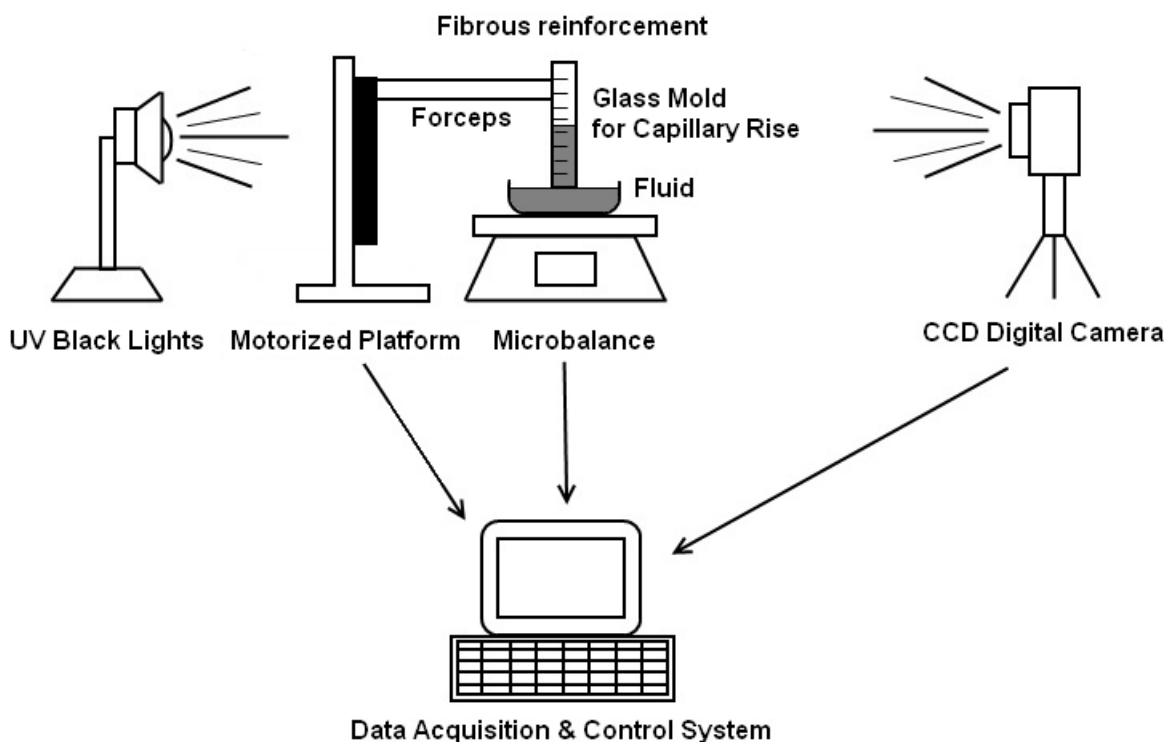


Figure 6-10 : Schematic representation of the capillary rise setup.

The aluminum frame of the balance density kit was used to perform the capillary rise tests on fiber bundles. The fiber tows were characterized in their natural state without any glass sleeve or mass preloading by weight attachment to avoid tow fraying or edge effect possibly caused by fiber tow alterations. One of the fiber tow tips was sandwiched between two small stripes of adhesive tape. This modified tip of the fiber tow was then installed on the support ring of the balance frame in order to maintain the fiber bundle vertically during the capillary rise tests. On the other hand, two small molds have been machined from glass sheets in order to follow visually the capillary rise of the fluid inside the laminates of fibrous reinforcement while keeping the straightness of the fabric and controlling the fiber volume content during imbibition. Glass was the only material that could offer simultaneously the required specific rigidity, transparency as

well as the necessary chemical and thermal resistance. These molds were equipped with self-adhesive rulers to provide a visual reference during capillary impregnation. The molds were held and supported by specimen bottle forceps and a standard chemistry rack inside the balance chamber that can be closed as required. A level board was used to ensure that the fibrous reinforcement remains vertical and perpendicular to the liquid container.

The glass mold with a 3.18 mm thick cavity was successively loaded with several plies of reinforcement strips, i.e., 4, 5, 6 or 7 plies. The 0.56 mm cavity mold was rather used with single fabric ply. Both mold cavities were 25.4 mm wide by 305 mm long, sealed on the side with vacuum grease and closed with miniature clamps. These molds possessed vents on their top edges. UV-black light lamps were used to follow the progression of the fluids blended with the fluorescent dye. The complete setup was installed in a darkroom to facilitate the recording of the capillary rise.

6.9 Experimental results

The evolution of capillary flow in fiber tows and laminates was monitored following the capillary rise procedure based on fluorescence visualization and CCD image acquisition as well as on monitoring of uptake fluid mass. The formation of macroscopic voids in single fabric ply was first studied quantitatively by image analysis. The formation of these macroscopic voids in a dual scale fibrous reinforcement was occurring during the fabric imbibition by vinyl ester resin and epoxy anhydride resins. In the current study, it was observed that the air entrapment phenomenon generates macroscopic void contents that were increasing exponentially with decreasing modified capillary number of the flow front. This finding was consistent with previous scientific literature on void formation in the *Liquid Composite Molding* domain.

Afterwards, the experimental characterizations of these *Lucas-Washburn (LW)* slopes B_h for fiber tows (see Eq.(6.16)) were carried out by fitting the capillary height data with the *LW* imbibition model using a least-squares regression algorithm. On the other hand, the characterization of fiber tow porosity ϕ_{tow} was carried out by total uptake fluid volume analysis. The *LW* slopes of

capillary height evolution were then used to estimate the optimal modified capillary numbers Ca_{opt}^* that minimize void formation in fiber tows using the imbibition model (6.29). The experimental values of Ca_{opt}^* were compared with theoretical values predicted by analytical model (6.28).

The same approach was used to investigate the imbibition phenomenon in single and multiple ply configurations and their respective Ca_{opt}^* . The characterization of the LW slopes of capillary height evolution for single fabric ply in the warp and weft directions and for multiple ply configurations (4, 5, 6 and 7 plies) were carried out in the current study. The penetrativity values R_{fluid} of the thermosetting resins, additives and curing agents were characterized using Eq.(6.30) from imbibition analysis in a single fabric ply. Finally, the penetrativity value R_{ve} for the vinyl ester resin was used to compute the optimal flow front velocity that minimizes void formation in multiple ply fabrics (4, 5, 6 and 7 plies).

6.9.1 Analysis of macroscopic void formation

The experimental study starts with a brief analysis on the formation of macroscopic voids by air mechanical entrapment during the spontaneous imbibition in a single fabric ply. This quantitative study on void formation is based on image analysis using *Sobel* edge detection algorithm and image filtering tools from *Matlab*. Imbibition experiments were carried out with hexadecane, vinyl ester and epoxy anhydride resins as illustrated in Figure 6-11 and Figure 6-12. As shown in Figure 6-13, the number of macroscopic voids entrapped increases exponentially when the modified capillary number at the flow front decreases. Moreover, the trends of macroscopic void formation with the vinyl ester and epoxy anhydride resins are similar and seem to be determined by the architecture of the fibrous reinforcement rather than the resin. This result is consistent with previous works on void formation based on image analysis by Patel [29] and Mahale [71].

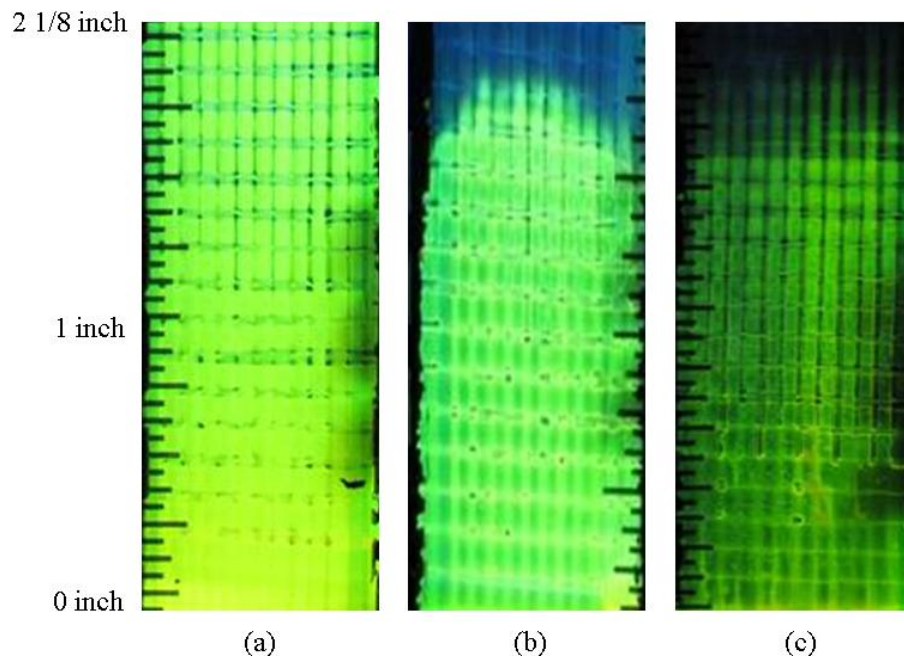


Figure 6-11 : Imbibition tests on single ply in the weft direction with (a) hexadecane; (b) vinyl ester resin; and (c) epoxy anhydride resin.

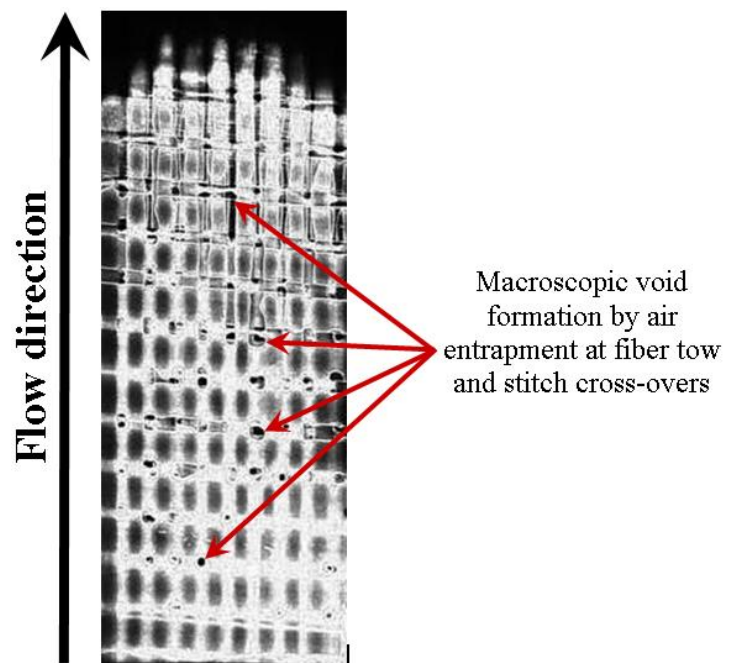


Figure 6-12 : Progressive macroscopic void formation by air entrapment during fabric imbibition with vinyl ester resin in the weft direction.

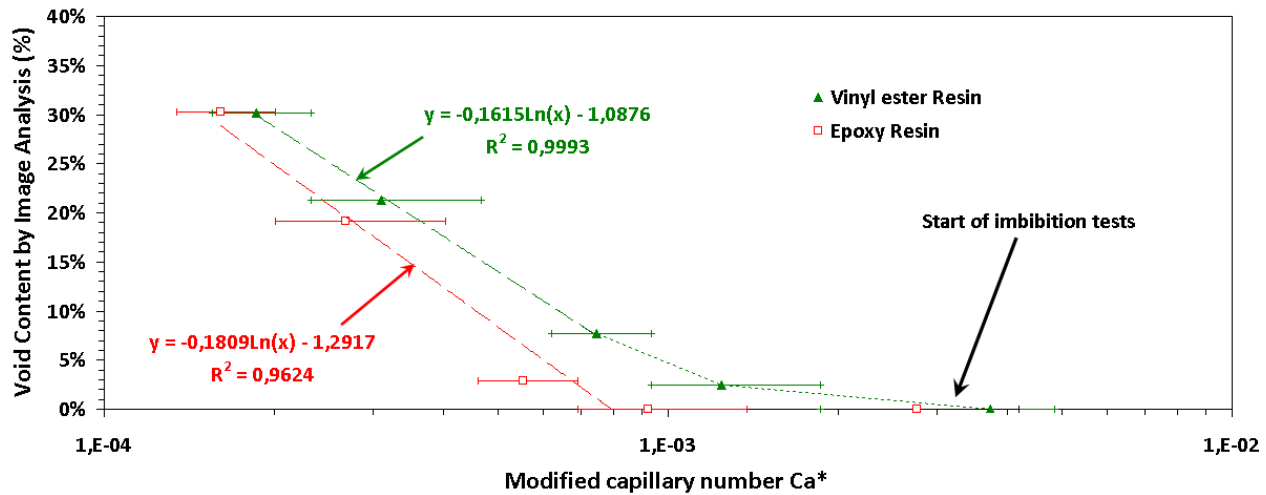


Figure 6-13 : Macroscopic void content generated by air entrapment in the TG15N60A fabric with vinyl ester and epoxy anhydride resins.

The experimental trends of macroscopic void contents presented in Figure 6-13 show that air entrapment is minimized for Ca^* at the start of spontaneous imbibition test. This indicates that an optimal impregnation condition can be determined *a priori* from these capillary rise experiments.

6.9.2 Characterization of Ca_{opt}^* for fiber tows

The results from imbibition tests carried out on fiber tows with hexadecane in the warp and weft directions are reported in Table 6-3. These imbibition tests were conducted in [60]. The microscopic porosity of fiber tows was evaluated by analysis of final uptake fluid mass. On the other hand, the slope B_h of LW height was evaluated by fluorescence visualization of the capillary front position using CCD image acquisition after fitting the LW imbibition model by a least-squares regression algorithm.

The experimental values of Ca_{opt}^* estimated with the imbibition model (6.29) were computed from the height LW slopes B_h reported in Table 6-3, the values of center-to-center tow distance L_c

from Table 6-1 and the penetrativity value R_{hex} of pure hexadecane from Table 6-2. The values of Ca_{opt}^* obtained were of 1.42×10^{-3} and 0.77×10^{-3} for warp and weft fiber tows respectively. Theoretical values of Ca_{opt}^* were computed from the analytical model (6.28) from basic characteristics of fiber tows, namely their microscopic porosity as presented in Table 6-3, their filament diameter and the center-to-center tow distance of Table 6-1. Some assumptions were formulated such as straight fiber tows ($\tau \approx 1$), a square filament tow packing ($k_o \approx 57/32$) and only axial capillary flows during fiber tow impregnation ($f_{geo} \approx 1$). The theoretical values of Ca_{opt}^* obtained were of 1.64×10^{-3} and 1.01×10^{-3} along the warp and weft fiber tow directions respectively.

The theoretical values of Ca_{opt}^* for fiber tows are consistent with previous values estimated from manufacturer data or from 2D microscopic image analysis and reported in Table 6-1. From manufacturer specifications, the values of Ca_{opt}^* obtained were of 1.8×10^{-3} and 0.9×10^{-3} along the warp and weft tow directions respectively. From 2D image analysis, the values of Ca_{opt}^* obtained were rather 2.4×10^{-3} and 1.2×10^{-3} along the warp and weft tow directions respectively but with larger uncertainty arising from the local variability of tow filament packing. As seen in Table 6-3, the experimental values of Ca_{opt}^* estimated by the imbibition model (6.29) are lower and more conservative than the theoretical values computed by the analytical model (6.28). This may result due to simplifying assumptions about tow tortuosity, filament packing configuration and relative orientation of capillary flows in fiber tows. Nevertheless, this analytical model (6.28) provides fairly good predictions of Ca_{opt}^* .

Table 6-3 : Results of fiber tow imbibition tests with hexadecane [60]

Properties	with sizing		units
	warp	weft	
Microscopic porosity	43 ± 1	47 ± 1	%
Height LW slope B_h (6.17)	2.14 ± 0.05	1.95 ± 0.07	$\times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$
Ca_{opt}^* from imbibition tests (6.29)	1.42 ± 0.03	0.77 ± 0.03	$\times 10^{-3}$
Ca_{opt}^* from analytical model (6.28)	1.64 ± 0.05	1.01 ± 0.04	$\times 10^{-3}$

6.9.3 Characterization of Ca_{opt}^* for single fabric ply

The results from capillary rise experiments carried out on single fabric ply with hexadecane in the warp and weft directions are reported in Table 6-4. The values of parameter B_h for initial imbibition behavior of single ply are larger than previous results obtained for tow imbibition (see Table 6-3) and than its medium-term imbibition (see Table 6-4). This upward shift in imbibition behavior is mainly attributed to microscopic flow interactions with the macroscopic capillary flow. Because of the dual scale pore structure of the fabric, the gaps between the fiber tows play a major role during the initial imbibition of the fibrous reinforcement [36,72]. The LW slopes B_h for medium-term imbibition of single ply, in the warp and weft directions ($4.2 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ and $7 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ respectively) seen both to converge to a value of $2 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ at medium-term, which is close to B_h for tow imbibition (see Table 6-3).

Experimental values of Ca_{opt}^* estimated from the imbibition model the slopes B_h of capillary height for the initial and the medium-term imbibition are reported in Table 6-4. In order to compute these experimental Ca_{opt}^* , the values of center-to-center tow distance L_c of Table 6-1 and the penetrativity value R_{hex} of pure hexadecane of Table 6-2 were also required. The values of Ca_{opt}^* obtained for the initial imbibition behavior are 2.8×10^{-3} for both warp and weft

directions. Indeed, even if values of B_h for both fabric directions were different, similar Ca_{opt}^* were obtained as result of their respective values of L_c (see Table 6-1). On the other hand, for the medium-term imbibition Ca_{opt}^* gives values of 1.3×10^{-3} and 0.8×10^{-3} in the warp and weft directions respectively. These experimental values of Ca_{opt}^* provide an optimal window for single fabric ply impregnation in the range from 0.8×10^{-3} to 2.8×10^{-3} . This is comparable with results of image analysis presented in Figure 6-13. Patel [29] obtained a similar range of Ca_{opt}^* between 1.03×10^{-3} and 3.39×10^{-3} for several kinds of E-glass reinforcement architectures. Labat and Ruiz [30,10] obtained 3.5×10^{-3} for an unidirectional stitched fiberglass mat and Mahale [71] a range between 2.67×10^{-3} and 3.39×10^{-3} for nonwoven glass filament mats. Consistent Ca_{opt}^* values are thus obtained from the imbibition analysis of single fabric plies with a probe fluid compared with results of the mechanistic imbibition model (6.28) and from other experimental investigations.

Table 6-4 : Results of single ply imbibition tests with hexadecane

Properties	warp direction	weft direction	units
Initial height LW slope B_h (6.16)	4.2 ± 0.6	7 ± 1	$\times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$
Initial Ca_{opt}^* from imbibition tests (6.29)	2.8 ± 0.4	2.8 ± 0.4	$\times 10^{-3}$
Medium-term height LW slope B_h (6.16)	2.02 ± 0.09	2.02 ± 0.09	$\times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$
Medium-term Ca_{opt}^* from imbibition tests (6.29)	1.30 ± 0.06	0.80 ± 0.04	$\times 10^{-3}$

6.9.4 Characterization of Ca_{opt}^* for multiple fabric ply

Results from imbibition analyses on multiple ply configurations with hexadecane in the weft direction are reported in Table 6-5. No significant fiber tow deformation, as a result of fabric compaction, or gap restructuring, as a result of inter-layer slippage and fiber tow nesting, have been noticed before and during these imbibition tests. Therefore, the LW slopes B_h reported in

Table 6-5 for the 4, 5, 6 and 7 ply configurations are not significantly different. Indeed, there is an overlap around 2.2×10^{-3} in the experimental Ca_{opt}^* values of Table 6-5 estimated with imbibition model (6.29). More importantly in this research, it is shown that Ca_{opt}^* for the current dual scale fabric is constant and does not depend on the fiber volume content of the fabric V_f^{fabric} . This means that whether the gaps between tows are big or small, the optimal impregnation velocity will only depend on fabric tows and injected resin. These experimental values are consistent with published data and fall within the optimal range of $[0.8 - 2.8] \times 10^{-3}$ mentioned previously. The nominal values of fiber volume content V_f of the laminates reported in Table 6-5 were estimated using the number of fabric layers, the mold cavity thickness, the superficial density ρ_s of the fibrous reinforcement and its mass density ρ_{fabric} .

Table 6-5 : Results of multiple ply imbibition tests in the weft direction with hexadecane

Laminate properties	4-ply	5-ply	6-ply	7 ply	units
Fiber volume content V_f	25.6 ± 0.3	32.1 ± 0.4	38.5 ± 0.5	44.9 ± 0.5	%
Initial height LW slope B_h (6.16)	5 ± 1	6 ± 1	6.2 ± 0.8	4.9 ± 0.9	$\times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$
Ca_{opt}^* from imbibition tests (6.29)	2.0 ± 0.4	2.4 ± 0.4	2.5 ± 0.3	1.9 ± 0.4	$\times 10^{-3}$

6.9.5 Penetrativity and optimal front velocity characterization

The penetrativity R_{fluid} at room temperature of vinyl ester and epoxy anhydride resins, pure styrene monomer and anhydride hardener was also measured by capillary rise experiments. The same soluble UV-excited dye used with the probe fluid was also blended with these four fluids in order to ensure good tracking of the capillary front inside single fabric plies by fluorescence visualization. The final results from capillary rise experiments (LW slopes B_h) in single ply with vinyl ester and epoxy anhydride resins along the warp and weft directions are reported in Table 6-6 and Table 6-7 respectively. As an example, the *Lucas-Washburn* fits on the square height evolutions in time of single ply imbibitions by hexadecane, vinyl ester resin and epoxy anhydride resin in the warp direction are presented in Figure 6-14 for initial and medium term imbibition

behaviors. On the other hand, the results from capillary rise experiments (*LW* slopes B_h) in single ply with styrene monomer and anhydride hardener alone in the weft direction are reported in Table 6-8. . Furthermore, as performed during previous imbibition analyses with hexadecane, the initial imbibition behavior of single ply is decoupled from its medium-term imbibition behavior.

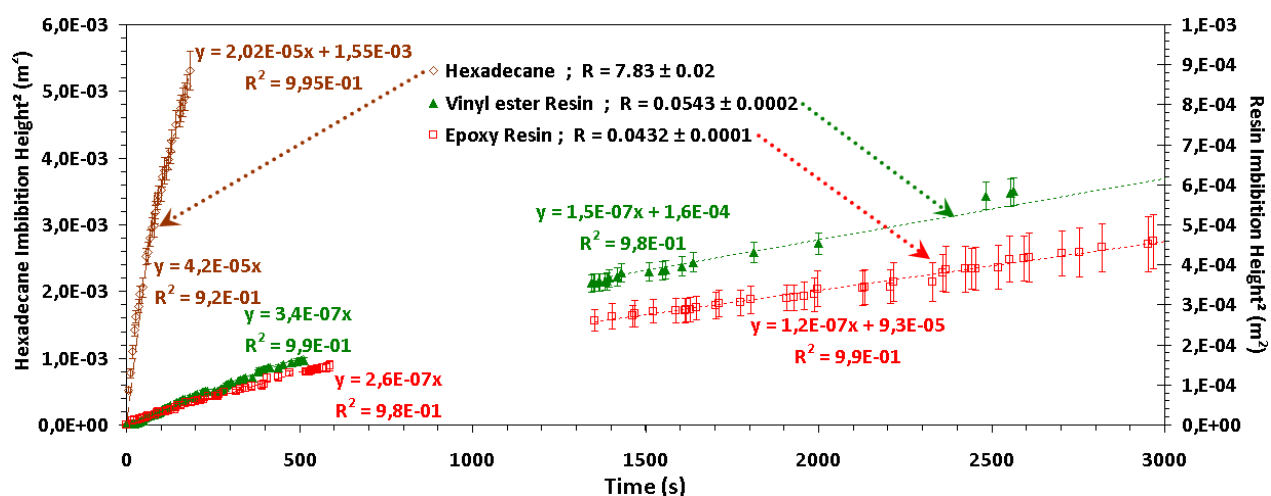


Figure 6-14 : Comparison of the *Lucas-Washburn* fits of single ply imbibitions by hexadecane, vinyl ester resin and epoxy anhydride resin in the warp direction.

Table 6-6 : Results of single ply imbibition tests with liquid resins in the warp direction

Properties	hexadecane (probe fluid)	vinyl ester resin	epoxy anhydride resin	units
Initial height LW slope B_h (6.16)	4.2 ± 0.6	0.034 ± 0.005	0.026 ± 0.001	$\times 10^{-5}$ m^2/s
Ca_{opt}^* from imbibition tests (6.29)	2.8 ± 0.4	3.2 ± 0.5	3.1 ± 0.1	$\times 10^{-3}$
Fluid penetrativity R_{resin} at RT^1 (6.30)	7.83 ± 0.02^2	0.063 ± 0.009^3	0.049 ± 0.007^3	m/s
Optimal front velocity v_{opt} at RT^1 (6.31)	–	0.18 ± 0.04^4	$0.14 - 0.03^4$	$\times 10^{-3}$ m/s
Medium-term height LW slope B_h (6.16)	2.02 ± 0.09	0.015 ± 0.001	0.012 ± 0.002	$\times 10^{-5}$ m^2/s
Ca_{opt}^* from imbibition tests (6.29)	1.30 ± 0.06	1.4 ± 0.1	1.4 ± 0.2	$\times 10^{-3}$
Fluid penetrativity R_{resin} at RT^1 (6.30)	7.83 ± 0.02^2	0.059 ± 0.005^3	0.047 ± 0.008^3	m/s
Optimal front velocity v_{opt} at RT^1 (6.31)	–	0.077 ± 0.007^4	$0.06 - 0.01^4$	$\times 10^{-3}$ m/s

Table 6-7 : Results of single ply imbibition tests with liquid resins in the weft direction

Properties	hexadecane (probe fluid)	vinyl ester resin	epoxy anhydride resin	units
Initial height LW slope B_h (6.16)	7 ± 1	0.06 ± 0.01	0.0440 ± 0.0005	$\times 10^{-5}$ m^2/s
Ca_{opt}^* from imbibition tests (6.29)	2.8 ± 0.4	3.4 ± 0.6	3.13 ± 0.04	$\times 10^{-3}$
Fluid penetrativity R_{resin} at RT^1 (6.30)	7.83 ± 0.02^2	0.07 ± 0.02^3	0.049 ± 0.007^3	m/s
Optimal front velocity v_{opt} at RT^1 (6.31)	–	0.20 ± 0.06^4	$0.14 - 0.03^4$	$\times 10^{-3}$ m/s
Medium-term height LW slope B_h (6.16)	2.02 ± 0.09	0.015 ± 0.001	0.0118 ± 0.0002	$\times 10^{-5}$ m^2/s
Ca_{opt}^* from imbibition tests (6.29)	0.80 ± 0.04	0.85 ± 0.06	0.84 ± 0.01	$\times 10^{-3}$
Fluid penetrativity R_{resin} at RT^1 (6.30)	7.83 ± 0.02^2	0.059 ± 0.005^3	0.046 ± 0.002^3	m/s
Optimal front velocity v_{opt} at RT^1 (6.31)	–	0.077 ± 0.007^4	$0.06 - 0.01^4$	$\times 10^{-3}$ m/s

¹ All characterizations were carried out at room temperature (RT) , i.e., $22.5 \pm 2.5^\circ\text{C}$.² The fluid penetrativity is computed by equation (6.21) from the viscosity, surface tension and contact angle values.³ The fluid penetrativity is computed from imbibition tests on a single fabric ply by equation (6.30).⁴ The optimal flow front velocity is computed by equation (6.31).

Table 6-8 : Results of single ply imbibition tests with styrene and anhydride in the weft direction

Properties	pure styrene	anhydride	units
Initial height LW slope B_h (6.16)	20 ± 8	0.74 ± 0.08	$\times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$
Fluid penetrativity R_{resin} (6.30) at RT ¹	22 ± 10	0.8 ± 0.1	m/s
Medium-term height LW slope B_h (6.16)	3.91 ± 0.06	0.206 ± 0.007	$\times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$
Fluid penetrativity R_{resin} (6.30) at RT ¹	15.2 ± 0.7	0.80 ± 0.04	m/s

Penetrativity characterization of thermosetting resins

The slopes B_h of LW capillary height for the initial and the medium-term imbibition behaviors of the vinyl ester and epoxy anhydride resins along the warp and weft directions are reported in Table 6-6 and Table 6-7 respectively. By comparing the slopes B_h of LW capillary height of the initial imbibition behavior along the warp and weft directions, whatever infiltration fluid is used to carry out the capillary rise experiment, consistent data are compiled on reinforcement anisotropy ratio defined as follows:

$$R_a^{fluid} \Big|_{ply} = \frac{B_h \Big|_{warp}^{fluid}}{B_h \Big|_{weft}^{fluid}} \Big|_{ply} \quad (6.32)$$

Indeed, the warp to weft ratio (6.32) of the height LW slopes B_h for hexadecane, vinyl ester resin and epoxy anhydride resin are about 0.6 ± 0.1 , 0.6 ± 0.1 and 0.59 ± 0.02 respectively. Hence, the measurements of capillary height evolution are globally unaffected by tow-to-tow variations, which confirms the strategy of characterizing all fabric imbibition properties on fibrous reinforcement samples equal to or greater than the size of the REV .

¹ All characterizations were carried out at room temperature (RT) , i.e., $22.5 \pm 2.5^\circ\text{C}$.

The penetrativity values of vinyl ester and epoxy anhydride resins R_{resin} at room temperature evaluated from these height LW slopes obtained by imbibition analysis and are reported also in Table 6-6 and Table 6-7. These penetrativity values are computed by the Eq. (6.30) with the penetrativity value R_{hex} of hexadecane of Table 6-2 and the slopes B_h of LW capillary height from capillary rise experiments with hexadecane and thermosetting resins (see Table 6-6 and Table 6-7). Consistent experimental values of R_{resin} are obtained from the initial and medium-term imbibition behaviors in both fabric directions, namely $R_{ve} = 0.063 \pm 0.008$ m/s for vinyl ester resin and $R_{epoxy} = 0.048 \pm 0.003$ m/s for epoxy anhydride resin at room temperature.

The optimal flow front velocities v_{opt} at room temperature for each pair of resin/fabric orientation are estimated by Eq.(6.31) using the Ca_{opt}^* values of Table 6-4 and the penetrativity values R_{resin} reported in Table 6-6 and Table 6-7. The consistent values of v_{opt} allow also finding optimal impregnation windows for single fabric ply between 0.077 mm/s and 0.20 mm/s for vinyl ester resin and between 0.06 mm/s and 0.14 mm/s for epoxy anhydride resin (see Table 6-6 and Table 6-7). The same strategy is applied in order to estimate the optimal front velocities v_{opt} for the multiple ply configurations considered in Table 6-5. These latter values of v_{opt} for the 4, 5, 6 and 7 ply configurations are reported in Table 6-9 and fall inside the optimal impregnation window for vinyl ester resin.

The above results show more flow variability for the vinyl ester than for the epoxy anhydride. This fact can be explained by the more unstable (faster resin ageing) and more volatile behavior of styrene which is a solvent (45% m/m content) of the current vinyl ester resin. However, if the penetrativity is estimated from the slopes B_h of the LW height over a longer time period, namely from the linear regression on the medium-term imbibition, the final values are more consistent and display less variability. Indeed, the average penetrativity R_{ve} of the vinyl ester and R_{epoxy} of the epoxy anhydride obtained from the medium-term imbibition is 0.0590 ± 0.0003 m/s and 0.046 ± 0.004 m/s respectively. Even though fabrics usually exhibit some variability in their microscopic impregnation, the penetrativity evaluated from capillary rise experiments is also close to the values of 0.0543 ± 0.0002 m/s for the vinyl ester and 0.0422 ± 0.0003 for the epoxy anhydride reported in Table 6-2 and obtained by standard characterization methods. The relative difference

between penetrativity values from both characterization approaches remains lower than the typical experimental error of 10%.

Table 6-9 : Optimal front velocities for multiple ply configurations in the weft direction

Laminate properties	4-ply	5-ply	6-ply	7 ply	Units
Ca_{opt}^* from imbibitions (6.29)	2.0 ± 0.4	2.4 ± 0.4	2.5 ± 0.3	1.9 ± 0.4	$\times 10^{-3}$
vinyl ester resin penetrativity (6.30) at RT ¹			0.0590 ± 0.0003		m/s
optimal velocity v_{opt} for vinyl ester resin (6.31) at RT ²	0.12 ± 0.02	0.14 ± 0.02	0.15 ± 0.02	0.11 ± 0.02	$\times 10^{-3}$ m/s

Penetrativity characterization of styrene and anhydride

As performed previously with both thermosetting resins, the penetrativity of styrene monomer and anhydride hardener are computed by Eq.(6.30) with the penetrativity value R_{hex} of hexadecane of Table 6-2 and the slopes B_h of LW capillary height from capillary rise experiments with hexadecane and resin additives/curing agents (see Table 6-7 and Table 6-8). Consistent experimental results stable over time are obtained for anhydride hardener $R_{anh} = 0.8 \pm 0.1$ from the initial and medium-term imbibition behaviors. This is consistent with the value of 0.800 ± 0.001 m/s reported in Table 6-2 which was measured by rheometry and tensiometry.

On the other hand, the penetrativity $R_{styrene}$ of pure styrene obtained by imbibition analysis is not consistent with the value of 41 m/s measured by rheometry and tensiometry. As a result of the high volatility of styrene, it is instable over time. The swelling rate of fiber sizing by styrene and the high dissolution rate of fiber sizing in styrene may also play a role [73]. Therefore, as reported in Table 6-8, the flow properties of pure styrene are rapidly changing during imbibition

¹ Average value of vinyl ester penetrativity characterized at room temperature (RT), i.e., $22.5 \pm 2.5^\circ\text{C}$, from imbibition tests (medium-term wicking behavior) on single plies in both fabric directions (Table 6-6 and Table 6-7).

² Optimal flow front velocity computed from the average value of vinyl ester resin penetrativity.

tests in glass fabrics. Indeed, $R_{styrene}$ decreased quickly from 22 m/s to 15.7 m/s and the capillary rise inside fiber tows slow down significantly. As shown in Figure 6-15, these flow observations have been also carried out during imbibition tests on single fiber bundles, where the capillary flow inside fiber tows stop and even change color as a result of high evaporation of styrene and dissolution of fiber sizing.

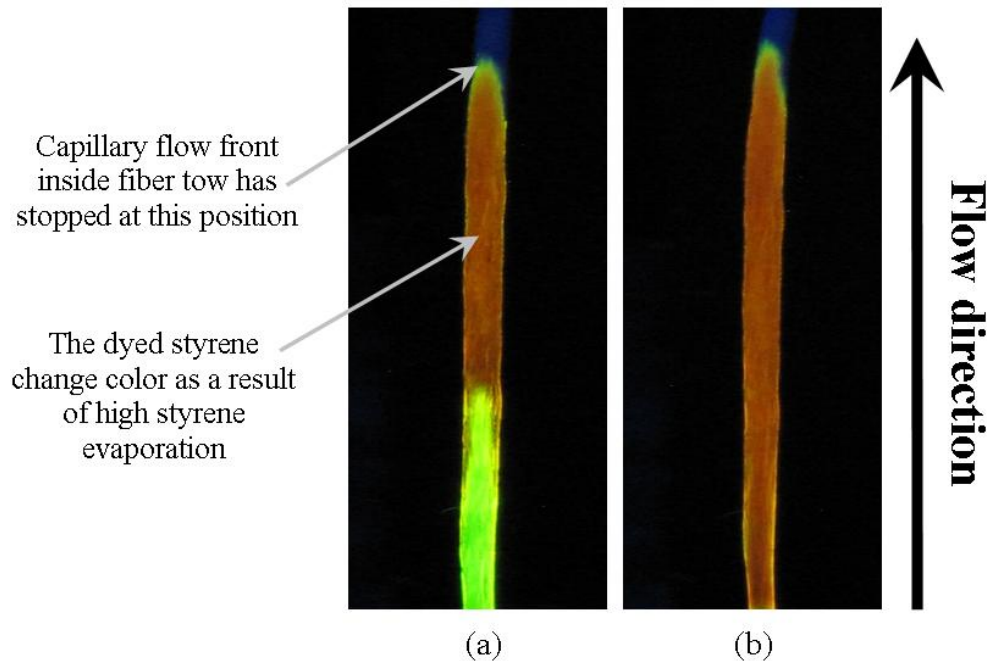


Figure 6-15 : Capillary rise experiment with styrene monomer in a fiber tow:

(a) CCD picture acquired after the capillary front has stopped;

(b) CCD picture acquired after 24 hours.

6.9.6 Discussion

From the fabric imbibition analyses carried out up to now, it appears that the optimal modified capillary numbers Ca_{opt}^* depend on the tow architecture and on the reinforcement stitching-weaving structure for low and medium fabric compaction. However, for higher fabric compaction levels, this behavior should no longer hold as a result of tow deformation and nesting/slippage effects. Thus, different tow architectures and higher compaction levels of dual scale fibrous reinforcements should be taken into account in future studies. Moreover, this experimental study

has allowed characterizing the optimal impregnation window from capillary rise measurements of thermosetting resins in fabric ply configurations using the new fluorescence visualization approach. The optimal modified capillary numbers Ca_{opt}^* obtained experimentally from this imbibition analysis are consistent with the values of optimal modified capillary number from the scientific literature, thus demonstrating the validity of this characterization methodology and the reliability of the predictive analytical model for optimal impregnation conditions. Note that the fabric samples investigated were larger than the *REV* which takes into account fabric variability. According to the results of imbibition analysis on laminates of a fiber volume content below 45%, the optimal range of Ca_{opt}^* for the current non-crimp reinforcement lies inside the range of $[0.8 - 2.8] \times 10^{-3}$ for both fabric directions and it was independent of the fiber volume content of the fabric.

Furthermore, the values of penetrativity estimated by this approach compare well with the values presented in Table 6-2 that were obtained from standard characterization methods such as rheometry, tensiometry and goniometry. However, the imbibition analysis is more representative of the impregnation mechanisms in fibrous reinforcements than a separate characterization of dynamic viscosity, surface tension and contact angle between the fiber and the infiltration fluid. Finally, this study has shown that the fluid penetrativity has a direct impact on the optimal flow front velocity, thus on void formation by air entrapment. This remark highlights the need to control environmental conditions during the imbibition tests. Moreover, it gives also an insight on the potential impact of other injection parameters on microscopic impregnation quality: the concentrations of chemical species and the initial resin and mold temperatures [74]. Indeed, according to evolution models such as *Arrhenius-law*, the viscosity of resins depends strongly on temperature as well as on the solvent and curing agent concentrations [75]. On the other hand, adhesion tension $\gamma_v \cos \theta$ for polymers is generally considered as strongly dependent on resin chemistry and surfactant concentration [76,77], but vary little with temperature [78,79]. However, a clear understanding of the latter relationship for polymer composites still requires future investigations. Nevertheless, these considerations on resin penetrativity can allow process engineers to update the current moldability (feasibility) diagrams with new constraints that could lead to more robust composite manufacturing [9,80].

6.10 Conclusion

The experimental methodology proposed in this paper, based on capillary rise monitored by fluorescence visualization, is useful to predict the optimal impregnation conditions for a given resin-fabric pair. The proposed technique can be used to characterize the imbibition properties of fiber tows and fabrics as well as penetrativity of thermosetting resins. Moreover, it can be used to identify the window of optimal modified capillary number and optimal flow front velocity. The optimal modified capillary numbers Ca_{opt}^* obtained experimentally from this imbibition analysis are consistent with the values of optimal modified capillary number from the scientific literature, thus demonstrating the validity of this characterization technique. The accuracy of the proposed analytical model for *a priori* estimation of optimal impregnation conditions from the properties of fiber tows and reinforcement stitching-weaving structure was also confirmed in this study. Indeed, the model predictions were similar to Ca_{opt}^* values obtained experimentally from the imbibition analysis and fit in the window of published scientific data on void formation by air entrapment.

Experimental results from standard characterization methods such as microscopy, porometry, *B.E.T.* analysis, rheometry, tensiometry and goniometry compare well with data obtained by capillary rise experiments. This success sets the stage for a reliable prediction of the optimal impregnation conditions without having to perform expensive and time-consuming fabrication tests or carrying out complex numerical modeling of dual scale flows in fibrous reinforcements. Furthermore, the imbibition analysis is more representative of the impregnation mechanisms in fibrous reinforcements than a separate characterization of dynamic viscosity, surface tension and contact angle between the fiber and the infiltration fluid. Therefore, direct characterization of fiber tow properties and resin penetrativity by the proposed capillary rise technique provides a good trade-off between data accuracy, characterization time and cost. The proposed approach for obtaining the optimal impregnation conditions can assist process engineers in building more robust liquid composites processing.

6.11 Acknowledgements

The authors are grateful to the National Science and Engineering Research Council of Canada (NSERC) and the Canada Research Chair (CRC) for their financial support. The authors would also like to thank the Fonds Québécois de Recherche sur la Nature et la Technologie (FQRNT), the Chair on Composites of High Performance (CCHP) of École Polytechnique de Montréal and the Center for applied research on polymer and composites (CREPEC) for providing the research infrastructure and equipment. They are also very grateful to JB Martin for donating the fiber reinforcement used in the experiments. Furthermore, the authors would like to express their deep appreciation to Suzie Poulin, Yves Bédard, Régina Zamojska and Catherine Billotte for their support in the characterization work. Finally, the contributions of Christian-Charles Martel, Alex Bourgeois, Antonin Leclair-Maréchal, Michael Cantin, Nadir Nchit, Mickéal Leduc, Simon Dulong, Frédérick Marcil St-Onge, Francisco Doyon, Matthieu Sola, Farida Bensadoun, Julian Gutierrez, Nicolas Vernet, Philippe Causse and Vincent Achim are gratefully acknowledged.

6.12 References

1. Trochu F, Ruiz E, Achim V, Soukane S (2006) Advanced numerical simulation of liquid composite molding for process analysis and optimization. *Composites Part A* 37 (6):890-902. doi:10.1016/j.compositesa.2005.06.003
2. García J, Gascon L, Chinesta F, Ruiz E, Trochu F (2010) An efficient solver of the saturation equation in liquid composite molding processes. *Int J Mater Form* 3 (Supp. 2):1295-1302. doi:10.1007/s12289-010-0681-8
3. Leclerc J (2008) Amélioration du procédé RTM par l'optimisation des paramètres d'injection. Master, Ecole Polytechnique, Canada
4. Leclerc JS, Ruiz E (2008) Porosity reduction using optimized flow velocity in Resin Transfer Molding. *Composites Part A* 39 (12):1859-1868. doi:10.1016/j.compositesa.2008.09.008
5. Ghiorse SR (1993) Effect of void content on the mechanical-properties of carbon epoxy laminates. *SAMPE Quarterly* 24 (2):54-59

6. Judd NCW, Wright WW (1978) Voids and their effects on the mechanical properties of composites - An appraisal. *SAMPE J* 14 (1):10-14
7. Lambert J, Chambers AR, Sinclair I, Spearing SM (2012) 3D damage characterisation and the role of voids in the fatigue of wind turbine blade materials. *Compos Sci Tech* 72 (2):337-343. doi:10.1016/j.compscitech.2011.11.023
8. Haider M, Hubert P, Lessard L (2007) An experimental investigation of class A surface finish of composites made by the resin transfer molding process. *Compos Sci Tech* 67 (15-16):3176-3186. doi:10.1016/j.compscitech.2007.04.010
9. Achim V, Ruiz E (2010) Guiding selection for reduced process development time in RTM. *Int J Mater Form* 3 (0):1277-1286. doi:10.1007/s12289-009-0630-6
10. Ruiz E, Achim V, Soukane S, Trochu F, Breard J (2006) Optimization of injection flow rate to minimize micro/macro-voids formation in resin transfer molded composites. *Compos Sci Tech* 66 (3-4):475-486. doi:10.1016/j.compscitech.2005.06.013
11. Bickerton S, Simacek P, Pillai KM, Mogavero J, Advani SG Important mold filling issues in liquid composite molding processes: Modeling and experiments. In, Brookfield, CT, USA, 1997. Annual Technical Conference - ANTEC, Conference Proceedings. Soc of Plastics Engineers, pp 2411-2423
12. Lundstrom S, Gebart R (1994) Influence from process parameters on void formation in resin transfer molding. *Polym Comp* 15 (1):25-33
13. Kardos JL, Dave R, Dudukovic MP Voids in composites. In, Atlanta, GA, USA, 1988. ASME, pp v ivp-v ivp
14. Hayward JS, Harris B (1989) Processing factors affecting the quality of resin transfer moulded composites. *Plastics and Rubber Processing and Applications* 11 (4):191-198
15. Chung Hae Park, Woo L (2011) Modeling void formation and unsaturated flow in liquid composite molding processes: a survey and review. *J Reinf Plast Compos* 30 (11):957-977. doi:10.1177/0731684411411338
16. Ratle F, Achim V, Trochu F (2009) Evolutionary operators for optimal gate location in liquid composite moulding. *Applied Soft Computing* 9 (2):817-823. doi:10.1016/j.asoc.2008.05.008

17. Hodgson KT, Berg JC (1988) Effect of surfactants on wicking flow in fiber networks. *J Colloid Interface Sci* 121 (1):22-31
18. Plueddemann EP (1974) Interfaces in polymer matrix composites. *Composite materials*; v. 6. Academic Press, New York
19. DiBenedetto AT (2001) Tailoring of interfaces in glass fiber reinforced polymer composites: a review. *Materials Science and Engineering A* 302 (1):74-82. doi:Doi: 10.1016/s0921-5093(00)01357-5
20. Lundstrom TS (1997) Measurement of void collapse during resin transfer moulding. *Composites - Part A: Applied Science and Manufacturing* 28 (3):201-214
21. Gourichon B, Deleglise M, Binetruy C, Krawczak P (2008) Dynamic void content prediction during radial injection in liquid composite molding. *Composites Part A* 39 (1):46-55
22. Binetruy C, Hilaire B, Pabiot J (1997) The interactions between flows occurring inside and outside fabric tows during RTM. *Compos Sci Tech* 57 (5):587-596
23. Pillai KM (2004) Modeling the unsaturated flow in liquid composite molding processes: A review and some thoughts. *J Compos Mater* 38 (23):2097-2118
24. Chen Y-T, Macosko CW, Davis HT (1995) Wetting of fiber mats for composites manufacturing: II. Air entrapment model. *AIChE Journal* 41 (10):2274-2281
25. Chen Y-T, Davis HT, Macosko CW (1995) Wetting of fiber mats for composites manufacturing: I. Visualization experiments. *AIChE Journal* 41 (10):2261-2273
26. Advani SG, Simacek P Flow Simulation to Address Microvoids and Material Variability in Liquid Composite Molding. In, Pittsburgh, PA, United states, 2008. Materials Science and Technology Conference and Exhibition, MS and T'08. Materials Science and Technology Conference, pp 2529-2538
27. Parnas RS, Salem AJ, Sadiq TAK, Wang H-P, Advani SG (1994) Interaction between micro- and macro-scopic flow in RTM preforms. *Composite Structures* 27 (1-2):93-107
28. Stokes RJ, Evans DF (1997) Fundamentals of interfacial engineering. *Advances in interfacial engineering series*. Wiley-VCH, New York

29. Patel N (1994) Micro-scale flow behavior, fiber wetting and void formation in liquid composite molding. Ph.D., The Ohio State University, United States -- Ohio
30. Labat L, Breard J, Pillut-Lesavre S, Bouquet G (2001) Void fraction prevision in LCM parts. *EPJ Applied Physics* 16 (2):157-164
31. Verrey J, Michaud V, Manson JAE (2006) Dynamic capillary effects in liquid composite moulding with non-crimp fabrics. *Composites Part A* 37 (1):92-102
32. Slade J, Pillai KM, Advani SG (2001) Investigation of unsaturated flow in woven, braided and stitched fiber mats during mold-filling in resin transfer molding. *Polym Comp* 22 (4):491-505
33. Masoodi R (2010) Modeling imbibition of liquids into rigid and swelling porous media. 3437981, The University of Wisconsin - Milwaukee, United States -- Wisconsin
34. Patnaik A, Rengasamy RS, Kothari VK, Ghosh A (2006) Wetting and Wicking in Fibrous Materials. *Textile Progress* 38 (1):1 - 105
35. Marmoret L, Beji H, Perwuelz A (2011) Determination of the Pore Sizes and their Influence on the Capillary Imbibition into Glass Wool. *Defect and Diffusion Forum* 312-315:812-817
36. S  n  cot J-M (2002)   tude de l'impr  gnation capillaire de tissus de verre. Doctorat Thesis, Universit   de Haute Alsace, France
37. Johnson RW (1998) The handbook of fluid dynamics. CRC Press, Boca Raton
38. Blake FC (1922) The Resistance of Packing to Fluid Flow. *AIChE Journal* 14 (Compendex):415-422
39. Williams JG, Morris CEM, Ennis BC (1974) Liquid flow through aligned fiber beds. *Polym Eng Sci* 14 (6):413-419. doi:10.1002/pen.760140603
40. Gennes P-Gd, Brochard-Wyart F, Qu  r   D (2004) Capillarity and wetting phenomena : drops, bubbles, pearls, waves. Springer, New York
41. White LR (1982) Capillary rise in powders. *J Colloid Interface Sci* 90 (2):536-538. doi:10.1016/0021-9797(82)90319-8

42. Amico SC, Lekakou C (2002) Axial impregnation of a fiber bundle. Part 2: Theoretical analysis. *Polym Comp* 23 (2):264-273. doi:10.1002/pc.10430
43. Ahn KJ, Seferis JC, Berg JC (1991) Simultaneous measurements of permeability and capillary-pressure of thermosetting matrices in woven fabric reinforcements. *Polym Comp* 12 (3):146-152. doi:10.1002/pc.750120303
44. Bear J (1972) Dynamics of fluids in porous media. Environmental science series. American Elsevier Pub. Co., New York
45. Brunauer S, Emmett PH, Teller E (1938) Adsorption of gases in multimolecular layers. *J Am Chem Soc* 60 (2):309-319. doi:10.1021/ja01269a023
46. Hollies NRS, Kaessinger MM, Bogaty H (1956) Water transport mechanisms in textile materials¹ Part I: The role of yarn roughness in capillary-type penetration. *Text Res J* 26 (11):829-835. doi:10.1177/004051755602601102
47. Amico SC, Lekakou C (2002) Axial impregnation of a fiber bundle. Part 1: Capillary experiments. *Polym Comp* 23 (2):249-263. doi:10.1002/pc.10429
48. Siebold A, Nardin M, Schultz J, Walliser A, Oppliger M (2000) Effect of dynamic contact angle on capillary rise phenomena. *Colloids Surf A* 161 (1):81-87. doi:10.1016/S0927-7757(99)00327-1
49. Chwastiak S (1973) A wicking method for measuring wetting properties of carbon yarns. *J Colloid Interface Sci* 42 (2):298-309
50. Washburn EW (1921) The dynamics of capillary flow. *Phys Rev* 18 (3):273-283. doi:10.1103/PhysRev.17.273
51. Hamdaoui M, Fayala F, Nasrallah SB (2007) Dynamics of capillary rise in yarns: influence of fiber and liquid characteristics. *J Appl Polym Sci* 104 (Copyright 2007, The Institution of Engineering and Technology):3050-3056. doi:10.1002/app.25642
52. Woo Il L, Doh Hoon L, Moon Koo K (2006) Analysis and minimization of void formation during resin transfer molding process. *Compos Sci Tech* 66 (16):3281-3289
53. Miller B, Tyomkin I (1994) Liquid porosimetry: new methodology and applications. *J Colloid Interface Sci* 162 (1):163-170

54. Michaud V, Mortensen A (2007) On measuring wettability in infiltration processing. *Scripta Materialia* 56 (10):859-862
55. Brooks RH, Corey AT (1966) Properties of porous media affecting fluid flow. *American Society of Civil Engineers Proceedings, Journal of the Irrigation and Drainage Division* 92 (IR2):61-88
56. Xie S (2002) Characterization of interyarn pore size and its distribution in plain woven fabrics. 1412774, North Carolina State University, United States -- North Carolina
57. Bayramli E, Powell RL (1992) Impregnation dynamics of carbon-fiber tows. *J Compos Mater* 26 (10):1427-1442
58. Gebart BR (1992) Permeability of unidirectional reinforcements for RTM. *J Compos Mater* 26 (8):1100-1133. doi:10.1177/002199839202600802
59. Lundström TS, Gebart BR (1995) Effect of Perturbation of Fibre Architecture on Permeability Inside Fibre Tows. *J Compos Mater* 29 (4):424-443
60. LeBel F, Fanaei AE, Ruiz E, Trochu F (2012) Experimental characterization by fluorescence visualization of capillary flows in the fiber tows of engineering fabrics. *Open Journal of Inorganic Non-metallic Materials* In Press, Accepted Manuscript
61. Thomason JL, Dwight DW (1999) The use of XPS for characterisation of glass fibre coatings. *Composites Part A* 30 (12):1401-1413. doi:10.1016/s1359-835x(99)00042-1
62. Saidpour SH (1991) The effect of fibre/matrix interfacial interactions on the mechanical properties of unidirectional e-glass reinforced vinyl ester composites. PhD Thesis, Loughborough University of Technology, UK
63. Hens H, G.Vermeir, Carmeliet J *Research in Building Physics: Proceedings of the 2nd International Conference on Building Physics*. In: Hens H, G.Vermeir, Carmeliet J (eds) *2nd International Conference on Building Physics*, Leuven, Belgium, 14-18 September 2003 2003. A A Balkema Publishers, p 1036
64. Hsieh Y-L, Yu B (1992) Liquid wetting, transport, and retention properties of fibrous assemblies part I: water wetting properties of woven fabrics and their constituent single fibers. *Text Res J* 62 (11):677-685

65. Scher KE (1983) Comparison of wicking and single filament techniques for determining contact angles. Master of Science, University of Washington, USA
66. Aranguren MI (2006) Polymer Composites. Taylor & Francis,
67. Good RJ (1992) Contact angle, wetting, and adhesion: a critical review. *Journal of Adhesion Science and Technology* 6:1269-1302
68. Bayramli E, Powell RL (1991) Experimental investigation of the axial impregnation of oriented fiber-bundles by capillary forces. *Colloids Surf* 56:83-100. doi:10.1016/0166-6622(91)80115-5
69. Page SA, Berg JC, Manson JAE (2001) Characterization of epoxy resin surface energetics. *Journal of Adhesion Science and Technology* 15 (2):153-170
70. Adamson AW, Gast AP (1997) *Physical chemistry of surfaces*. 6th edn. Wiley, New York ; Chichester, England
71. Mahale AD, Prudhomme RK, Rebenfeld L (1992) Quantitative Measurement of Voids Formed During Liquid Impregnation of Nonwoven Multifilament Glass Networks Using an Optical Visualization Technique. *Polym Eng Sci* 32 (5):319-326
72. Bico J, Quere D (2003) Precursors of impregnation. *Europhys Lett* 61 (3):348-353. doi:10.1209/epl/i2003-00196-9
73. Larson BK, Drzal LT, Van Antwerp J (1995) Swelling and dissolution rates of glass fiber sizings in matrix resin via micro-dielectrometry. *Polym Comp* 16 (Compendex):415-420
74. Lowe JR (1994) Void formation in resin transfer moulding. C404201, The University of Nottingham (United Kingdom), England
75. Halley PJ, Mackay ME (1996) Chermorheology of thermosets - an overview. *Polym Eng Sci* 36 (5):593-609
76. Batch GL, Chen Y-T, Macosko CW (1996) Capillary impregnation of aligned fibrous beds: experiments and model. *J Reinf Plast Compos* 15 (10):1027-1050. doi:10.1177/073168449601501004

77. Ilias S, Siegel MC, Sadler RL, Avva VS (1995) Effect of surface active agents on void minimization in RTM processing of carbon-epoxy composites. International SAMPE Technical Conference 27:457-471
78. Petke FD, Ray BR (1969) Temperature dependence of contact angles of liquids on polymeric solids. J Colloid Interface Sci 31 (Compendex):216-227
79. Kurematsu K, Koishi M (1983) Temperature dependence of liquid epoxy resin impregnation through polyester non-woven fabric. Colloid Polym Sci 261 (10):834-845
80. Gonzalez-Romero VM, Macosko CW (1990) Process parameters estimation for structural reaction injection molding and resin transfer molding. Polym Eng Sci 30 (3):142-146

CHAPITRE 7 DISCUSSION GÉNÉRALE

Ce chapitre effectue un dernier retour sur le travail accompli. Les stratégies de caractérisation et de contrôle retenues, les outils pratiques développés, les apprentissages réalisés ainsi que les limitations du projet sont en premier lieu détaillés et discutés. Par la suite, à partir de cette discussion générale, des recommandations sont proposées dans le chapitre suivant afin de poursuivre ces travaux d'analyse des phénomènes d'imprégnation et d'emprisonnement de bulles dans les renforts fibreux à porosité bimodale, et ce, pour des pièces composites complexes.

7.1 Approche expérimentale multi-échelle

L'objectif principal de cette thèse était d'approfondir la compréhension des phénomènes d'imprégnation et d'emprisonnement des bulles dans les renforts fibreux à porosité bimodale afin d'améliorer la qualité des pièces composites fabriquées par les procédés LCM. Afin d'atteindre cet objectif principal et de fournir rapidement des outils pratiques aux ingénieurs de procédé, une méthodologie articulée autour d'une démarche expérimentale de caractérisation multi-échelle de l'imprégnation des renforts fibreux a été retenue. Cette approche expérimentale a été privilégiée plutôt qu'une stratégie axée essentiellement sur la modélisation et la simulation numérique de ce phénomène. Cette décision fut justifiée par la grande complexité des phénomènes physiques devant être pris en compte simultanément, et ce, peu importe l'échelle considérée pour effectuer l'analyse. En effet, pour obtenir une modélisation adéquate de ce phénomène d'imprégnation des renforts fibreux à l'échelle microscopique, des phénomènes physico-chimiques de surface, de mouillabilité dynamique et de transfert de masse devaient être considérés. Ce type de modélisations s'appuie bien souvent sur des équations complexes de dynamique moléculaire et des modèles semi-empiriques de mécanique des fluides qui nécessitent, de toute manière, la caractérisation précise d'un très grand nombre de paramètres. À l'heure actuelle, ces modèles mécanistiques de phénomènes d'interface font l'objet d'études expérimentales dans des domaines de recherche encore très récents tels que la tribologie, la chimie des surfaces, la super-hydrophobicité et la mécanique des fluides en milieux poreux.

D'un autre côté, si la problématique était abordée à partir de l'échelle macroscopique, il fallait être en mesure de modéliser et de simuler des écoulements diphasiques partiellement compressibles et miscibles dans un milieu poreux à porosité bimodale. La mise en équations de ce type de modélisation de la saturation produit généralement un système d'équations aux dérivées partielles (ÉDP) non-linéaires qui sont fortement couplées entre elles. Sous certaines conditions et hypothèses, il est possible de ramener ce système d'équations différentielles à une seule ÉDP de type advection-dispersion. Toutefois, d'un point de vue strictement mathématique, la résolution numérique de ce type d'ÉDP parabolique et hyperbolique de transport de masse constitue un défi en tant que tel. De plus, il faut rappeler que les coefficients de dispersion hydrodynamique considérés dans cette modélisation macroscopique proviennent directement du processus d'homogénéisation des phénomènes observés aux échelles inférieures. Cette dispersion représente fondamentalement un facteur arbitraire utilisé pour pallier à un manque d'information sur le milieu poreux modélisé. Or, les phénomènes de formation des bulles par emprisonnement d'air et de saturation à porosité bimodale sont justement occasionnés par l'hétérogénéité du milieu poreux étudié aux échelles mésoscopique et microscopique. Par conséquent, ces coefficients de dispersion hydrodynamique constituent de simples paramètres d'ajustement qui sont obtenus empiriquement. En effet, ces coefficients sont déduits par régression en procédant à l'injection d'un fluide dans un milieu poreux donné et en suivant son déplacement ainsi que son étalement à l'aide de méthodes non-intrusives. Une telle modélisation macroscopique et phénoménologique de la saturation des renforts fibreux ne sert qu'à reproduire virtuellement ces mécanismes de formation des bulles et non pas à les prédire. La communauté scientifique des composites est donc confrontée à un problème de « conservation de la difficulté » sur le front de la simulation numérique de l'imprégnation des renforts fibreux à partir de modèles mécanistiques multi-échelles. Pour le moment, seule une approche expérimentale peut nous éclairer.

7.2 Étude de l'imprégnation à l'échelle macroscopique

Tout d'abord, une première étude expérimentale des phénomènes d'imprégnation, de formation de bulles par emprisonnement d'air et de transport de ces mêmes bulles dans les renforts fibreux a été réalisée à l'échelle macroscopique dans le chapitre 3 de cette thèse. L'étude en temps réel de tous ces phénomènes a été rendue possible grâce au développement d'une nouvelle méthode non-

intrusive de suivi de la saturation d'un renfort fibreux s'appuyant sur la variation d'intensité d'une lumière visible transmise dans ce milieu poreux au cours de son imprégnation. Ensuite, cette méthode d'analyse optique de la saturation des renforts fibreux a été validée à l'aide de résultats de caractérisation de teneurs en vides contenues dans les pièces composites fabriquées lors de cette étude. Ces teneurs en vides étaient obtenues par une méthode destructive standard, c'est-à-dire la méthode par carbonisation. Cette méthode de suivi non-intrusif de la saturation a aussi été couplée avec un système d'injection RTM automatisé qui permettait un contrôle précis des divers paramètres du remplissage de la pièce et des stratégies de post-remplissage. L'étude de l'évolution de la saturation d'un renfort fibreux à porosité bimodale en fonction des conditions de mise en forme par procédé RTM a permis d'identifier les paramètres critiques qui gouvernent la qualité de l'imprégnation. Les résultats obtenus lors de cette première étude expérimentale étaient cohérents avec les données déjà publiées sur le sujet dans la littérature scientifique.

7.2.1 Stratégies de remplissage à pression constante et à débit constant

Les injections RTM unidirectionnelles analysées dans le cadre des deux premiers plans d'expériences du chapitre 3 furent réalisées à pression d'injection constante et à débit volumique constant. Ces deux plans d'expériences ont d'abord ciblé la vitesse d'avancée du front de résine (ou le nombre capillaire modifié) comme étant le paramètre contrôlant la formation des bulles microscopiques dans les mèches de fibres ainsi que leur mobilisation à partir d'un certain seuil de vitesse d'écoulement. Il a été démontré que la formation des bulles par emprisonnement d'air était réduite significativement avec la diminution de la vitesse d'imprégnation du renfort fibreux. Toutefois, tel qu'il a été observé plus tard au chapitre 6 et dans la littérature scientifique, il y avait apparition de défauts d'imprégnation macroscopiques entre les mèches de fibres en-dessous d'une certaine vitesse d'imprégnation. De plus, cette tendance allait en augmentant avec la diminution de la vitesse d'imprégnation. De part et d'autre de cette vitesse intermédiaire, les teneurs en vides macroscopiques ou microscopiques augmentaient linéairement en fonction du logarithme de la vitesse d'avancée du front de résine (ou le nombre capillaire modifié) tels qu'illustrés à la Figure 7-1. Ce type de comportement empirique fut également prédit et rapporté dans la littérature scientifique par plusieurs chercheurs. À cet effet, la Figure 7-2 présente schématiquement l'évolution de la teneur totale en vides en fonction du logarithme du nombre

capillaire modifié (ou de la vitesse d'imprégnation) telle que prédite par les travaux de Patel (Patel 1994). Ainsi, il y aurait une vitesse d'imprégnation optimale permettant de minimiser la formation des bulles par emprisonnement d'air. La vitesse d'avancée du front semblait également modifier l'équilibre des forces capillaires et visqueuses qui maintenaient les défauts d'imprégnation emprisonnés dans les mèches de fibres et entre celles-ci. En effet, il y avait une mobilisation, en direction de l'évent du moule, de ces bulles au-dessus d'un certain seuil de vitesse d'imprégnation. Ce seuil de mobilisation Ca_{mob}^* des bulles a pu être prédit à l'aide d'un modèle étant défini comme suit dans la littérature:

$$Ca_{mob}^* = \frac{4 K_i k_{r,w}}{l_p \cos \beta \cos \theta} \left(\frac{\cos \theta_r}{D_e} - \frac{\cos \theta_a}{D} \right) \quad (7.1)$$

où K_i , $k_{r,w}$, l_p , D_e et D sont respectivement la perméabilité intrinsèque du milieu poreux étudié, la perméabilité relative de la phase mouillante (résine), la longueur des défauts d'imprégnation (distance entre les deux extrémités des bulles), le diamètre du col des pores et le diamètre typique des pores. De plus, l'angle β entre les pores et l'orientation moyenne de l'écoulement, l'angle de contact apparent θ du ménisque entre le fluide et les fibres ainsi que les angles dynamiques de contact reculant θ_r et avançant θ_a du même ménisque étaient également nécessaires pour estimer ce nombre capillaire modifié seuil Ca_{mob}^* . Ce phénomène de mobilisation a été présenté aux Figure 7-1 et Figure 7-2. Ce phénomène de transport touchait essentiellement les bulles macroscopiques situées entre les mèches de fibres et les bulles microscopiques logées à l'intérieur des mèches orientées parallèlement au sens de l'écoulement de la résine. De leur côté, les bulles microscopiques situées dans les mèches de fibres perpendiculaires au sens de l'écoulement pouvaient difficilement être délogées par ce mécanisme. En effet, tel que souligné par l'équation (7.1), la perméabilité transverse des mèches de fibres et le diamètre du col transverse des pores de ces mêmes mèches sont toutes les deux très petites, occasionnant ainsi des seuils de mobilisation Ca_{mob}^* physiquement trop élevés pour ce type de bulles. Enfin, l'impact de la pression locale sur le phénomène de dissolution dans le flot de résine des bulles microscopiques, majoritairement celles emprisonnées dans les mèches de fibres perpendiculaires au sens de l'écoulement de la résine, a été souligné dans les deux premiers plans d'expériences et il est également illustré à la Figure 7-1.

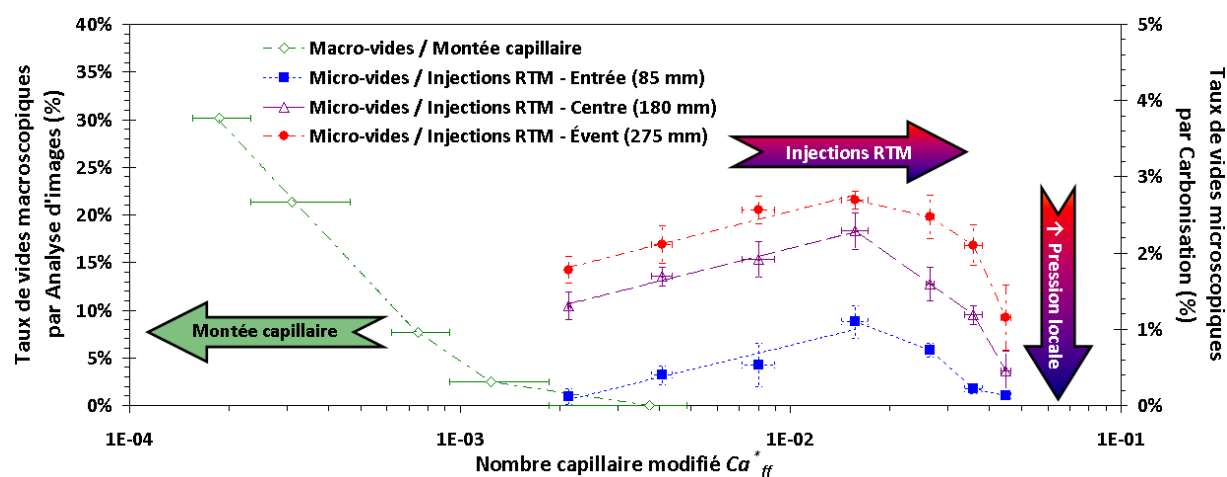


Figure 7-1 : Intégration de tous les résultats d'analyse de teneurs en vides effectuées avec la résine vinyl ester *Derakane 411-350*TM et le renfort de verre bidirectionnel NCF TG15N60A.

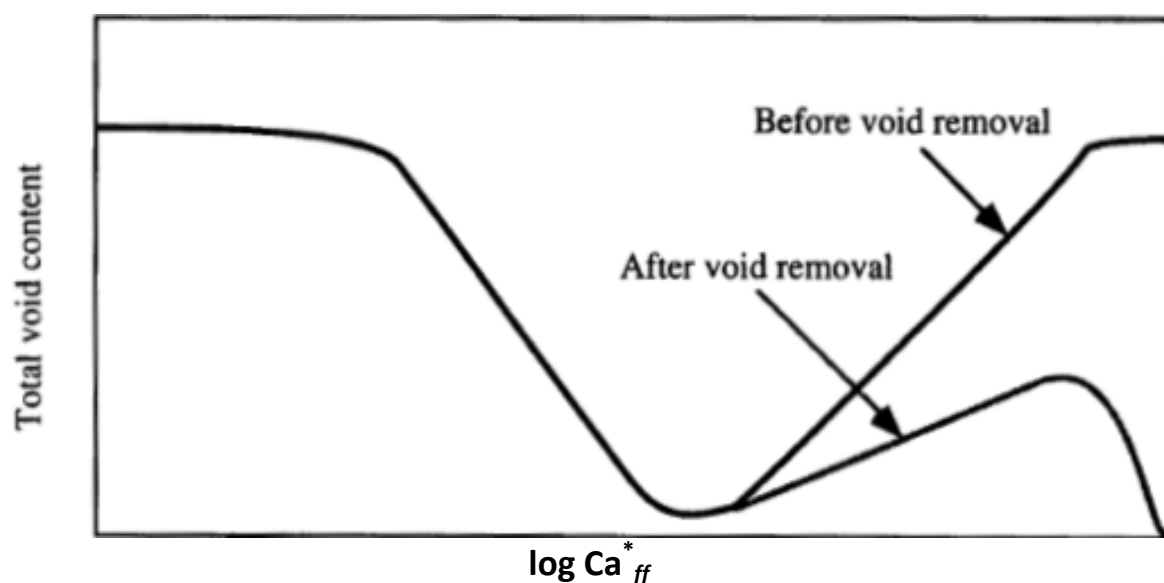


Figure 7-2 : Prédiction de l'évolution de la teneur totale en vides en fonction du logarithme du nombre capillaire modifié pour un renfort fibreux donné (Patel 1994).

Ces deux premiers plans d'expériences ont permis de mettre en lumière les bénéfices d'une stratégie de remplissage du moule RTM s'appuyant sur le contrôle de la vitesse d'imprégnation

du renfort fibreux en fonction des conditions thermiques de mise en forme du polymère. Malgré les nombreuses sources de variabilité intrinsèques à la mise en forme des composites par injection sur renforts, cette stratégie de contrôle de la vitesse d'imprégnation permet de minimiser la formation des bulles par emprisonnement d'air et de mobiliser ces bulles retenues dans les mèches de fibres. À cet égard, les sources de variabilité sont nombreuses, diverses et difficilement contrôlables, à savoir le système d'injection employé (capteurs, pompes, moule, etc.), le renfort fibreux sélectionné (les étapes de filage, de tissage, de préformage et de drapage) et le système de résine mis en forme (taux de styrène, entreposage des résines, etc.). De plus, il est possible de démontrer analytiquement que, pour un temps de remplissage fixé, il est généralement préférable de choisir une injection RTM à vitesse de front constante plutôt qu'à pression constante, et ce, peu importe la configuration géométrique retenue pour l'injection¹. En effet, autant pour des injections RTM unidirectionnelles, périphériques convergentes et radiales divergentes, la stratégie d'injection à vitesse de front constante permet d'obtenir une quantité totale de vides moins importante et une distribution de teneur en vides plus uniforme que celles obtenues à pression constante.

En revanche, il convient de préciser que ce développement mathématique réalisé dans le cadre de cette thèse est conservateur et qu'il s'appuie sur un modèle empirique simple de l'augmentation linéaire de la teneur en vides formée par emprisonnement d'air en fonction du logarithme de la vitesse d'imprégnation. Dès lors, l'influence complexe et quasi-stochastique du transport des bulles par mobilisation et par dissolution-diffusion n'est pas prise en compte. Ce phénomène de transport des bulles avait généralement tendance à diminuer les teneurs en vides et à rendre leur distribution plus hétérogène dans les pièces composites. Toutefois, il est admis que des teneurs en vides initiales plus faibles et plus uniformes sont préférables car, lorsque ces bulles microscopiques sont formées et emprisonnées à l'intérieur des mèches, ces dernières sont plus difficiles à déloger et à éliminer par la suite. Il s'agit donc d'un outil de contrôle supplémentaire pour réduire le nombre de bulles emprisonnées dans les pièces composites. Cette stratégie de contrôle a déjà été implémentée dans certains codes numériques pour optimiser l'injection de

¹ Voir Annexe II.

pièces composites à géométrie complexe (Ruiz, Achim et al. 2006; Trochu, Demaria et al. 2009). Toutefois, elle n'a toujours pas été validée expérimentalement sur des pièces à géométrie complexe, c'est-à-dire pour des pièces à section transversale variable, à taux volumique de fibres variable ou contenant des inserts.

De plus, la stratégie de contrôle de la vitesse d'imprégnation peut être adaptée pour des temps de cycle fixés. À titre d'exemple, pour les longs temps de mise en forme par procédé RTM typiques à l'industrie aéronautique, il serait plus approprié de maintenir la vitesse d'avancée du front de résine autour de la vitesse d'imprégnation optimale du renfort fibreux, si cela est possible, tout en respectant la contrainte de temps de cycle maximal fixée par le temps de gel de la résine. Les temps de cycle « procédé » sont généralement longs dans cette industrie car les pièces composites fabriquées ont de grandes dimensions et elles sont bien souvent renforcées de fibres de carbone peu perméables à la progression de la résine. D'un autre côté, les courts temps de cycle employés dans l'industrie automobile favorisent une stratégie de contrôle de la vitesse d'imprégnation où cette dernière serait fixée au-dessus du seuil de mobilisation des bulles, si cela est possible encore une fois. Par surcroît, cette vitesse d'imprégnation devrait impérativement être maintenue en-dessous des contraintes liées au phénomène de lavement des fibres ou aux limites maximales en pression des systèmes d'injection et de fermeture du moule RTM. À cet égard, les cadences de production des procédés de mise en forme des composites doivent être élevées pour cette industrie afin que ces procédés LCM deviennent compétitifs comparativement aux procédés de fabrication traditionnels de l'industrie automobile tels que le matriçage des métaux. Plusieurs investissements en recherche et développement sont effectués actuellement afin d'accroître les cadences de production des pièces composites pour les grandes séries de voitures populaires. Toutefois, l'utilisation de ce type de procédés reste confinée aux productions de petites séries de voitures de luxe telles que la *DB9* d'*Aston Martin*. Par conséquent, il devient pertinent pour les ingénieurs « procédé » de connaître *a priori* ces vitesses critiques de mobilisation des bulles et d'imprégnation optimale du renfort fibreux pour une résine choisie et pour diverses conditions thermiques de fabrication. En effet, avec ces informations critiques additionnelles, les ingénieurs pourraient mettre à jour et optimiser le diagramme de moulabilité d'une mise en forme de pièce composite donnée en utilisant de nouvelles contraintes et nouveaux critères de performance tels

qu'illustré à la Figure 7-3. Ces données supplémentaires permettraient d'obtenir un ajustement plus ciblé des mises en forme par le procédé RTM.

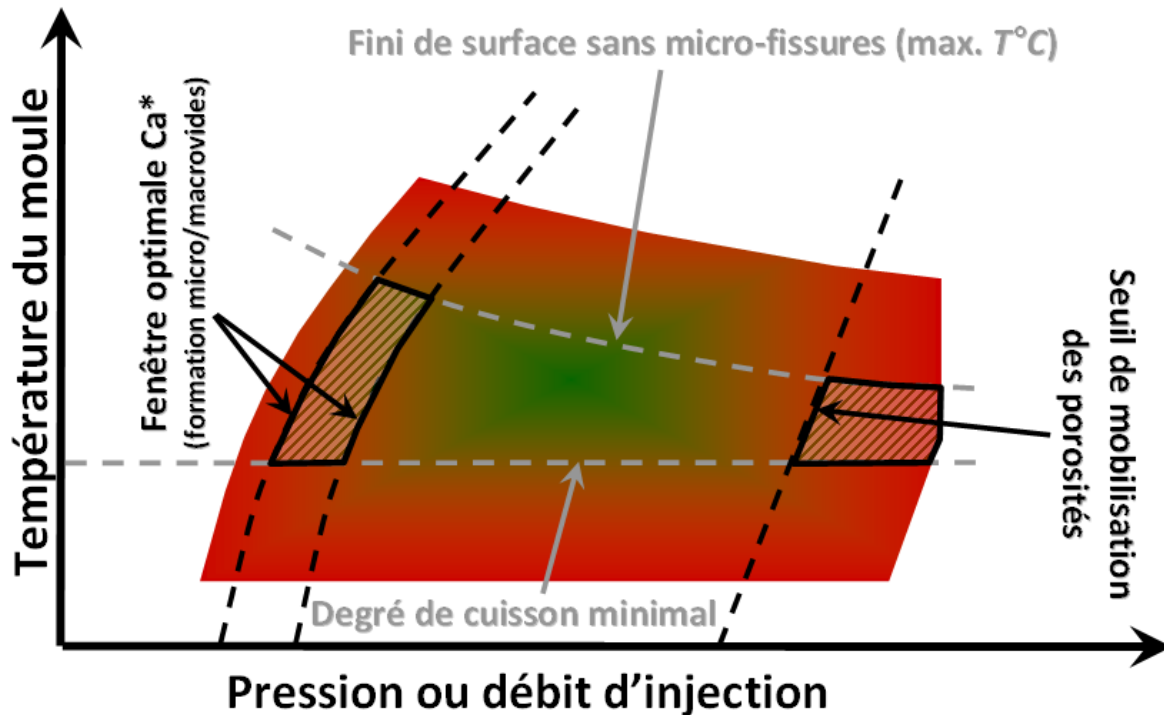


Figure 7-3 : Diagramme de moulabilité des procédés LCM avec sous-régions optimales.

7.2.2 Stratégies industrielles de post-remplissage

De son côté, le troisième plan d'expériences a permis de comparer l'efficacité des différentes stratégies industrielles de post-remplissage qui ont pour objectif de réduire les défauts d'imprégnation résiduels dans les pièces composites. Les trois stratégies investiguées furent la purge du moule suivie ou non d'une pressurisation résiduelle du moule ainsi que le maintien de la pressurisation du moule durant l'étape de cuisson des pièces composites. Il a été rapporté que le débit volumique utilisé lors de la purge et la pression hydrostatique appliquée lors de la pressurisation du moule étaient deux paramètres qui contrôlaient le transport des bulles par mobilisation et par dissolution-diffusion dans la résine. Il a été observé que le maintien de la pressurisation du moule pendant la cuisson des pièces composites était une stratégie de réduction des teneurs en vides plus efficace que la purge du moule pour la géométrie de pièce étudiée dans

ce plan d'expériences. La durée de la purge, pour un même volume évacué de résine, semblait également avoir un impact notable sur le phénomène de dissolution-diffusion des bulles microscopiques dans le flot de résine. À ce titre, une réduction de la teneur en vides a été notée pour des temps de purge plus longs.

Ce troisième plan d'expériences a donc permis de comparer quantitativement l'efficacité de ces trois stratégies industrielles de post-remplissage typiquement utilisées dans les procédés LCM. L'efficacité de la stratégie de purge-consolidation cyclique, communément appelée « pack and bleed », fut également comparée qualitativement avec les trois autres stratégies de post-remplissage. Dans le cadre de certains procédés LCM où le contrôle de la vitesse d'imprégnation n'est pas une option envisageable, ces quatre stratégies de post-remplissage peuvent souvent s'avérer des solutions efficaces pour réduire et même éliminer les bulles emprisonnées dans les pièces composites. En effet, il a été démontré dans ce troisième plan d'expériences que la stratégie de consolidation durant la cuisson permettait d'obtenir des teneurs en vides quasi nulles pour des pressions hydrostatiques aussi faibles qu'un bar, et ce, sans aucune purge de résine. Ce type de stratégie peut très bien être réalisé dans le cadre des procédés SRIM, RTM, CRTM, ACRTM et d'injection flexible. En revanche, la taille des pièces à injecter peut devenir un facteur limitant l'emploi de cette approche. À cet égard, le remplissage et la consolidation de grandes pièces composites peuvent nécessiter des moules ainsi que des systèmes de fermeture et d'étanchéité renforcées pour éviter toute déformation et toute fuite de la cavité. La stratégie industrielle de purge-consolidation cyclique peut aussi être appliquée avec succès à ces mêmes procédés en moule fermé rigide. Néanmoins, les volumes de résine évacués peuvent devenir significatifs entraînant ainsi des coûts de fabrication supplémentaires.

Quoique moins performants comparativement à la consolidation pendant la cuisson, les stratégies de purge du moule avec ou sans pressurisation résiduelle peuvent constituer des solutions de rechange intéressantes. Ces stratégies permettent de mobiliser et d'évacuer, par l'entremise des événements du moule, une certaine partie des bulles emprisonnées dans le renfort, et ce, en purgeant des volumes de résine importants. Notons que la stratégie de mobilisation des bulles par purge du moule sans pressurisation résiduelle de la cavité peut être appliquée aussi bien aux procédés en

moule rigide que ceux en moule semi-rigide ou flexible tels que le RTM Light, le VARI et le SCRIMP. Cette approche a permis de réduire significativement la teneur en vides dans les pièces composites mises en forme par procédé RTM par rapport à celles fabriquées sans stratégie de post-remplissage. Il a été également observé que le temps de purge avait un impact notable sur le processus de dissolution-diffusion des bulles microscopiques dans le flot de résine. En effet, tel que rapporté dans le troisième plan d'expériences, pour un même volume purgé de résine, les injections RTM ayant les plus longues durées de purge ont produit les pièces composites avec les plus faibles teneurs en vides, particulièrement dans la zone à proximité de l'évent du moule. Il faut rappeler que ce volume purgé de résine était équivalent au volume total théorique de pores à remplir dans les préformes fibreuses. Des études supplémentaires devront être réalisées afin de bien comprendre toute la physique de ce phénomène dans son ensemble.

7.2.3 Stratégies complémentaires pour l'optimisation de l'imprégnation

En plus de ces stratégies de post-remplissage et de remplissage à vitesse de front constante, les ingénieurs « procédé » peuvent également avoir recours à l'assistance du vide afin d'améliorer l'imprégnation du renfort fibreux et de réduire la formation des bulles par emprisonnement d'air. Par le passé, l'application d'une pression de vide à l'évent pendant la mise en forme des pièces composites a démontré son efficacité à maintes reprises dans les milieux industriels et académiques. En revanche, les ingénieurs « procédé » doivent l'employer avec précaution car elle peut aussi constituer une source de génération de bulles. En effet, l'assistance du vide peut détériorer la qualité de l'imprégnation des pièces composites si l'étanchéité du moule à l'air n'est pas assurée (complexité du plan de joint, dilatation thermique, etc.), si le débullage et le dégazage de la résine ne sont pas suffisants (germination/nucléation de bulles de gaz à haute température et à faible pression) et si le système de résine utilisé contient ou génère des composantes volatiles. Les choix de la configuration d'injection (périphérique convergente, radiale divergente ou unidirectionnelle) ainsi que du positionnement des ports d'injection et d'évent peuvent également contribuer significativement à la diminution des zones sèches et des défauts d'imprégnation formés dans les pièces composites. Enfin, l'ajustement du cycle thermique pendant le remplissage et de la formulation chimique de la résine (surfactant, taux de styrène, agent de cuisson, etc.) constituent aussi des paramètres influençant la qualité de l'imprégnation des

renforts fibreux. Cependant, ces deux derniers paramètres sont souvent fixés et prescrits lors de l'étape de certification des pièces et de leurs procédés de mise en forme, en l'occurrence dans les secteurs de l'aéronautique et de l'automobile. Ainsi, la marge de manœuvre des ingénieurs « procédé » se trouvent limitée à sélectionner les paramètres optimaux des stratégies de remplissage et de post-remplissage afin de maximiser la qualité de l'imprégnation des pièces composites. Ces paramètres qui ne sont généralement pas prescrits par la certification des procédés sont la vitesse d'imprégnation ou la pression d'injection, le temps de purge ou le volume de résine purgé et la pression de consolidation en fonction des critères de conception du moule et de son système de fermeture.

7.2.4 Optimisation de l'imprégnation par le contrôle de la vitesse de front

Tel que mentionné auparavant, le maintien de la vitesse d'imprégnation d'un renfort fibreux choisi par une résine donnée autour d'une vitesse intermédiaire optimale permet de minimiser la formation de bulles par emprisonnement d'air durant la phase de remplissage des pièces composites. Cette optimisation de la fabrication axée sur le contrôle de la vitesse d'imprégnation d'un renfort fibreux peut être utilisée avec une majorité de mises en forme par procédés LCM si ces derniers emploient un système d'injection permettant un contrôle actif et continu du débit volumique de résine par les divers ports d'entrée du moule. Cet ajustement continu du débit peut être établi en amont de la fabrication à l'aide de simulations numériques du remplissage du moule. Cette approche prend essentiellement en compte la complexité géométrique de la pièce et la variation locale des propriétés hydrauliques du renfort fibreux en s'appuyant sur certains modèles prédictifs. Or, la fabrication des pièces composites par les procédés LCM peut être parfois victime de la variabilité intrinsèque du procédé choisi, du système d'injection utilisé ou même des propriétés des matériaux mis en forme. Dans ce contexte, il devient préférable de réaliser un ajustement en temps réel du débit en s'appuyant sur un suivi direct (visuel) ou indirect (capteurs à fibres optiques, diélectriques et de flux thermique) de l'évolution réelle du front de résine dans le moule. Cette stratégie de contrôle en temps réel du remplissage des renforts fibreux fut déjà mise en application par le passé pour limiter l'apparition de zones sèches dans les pièces composites et elle fut aussi l'objet de nombreuses publications scientifiques dans la dernière décennie (Bickerton 1999; Devillard, Hsiao et al. 2003; Lawrence and Advani 2003; Johnson and

Pitchumani 2006). Malgré l'utilisation d'outils technologiques de pointe permettant un contrôle serré de l'évolution du front et le développement d'une modélisation précise des propriétés hydrauliques du renfort fibreux utilisé et de la géométrie de la pièce à fabriquer, une réalité demeure : la vitesse optimale d'imprégnation pour un couple renfort-résine donné n'est pas connue *a priori*. Il serait donc pertinent pour les ingénieurs « procédé » de détenir une estimation de ces conditions optimales d'imprégnation à l'aide de méthodes de caractérisation rapides, répétables et à faible coût. La deuxième partie de la thèse a justement voulu répondre à cette nécessité de développer des méthodes de caractérisation adéquates pour l'étude des phénomènes d'écoulements capillaires et pour la détermination *a priori* des conditions optimales d'imprégnation des renforts fibreux par une résine thermodurcissable donnée.

7.3 Études de l'imprégnation aux échelles microscopique et mésoscopique

7.3.1 Phénomène de formation des bulles par emprisonnement d'air

Selon plusieurs chercheurs, la formation des bulles par emprisonnement d'air dans les renforts fibreux à porosité bimodale serait en partie attribuable au phénomène de capillarité. En effet, il a été émis comme hypothèse que la formation des bulles par emprisonnement d'air découlait d'un déséquilibre entre les forces visqueuses et capillaires de l'écoulement du polymère liquide dans les renforts fibreux à porosité bimodale. Cette porosité bimodale présentée par certains types de renforts fibreux découle directement de leurs procédés de filage, de tissage et de couture. D'un côté, le procédé de filage des mèches de fibres crée des pores microscopiques à l'intérieur de ces mèches alors que, d'un autre côté, les procédés de tissage ou de couture génèrent des pores macroscopiques entre ces mêmes mèches. Or, les forces visqueuses de l'écoulement sont prépondérantes dans les pores situés entre les mèches de fibres tandis que les forces capillaires sont dominantes dans les pores contenus dans ces mèches. Par conséquent, un déséquilibre de ces forces va occasionner un phénomène de digitation de l'écoulement de résine dans les renforts fibreux à porosité bimodale, aussi appelé phénomène de « *fingering* ». Par la suite, ce phénomène de digitation de la résine va favoriser la formation de bulles microscopiques ou macroscopiques par emprisonnement d'air, tel qu'illustrée à la Figure 7-4, en fonction des forces dominantes en jeu. Si la vitesse d'imprégnation du renfort fibreux est lente, les forces capillaires dans les mèches

de fibres seront prépondérantes par rapport aux forces visqueuses entre ces mèches, ce qui pourrait générer des bulles macroscopiques entre les mèches (voir Figure 7-4a). Toutefois, si la vitesse d'imprégnation est rapide, ce sont plutôt les forces visqueuses entre les mèches de fibres qui seront dominantes relativement aux forces capillaires dans ces mèches, ce qui pourrait créer des bulles microscopiques dans les mèches (voir Figure 7-4b).

Selon cette hypothèse avancée s'appuyant sur le débalancement des forces capillaires et visqueuses de l'écoulement de la résine dans les renforts fibreux à porosité bimodale, il existerait une vitesse intermédiaire optimale pour laquelle les forces capillaires et visqueuses de l'écoulement dans les deux familles de pores seraient en équilibre dynamique. Il convient de rappeler que, pour les renforts bidirectionnels et multidirectionnels, cette vitesse optimale ne peut pas minimiser la formation des bulles par emprisonnement d'air simultanément dans les mèches parallèles et perpendiculaires au sens de l'écoulement. Or, à l'heure actuelle, il n'existe aucune approche expérimentale permettant de mesurer directement l'amplitude des forces visqueuses et capillaires ayant cours dans divers régimes d'écoulement de polymère liquide dans des milieux poreux quelconque. Toutefois, il est possible de reproduire une situation d'imprégnation spontanée du renfort fibreux, aussi appelée imbibition spontanée, où les forces capillaires et les forces visqueuses sont en équilibre. En suivant l'évolution de la vitesse d'avancée du front de résine dans cette situation d'imbibition spontanée du renfort fibreux, la vitesse optimale d'imprégnation peut être déduite et elle peut être comparée aux différentes vitesses d'imprégnation réalisées dans les précédentes injections RTM. Cette vitesse optimale d'imprégnation déduite de la situation d'imbibition spontanée du renfort fibreux peut également être comparée aux nombreuses gammes de vitesses de front parcourues pendant toute la durée de ces essais d'imprégnation capillaire spontanée. À cet effet, trois études expérimentales du phénomène d'imprégnation par imbibition spontanée du renfort fibreux ont été réalisés à l'échelle microscopique et mésoscopique dans les chapitres 4, 5 et 6 de cette thèse.

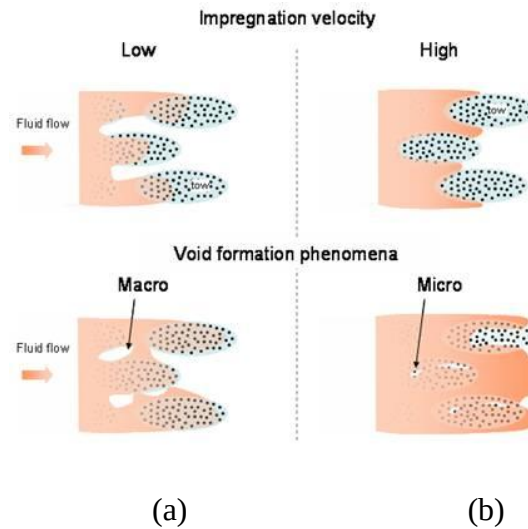


Figure 7-4 : Formation de vides macroscopiques et microscopiques
découlant du phénomène de digitation de la résine :

- (a) Écoulement à l'intérieur des pores microscopiques contenus dans les mèches;
- (b) Écoulement à l'intérieur des pores macroscopiques situés entre les mèches.

7.3.2 Impact de la géométrie du renfort fibreux sur l'imbibition spontanée

Tout d'abord, les deux premières études expérimentales des chapitres 4 et 5 ont été effectuées respectivement sur des mèches de fibres et des renforts fibreux complets. Ces études portaient sur la caractérisation des propriétés hydrauliques critiques de ces mèches de fibres et de ces renforts fibreux à l'aide d'une méthode standard de montée capillaire. Pour effectuer ces montées capillaires, un fluide d'infiltration de référence (propriétés déjà connues), stable et totalement mouillant a été retenu. Ce fluide d'infiltration était l'hexadécane en raison de sa faible volatilité à la température ambiante et de son comportement non-hygroscopique. L'utilisation d'un tel fluide de référence a permis d'isoler la contribution hydraulique des paramètres géométriques des mèches de fibres et du renfort fibreux au phénomène d'imbibition spontanée. Ces paramètres géométriques critiques ont été déjà énumérés aux chapitres 4 et 5. Il s'agit principalement du diamètre des filaments des mèches d_f , de la porosité des mèches ϕ_m , de la tortuosité des mèches τ et la distance caractéristique entre les mèches L_c (cellule élémentaire de répétition de tissage ou de couture du renfort fibreux). De leur côté, les paramètres géométriques f_{geo} et k_o dépendent de la distribution de la taille des pores, de l'orientation de l'écoulement par rapport aux mèches ainsi

que de la configuration d'empilement des filaments dans les mèches. Cette contribution hydraulique de tous les paramètres géométriques du renfort fibreux au phénomène d'imbibition spontanée a été ultérieurement simplifiée et condensée en un seul paramètre représentatif au chapitre 6. Ce paramètre représentatif a été nommé le nombre capillaire modifié optimal Ca_{opt}^* . Ce dernier paramètre est uniquement fonction de la géométrie du renfort fibreux mis en forme. Si toutes les propriétés géométriques du renfort fibreux sont déjà connues *a priori* grâce à des analyses par microscopie ou à des données du fabricant, le Ca_{opt}^* peut être approximé à l'aide du simple calcul (« *Back Of the Envelope* ») suivant :

$$Ca_{opt}^* = \frac{f_{geo}}{2k_o} \cdot \frac{d_f \phi_m}{\tau^2 L_c (1 - \phi_m)} \quad (7.2)$$

Au même titre que le seuil de mobilisation des bulles présenté à l'équation (7.1), le calcul approximatif (7.2) a été proposé au chapitre 6 et il a été dérivé d'un modèle mécanistique d'écoulement rampant dans des faisceaux de tubes capillaires. Ce modèle (7.2) est surtout valide et représentatif pour les renforts fibreux pour lesquels les écoulements capillaires à l'intérieur des mèches sont prépondérants comparativement aux écoulements capillaires entre les mèches. Ce calcul peut également être effectué en utilisant la porosité des mèches ϕ_m et la surface spécifique des filaments S_f (analyse *B.E.T.*) ou bien en employant le diamètre hydraulique équivalent des mèches d_h^m (porométrie capillaire) :

$$Ca_{opt}^* = \frac{2 f_{geo}}{k_o} \cdot \frac{\phi_m}{\tau^2 L_c S_f (1 - \phi_m)} \quad (7.3)$$

$$Ca_{opt}^* = \frac{f_{geo}}{2 k_o} \cdot \frac{d_h^m}{\tau^2 L_c} \quad (7.4)$$

En contrepartie, si les propriétés des mèches de fibres ne sont pas connues *a priori*, il est possible d'évaluer expérimentalement le nombre capillaire modifié optimal Ca_{opt}^* , pour une configuration donnée du renfort fibreux, à l'aide d'une simple montée capillaire avec le fluide de référence. Toutefois, contrairement aux calculs approximatifs précédents, cette évaluation expérimentale du Ca_{opt}^* prend en considération les écoulements capillaires intra-mèche aussi bien que les écoulements capillaires inter-mèche.

Par conséquent, un premier montage expérimental a été conçu et validé dans le chapitre 4 afin de suivre de manière visuelle et massive l'écoulement capillaire du fluide de référence dans les mèches de fibres du renfort de verre NCF bidirectionnel TG15N60A. Le développement de ce premier montage s'appuyait sur le couplage d'une méthode standard de montée capillaire avec une stratégie de contrôle non-destructif répétable et reproductible. Cette approche de contrôle non-destructif était le contrôle par ressuage fluorescent aussi appelé « *Fluorescent-Penetrant Inspection* » (FPI) ou « *Dye-Penetrant Inspection* » (DPI). Ce montage a permis de caractériser directement certaines propriétés géométriques et hydrauliques des mèches de chaîne et de trame du renfort fibreux à l'aide d'une simple caméra numérique et d'une balance analytique de haute résolution. Les propriétés critiques des mèches de fibres caractérisées par ce montage étaient leur porosité ϕ_m , leurs coefficients de diffusion capillaire B_h et B_m (pentes des évolutions de la hauteur capillaire et de la masse absorbée par les mèches selon le modèle de *Lucas-Washburn*) ainsi que leur capacité de rétention volumétrique de fluide par unité de longueur c_v . Tel que démontré au chapitre 6 et mentionné plus tôt, ce montage de montée capillaire a aussi permis d'évaluer le nombre capillaire modifié optimal Ca_{opt}^* pour des mèches de fibres seules de la manière suivante :

$$Ca_{opt}^* = \underbrace{\left(\frac{\mu}{\gamma_{lv} \cos \theta} \right)_{ref}}_{1/R_{ref}} \cdot \frac{B_h|_{ref}}{L_c} \quad (7.5)$$

où μ , γ_{lv} et θ sont respectivement la viscosité dynamique du fluide de référence, sa tension de surface ainsi que sa mouillabilité apparente avec les mèches de fibres. Tel que mentionné au chapitre 6, tous ces termes peuvent être résumés à un seul terme défini comme étant la pénétrativité R_{ref} du fluide de référence. Noter que le seul paramètre qui doit être caractérisé par la montée capillaire est le coefficient de diffusion capillaire $B_h|_{ref}$ du fluide de référence. Les autres paramètres sont généralement connus *a priori*. Le nombre capillaire modifié optimal Ca_{opt}^* déterminé avec cette méthode de montée capillaire a été comparé avec ceux approximés grâce aux équations (7.2), (7.3) et (7.4) ainsi qu'aux caractéristiques géométriques des mèches de fibres. Ces paramètres géométriques ont été caractérisés par microscopie, par gravimétrie, par

analyse *B.E.T.* et par porométrie capillaire. Les valeurs de Ca_{opt}^* obtenues de manières indépendantes étaient toutes cohérentes entre elles.

Toutes ces propriétés géométriques et hydrauliques des mèches de fibres sont importantes pour la caractérisation de l'imprégnation capillaire par imbibition spontanée et elles influencent directement le phénomène d'emprisonnement d'air dans les renforts fibreux. De plus, puisque ces propriétés ont été caractérisées simultanément, elles ont donc permis d'évaluer d'autres paramètres utiles pour des modélisations ultérieures des phénomènes d'imprégnation des mèches de fibres telles que la perméabilité axiale des mèches K_{axiale} , leur pression capillaire P_{cap} et l'évolution temporelle de leur saturation $s(t)$. À cet égard, dans l'analyse des résultats du chapitre 4, il a été proposé de bonifier le présent montage en utilisant une caméra numérique de plus haute performance et des algorithmes de traitement d'images plus élaborés afin d'estimer le niveau local de saturation $s(z,t)$ des mèches de fibres pendant leur imprégnation (Perwuelz, Casetta et al. 2001). Finalement, ce nouveau montage a aussi permis d'étudier l'impact de la présence de la solution d'encollage des mèches de fibres sur le phénomène d'imprégnation. Il est tout à fait envisageable que ce montage soit également employé à l'avenir pour comparer l'imprégnabilité de diverses mèches de fibres enduites de diverses solutions d'encollage.

Un deuxième montage expérimental de montée capillaire a ensuite été conçu et validé dans le chapitre 5 en s'appuyant sur les développements techniques et scientifiques proposés au chapitre 4. Ce montage a permis d'effectuer la caractérisation des écoulements capillaires dans diverses configurations du renfort de verre NCF bidirectionnel TG15N60A, à l'aide du fluide de référence fluorescent (DPI). Ces mesures de montée capillaire ont permis d'isoler l'influence des paramètres géométriques et hydrauliques de ces nombreuses configurations du renfort fibreux sur le phénomène d'imbibition spontanée. Cela a été rendu possible grâce à l'utilisation de moules usinés dans du verre transparent et l'usage d'un équipement de suivi de l'imprégnation du renfort fibreux similaire à celui déjà proposé au chapitre 4. De plus, le modèle de *Lucas-Washburn* a servi de nouveau à décrire l'évolution de l'imprégnation du renfort fibreux par imbibition spontanée. Ce modèle a également été utilisé pour obtenir, par régression linéaire, les coefficients de diffusion capillaire B_h et B_m pour diverses configurations de plis uniques ou de multiplis (pente

de l'évolution de la hauteur capillaire selon le modèle de *Lucas-Washburn*). Une fois que ces coefficients de diffusion capillaire B_h et B_m ont été obtenus, les nombres capillaires modifiés optimaux Ca_{opt}^* ont pu être calculés pour chacune des configurations de renfort fibreux étudiée à l'aide de l'équation (7.5). Ce deuxième montage a aussi permis d'étudier le phénomène d'imbibition spontanée dans les deux directions principales d'un pli de renfort fibreux bidirectionnel, c'est-à-dire dans les sens chaîne et trame, et ainsi évaluer l'anisotropie naturelle de ce renfort. Par la même occasion, les nombres capillaires modifiés optimaux Ca_{opt}^* ont été évalués pour les deux orientations principales du renfort fibreux. Au besoin, avec ces valeurs caractéristiques de $Ca_{opt}^*|_i$ pour un pli i , il devenait possible de calculer des nombres capillaires modifiés optimaux et équivalents $Ca_{opt}^*|_{eq}$ pour des stratifiés aux orientations de plis diversifiées. Au même titre que la perméabilité équivalente d'un renfort fibreux multicouche, un $Ca_{opt}^*|_{eq}$ peut être estimé en utilisant une moyenne pondérée selon les épaisseurs de chaque couche h_i et l'épaisseur totale H du renfort:

$$Ca_{opt}^*|_{eq} = \frac{\sum_{i=1}^n Ca_{opt}^*|_i \cdot h_i}{H} \quad (7.6)$$

où

$$H = \sum_{i=1}^n h_i \quad (7.7)$$

L'étude expérimentale portant sur des configurations à pli unique de ce renfort fibreux a aussi mis en lumière la contribution des pores macroscopiques au phénomène d'imbibition spontanée initiale et la contribution des pores microscopiques au phénomène d'imbibition spontanée à moyen terme. En effet, cette étude a tout d'abord rapporté que le phénomène d'imbibition spontanée était initialement dicté par les écoulements capillaires dans les pores macroscopiques situés entre les mèches de fibres. Toutefois, au cours de la progression capillaire dans le renfort fibreux, un transfert du fluide s'est graduellement effectué des pores macroscopiques vers les pores microscopiques situés à l'intérieur des mèches. Après cette période transitoire, l'évolution

de l'imbibition spontanée du renfort fibreux était uniquement dictée par l'écoulement capillaire à l'intérieur des mèches. À cet égard, l'évolution de l'imprégnation d'un pli de renfort fibreux par imbibition spontanée convergeait, après la courte période transitoire, vers une évolution typique de l'imprégnation capillaire d'une seule mèche de fibres, et ce, pour les deux orientations principales du renfort. Simultanément à cette transition, la formation de bulles macroscopiques par emprisonnement d'air pouvait être observée directement tel que mentionné dans la section précédente et illustré à la Figure 7-5. Cette formation de bulles macroscopiques était croissante avec la diminution de la vitesse d'imbibition spontanée dans le temps et avec le développement d'écoulements capillaires dominants à l'intérieur des mèches de fibres.

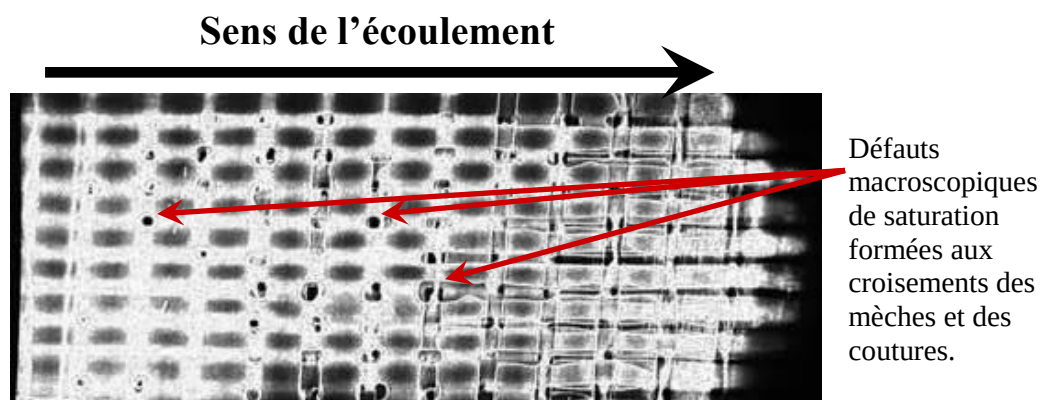


Figure 7-5 : Formation progressive de vides macroscopiques par emprisonnement d'air durant l'imbibition spontanée de résine vinyl ester dans un renfort fibreux (sens trame).

Ce deuxième montage a également permis d'évaluer l'impact du taux volumique de fibres sur l'évolution du phénomène d'imprégnation par imbibition spontanée pour diverses configurations de multiplis. Il a été rapporté dans le chapitre 5 que des niveaux de compaction intermédiaires de ce renfort fibreux, c'est-à-dire des taux volumique de fibres situés entre 32 et 39%, auraient entraîné une reconfiguration spatiale et géométrique des canaux macroscopiques entre les mèches de fibres, affectant ainsi le taux d'imprégnation par imbibition spontanée du renfort fibreux. Cette reconfiguration architecturale du renfort fibreux serait attribuable aux phénomènes de glissement entre les plis et d'emboîtement entre les mèches, aussi appelé « *nesting* ». Pour des taux volumiques de fibres supérieurs à 44% pour ce renfort NCF, une diminution de la taille des pores microscopiques résultant de la compaction et de la déformation des mèches de fibres semblerait

être potentiellement la cause d'un ralentissement de l'imbibition spontanée du renfort fibreux sur le moyen terme. Malgré une variabilité expérimentale de l'ordre de 20% pour les coefficients de diffusion capillaire B_h de chacune des configurations multiplis étudiées, les tendances observées confirment la nécessité de caractériser les phénomènes d'imprégnation sur des tailles d'échantillon représentatives du renfort fibreux (VER). Ils confirment également l'intérêt de caractériser ces mêmes imprégnations sur la configuration du renfort fibreux retenue pour sa mise en forme par les procédés LCM. Toutefois, une analyse expérimentale plus poussée des mécanismes d'emboîtement, de glissement inter-pli et de cisaillement intra-pli ayant cours pendant la compaction et le drapage des renforts fibreux serait nécessaire afin de mieux comprendre ce phénomène complexe de reconfiguration architecturale du renfort. Des outils de mesure *in situ* s'appuyant sur la tomographie à rayon-x (Somashekar, Bickerton et al. 2011) ou sur la microscopie (Saunders, Lekakou et al. 1999) seraient tout à fait appropriés pour ce type d'analyse. De plus, l'impact de la compaction du renfort fibreux sur certaines propriétés géométriques et hydrauliques de ce dernier, plus précisément la distribution statistique de la taille des pores, pourrait être étudié efficacement à l'aide de la porométrie capillaire par extrusion de fluide (Rebenfeld and Miller 1995; Xie 2002).

7.3.3 Impact des propriétés rhéologiques et de surface du polymère sur l'imbibition spontanée

Par la suite, une troisième étude expérimentale a été effectuée au chapitre 6 sur des renforts fibreux complets à l'aide de quatre polymères liquides typiquement utilisés lors des mises en forme par procédés LCM. Les polymères retenus étaient une résine vinyl ester, une résine époxy, un durcisseur pour la résine époxy (anhydride) et un solvant monomère pour la résine vinyl ester (styrène). L'approche expérimentale de caractérisation par DPI des écoulements capillaires dans les renforts fibreux, développée auparavant au chapitre 5, a été réutilisée de nouveau dans le chapitre 6. Ces mesures additionnelles de montée capillaire ont permis d'isoler la contribution hydraulique des paramètres rhéologiques et d'interface de ces polymères liquides au phénomène d'imbibition spontanée, à savoir leur viscosité dynamique μ , leur tension de surface γ_v et leur mouillabilité apparente θ avec les fibres. Au même titre que la contribution hydraulique des paramètres géométriques du renfort fibreux, la contribution de tous les paramètres rhéologiques

et d'interface des fluides au phénomène d'imbibition spontanée a été résumée à un seul paramètre représentatif au chapitre 6. Ce paramètre représentatif se nomme la pénétrativité du fluide R_{fluide} . Cette pénétrativité R_{fluide} des polymères liquides, pour une température de caractérisation donnée, peut être caractérisée à l'aide d'une deuxième montée capillaire de la manière suivante :

$$R_{fluide} = R_{ref} \cdot \frac{B_h|_{fluide}}{B_h|_{ref}} \quad (7.8)$$

où $B_h|_{fluide}$ est le coefficient de diffusion capillaire du polymère liquide caractérisée lors de cette deuxième montée capillaire. De plus, si toutes les propriétés rhéologiques et interfaciales du fluide sont déjà connues, le R_{fluide} peut être aussi calculé *a priori* à l'aide du simple calcul suivant :

$$R_{fluide} = \frac{\gamma_{lv} \cos \theta}{\mu} \quad (7.9)$$

Ces propriétés rhéologiques et interfaciales des polymères liquides ont aussi été évaluées séparément à l'aide de techniques standards de caractérisation telles que la rhéométrie, la tensiométrie et la goniométrie. À partir de ces caractérisations, il a été possible de calculer des valeurs de pénétrativité pour les quatre polymères liquides utilisés dans cette étude. Par la suite, les pénétrativités des polymères obtenues par mesure de montée capillaire ont été comparées à celles obtenues grâce aux données mesurées par les techniques standards de caractérisation. Les pénétrativités évaluées à l'aide de ces deux approches étaient tout à fait cohérentes.

Ces montées capillaires peuvent également permettre d'estimer l'impact de l'ajout d'espèces chimiques surfactants dans des résines thermodurcissables sur l'imprégnation des renforts fibreux. À cet égard, des caractérisations capillaires sur des plis de renforts fibreux ont été réalisées avec de l'anhydride pur et du styrène pur afin d'évaluer leurs pénétrativités respectives et de les comparer avec celles des résines époxy et vinyl ester. Du point de vue de l'imprégnation, l'ajout d'agent de cuisson (anhydride) ou de solvant monomère (styrène) respectivement aux résines époxy et vinyl ester peut contribuer à augmenter la pénétrativité de ces résines et donc augmenter la vitesse d'imprégnation des renforts fibreux. Toutefois, dans la sélection de la formulation chimique des résines, il faut également considérer l'impact de l'ajout de ces agents

surfactants, de cuisson et de dissolution sur la cinétique de réticulation du polymère ainsi que sur les propriétés mécaniques de la matrice réticulée. Par conséquent, un compromis doit être réalisé entre ces différents critères de performance « procédé ».

Noter que l'impact de la température sur la viscosité dynamique et sur la tension de surface de ces polymères a aussi été étudié au chapitre 6. À cet effet, une diminution de la viscosité dynamique en fonction de la température a été caractérisée à l'aide de mesures rhéologiques standards. Cette diminution importante de la viscosité dynamique en fonction de la température suivait une loi standard d'Arrhénius, tel que rapporté dans la littérature scientifique. De plus, une légère diminution de la tension de surface en fonction de la température a aussi été observée à l'aide de mesures tensiométriques par la méthode de Wilhelmy. Il fut rapporté dans la littérature que l'évolution de la tension de surface des polymères liquides en fonction de leur température suivait une décroissance linéaire modélisée par la loi d'Eötvös ou celle de Guggenheim-Katayama. À cet égard, la pente de cette décroissance de la tension de surface des polymères en fonction de leur température constitue une propriété thermodynamique intrinsèque de ces polymères, à savoir leur entropie de surface. Par conséquent, ces effets combinés de la température sur les propriétés rhéologiques et interfaciales des résines tendent à augmenter leurs pénétrativités respectives et donc à accroître la vitesse d'imprégnation des renforts fibreux. En contrepartie, l'augmentation de la température des résines thermodurcissables accroît également leur réactivité. Des précautions doivent donc être prises par les ingénieurs « procédé » pour éviter tout gel prématuré de la résine pendant l'imprégnation des renforts fibreux.

Malgré tout, le préchauffage des résines et des renforts fibreux après leur drapage dans la cavité du moule peut constituer un apport technique pertinent à l'amélioration de la qualité des pièces composites. En effet, cette stratégie peut être appliquée lors des phases de débullage et dégazage de la résine avant l'injection ainsi que lors la phase de remplissage du moule afin d'accélérer le débullage de la résine, d'améliorer l'imprégnation du renfort fibreux et de réduire la teneur final en vides dans la pièce. Finalement, il convient de mentionner que très peu d'attention a été portée jusqu'à présent sur les problématiques de chimie des surfaces appliquée aux résines thermodurcissables. Par conséquent, des efforts supplémentaires de recherche devraient être

consacrés, dans le futur, à la compréhension de ces phénomènes complexes d'interface à haute température qui surviennent entre les résines et la surface des fibres. En effet, outre la tension de surface des résines, d'autres phénomènes interfaciaux sont également influencés par la température et doivent être considérés dans le cadre des mécanismes d'imprégnation des renforts fibreux. Ces phénomènes interfaciaux additionnels sont l'énergie de surface des fibres et de leur solution d'encollage ainsi que la dissolution et la diffusion de cette solution d'encollage dans la résine. Ces phénomènes d'interface auront assurément un impact notable sur qualité des composites mis en forme à haute température tels que les pièces structurales des avions ainsi que leurs turbosoufflantes.

7.3.4 Détermination *a priori* de la vitesse d'imprégnation optimale

Les ingénieurs « procédé » ont maintenant en main le nombre capillaire modifié optimal Ca_{opt}^* du renfort fibreux utilisé ainsi que la pénétrativité R_{fluide} de la résine étudiée. Lorsque ces deux caractérisations par montée capillaire ont été réalisées pour des conditions thermiques données de remplissage, il est possible de calculer directement la vitesse d'imprégnation optimale v_{opt} qui va minimiser la formation de bulles par emprisonnement d'air pour ce couple renfort/résine. En effet, cette vitesse d'imprégnation optimale se calcule de la manière suivante :

$$v_{opt} = R_{fluide} \cdot Ca_{opt}^* \quad (7.10)$$

Au besoin, cette vitesse d'imprégnation optimale peut même être caractérisée à l'aide d'une seule montée capillaire, à des conditions thermiques données de mise en forme, de la manière suivante :

$$v_{opt} = \frac{B_h|_{fluide}}{L_c} \quad (7.11)$$

À l'aide du montage capillaire, des prédictions expérimentales du Ca_{opt}^* pour la configuration de 6 plis du renfort de verre TG15N60A et de la v_{opt} avec la résine vinyl ester ont été réalisées. Les valeurs de Ca_{opt}^* et de v_{opt} prédites par cette approche expérimentale étaient respectivement de

$(2.5 \pm 0.3) \times 10^{-3}$ et de (0.15 ± 0.02) mm/s. Ces prédictions expérimentales étaient cohérentes avec les résultats d'analyse d'images (voir Figure 7-5) et d'analyse de teneurs en vides par carbonisation mesurées sur les plaques composites mises en forme par procédé RTM dans la section précédente. En effet, selon ces résultats d'analyse présentés à la Figure 7-1, le nombre capillaire modifié optimal Ca_{opt}^* pour le renfort TG15N60A se situerait à l'intérieur de l'intervalle $[2.3 - 3.7] \times 10^{-3}$. De plus, en utilisant l'équation (7.10) et la pénétrativité de la résine vinyl ester estimée au chapitre 6 à l'aide de techniques standards de caractérisation, il est possible de convertir cet intervalle de Ca_{opt}^* en un intervalle de v_{opt} . Cet intervalle de vitesses optimales d'imprégnation s'étend de 0.12 à 0.20 mm/s. De leur côté, les approximations théoriques du Ca_{opt}^* réalisées à partir de l'équation (7.2), (7.3) ou (7.4) se situaient plutôt dans un intervalle légèrement inférieur, c'est-à-dire $[0.9 - 1.2] \times 10^{-3}$. Ces approximations théoriques ont toujours tendance à sous-estimer la valeur du Ca_{opt}^* car elles négligent explicitement la contribution capillaire des pores macroscopiques, situés entre les mèches de fibres, au phénomène d'imbibition spontanée du renfort fibreux complet. Malgré tout, ces prédictions théoriques constituent de bonnes premières estimations des conditions optimales d'imprégnation. De plus, ces calculs approximatifs peuvent servir de bornes inférieures pour la plage des Ca_{opt}^* .

Noter qu'il a été possible d'obtenir une estimation rapide, représentative, répétable et peu coûteuse des conditions optimales d'imprégnation du renfort fibreux à l'aide de quelques mesures simples de montée capillaire. Ces estimations expérimentales sont obtenues sans avoir à réaliser des essais de fabrication de pièces longs et coûteux ni même de simulations numériques complexes d'écoulements capillaires dans un milieu poreux à porosité bimodale. En outre, ces mesures de montée capillaire fournissent des données qui sont cohérentes avec celles déjà obtenues par des méthodes de caractérisation standards et précises, à savoir la microscopie, la gravimétrie, l'analyse *B.E.T.*, la porométrie capillaire par extrusion de fluide, la rhéométrie, la tensiométrie et la goniométrie. La majorité de ces techniques standards de caractérisation sont coûteuses en temps d'utilisation et en équipement, contrairement à la méthode de mesure par montée capillaire. Par surcroît, les mesures réalisées à l'aide de ces techniques standards ne sont pas toujours représentatives du phénomène d'imprégnation réellement observé dans les renforts

fibreux. En effet, la méthode de montée capillaire prend en compte la variabilité des propriétés du renfort et de la résine, ce qui n'est pas toujours possible avec les techniques standards de caractérisation. Utilisée en amont, cette approche permet donc de réduire le nombre d'essais de caractérisation et de fabrication. De plus, cette prédiction expérimentale des conditions optimales d'imprégnation pour un couple de matériaux donnés permet d'optimiser les procédés d'injection sur renforts et donc de produire des pièces composites plus performantes.

CONCLUSION ET RECOMMANDATIONS

La discussion générale précédente a permis de mettre en relief certaines zones grises et limitations de la thèse actuelle portant sur le contrôle de l'imprégnation des renforts fibreux. De cette discussion ont découlé plusieurs recommandations et une conclusion qui constituent autant de pistes de réflexion pertinentes et de nouveaux axes de recherche prometteurs.

I. Recommandations

I.1. Chimie des surfaces et phénomènes d'interface

Tout d'abord, le volet de la thèse qui a abordé la problématique de caractérisation des phénomènes d'interface s'est rapidement buté à des limitations techniques. Tout d'abord, la mesure de la tension de surface des polymères thermodurcissables, pour des températures inférieures à 100 degrés Celsius, était facile et directe par la méthode de Wilhelmy, à l'aide d'un tensiomètre standard. Toutefois, il en était tout autrement pour les mesures de tension de surface de polymères thermodurcissables à des températures supérieures à 100 degrés Celsius, c'est-à-dire des températures de mise en forme typiques des résines aéronautiques. Quoique mieux adapté pour les polymères thermoplastiques à fortes viscosités, le goniomètre optique chauffé a pu être utilisé pour estimer la tension de surface des résines thermodurcissables à des températures supérieures à 100 degrés Celsius. Néanmoins, le tensiomètre standard chauffé (fluide caloporteur ou électrique) constitue une solution plus adéquate que le goniomètre optique chauffé pour la caractérisation de la tension de surface des polymères thermodurcissables de faibles viscosités. En effet, cette dernière méthode de caractérisation par la méthode de la goutte pendante requiert simultanément la connaissance *a priori* de la masse volumique du polymère à la température de mesure et l'usage d'un logiciel complexe de traitement d'images afin d'évaluer la tension de surface des polymères. À cet égard, ces deux aspects de la goniométrie ont tendance à produire des mesures de tension de surface de polymères plus difficiles à interpréter, moins fidèles et moins justes. Or, les laboratoires québécois qui possèdent ce type de tensiomètres chauffés sont extrêmement rares à l'heure actuelle. Il y a donc une niche potentielle pour

l'acquisition de ce type d'équipement de pointe pour la caractérisation des tensions de surface de polymères à haute température.

Avec ce type d'équipement en main, il serait possible d'approfondir notre compréhension des phénomènes d'imprégnation des renforts fibreux et de formation des bulles à haute température. Plus particulièrement, l'évolution de la mouillabilité et de la tension d'adhésion entre les fibres et les résines en fonction de la température pourrait être mieux analysée. Noter que ce type de tensiomètres ne se limite pas uniquement à des caractérisations à haute température. Cet équipement permet également d'étudier, à température ambiante, l'impact de la chimie des polymères sur la tension de surface des résines ainsi que l'affinité chimique entre les résines et les solutions d'encollage des renforts fibreux. Ainsi, l'impact sur l'imprégnation des renforts de l'utilisation de surfactants dans les résines pourrait être investigué quantitativement. Il en est de même pour l'impact de l'incorporation de nano-charges aux solutions d'encollage. Cet outil de caractérisation permettrait également d'étendre l'étude des phénomènes d'interface et d'adhésion aux agents de démoulage, aux traitements physico-chimiques de surface des moules ainsi qu'aux membranes élastomériques antiadhésives. Pour la caractérisation de l'énergie de surface de tous ces éléments, l'utilisation de la chromatographie en phase gazeuse inverse pourrait s'avérer encore plus appropriée.

L'étude des mécanismes de transfert d'espèces par dissolution et nucléation lors de la mise en forme des résines thermodurcissables fait également partie de cette catégorie des phénomènes d'interface. En effet, il a été présenté dans cette thèse que la dissolution des inclusions gazeuses ainsi que la nucléation des gaz dissous dans la résine liquide avaient un impact sur la distribution finale des bulles dans les pièces composites. Il serait tout à fait à propos d'approfondir cette compréhension des mécanismes de dissolution et de nucléation des bulles dans le cadre des mises en forme par procédés LCM. Ces études expérimentales porteraient essentiellement sur l'impact de la pression et de la température sur ces mécanismes de transfert de masse ainsi que sur l'efficacité relative des stratégies de débullage et de dégazage des résines avec ou sans agent de nucléation. Ces dernières stratégies pourraient constituer des alternatives intéressantes lorsque la

stratégie de remplissage à vitesse d'imprégnation contrôlée ne peut pas être utilisée dans le procédé LCM retenu.

I.2. Architecture des renforts fibreux

Cette thèse a aussi proposé de nouvelles avenues de recherche portant sur l'étude des principaux paramètres géométriques des renforts fibreux aux échelles microscopique et mésoscopique et leur influence sur les phénomènes capillaires. À cet effet, les paramètres géométriques intrinsèques aux renforts fibreux sont eux-mêmes fixés en amont par les procédés de filage et de tissage/couture. Dans le cas du procédé de tissage, il serait tout à fait pertinent d'étendre l'étude des comportements capillaires initiée dans cette thèse sur les renforts fibreux bidimensionnels aux renforts possédant plutôt des architectures unidimensionnelles, tridimensionnelles et aléatoires. Il apparaît évident que ces procédés industriels de fabrication des renforts fibreux pourraient subséquemment avoir un impact sur la perméabilité des mèches et du renfort fibreux, sur la pression capillaire des mèches, sur l'écoulement capillaire dans le renfort ainsi que sur la formation des bulles dans les pièces composites. Il en est de même pour les mécanismes de reconfiguration géométrique du renfort fibreux par emboîtement des fibres, par glissement inter-couche et par cisaillement intra-couche. Cette reconfiguration peut être occasionnée par la compaction et le drapage du renfort fibreux dans la cavité du moule. Toutes ces étapes précédentes au remplissage du moule auront un impact notable sur les propriétés hydrauliques finales du renfort fibreux et donc sur la qualité de leur imprégnation. L'évaluation précise de ces propriétés hydrauliques critiques telles que la distribution de la taille des pores et la tortuosité des mèches nécessiteraient l'utilisation d'équipements spécialisés de caractérisation *in situ* des renforts fibreux. Parmi ceux-ci, il convient de souligner plus particulièrement le poromètre capillaire par extrusion de fluide et le tomographe à rayon-x. Ces outils sont tout désignés pour poursuivre le travail expérimental entamé dans cette thèse sur l'étude paramétrique des mécanismes d'imprégnation des renforts fibreux lors de leurs mises en forme par procédés LCM.

I.3. Remplissage optimal de pièces composites complexes

Jusqu'à présent, la stratégie de remplissage à vitesse d'imprégnation constante et optimale n'a été validée expérimentalement que pour des géométries de pièces composites simples, minces et

unidimensionnelles. De plus, les pièces composites mises en forme possédaient généralement une fraction volumique de fibres uniforme. Il serait tout à fait envisageable et pertinent maintenant de mettre à l'essai cette nouvelle stratégie d'injection RTM sur des pièces composites à section transversale variable et à taux volumiques de fibres variable. La vérification de cette stratégie d'injection optimale pourrait être réalisée à l'aide du montage expérimental et de la méthode de suivi de la saturation des renforts fibreux par transmission de lumière visible (TLV) qui ont été développés et validés au chapitre 3. Par la suite, les résultats expérimentaux obtenus lors de ces injections RTM de pièces complexes pourraient être comparés aux prédictions numériques des teneurs en vides réalisées par des codes de simulation commerciaux et académiques actuellement disponibles. Noter que la méthode de suivi par TLV de la saturation en temps réel pourrait également être employée pour investiguer l'efficacité des stratégies de remplissage assisté de vibrations ainsi que les stratégies de post-remplissage par purge-compaction cyclique en fonction de la fréquence et de l'amplitude de leurs pulsions.

Ces résultats de saturation locale des renforts fibreux obtenus par la méthode TLV pourraient aussi être couplés à des mesures locales du champ de pression afin de guider la mise à jour des modèles phénoménologiques de saturation des renforts fibreux présentement proposés dans la littérature. Ces mesures simultanées des champs de saturation et de pression pourraient même menées à l'élaboration d'un modèle multi-échelle et semi-mécanistique de la saturation des renforts fibreux. À l'échelle mésoscopique, la méthode de Lattice-Boltzmann servant généralement à la résolution de modèles discrets pourrait être employée pour simuler localement les écoulements capillaires de résine à l'échelle du VER du renfort fibreux à porosité bimodale, et ce, pour diverses conditions de mise en forme. Les phénomènes de digitation (« *fingering* »), de formation de bulles par emprisonnement d'air et de mobilisation des bulles pourraient ainsi être estimés et prédits, permettant ainsi leur transposition à l'échelle supérieure du renfort fibreux, à savoir l'échelle macroscopique. Cette homogénéisation à l'échelle macroscopique des mécanismes mésoscopiques d'imprégnation permettrait l'estimation de la distribution finale des bulles à l'intérieur des pièces composites sans avoir à procéder à leurs mises en forme au préalable. Ce nouveau modèle macroscopique pourrait s'inspirer de la modélisation des phénomènes de transport de masse par advection-dispersion dans les milieux granulaires fracturés telle que le modèle « Black-oil ». De plus, il pourrait être résolu de la même manière que les

autres problèmes classiques de mécanique des milieux continus, c'est-à-dire en utilisant les méthodes de conventionnelles par éléments finis ou par volumes finis.

I.4. Mécanismes de rupture des pièces composites contenant des bulles

Finalement, la motivation industrielle de développer des stratégies de minimisation des bulles repose en partie sur l'hypothèse que les bulles microscopiques et macroscopiques ont le même impact dommageable sur les performances mécaniques des pièces composites. Or, tel que présenté au chapitre 2, rien n'est moins certain. Au contraire, selon certains résultats présentés au chapitre 2 et publiés récemment dans la littérature scientifique, la morphologie des bulles ainsi que leur distribution spatiale dans les pièces composites auraient un impact notable sur les mécanismes d'initiation et de propagation des fissures. À cet effet, il serait pertinent de poursuivre des études expérimentales sur les mécanismes de rupture des pièces composites contenant des bulles qui découlent de leur mise en forme. Pour ce faire, des essais mécaniques standards sur ces pièces composites poreuses pourraient être couplés à des analyses *in situ* par tomographie à rayon-x afin de suivre la rupture du matériau pendant sa sollicitation. De cette manière, il serait possible d'isoler les phénomènes d'initiation et de propagation de fissures et ainsi déterminer, parmi les bulles microscopiques, macroscopiques ou celles à l'interface fibre-matrice, lesquelles ont un impact plus critique sur les performances mécaniques des pièces composites. Ainsi, les critères de minimisation des bulles, de contrôle de l'injection et de contrôle de qualité non-destructif pourraient être ajustés conséquemment aux résultats obtenus dans cette étude expérimentale des mécanismes de rupture des pièces composites.

II. Conclusion

À la lumière des tendances et des résultats expérimentaux présentés dans cette thèse et dans littérature scientifique, il existe une corrélation entre la détérioration des propriétés mécaniques des pièces composites et l'augmentation de la teneur en vides contenue dans ces pièces. Par conséquent, il devenait important d'approfondir la compréhension des phénomènes d'imprégnation et d'emprisonnement des bulles dans les renforts fibreux à porosité bimodale et de développer des stratégies de contrôle du remplissage afin d'améliorer la qualité des pièces composites fabriquées par les procédés LCM.

À cet égard, les paramètres critiques du remplissage du moule et des stratégies industrielles de post-remplissage gouvernant la formation de bulles par emprisonnement d'air et leur transport ont premièrement été identifiés à l'aide d'une nouvelle approche expérimentale. Le principe de cette nouvelle approche de suivi non-intrusif de la saturation des renforts fibreux s'appuyait principalement sur la transmission de lumière visible dans un milieu poreux transparent. Cette approche optique a été validée à l'aide d'une technique standard de caractérisation des teneurs en vides dans les pièces composites par carbonisation. Trois plans d'expériences réalisés avec cette approche ont tout d'abord permis de cibler la vitesse d'avancée du front de résine (ou le nombre capillaire modifié) comme étant un paramètre contrôlant la formation des bulles microscopiques dans les mèches de fibres. D'un autre côté, lors de certains essais de montée capillaire analysés à l'aide d'algorithmes de traitement d'images, il a été démontré que cette même vitesse de front gouvernait également la formation des bulles macroscopiques entre les mèches de fibres. En effet, pour une certaine vitesse d'imprégnation intermédiaire, la formation des bulles par emprisonnement d'air était minimisée. Ces trois plans d'expériences ont également démontré que les mécanismes de mobilisation des bulles microscopiques emprisonnées dans le renfort fibreux étaient activés à partir d'un seuil donné de vitesse d'écoulement du polymère pendant les phases de remplissage et de purge du moule. Enfin, la pression avait aussi une influence directe sur le processus de dissolution des bulles microscopiques pendant les phases de remplissage du moule et de consolidation des pièces composites durant leur cuisson.

Finalement, une méthode de caractérisation rapide, répétable, représentative et à faible coût a été développée et validée pour estimer *a priori* les conditions d'imprégnation minimisant la formation de bulles par emprisonnement d'air pour un couple renfort-résine donné. Or, tel qu'énoncé de manière hypothétique dans cette thèse et dans la littérature scientifique, la formation des bulles par emprisonnement d'air découlerait d'un déséquilibre entre les forces visqueuses et capillaires de l'écoulement dans les renforts fibreux à porosité bimodale. La stratégie expérimentale proposée dans cette thèse consistait donc à suivre les écoulements capillaires d'un fluide de référence et de résines thermodurcissables pour lesquels les forces visqueuses et capillaires étaient justement en équilibre. Cette stratégie de caractérisation

expérimentale des écoulements capillaires s'appuyait sur le couplage de deux approches standards. Ces deux approches étaient la méthode de suivi de montée capillaire et le contrôle par ressuage fluorescent aussi appelé « *Fluorescent-Penetrant Inspection* » (FPI) ou « *Dye-Penetrant Inspection* » (DPI). Ce suivi de la montée capillaire de cinq fluides donnés dans diverses configurations de mèches de fibres et de renforts fibreux s'est effectué simultanément de manière visuelle et massique. Ces caractérisations par montée capillaire ont permis d'évaluer plusieurs propriétés géométriques et hydrauliques des mèches de fibres et des renforts fibreux telles que la porosité des mèches, les coefficients de diffusion capillaire des mèches et de diverses configurations de renfort fibreux. Ces résultats de caractérisation par montée capillaire ont été confirmés à l'aide de méthodes de caractérisation standards telles que la microscopie, la gravimétrie, la porométrie capillaire et l'analyse *B.E.T.*

Cette approche expérimentale de montée capillaire a aussi permis de caractériser la pénétrativité des quatre polymères liquides étudiés dans cette thèse, à savoir une résine vinyl ester, une résine époxy, un durcisseur pour la résine époxy (anhydride) et un monomère solvant pour la résine vinyl ester (styrène). Ces caractérisations de la pénétrativité par la méthode de montée capillaire furent corroborées à l'aide de méthodes de caractérisation standards telles que la rhéométrie, la tensiométrie et la goniométrie. De plus, cette stratégie de caractérisation par montée capillaire fut également utilisée pour estimer *a priori* le nombre capillaire modifié optimal et la vitesse d'imprégnation optimale qui minimisent la formation de bulles par emprisonnement d'air pour un renfort et une résine donnés. Ces dernières prédictions de conditions optimales d'imprégnation ont été validées à l'aide des précédents résultats d'analyse de teneurs en vides par traitement d'images de montée capillaire et par carbonisation des plaques composites mises en forme par procédé RTM. Finalement, cette caractérisation *a priori* du nombre capillaire modifié optimal a aussi été comparée aux résultats des calculs théoriques approximatifs proposés dans cette thèse afin de prédire le nombre capillaire modifié optimal d'un renfort donnée. Ces calculs théoriques s'appuyaient sur un modèle mécanistique d'écoulement rampant dans des faisceaux de tubes capillaires développé dans cette thèse. Ces calculs approximatifs sous-estimaient légèrement le nombre capillaire modifié optimal mais ils permettaient tout de même de fournir une borne inférieure adéquate pour la plage des conditions optimales d'imprégnation.

Ces estimations expérimentales des conditions optimales d'imprégnation par la méthode de montée capillaire ont été obtenues sans avoir à réaliser des essais de fabrication de pièces longs et coûteux ni même de simulations numériques complexes d'écoulements capillaires dans un milieu poreux à porosité bimodale. Utilisée en amont, cette approche permettra donc de réduire le nombre d'essais de caractérisation et de fabrication. De plus, cette prédiction expérimentale des conditions optimales d'imprégnation pour un couple de matériaux donnés permettra d'optimiser les procédés d'injection sur renforts et donc de produire des pièces composites plus performantes.

BIBLIOGRAPHIE

- 01dB-Metravib. (2010). "New! Calorimetry analysis available on the Metravib dynamic mechanical analyzers." from <http://www.01db-metravib.com/index.php?id=2369&L=1>.
- Achim, V. (2009). *Simulation pour l'aide a l'optimisation et fabrication intelligente des composites par injection sous renfort*. Ph.D., Ecole Polytechnique, Montreal (Canada), Canada.
- Achim, V. and E. Ruiz (2010). Guiding selection for reduced process development time in RTM. *Int. J. Mater. Form.*, 3(0): 1277-1286.
- Albert, C. and G. Fernlund (2002). Spring-in and warpage of angled composite laminates. *Compos. Sci. Tech.*, 62(14): 1895-1912.
- Alvarez-Ramirez, J. and J. Alvarez (2005). Robust temperature control for batch chemical reactors. *Chemical Engineering Science*, 60(24): 7108-7120.
- Anderson, R. T. and T. J. DeLacy (1972). Nondestructive testing of advanced composites. *102(Compendex)*: 88-92.
- Antonucci, V., M. Giordano, et al. (2006). Real time monitoring of cure and gelification of a thermoset matrix: Manufacturing, Processing and Characterisations of Polymer Composites. *Compos. Sci. Tech.*, 66(16): 3273-3280.
- Antonucci, V., M. Giordano, et al. (2002). A methodology to reduce thermal gradients due to the exothermic reactions. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 45(8): 1675-1684.
- Aström, B. T., R. B. Pipes, et al. (1992). On flow through aligned fiber beds and its application to composites processing. *J. Compos. Mater.*, 26(9): 1351-1373.
- Bailleul, J. L., G. Guyonvarch, et al. (1996). Identification des proprietes thermiques de composites fibres de verre/resines thermodurcissables: Application a l'optimisation des procedes de moulage: Identification of glass fiber/thermosetting resins composites thermal properties. *Revue Generale de Thermique*, 35(409): 65-77.
- Bailon, J.-P. and J.-M. Dorlot (2000). *Des matériaux*. Montréal, Canada, Presses internationales Polytechnique.

- Baker, A. A., S. Dutton, et al. (2004). *Composite materials for aircraft structures*. Reston, VA, American Institute of Aeronautics and Astronautics.
- Barooah, P. and S. Jian-Qiao (2000). *Flow control in resin transfer molding with switching and feedback*. American Control Conference, 2000. Proceedings of the 2000.
- Bascom, W. D. and J. B. Romans (1968). Microvoids in glass-resin composites -- Their origin and effect on composite strength. *Industrial and Engineering Chemistry, Product Research and Development*, 7(3): 172-178.
- Batchelor, G. K. and R. W. O'Brien (1977). Thermal or electrical conduction through a granular material. *Proceedings of The Royal Society of London, Series A: Mathematical and Physical Sciences*, 355(1682): 313-333.
- Batycky, R. P. and H. Brenner (1997). Thermal macrotransport processes in porous media. A review. *Advances in Water Resources*, 20(2-3): 95-110.
- Bayldon, J. M. (2007). *Development and validation of a liquid composite molding model*. Northwestern University, Illinois.
- Bear, J. (1972). *Dynamics of fluids in porous media*. New York, American Elsevier Pub. Co.
- Bear, J. and Y. Bachmat (1990). Introduction to modeling of transport in porous media. *Hydrological Sciences Journal*, 35(6): 689.
- Bequette, W. B. (2003). *Process control modeling, design, and simulation*. Upper Saddle River, N.J, Prentice Hall PTR.
- Bhattad, P., C. Willson, et al. (2011). Effect of Network Structure on Characterization and Flow Modeling Using X-ray Micro-Tomography Images of Granular and Fibrous Porous Media. *Transport in Porous Media*: 1-29.
- Bickerton, S. (1999). *Modeling and control of flow during impregnation of heterogeneous porous media, with application to composite mold-filling processes*. University of Delaware, United States -- Delaware.
- Bird, R. B., W. E. Stewart, et al. (2002). *Transport phenomena*. New York ;, Toronto :, Wiley.
- Bishop, C. M. (1995). *Neural Networks for Pattern Recognition*. New York, Oxford University Press.
- Blanchard, P. J. and C. D. Rudd (1996). Cycle time reduction in resin transfer moulding by phased catalyst injection. *Compos. Sci. Tech.*, 56(2): 123-133.

- Bowles, K. J. and S. Frimpong (1991). *Relationship between voids and interlaminar shear strength of polymer matrix composites*, San Diego, CA, USA, Publ by SAMPE.
- Boyard, N., A. Millischer, et al. (2007). Behaviour of a moulded composite part: Modelling of dilatometric curve (constant pressure) or pressure (constant volume) with temperature and conversion degree gradients. *Compos. Sci. Tech.*, 67(6): 943-954.
- Bréard, J., A. Saouab, et al. (2003). Numerical simulation of void formation in LCM. *Composites Part A*, 34(6 SPEC.): 517-523.
- Briones, L. (2005). *Injection flexible dans moule isotherme: Conception et analyse d'un nouveau procede de fabrication de composites*. M.Sc.A., Ecole Polytechnique, Montreal (Canada), Canada.
- Brown, J. M., S. Srinivasan, et al. (1996). Production of Controlled Networks and Morphologies in Toughened Thermosetting Resins Using Real-Time, in Situ Cure Monitoring. *Polymer*, 37(9): 1691-1696.
- Buckley, S. E. and M. C. Leverett (1942). Mechanism of fluid displacement in sands. *American Institute of Mining and Metallurgical Engineers -- Transactions -- Petroleum Development and Technology Division*, 146: 107-116.
- Castro, F. (2006). Effective mould release for RTM processes. *Reinforced Plastics*, 50(10): 30-31.
- Causse, P., E. Ruiz, et al. (2011). Experimental study of flexible injection to manufacture parts of strong curvature. *Polym. Comp.*: n/a-n/a.
- Causse, P., E. Ruiz, et al. (2012). Influence of preforming on the quality of curved composite parts manufactured by flexible injection. *Int. J. Mater. Form.*: 1-22.
- Chailleux, E., M. Salvia, et al. (2000). Fibre-optic sensor for monitoring the polymer cure process. *3rd Conference on Photonics, Devices, and Systems (PHOTONICS PRAGUE '99), Jun 21-Jun 23 1999: Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering*, 4016: 136-142.
- Chailleux, E., M. Salvia, et al. (2001). In situ study of the epoxy cure process using a fibre-optic sensor. *Smart Materials and Structures*, 10(2): 194-202.
- Chambers, A. R., J. S. Earl, et al. (2006). The effect of voids on the flexural fatigue performance of unidirectional carbon fibre composites developed for wind turbine applications. *Int. J. Fatigue*, 28(10 SPEC. ISS.): 1389-1398.

- Chang, C.-Y. and L.-W. Hourng (1998). Study on void formation in resin transfer molding. *Polym. Eng. Sci.*, 38(5): 809-818.
- Chang, Y. M., T. S. Wang, et al. (1982). Optimal linearization and variational embedding solutions for convective fins with variable thermal conductivity. *Letters in Heat and Mass Transfer*, 9(2): 99-106.
- Chapuis, R. P. and M. Aubertin (2003). On the use of the Kozeny-Carman equation to predict the hydraulic conductivity of soils. *Canadian Geotechnical Journal*, 40(3): 616-628.
- Chen, A. B. and L. S. Turng (2005). A Review of Current Developments in Process and Quality Control for Injection Molding. *Advances in Polymer Technology*, 24(3): 165-182.
- Chen, J. H., M. A. Oceau, et al. (2009). *Cure cycle optimisation for composite panels fabricated by RTM using dielectric sensors*. 17th International Conference on Composite Materials, ICCM-17, July 27, 2009 - July 31, 2009, Edinburgh, United kingdom, International Committee on Composite Materials.
- Chen, Z. and L.-S. Turng (2004). *Advances in injection molding process/quality control*. ANTEC 2004 - Annual Technical Conference Proceedings, May 16-20 2004, Society of Plastics Engineers.
- Chui, W. K., J. Glimm, et al. (1997). Process modeling in resin transfer molding as a method to enhance product quality. *SIAM Review*, 39(4): 714-727.
- Chung Hae Park and L. Woo (2011). Modeling void formation and unsaturated flow in liquid composite molding processes: a survey and review. *J. Reinf. Plast. Compos.*, 30(11): 957-977.
- Collins, R. E. (1961). *Flow of fluids through porous materials*. New York,, Reinhold Pub. Corp.
- Commission des Affaires Étrangères et de la Défense (2011). *Rapport d'information no. 349: La sécurité des approvisionnements stratégiques de la France*. Paris, Le Sénat (France).
- Correia, N. C., F. Robitaille, et al. (2005). Analysis of the vacuum infusion moulding process: I. Analytical formulation. *Composites Part A*, 36(12): 1645-1656.
- Critchlow, G. W., R. E. Litchfield, et al. (2006). Surface cleaning technologies for the removal of crosslinked epoxide resin. *International Journal of Adhesion and Adhesives*, 26(5): 295-303.
- Darcy, H. (1856). *Les Fontaines Publiques de La ville de Dijon : Distribution d'eau et filtrage des eaux*, APPENDICE – Note D. Victor Dalmont. Dijon, France.

- Day, D. R. (1989). Dielectric determination of cure state during non-isothermal cure. *Polym. Eng. Sci.*, 29(5): 334-338.
- Day, D. R., H. L. Lee, et al. (1991). *New dielectric sensor for statistical process control of thermoset molding*. 49th Annual Technical Conference -ANTEC '91, May 5-9 1991, Publ by Soc of Plastics Engineers, Brookfield, CT, USA.
- Demaria, C., E. Ruiz, et al. (2007). In-plane anisotropic permeability characterization of deformed woven fabrics by unidirectional injection. Part I: Experimental results. *Polym. Comp.*, 28(6): 797-811.
- Demaria, C., E. Ruiz, et al. (2007). In-plane anisotropic permeability characterization of deformed woven fabrics by unidirectional injection. Part II: Prediction model and numerical simulations. *Polym. Comp.*, 28(6): 812-827.
- Devillard, M., K.-T. Hsiao, et al. (2003). *Validation and implementation of control strategies for liquid composite molding processes*. 2003 ASME International Mechanical Engineering Congress, Nov 15-21 2003, American Society of Mechanical Engineers, New York, NY 10016-5990, United States.
- Devillard, M., K.-T. Hsiao, et al. (2005). Flow sensing and control strategies to address race-tracking disturbances in resin transfer molding - Part II: Automation and validation. *Composites Part A*, 36(11): 1581-1589.
- Devillard, M., A. Laut, et al. (2005). On-line mixing during injection and simultaneous curing in liquid composite molding processes. *Polym. Comp.*, 26(1): 74-83.
- Doering, C. R. and J. D. Gibbon (1995). *Applied analysis of the Navier-Stokes equations*. Cambridge ; New York, Cambridge University Press.
- Dullien, F. A. L. (1979). *Porous media : fluid transport and pore structure*. New York :, Academic Press.
- Dullien, F. A. L. (1988). Two-phase flow in porous media. *Chemical Engineering and Technology*, 11(6): 407-424.
- Dunkers, J. P., K. M. Flynn, et al. (2002). Model-assisted feedback control for liquid composite molding. *Composites - Part A: Applied Science and Manufacturing*, 33(6): 841-854.
- Dunkers, J. P., F. R. Phelan, et al. (2001). The application of optical coherence tomography to problems in polymer matrix composites. *Opt. Laser Eng.*, 35(3): 135-147.

- Dybbs, A. and R. V. Edwards (1984). *A new look at porous media fluid mechanics; Darcy to turbulent*. Fundamentals of transport phenomena in porous media, Martinus Nijhoff Publ., Dordrecht, Netherlands.
- Endruweit, A., P. Glover, et al. (2011). Mapping of the fluid distribution in impregnated reinforcement textiles using Magnetic Resonance Imaging: Methods and issues. *Composites Part A*, 42(3): 265-273.
- Farouq, Y., C. Nicolazo, et al. (2005). Temperature measurements in the depth and at the surface of injected thermoplastic parts. *Measurement: Journal of the International Measurement Confederation*, 38(1): 1-14.
- Fernlund, G., N. Rahman, et al. (2002). Experimental and numerical study of the effect of cure cycle, tool surface, geometry, and lay-up on the dimensional fidelity of autoclave-processed composite parts. *Composites - Part A: Applied Science and Manufacturing*, 33(3): 341-351.
- Feuvrier, J. (2007). *Etude numerique du remplissage et des transferts thermiques pour la fabrication de pieces composites par injection sur renforts*. M.Sc.A., Ecole Polytechnique, Montreal (Canada), Canada.
- Franklin, G. F., J. D. Powell, et al. (2005). *Feedback control of dynamic systems*. Upper Saddle River, NJ :, Pearson Prentice Hall.
- García, J., L. Gascon, et al. (2010). An efficient solver of the saturation equation in liquid composite molding processes. *Int. J. Mater. Form.*, 3(Supp. 2): 1295-1302.
- Garnier, C., M. L. Pastor, et al. (2011). The detection of aeronautical defects in situ on composite structures using Non Destructive Testing. *Composite Structures*, 93(5): 1328-1336.
- Gay, D. (1991). *Matériaux composites*. Paris :, Hermès.
- Gebart, B. R. (1992). Permeability of unidirectional reinforcements for RTM. *J. Compos. Mater.*, 26(8): 1100-1133.
- Genidy, M. S., M. S. Madhukar, et al. (1997). *Feedback system to obtain an optimum cure cycle for thermoset matrix composites*. Proceedings of the 1997 29th International SAMPE Technical Conference, Oct 28-Nov 1 1997, SAMPE, Covina, CA, USA.
- Ghiorse, S. R. (1993). Effect of void content on the mechanical-properties of carbon epoxy laminates. *SAMPE Quarterly*, 24(2): 54-59.

- Gonzalez-Romero, V. M. and C. W. Macosko (1990). Process parameters estimation for structural reaction injection molding and resin transfer molding. *Polym. Eng. Sci.*, 30(3): 142-146.
- Goodman, S. H. (1986). *Handbook of thermoset plastics*. Park Ridge, N.J., U.S.A., Noyes Publications.
- Greszczuk, L. B. (1967). *Effect of voids on strength properties of filamentary composites*, New York, NY, United States, Society of the Plastics Industry (SPI).
- Gutowski, T. G. P. (1997). *Advanced composites manufacturing*. New York, Wiley.
- Haider, M., L. Lessard, et al. (2005). *Application of experimental design techniques for surface roughness improvement in RTM processing*. 50th International SAMPE Symposium and Exhibition, May 1-5 2005, Soc. for the Advancement of Material and Process Engineering, Covina, CA 91724-3748, United States.
- Halley, P. J. and M. E. Mackay (1996). Chermorheology of thermosets - an overview. *Polym. Eng. Sci.*, 36(5): 593-609.
- Hashin, Z. (1983). Analysis of composite materials - A survey. *Journal of Applied Mechanics, Transactions ASME*, 50(3): 481-505.
- Hashin, Z. and S. Shtrikman (1962). On some variational principles in anisotropic and nonhomogeneous elasticity. *Journal of Mechanics and Physics of Solids*, 10: 335-342.
- Hayajneh, M. T. (2001). Sandwich structure delamination of resin transfer molding. *Materials and Manufacturing Processes*, 16(1): 27-45.
- Hegg, M. C., A. Ogale, et al. (2005). Remote monitoring of resin transfer molding processes by distributed dielectric sensors. *J. Compos. Mater.*, 39(17): 1519-1539.
- Ho, G. T. S., H. C. W. Lau, et al. (2006). An intelligent production workflow mining system for continual quality enhancement. 28(7 - 8): 792-809.
- Hoa, N. T. (1981). New method allowing the measurement of rapid variations of the water content in sandy porous media. *Water Resour. Res.*, 17(1): 41-48.
- Hoes, K., D. Dinescu, et al. (2002). New set-up for measurement of permeability properties of fibrous reinforcements for RTM. *Composites - Part A: Applied Science and Manufacturing*, 33(7): 959-969.

- Horie, K., I. Mita, et al. (1968). Calorimetric investigation of polymerization reactions -- 1. *Journal of Polymer Science -- Polymer Chemistry Part A-1*, 6(9): 2663-2676.
- Hsiao, K.-T. and S. G. Advani (2004). Flow sensing and control strategies to address race-tracking disturbances in resin transfer molding. Part I: Design and algorithm development. *Composites Part A*, 35(10): 1149-1159.
- Investissement Québec (2011). Aérospatiale - Le Québec : Un milieu d'affaires dynamique et profitable. Québec, Investissement Québec: 42.
- Jeong, H. (1997). Effects of voids on the mechanical strength and ultrasonic attenuation of laminated composites. *J. Compos. Mater.*, 31(3): 276-292.
- Johnson, M. S., C. D. Rudd, et al. (1995). Cycle time reductions in resin transfer moulding using microwave preheating. *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part B: Journal of Engineering Manufacture*, 209(B6): 443-453.
- Johnson, M. S., C. D. Rudd, et al. (1998). Microwave assisted resin transfer moulding. *Composites - Part A: Applied Science and Manufacturing*, 29(1-2): 71-86.
- Johnson, R. J. and R. Pitchumani (2003). Enhancement of flow in VARTM using localized induction heating. *Compos. Sci. Tech.*, 63(15): 2201-2215.
- Johnson, R. J. and R. Pitchumani (2006). Simulation of active flow control based on localized preform heating in a VARTM process. *Composites Part A*, 37(10): 1815-1830.
- Johnson, R. W. (1998). *The handbook of fluid dynamics*. Boca Raton, CRC Press.
- Judd, N. C. W. and W. W. Wright (1978). Voids and their effects on the mechanical properties of composites - An appraisal. *SAMPE J.*, 14(1): 10-14.
- Junyan, L., T. Qingju, et al. (2011). Research on the quantitative analysis of subsurface defects for non-destructive testing by lock-in thermography. 45(Compendex): 104-110.
- Justice, I., B. Derby, et al. (2003). Characterisation of void and reinforcement distributions in a metal matrix composite by X-ray edge-contrast microtomography. *Scripta Materialia*, 48(9): 1259-1264.
- Kalra, L., M. J. Perry, et al. (1992). Automation of autoclave cure of graphite-epoxy composites. *J. Compos. Mater.*, 26(17): 2567-2584.
- Kang, M. K., W. I. Lee, et al. (2001). Analysis of vacuum bag resin transfer molding process. *Composites Part A*, 32(11): 1553-1560.

- Karbhari, V. M. and R. Lee (2002). On the Effect of E-Glass Fiber on the Cure Behavior of Vinylester Composites. *J. Reinf. Plast. Compos.*, 21(10): 901-918.
- Karkanias, P. I. and I. K. Partridge (2000). Cure modeling and monitoring of epoxy/amine resin systems. II. Network formation and chemoviscosity modeling. *J. Appl. Polym. Sci.*, 77(10): 2178-2188.
- Kaviany, M. (1995). *Principles of heat transfer in porous media*. New York :, Springer.
- Kendall, K. N. and C. D. Rudd (1994). Flow and cure phenomena in liquid composite molding. *Polym. Comp.*, 15(5): 334-348.
- Khoun, L., R. de Oliveira, et al. (2011). Investigation of process-induced strains development by fibre Bragg grating sensors in resin transfer moulded composites. *Composites Part A*, 42(3): 274-282.
- Kim, S. K., D.-H. Kim, et al. (2003). Optimal control of accelerator concentration for resin transfer molding process. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 46(20): 3747-3754.
- Kiuna, N., C. J. Lawrence, et al. (2002). A model for resin viscosity during cure in the resin transfer moulding process. *Composites Part A*, 33(11): 1497-1503.
- Kohn, E. J., A. G. Sands, et al. (1968). Quantitative measurement of void content in glass-filament-wound composites and correlation of interlaminar shear strength with void content. *Industrial and Engineering Chemistry, Product Research and Development*, 7(3): 179-183.
- Kranbuehl, D., D. Eichinger, et al. (1989). *Maintaining quality through in-situ monitoring of the cure process using a frequency dependent electromagnetic sensor*. ANTEC 89 - 47th Annual Technical Conference of SPE, May 1-4 1989, Publ by Soc of Plastics Engineers, Brookfield Center, CT, USA.
- Kranbuehl, D., D. Eichinger, et al. (1990). *On-line in-situ control of the resin transfer molding process*. 35th International SAMPE Symposium and Exhibition - Advanced Materials: the Challenge for the Next Decade. Part 1, Apr 2-5 1990, Publ by SAMPE, Covina, CA, USA.
- Kranbuehl, D., M. Hoff, et al. (1988). *In-situ monitoring of chemical and rheological changes during cure in resin transfer molding*. Proceedings of the ACS Division of Polymeric Materials: Science and Engineering - Fall Meeting, Sep 26-30 1988, Publ by ACS, Washington, DC, USA.

- Kranbuehl, D., P. Kingsley, et al. (1992). *Sensor-model prediction, monitoring and in-situ control of liquid RTM advanced fiber architecture composite processing*. 37th International SAMPE Symposium and Exhibition, Mar 9-12 1992, Publ by SAMPE, Covina, CA, USA.
- Kranbuehl, D. E. (1991). In-situ on-line measurement of composite cure with frequency dependent electromagnetic sensors. *Plastics, Rubber and Composites Processing and Applications*, 16(4): 213-219.
- Kranbuehl, D. E. (1994). Monitoring and controlling composite cure with frequency dependent electromagnetic sensors, Publ by ASME, New York, NY, USA. 2: 434-449.
- Kranbuehl, D. E., P. Haverty, et al. (1989). Monitoring the cure processing properties of unsaturated polyesters in situ during fabrication. *Polym. Eng. Sci.*, 29(15): 988-992.
- Kranbuehl, D. E., P. Kingsley, et al. (1994). In situ sensor monitoring and intelligent control of the resin transfer molding process. *Polym. Comp.*, 15(4): 299-305.
- Kuang, K. and W. Cantwell (2003). Use of conventional optical fibers and fiber Bragg gratings for damage detection in advanced composite structures: A review. *Applied Mechanics Reviews*, 56(5): 493-513.
- Kuang, K. S. C., S. T. Quek, et al. (2009). Plastic Optical Fibre Sensors for Structural Health Monitoring: A Review of Recent Progress. *Journal of Sensors*, 2009.
- Labat, L., M. Grisel, et al. (2001). Original use of electrical conductivity for void detection due to injection conditions of composite materials. *C. R. Mec.*, 329(7): 529-534.
- Lambert, J., A. R. Chambers, et al. (2012). 3D damage characterisation and the role of voids in the fatigue of wind turbine blade materials. *Compos. Sci. Tech.*, 72(2): 337-343.
- Landry, M.-J. (2005). *Caracterisation morphologique et rheologique du fini de surface de pieces fabriquees par RTM*. Ecole Polytechnique, Montreal (Canada),
- Lawrence, J. M. and S. G. Advani (2003). Use of Sensors and Actuators To Address Flow Disturbances During the Resin Transfer Molding Process. *Polym. Comp.*, 24(2): 237-248.
- Lawrence, J. M., V. Neacsu, et al. (2007). *Modeling the impact of capillary pressure and air entrapment on fiber tow saturation resin infusion in LCM*. SAMPE '07, Baltimore, Soc. for the Advancement of Material and Process Engineering, Covina, CA 91724-3748, United States.

- Leclerc, J. (2008). *Amélioration du procédé RTM par l'optimisation des paramètres d'injection*. Master, École Polytechnique de Montréal, Montréal, Canada.
- Leclerc, J. S. and E. Ruiz (2008). Porosity reduction using optimized flow velocity in Resin Transfer Molding. *Composites Part A*, 39(12): 1859-1868.
- Ledru, Y. (2009). *Étude de la porosité dans les matériaux composites stratifiés aéronautiques*. Université Toulouse, Toulouse -- France.
- Lee, B. L. and F. J. McGarry (1976). Study of Processing and Properties of Graphite Fiber/High Temperature Resin Composites. Cambridge, MA, USA, Massachusetts Institute of Technology: 161 p.
- Lee, D. H., S. K. Kim, et al. (2006). Smart cure of thick composite filament wound structures to minimize the development of residual stresses. *Internal Stresses in Polymer Composites: Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, 37(4): 530-537.
- Lee, G. W., N. J. Lee, et al. (2002). Effects of surface modification on the resin-transfer moulding (RTM) of glass-fibre/unsaturated-polyester composites. *Compos. Sci. Tech.*, 62(1): 9-16.
- Lee, J., S. Y. Lee, et al. (1999). Control of fed-batch fermentations. *Biotechnology Advances*, 17(1): 29-48.
- Leisen, J. and H. W. Beckham (2001). Quantitative magnetic resonance imaging of fluid distribution and movement in textiles. *Text Res J*, 71(12): 1033.
- Lenoe, E. M. (1970). The Effect of Voids on the Mechanical Properties of High Modulus Graphite Fiber/Epoxy - Reinforced Composites. Lowell, MA, USA, Avco corporation: 191 p.
- Levy, R. L. and S. D. Schwab (1989). *Monitoring the composite curing process with a fluorescence-based analysis*. ANTEC 89 - 47th Annual Technical Conference of SPE, May 1-4 1989, Publ by Soc of Plastics Engineers, Brookfield Center, CT, USA.
- Lin, M., H. T. Hahn, et al. (1998). Finite element simulation of resin transfer molding based on partial nodal saturation and implicit time integration. *Composites Part A*, 29(5-6): 541-550.
- Liu, B., S. Bickerton, et al. (1996). Modelling and simulation of resin transfer moulding (RTM)--gate control, venting and dry spot prediction. *Composites Part A*, 27(2): 135-141.

- Loulou, T. and E. P. Scott (2006). An inverse heat conduction problem with heat flux measurements. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, 67(11): 1587-1616.
- Lundström, T. S. (1993). Void formation and transport in RTM. *Technical Report*. Pitea, Swedish Institute of Composites, *Technical Report*.
- Lundström, T. S. (1997). Measurement of void collapse during resin transfer moulding. *Composites Part A*, 28(3): 201-214.
- Lundström, T. S. and R. Gebart (1994). Influence from process parameters on void formation in resin transfer molding. *Polym. Comp.*, 15(1): 25-33.
- Mahale, A. D., R. K. Prudhomme, et al. (1992). Quantitative Measurement of Voids Formed During Liquid Impregnation of Nonwoven Multifilament Glass Networks Using an Optical Visualization Technique. *Polym. Eng. Sci.*, 32(5): 319-326.
- Mallick, P. K. (1993). *Fiber-reinforced composites : materials, manufacturing, and design*. New York :, Marcel Dekker.
- Mandell, J. F. and W. J. Tsai (1990). Effects of Porosity on Delamination of Resin-Matrix Composites. Cambridge, MA, USA, Massachusetts Institute of Technology: 162 p.
- Martins, F. G. and M. A. N. Coelho (2000). Application of feedforward artificial neural networks to improve process control of PID-based control algorithms. *Computers & Chemical Engineering*, 24(2-7): 853-858.
- Mathis, N., J. Pytel, et al. (1997). *Resin cure monitoring using thermal conductivity measurements*. Proceedings of the 1997 55th Annual Technical Conference, ANTEC. Part 1 (of 3), Apr 27-May 2 1997, Soc of Plastics Engineers, Brookfield, CT, USA.
- Mathur, R., S. G. Advani, et al. (1997). *Evanescent wave fluorescence fiber optic flow sensor for resin transfer molding*. Proceedings of the 1997 29th International SAMPE Technical Conference, October 28, 1997 - November 1, 1997, Orlando, FL, USA, SAMPE.
- Mawardi, A. and R. Pitchumani (2003). Optimal temperature and current cycles for curing of composites using embedded resistive heating elements. *Journal of Heat Transfer*, 125(1): 126-136.
- Mazumdar, S. K. (2002). *Composites manufacturing : materials, product, and process engineering*. Boca Raton, Fla. ; London, CRC Press.

- Medhat, M. E. (2012). Application of gamma-ray transmission method for study the properties of cultivated soil. *Annals of Nuclear Energy*, 40(1): 53-59.
- Michaud, D. J., A. N. Beris, et al. (2002). Thick-Sectioned RTM Composite Manufacturing. Part II. Robust Cure Cycle Optimization and Control. *Journal of Composite Materials - Lancaster*, 36(10): 1201.
- Mijovic, J. and H. T. Wang (1988). Modeling of processing of composites. Part II - Temperature distribution during cure. *SAMPE J.*, 24(2): 42-55.
- Montgomery, D. C. (2001). *Introduction to statistical quality control*. New York, Toronto, Wiley.
- Nalla, A. R., M. Fuqua, et al. (2007). A multi-segment injection line and real-time adaptive, model-based controller for vacuum assisted resin transfer molding. *Composites Part A*, 38(3): 1058-1069.
- Nawab, Y., N. Boyard, et al. (2011). *A device to measure the shrinkage and heat transfers during the curing cycle of thermoset composites*. 8th International Bhurban Conference on Applied Science and Technology, IBCAST 2011, October 10, 2011 - October 13, 2011, Islamabad, Pakistan, Trans Tech Publications.
- Ngo, N. D. and K. K. Tamma (2001). Microscale permeability predictions of porous fibrous media. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 44(16): 3135-3145.
- Nielsen, D. and R. Pitchumani (2001). Intelligent model-based control of preform permeation in liquid composite molding processes, with online optimization. *Composites - Part A: Applied Science and Manufacturing*, 32(12): 1789-1803.
- Niemet, M. R. and J. S. Selker (2001). A new method for quantification of liquid saturation in 2D translucent porous media systems using light transmission. *Adv. Water Resour.*, 24(6): 651-666.
- Nodal Consultants (2002). *L'industrie française des matériaux composites: Des enjeux prioritaires pour un développement durable*. Paris, DiGITIP / SIM: 129.
- Nordlund, M. and V. Michaud (2012). Dynamic saturation curve measurement for resin flow in glass fibre reinforcement. *Composites Part A*, 43(3): 333-343.
- Nowak, T. and J.-H. Chun (1993). *Optical measurement of preform impregnation in resin transfer molding*, San Francisco, CA, USA, Publ by Materials Research Society.

- Olster, E. F. (1972). Effect of Voids on Graphite Fiber Reinforced Composites. *Laminates and Composite Materials*: 166 p.
- Osswald, T. A., L.-S. Turng, et al. (2008). *Injection molding handbook*. Cincinnati, Hanser Gardner Publications.
- Palardy, G., P. Hubert, et al. (2008). Optimization of RTM processing parameters for Class A surface finish. *Composites Part B: Engineering*, 39(7-8): 1280-1286.
- Pantelalis, N. G. and G. Maistros (2003). *Online cure parameter identification using neural networks and dielectric sensing*. Advancing Materials in the Global Economy - Applications, Emerging Markets and Evolving Technologies, May 11-15 2003, Soc. for the Advancement of Material and Process Engineering.
- Parnas, R. S. (2000). *Liquid composite molding*. Cincinnati, Hanser Gardner Publications.
- Parnas, R. S., J. G. Howard, et al. (1995). Permeability characterization. Part 1: A proposed standard reference fabric for permeability. *Polym. Comp.*, 16(6): 429-445.
- Parnas, R. S. and F. R. Phelan Jr (1991). *Effects of heterogeneities in resin transfer molding preforms on mold filling*, San Diego, CA, USA, Publ by SAMPE.
- Parthasarathy, S., S. C. Mantell, et al. (2004). Estimation, control and optimization of curing in thick-sectioned composite parts. *Journal of Dynamic Systems, Measurement and Control, Transactions of the ASME*, 126(4): 824-833.
- Patel, N. (1994). *Micro-scale flow behavior, fiber wetting and void formation in liquid composite molding*. The Ohio State University, Columbus, USA.
- Peaceman, D. W. (1977). *Fundamentals of numerical reservoir simulation*. Amsterdam ; New York, Elsevier Scientific Pub. Co. : distributors for the U.S. and Canada, Elsevier North-Holland.
- Penn, B. G., F. E. Ledbetter, III, et al. (1986). Measurement of the thermal conductivity of composites using heat flow sensors. *Polym. Comp.*, 7(6): 426-430.
- Perry, M. J., L. J. Lee, et al. (1992). On-line cure monitoring of epoxy/graphite composites using a scaling analysis and a dual heat flux sensor. *J. Compos. Mater.*, 26(2): 274-292.
- Perwuelz, A., M. Casetta, et al. (2001). Liquid organisation during capillary rise in yarns--influence of yarn torsion. *Polymer Testing*, 20(5): 553-561.

- Pichaud, S., X. Duteurtre, et al. (1999). Chemorheological and dielectric study of epoxy-amine for processing control. *Polymer International*, 48(12): 1205-1218.
- Pillai, K. M. (2002). Governing equations for unsaturated flow through woven fiber mats. Part 1. Isothermal flows. *Composites - Part A: Applied Science and Manufacturing*, 33(7): 1007-1019.
- Pillai, K. M. and S. G. Advani (1996). *Modeling of void migration in resin transfer molding process*. ASME winter meet -1996, Atlanta, GA, USA, ASME.
- Pillai, V., A. N. Beris, et al. (1997). Intelligent curing of thick composites using a knowledge-based system. *J. Compos. Mater.*, 31(1): 22-51.
- Pineda, U., N. Montes, et al. (2010). On-line measurement of the resin infusion flow variables using artificial vision technologies. *Int. J. Mater. Form.*, 3(Compendex): 711-714.
- Rebenfeld, L. and B. Miller (1995). Using liquid flow to quantify the pore structure of fibrous materials. *Journal of the Textile Institute*, 86(2): 241-251.
- Richards, L. A. (1931). Capillary conduction of liquids through porous mediums. *Physics (American Institute of Physics; American Physical Society; Society of Rheology)*, 1(5): 318-333.
- Richter, D., H. Fritze, et al. Integrated high temperature gas sensor system based on bulk acoustic wave resonators. *Sensors and Actuators B: Chemical, In Press, Corrected Proof*.
- Rouison, D., M. Varejka, et al. (2002). Thermal sensor to monitor mechanical properties in polymer/fiber composite molding. *Canadian Journal of Chemical Engineering*, 80(5): 943-947.
- Rudd, C. D. (1997). *Liquid moulding technologies resin transfer moulding, structural reaction injection moulding and related processing techniques*. Cambridge, England, Warrendale, PA, Woodhead Publishing Limited. Society of Automotive Engineers.
- Rudd, C. D., K. F. Hutcheon, et al. (1991). Electrochemical effects during thermoset moulding. 26(5): 1259-1265.
- Ruiz, E. (2004). *De la caracterisation des materiaux et simulation du procede a l'optimisation de la fabrication des composites par injection sur renfort*. Ecole Polytechnique, Montreal (Canada),

- Ruiz, E., V. Achim, et al. (2006). Optimization of injection flow rate to minimize micro/macro-voids formation in resin transfer molded composites. *Compos. Sci. Tech.*, 66(3-4): 475-486.
- Ruiz, E. and C. Billotte (2009). Predicting the cure of thermosetting polymers: The isoconversion map. *Polym. Comp.*, 30(10): 1450-1457.
- Ruiz, E. and F. Trochu (2005). Numerical Analysis of Cure Temperature and Internal Stresses in Thin and Thick Rtm Parts. *Composites Part a-Applied Science and Manufacturing*, 36(6): 806-826.
- Ruiz, E. and F. Trochu (2006). Multi-criteria thermal optimization in liquid composite molding to reduce processing stresses and cycle time: Selected Contributions from the 7th International Conference on Flow Processes in Composite Materials held at University of Delaware, USA. *Composites Part A*, 37(6): 913-924.
- Ryali, V. and K. M. Moudgalya (1998). Robust temperature control of a semibatch polymerization reactor: frequency domain specifications. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 133(1-2): 63-68.
- Saidpour, H. and H. Tehrani (2001). Determination of void content in filament wound composites. *Second International Convention for Filament Winding of Composite Materials*. Brussels, Belgium, *Proceeding of the Second International Convention for Filament Winding of Composite Materials*.
- Saraswat, M. K., D. Heider, et al. (2007). *A qualitative study of the void formation using ultrasounds during the vartm process*, Baltimore, MD, United states, Soc. for the Advancement of Material and Process Engineering.
- Saunders, R. A., C. Lekakou, et al. (1999). Compression in the processing of polymer composites 1. A mechanical and microstructural study for different glass fabrics and resins. *Compos. Sci. Tech.*, 59(7): 983-993.
- Sbirrazzuoli, N. and S. Vyazovkin (2002). Learning about epoxy cure mechanisms from isoconversional analysis of DSC data. *Thermochimica Acta*, 388(1-2): 289-298.
- Scheidegger, A. E. (1974). *The physics of flow through porous media*. Toronto ; Buffalo [N.Y.], University of Toronto Press.
- Schultz, A. W. (1969). The Effect of Voids on the Mechanical Properties of High Modulus Graphite Fiber/Epoxy-Reinforced Composites. Lowell, MA, USA, Avco corporation: 112 p.

- Schwab, S. D. and R. L. Levy (1988). *Advances in the development of the Fluorescence Optrode Cure Sensor (FOCS)*. Proceedings of the ACS Division of Polymeric Materials: Science and Engineering - Fall Meeting, Sep 26-30 1988, Publ by ACS, Washington, DC, USA.
- Schwab, S. D., R. L. Levy, et al. (1991). *Monitoring conventional and microwave curing of polymers and composites with the fluorescence optrode cure sensor (FOCS)*. 49th Annual Technical Conference -ANTEC '91, May 5-9 1991, Publ by Soc of Plastics Engineers, Brookfield, CT, USA.
- Sénécot, J.-M. (2002). *Étude de l'imprégnation capillaire de tissus de verre*. Doctorat Thesis, Université de Haute Alsace, France.
- Setiawan, A., H. Nomura, et al. Microtomography of Imbibition Phenomena and Trapping Mechanism. *Transport in Porous Media*: 1-15.
- Shenoi, R. A., J. F. Wellicome, et al. (1993). *Composite materials in maritime structures*. Cambridge [England] ; New York, NY, USA, Cambridge University Press.
- Shepard, D. D. (1991). In-mold cure monitoring. *Process Control and Quality*, 1(3): 187-194.
- Shigue, C. Y., R. G. S. Dos Santos, et al. (2004). Monitoring the epoxy curing by the dielectric thermal analysis method. *IEEE Transactions on Applied Superconductivity*, 14(2): 1173-1176.
- Shih, C.-H. (2000). *Liquid composite molding of tackified fiber reinforcement: Preforming and void removal*. The Ohio State University, United States -- Ohio.
- Shojaei, A., S. R. Ghaffarian, et al. (2003). Modeling and Simulation Approaches in the Resin Transfer Molding Process: A Review. *Polym. Comp.*, 24(4): 525-544.
- Smith, J. (2002). Temperature control basics. *Plant Engineering (Barrington, Illinois)*, 56(9): 63-67.
- Somashekar, A. A., S. Bickerton, et al. (2011). Compression deformation of a biaxial stitched glass fibre reinforcement: Visualisation and image analysis using X-ray micro-CT. *Composites Part A*, 42(2): 140-150.
- Soucy, K. A. and B. R. Holt (1990). *Modeling, estimation and control of polymer composite processing*. Proceedings of the 1990 American Control Conference (IEEE Cat. No.90CH2896-9), 23-25 May 1990, American Autom. Control Council.
- Sozer, E. M., S. Bickerton, et al. (2000). On-line strategic control of liquid composite mould filling process. *Composites Part A*, 31(12): 1383-1394.

- Sozer, E. M., S. Bickerton, et al. (2000). On-line strategic control of liquid composite mould filling process. *Composites - Part A: Applied Science and Manufacturing*, 31(12): 1383-1394.
- Spoerre, J., C. Zhang, et al. (1998). Integrated product and process design for resin transfer molded parts. *J. Compos. Mater.*, 32(13): 1244-1272.
- Stringer, L. G. (1987). Correlation between compression strength and void content in hand layed up/ vacuum based CFRP composites. Christchurch, UK, Royal Armament Research and Development Establishment (RARDE), *RARDE Internal Report*: 112 p.
- Tecsult (2008). Étude économique de l'industrie des composites au Québec. Montréal, Ministère du Développement Économique, de l'Innovation et de l'Exportation du Québec (MEDIE): 10.
- Tidwell, V. C. and R. J. Glass (1994). X-ray and visible light transmission for laboratory measurement of two-dimensional saturation fields in thin-slab systems. *Water Resour. Res.*, 30(11): 2873-2882.
- Todoroki, A. and N. Hana (2009). Optical transparency change method for cure monitoring of GFRPs. *Polymers and Polymer Composites*, 17(2): 63-71.
- Tran, T., S. Comas-Cardona, et al. (2010). Unified microporomechanical approach for mechanical behavior and permeability of misaligned unidirectional fiber reinforcement. *Compos. Sci. Tech.*, 70(9): 1410-1418.
- Trochu, F., C. Demaria, et al. (2009). RTM Process Simulation and Optimization of Composite Fan Blades Reinforced by 3D Woven Fabrics. *The 1st Joint Canadian - American International Conference*. A. S. f. Composites. Newark, DE, USA, American Society for Composites, *Proceedings of the American Society for Composites: Twenty-Fourth Technical Conference*: 12.
- Trochu, F., C. Hoareau, et al. (1993). Experimental analysis and computer simulation of resin transfer molding through multilayer fiber reinforcements. *Proceedings of the 1993 9th International Conference on Composite Materials, ICCM/9. Part 3 (of 6), Jul 12-16 1993*, 3: 481.
- Trochu, F., E. Ruiz, et al. (2004). New Approaches to Accelerate Calculations and Improve Accuracy of Numerical Simulations in Liquid Composite Molding. *7th International Conference on Flow Processes in Composite Materials*. Newark, Delaware, USA, *Proceeding of the 7th International Conference on Flow Processes in Composite Materials*.

- Tucker, C. L., III (1996). Heat transfer and reaction issues in liquid composite molding. *Proceedings of the 1993 Workshop on Manufacturing Polymer Composites by Liquid Molding, Sep 20-22 1993: Polymer Composites*, 17(1): 60-72.
- United States Department of Health and Human Services DHHS. (2011, December 27, 2011). "12th Report on Carcinogens." Retrieved 2011, 2011, from <http://ntp.niehs.nih.gov/go/roc12>.
- Varna, J., R. Joffe, et al. (1995). Effect of voids on failure mechanisms in RTM laminates. *Compos. Sci. Tech.*, 53(Compendex): 241-249.
- Verbundwerkstofflabor Bremen (1999). Material Intensity of Advanced Composite Materials. Bremen, Wuppertal Institute for Climate, Environment and Energy: 38.
- Wang, L., S. Pandita, et al. (2009). Characterisation of the cross-linking process in an E-glass fibre/epoxy composite using evanescent wave spectroscopy. *Compos. Sci. Tech.*, 69(13): 2069-2074.
- White, S. R. and H. T. Hahn (1992). Process modeling of composite materials: residual stress development during cure. I. Model formulation. *J. Compos. Mater.*, 26(16): 2402-2422.
- Woerdeman, D. L. and R. S. Parnas (1995). Cure monitoring in RTM using fluorescence. *Plastics Engineering*, 51(10): 25-27.
- Xie, S. (2002). *Characterization of inter yarn pore size and its distribution in plain woven fabrics*. M.S., North Carolina State University, United States -- North Carolina.
- Yamaleev, N. and R. Mohan (2006). Effect of the phase transition on intra-tow flow behavior and void formation in liquid composite molding. *Int. J. Multiphase Flow*, 32(10-11): 1219-1233.
- Zambare, N., M. Soroush, et al. (2001). *Robustness improvement in multi-rate state estimation*. 2001 American Control Conference, Jun 25-27 2001, Institute of Electrical and Electronics Engineers Inc.
- Zhang, P.-G. and D. Irvine-Halliday (1996). *Non destructive monitoring of the curing process of epoxy in situ by way of a fiber acoustic sensor*. Proceedings of the 1996 Canadian Conference on Electrical and Computer Engineering, CCECE'96. Part 2 (of 2), May 26-29 1996, IEEE, Piscataway, NJ, USA.
- Zhou, N., T. Hosokawa, et al. (2011). *Experimental study of capillary trapping on the pore scale for various sandstone cores*. GHGT-10, Amsterdam, Netherlands, Elsevier Ltd.

- Zhu, L. and R. Pitchumani (1999). Processing envelopes for supplemental internal resistive heating during thermosetting composites cure. *J. Reinf. Plast. Compos.*, 18(13): 1242-1253.
- Zhu, L. and R. Pitchumani (2000). Analysis of a process for curing composites by the use of embedded resistive heating elements. *Compos. Sci. Tech.*, 60(14): 2699-2712.

ANNEXE I – SURVOL SUR LES PROCÉDÉS DE MISES EN FORME DES COMPOSITES PAR INJECTION SUR RENFORTS

Le présent survol vise à introduire les concepts et les principes de base touchant la mise en forme des matériaux composites par les procédés d'injection sur renforts (LCM). De plus, certaines contributions originales de cette thèse par rapport aux autres publications portant sur des thématiques connexes sont également présentées. Ce survol est divisé entre deux parties principales. Tout d'abord, un bref survol des composantes des matériaux composites et des divers procédés de moulage des composites par injection sur renfort est proposé. Dans la présente thèse, ces procédés vont servir à fabriquer des pièces composites à matrice polymère thermodurcissable et à fibres longues. Le procédé de moulage des composites par transfert de résine, aussi appelé « Resin Transfer Molding » (RTM), est spécifiquement mis en relief dans ce survol car ce procédé sera utilisé pour réaliser la première partie expérimentale de cette thèse. Les diverses étapes du procédé RTM sont aussi détaillées dans cette section. Finalement, les phénomènes physiques et les paramètres qui gouvernent l'étape de remplissage RTM du renfort fibreux par un polymère liquide et réactif ainsi que l'étape de réticulation de ce même polymère sont introduits. À cet effet, les lois de conservation de la quantité de mouvement, de conservation de la masse et de conservation de l'énergie sont adaptés au cas spécifique des écoulements de polymères thermodurcissables dans les milieux poreux à porosité bimodale tels que les renforts fibreux.

I.1. Matériaux composites et procédés d'injection sur renfort

I.1.1. Matériaux composites à matrice polymère thermodurcissable

Définition

Un matériau composite est un arrangement de fibres naturelles ou synthétiques, aussi appelé renfort fibreux, liées entre elles par une matrice dont la résistance mécanique est plus faible que celle du renfort. La fonction principale des fibres est de supporter les sollicitations mécaniques tandis que la matrice joue un rôle de cohésion et de protection des fibres. De plus, cette matrice permet d'assurer l'intégrité géométrique et structurale du matériau, tout en transférant les charges

vers les fibres grâce à une interface/interphase adéquate. Les propriétés de cette interface sont, d'une manière générale, dictées par le choix de la solution d'encollage appliquée sur les fibres, plus précisément le type d'agent de pontage sélectionné pour effectuer la liaison entre le renfort fibreux et la matrice. Des additifs et de charges peuvent être aussi incorporés à la matrice afin d'abaisser son coût de revient et de lui conférer des fonctionnalités spécifiques telles qu'une coloration particulière, une bonne conductivité électrique et thermique, une protection ignifuge et contre le rayonnement UV et un bon fini de surface par l'intermédiaire d'une compensation de retrait volumique. Enfin, des matériaux centres et des inserts peuvent être ajoutés entre les peaux de stratifiés composites afin de constituer un matériau « sandwich ». Cette dernière structure permet d'augmenter l'isolation acoustique et thermique ainsi que la rigidité de la pièce conçue.

Les composites se distinguent par rapport aux matériaux conventionnels (comme les métaux, céramiques, polymères, etc.) par l'anisotropie de leurs propriétés mécaniques et une hétérogénéité de la microstructure du matériau (Gay 1991). En fait, cet assemblage d'au moins deux matériaux non miscibles produit un effet synergique : les propriétés finales résultantes pour le matériau composite sont supérieures à la somme des propriétés individuelles de chacun des composantes. Par conséquent, le matériau composite fabriqué possède des propriétés mécaniques spécifiques avantageuses (module divisé par la masse volumique) tout en conservant une grande flexibilité géométrique lors de leur mise en œuvre. Le développement des matériaux composites a d'abord touché les composites à matrice polymère (CMP) ou à matrice organique (CMO) car les fabricants cherchaient à améliorer la faible rigidité des matières plastiques (Baïlon and Dorlot 2000). Cette sous-classe des matériaux composites, représentant 99% de tous les composites fabriqués (Nodal-Consultants 2002), sera justement étudiée dans cette thèse, plus particulièrement les composites à matrice polymère thermodurcissable sans charge ni additif. Or, durant les dernières décennies, les principes de mise en forme des CMP ont été élargis aux composites à matrice métallique (CMM), afin d'augmenter également la rigidité des matrices, ainsi qu'aux composites à matrice céramique (CMC) ; dans ce cas, le but était d'améliorer la ténacité de la matrice céramique intrinsèquement fragile (Baïlon and Dorlot 2000). Il faut souligner que la plupart des conclusions des études réalisées dans cette thèse s'appliquent autant aux CMP de grande diffusion (GD), représentant 95% de tous les composites utilisés mondialement (Nodal-Consultants 2002), qu'à ceux à haute performance (HP).

Renfort fibreux

Les renforts fibreux sont disponibles commercialement sous forme de tresses, de tricots, de mats aléatoires, d'unidirectionnels et de tissus multidirectionnels (2D et 3D) tels que les toiles, les satins et les sergés (Pillai 2002). À cet effet, quelques exemples d'architecture de renforts fibreux tissés sont présentés à la Figure 1. Les mats aléatoires sont en général isotropes transverses alors que les tissus démontrent diverses formes d'anisotropie, typiquement l'orthotropie. À cet égard, la présence ou non d'ondulations (« non crimp fabric » - NCF) dans les renforts unidirectionnels ainsi que dans les tissus bidirectionnels et multidirectionnels est contrôlée par le procédé de couture ou de tissage choisi pour confectionner le renfort fibreux souhaité. Les mèches de fibres employées dans les NCF sont généralement droites (tortuosité quasi-unitaire) et elles sont maintenues en place à l'aide de simples coutures de fils polyester ou de fils d'une autre nature. Il en résulte ainsi un renfort à la microstructure simplifiée.



Figure 1 : Exemples d'architecture de renforts fibreux tissés (Feuvrier 2007).

Les diverses variantes architecturales de renforts fibreux peuvent être également combinées afin d'obtenir les performances « procédé » et mécaniques prévues par le cahier des charges. De plus, les renforts fibreux peuvent être empilés sous la forme d'un stratifié afin d'obtenir, pour une épaisseur donnée, un taux volumique de fibres V_f désiré. Il est important de mentionner que ce dernier paramètre constitue un élément-clé dans la caractérisation des renforts fibreux. En effet, ce paramètre influence directement plusieurs propriétés mécaniques du composite et hydrauliques

du renfort telles que les modules de rigidité (module d'Young) du composite, la porosité ϕ du renfort ainsi que sa perméabilité K tel qu'exposé à la section I.2.1.

La structure d'un pli de renfort fibreux est multi-échelle comme le démontre la Figure 2. La première échelle, à savoir l'échelle microscopique, correspond à celle des filaments des mèches qui peuvent avoir un diamètre variant de 1 à 100 microns, en fonction de la nature chimique de ces filaments. À une échelle intermédiaire se situant autour d'un millimètre, aussi appelée échelle mésoscopique, 1000 à 10 000 filaments sont regroupés ensemble, lors des procédés de filage et d'encollage, pour former une mèche du renfort. Enfin, à l'échelle macroscopique, les mèches s'entrecroisent ou sont cousues ensemble afin de former une maille élémentaire représentative (MER), aussi appelée cellule élémentaire représentative (CER), du renfort fibreux. Lorsque le motif de couture/tissage de cette MER est reproduit plusieurs fois côte à côte sur le même plan, un pli complet du renfort fibreux est ainsi construit.

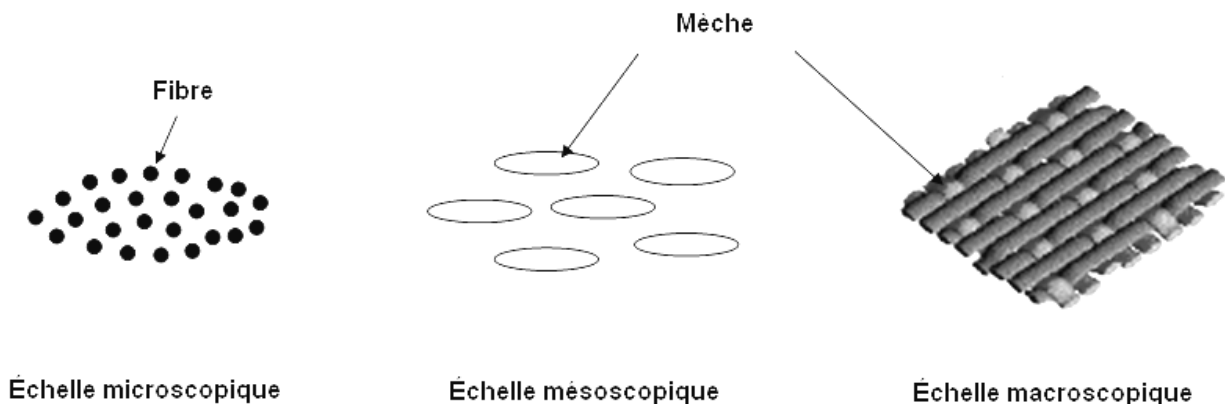


Figure 2 : Schémas des trois échelles d'un pli de renfort fibreux.

Il faut souligner que l'unité représentative de base du renfort fibreux est plus volumineuse si la variabilité spatiale intrinsèque du renfort est prise en compte dans cette unité, lors de la caractérisation de ses propriétés hydrauliques. En effet, la détermination du volume élémentaire représentatif (VER) du renfort fibreux, s'appuyant sur une caractérisation de la porosité ϕ pour des tailles croissantes d'échantillon du renfort par exemple, résulte en une unité de base qui est plus grande que la MER de ce même renfort tel qu'illustrer à la Figure 3. Il est important de noter

que les sources de cette variabilité spatiale des propriétés hydrauliques du renfort fibreux sont multiples et diversifiées: procédés de filage, d'encollage, de tissage, de couture, de drapage et de préformage. Ce VER constitue donc une unité de calcul de base pour l'étude des phénomènes d'imprégnation et pour l'évaluation de la saturation dans les renforts fibreux.

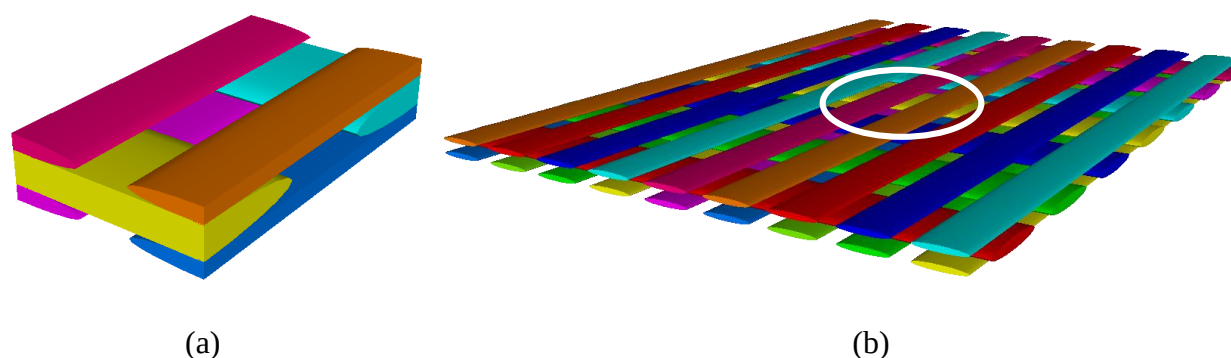


Figure 3 : Schémas d'une maille élémentaire représentative (a)

et d'un volume élémentaire représentatif (b) d'un renfort fibreux NCF bidirectionnel.

Les renforts fibreux généralement utilisés dans les CMP tirent leurs origines de matériaux de nature inorganique ou organique (Mallick 1993): l'alumine, l'aramide, le basalte, le bore, le carbure de silicium, le carbone, la céramique, les fibres naturelles d'origine végétale (chanvre, jute, lin, sisal), le polyéthylène de haute densité (HDPE) et les verres constitués de diverses concentrations d'oxydes (E-glass, A-glass et C-glass). Avec sa production mondiale de 2,5 millions de tonnes au début des années 2000 (Nodal Consultants 2002), les fibres de verre constituent le principal matériau utilisé pour les renforts de grande diffusion (GD) et, dans une moindre mesure, pour les renforts à haute performance (HP). De plus, le verre E-glass est de loin le plus utilisé de tous les types de verre commercialisés avec sa part de marché du verre d'environ 99% (Verbundwerkstofflabor Bremen 1999). Ses secteurs d'application sont extrêmement diversifiés : automobile, aéronautique, construction civile, construction industrielle, électrique, ferroviaire, production d'énergie éolienne, nautique, médical, sports et loisirs, etc. Puisque l'offre mondiale peut satisfaire amplement à la demande, le prix de vente de cette matière première produite industriellement à grand volume demeure faible et compétitif. De plus, son approvisionnement est stable et prévisible à court et moyen termes contrairement à la fibre de

carbone et aux autres fibres synthétiques telles que l'aramide et le HDPE. Finalement, la toxicité de ce type de matériau est extrêmement faible. Pour toutes les raisons énumérées précédemment, les travaux expérimentaux de cette thèse seront donc principalement focalisés sur des stratifiés de renfort NCF bidirectionnel de verre de type E-glass sans matériau centre ni insert. Néanmoins, les conclusions de ces études expérimentales sur les mécanismes d'imprégnation des renforts fibreux de grande diffusion pourront aussi être appliquées aux renforts fibreux à haute performance tels que les fibres de carbone et d'aramide car ces mécanismes physiques sont identiques dans les deux cas.

Matrice polymère thermodurcissable

Dans la grande famille des CMP, il existe trois sous-classes de matrice polymère : les thermoplastiques (TP), les élastomères et les thermodurcissables (TD). Pour réaliser une mise en forme par procédé LCM, ces polymères sont généralement disponibles sous forme de résines liquides ou pâteuses. Les résines TD sont principalement utilisées dans la fabrication des CMP de grande diffusion. En effet, les composites à matrice TD représentent 70% de la totalité des composites transformés en Europe (Nodal Consultants 2002). Ces polymères TD sont le produit de plusieurs molécules organiques, nommées monomères, liées entre elles lors d'une réaction chimique de polymérisation par addition ou par condensation (Baïlon and Dorlot 2000). Cette réaction de « durcissement » de la résine liquide, aussi appelée réticulation, est exothermique et elle est irréversible car cette dernière génère des sous-produits formant des réseaux réticulés tridimensionnels (Baïlon and Dorlot 2000). Cette stabilité chimique des TD, couplée à leurs bonnes propriétés mécaniques, leur assure une bonne durabilité mais, par la même occasion, rend leur recyclabilité plus complexe car ils sont insolubles et infusibles. Plusieurs polymères TD sont commercialement disponibles tels que les allyliques, les bismaléimides (polyimides réticulés), les urées formaldéhydes, les mélamines, les furanes, les silicones, les polyuréthanes, les phénoliques, les époxydes, les polyesters insaturés et les vinyl esters (Goodman 1986). Parmi ceux-ci, les phénoliques, les époxydes, les polyesters insaturés et les vinyl esters sont particulièrement employés pour la mise en œuvre des CMP par les procédés LCM. Les phénoliques, les polyesters insaturés et les vinyl esters servent à fabriquer des composites de GD alors que les époxydes

servent plutôt à mettre en forme des composites HP utilisés souvent dans les structures aéronautiques primaires et secondaires par exemple.

Les époxydes possèdent les meilleures propriétés mécaniques et thermiques parmi ces quatre dernières résines tout en démontrant un faible retrait volumique durant leur réticulation. Toutefois, le prix de vente de ces époxydes est significativement plus élevé que celui des trois autres résines de GD. Les époxydes les plus répandus sont le DGEBA et le TGDDM. Ces dernières sont abondamment employées en aérospatial. Une résine époxyde DGEBA, la *Dow® D.E.RTM. 383*, sera justement employée pour effectuer certaines caractérisations dans le cadre de cette thèse. De leur côté, les phénoliques sont peu coûteuses et possèdent une bonne tenue au fluage. Néanmoins, elles sont fragiles et exhibent une certaine vulnérabilité dans un environnement humide (Nodal-Consultants 2002). En outre, des volatiles et de la vapeur d'eau sont générés lors de leur polymérisation, ce qui peut causer des problèmes et des défauts additionnels durant la mise en forme. Par conséquent, ces résines phénoliques ne seront pas étudiées dans cette thèse. Les résines polyesters, à l'image des résines phénoliques, sont peu coûteuses mais, contrairement aux résines phénoliques, elles sont faciles à mettre en forme. De plus, elles démontrent une résistance intéressante à la corrosion et de bonnes propriétés mécaniques en traction. Par contre, elles sont relativement inflammables et elles peuvent être difficiles à stocker. Il faut souligner que ce sont les résines les plus employées pour les applications de GD (Nodal-Consultants 2002). Malgré cela, les résines polyesters ne seront pas étudiées dans cette thèse en raison de la variation significative de leurs propriétés rhéologiques dans le temps. Finalement, les résines vinyl esters, de par leur composition chimique, se situent à mi-chemin entre les résines époxydes et les résines polyesters quant à leurs propriétés mécaniques et leurs prix d'achat. De plus, les résines vinyl esters possèdent une meilleure résistance chimique que les polyesters insaturés et une résistance accrue aux rayons UV et au feu. Toutefois, ces résines vinyl esters génèrent beaucoup de chaleur au cours de leur réticulation. Par conséquent, ces résines sont mieux adaptés pour les composites stratifiés minces. Afin d'éviter la formation de défauts découlant d'une génération de chaleur trop importante durant la polymérisation de la résine vinyl ester, cette contrainte sur l'épaisseur des pièces, à savoir des laminés d'une épaisseur inférieure à 10 mm, sera considérée lors de la fabrication de plaques composites par procédé RTM (Ledru 2009). Pour fabriquer ces plaques composites par procédé

RTM et pour compléter les diverses tâches de caractérisation, la résine vinyl ester (époxyde) *Derakane Momentum 411-350TM* de *Ashland®* sera également utilisée dans le cadre de cette thèse.

I.1.2. Procédés de fabrication des composites à matrice polymère

Une large gamme de procédés de mise en forme des matériaux composites est mise à la disposition des industriels soucieux de fabriquer des pièces selon des critères de performance et des volumes de production préétablis. Tous ces procédés poursuivent les mêmes objectifs généraux, à savoir le contrôle de l'orientation des fibres du renfort, l'optimisation de la proportion de fibres et de matrice dans le composite en fonction de son application, l'assurance d'une bonne adhésion et d'une bonne liaison mécanique entre les fibres, les inserts, les matériaux centres et la matrice polymère et, finalement, l'obtention d'un état physico-chimique final acceptable du composite (Rudd 1997). Ce dernier objectif, dans le cadre de la mise en forme des CMP therm durcissables, est atteint lorsque le niveau de réticulation final de la résine et la qualité de l'imprégnation du renfort fibreux ont rempli des critères d'admissibilité énoncés dans le cahier des charges. Il est important de mentionner que, contrairement à la fabrication traditionnelle de structures métalliques, la mise en forme des structures en composites ne peut pas être découplée de la mise en œuvre du matériau composite lui-même car le matériau et la structure sont fabriqués simultanément. Par conséquent, les propriétés finales de la structure et du matériau composite la composant sont directement influencés par le choix du procédé de fabrication et par leurs conditions de mise en forme.

Cet aspect particulier des structures en matériaux composites peut constituer à la fois un avantage et un inconvénient par rapport aux structures métalliques classiques. En effet, la mise en forme de structures en matériaux composites permet de pousser plus loin l'optimisation des pièces fabriquées en réduisant le nombre total de composantes assemblées mécaniquement, en diminuant le nombre d'étapes de fabrication à compléter et en abaissant les coûts totaux de l'outillage. Ainsi, des gains notables en termes de masse totale et de coûts des structures peuvent être réalisés. Toutefois, il faut garder à l'esprit qu'il s'agit d'un nouveau paradigme de fabrication, ce qui nécessite un réapprentissage des stratégies de conception des pièces de la part

des ingénieurs souhaitant travailler avec ces matériaux composites. Les manufacturiers doivent conjointement comprendre et concevoir les structures et les matériaux les constituant. Dans certains secteurs industriels plus conservateurs tels que les domaines de l'aéronautique et de l'automobile, cela peut constituer une contrainte de taille car la certification des pièces composites, le contrôle de qualité et la réparation de leurs défauts de fabrication peuvent rapidement devenir très onéreux. Parfois, certaines pièces composites de grande taille doivent même être mises au rebus car celles-ci contiennent une quantité de défauts de fabrication surpassant le seuil d'admissibilité fixé par les ingénieurs. Cela peut contribuer à accroître les coûts et les risques rattachés à l'adoption de cette nouvelle approche de mise en forme, dans un contexte d'augmentation des prix des matières premières entrant dans la composition des matériaux composites. Il devient donc critique de choisir méticuleusement le procédé de fabrication approprié et de proposer des stratégies de contrôle de ces procédés de mise en forme qui soient robustes et optimisés, malgré la grande variabilité intrinsèque de certaines propriétés des constituants des matériaux composites. Ces précautions vont ainsi permettre de réduire les pertes de matériel découlant de la présence de défauts et de diminuer les coûts de fabrication de ces matériaux composites.

Généralement, les procédés de fabrication des matériaux composites sont catégorisés en fonction des types de matériaux mis en œuvre, à savoir les résines thermodurcissables ou thermoplastiques, les fibres courtes ou longues. À cet effet, la Figure 4 présente ce classement des divers procédés de fabrication des matériaux composites. Or, tel que mentionné dans la section précédente, cette thèse s'intéresse essentiellement aux matériaux composites à matrice thermodurcissable et à fibres longues. En analysant la Figure 4, cinq grandes classes de procédés de mise en forme des CMP thermodurcissables à fibres longues sont mis en relief: le moulage au contact, aussi appelé « *hand lay-up* », la pultrusion, l'enroulement filamentaire, le drapage de renforts pré-imprégnés en autoclave ou hors autoclave ainsi que les procédés de moulage des composites par injection sur renfort, aussi appelé « *Liquid Composite Molding* » (LCM).

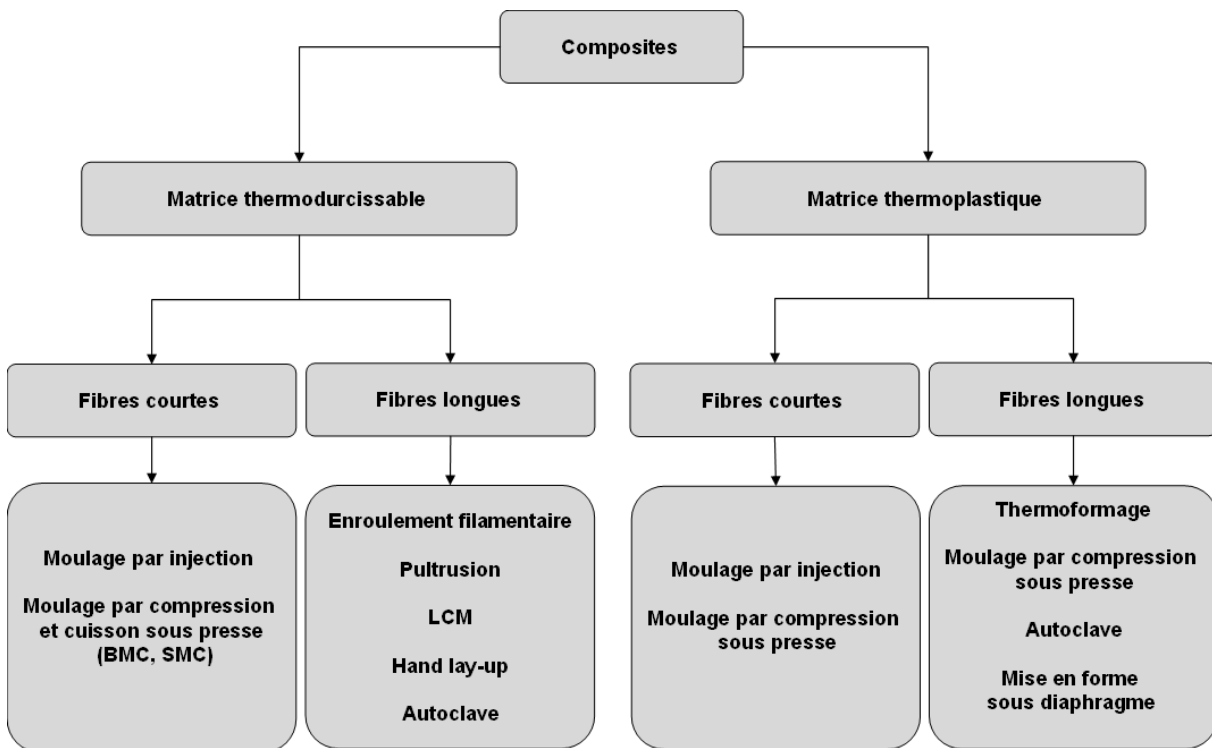


Figure 4 : Les catégories de procédés de fabrication des composites (Feuvrier 2007).

Tout d'abord, les procédés manuels tels que le moulage au contact sont employés pour fabriquer des pièces de grande dimension à une faible cadence de production et ils sont très répandus dans l'industrie. Toutefois, des normes du travail de plus en plus contraignantes quant au contrôle de la mise en œuvre manuelle et des émissions de styrène voient progressivement le jour (United States Department of Health and Human Services DHHS 2011). Ces nouvelles normes obligent ainsi les industriels à mettre de côté progressivement les procédés de mise en forme des composites en moule ouvert tels que le moulage au contact et la projection simultanée. De son côté, la pultrusion peut être considérée comme un procédé automatisé de préformage du renfort, d'imprégnation de la préforme avec une résine thermodurcissable réactive et de cuisson rapide de la préforme imprégnée dans une filière thermo-régulée. Ces trois étapes sont intégrées séquentiellement sur une ligne de fabrication continue. Ce procédé offre donc de grandes capacités de volume de production de pièces aux géométries extrudées et simples. Pour ce qui est du procédé d'enroulement filamentaire (« *Filament winding* »), une bande de filaments ou de mèches continues est imprégnée de résine liquide et enroulée autour d'un mandrin rotatif. Par la

suite, cette résine est réticulée sur le mandrin afin de fabriquer des pièces axisymétriques creuses. Ce procédé requiert une automatisation et une synchronisation importante des divers outils mobiles pour contrôler le positionnement et la tension des fibres. Or, les procédés de moulage au contact, de pultrusion et d'enroulement filamentaire ne permettent pas de contrôler avec précision les paramètres gouvernant l'imprégnation des renforts fibreux. Par conséquent, ces procédés ne seront pas considérés pour l'étude expérimentale de cette thèse.

Jusqu'à présent, les fabricants industriels du secteur de l'aéronautique ont massivement adopté les procédés de drapage de renforts pré-imprégnés en autoclave ou hors autoclave et ses multiples dérivés tels que le « *Automatic Fiber Placement* » (AFP), le « *Single Diaphragm Forming* » (SDF), le « *Double Diaphragm Forming* » (DDF), le « *Standard Qualification Resin Transfer Molding* » (SQRTM), *Quickstep*TM et le « *Hot/Cold Press Forming* ». Tous ces procédés utilisent la matière de base pour fabriquer des pièces composites, à savoir des renforts fibreux pré-imprégnés (« *prepregs* ») de résine thermodurcissable partiellement réticulée (« *B-stage* »). Cette approche permet aux industriels d'obtenir des pièces composites légères ayant un taux volumique de fibres élevé. Cet aspect est critique pour les industries où la masse totale des pièces fabriquées et installées sur les structures est une contrainte majeure, à savoir sur les hélicoptères, les avions et les navettes spatiales. Ces renforts pré-imprégnés sont placés manuellement ou à l'aide de robots industriels sur la surface d'un moule avec d'autres composantes telles que des couches de tissus de purge (« *bleeder* ») et de tissus d'aération (« *breather* »). Ces tissus de purge et d'aération sont utilisés respectivement pour absorber la résine liquide excédentaire et pour permettre une circulation uniforme de l'air au-dessus des stratifiés. Ensuite, un sac renfermant l'ensemble du montage est scellé hermétiquement et mis sous vide. Par la suite, cet assemblage scellé peut être placé à l'intérieur d'un four autoclave afin de lui faire subir un long cycle de chaleur et de pression. Ce cycle de chaleur et de pression assure une bonne imprégnation du renfort fibreux, une consolidation homogène du stratifié composite et une polymérisation complète de la résine. Les températures de cuisson et les pressions typiquement nécessaires pour la réticulation des CMP thermodurcissables utilisés en aéronautique sont respectivement de l'ordre de 175°C et 600 kPa (Gutowski 1997). Ces conditions imposent donc de fabriquer des autoclaves robustes et énergivores. Il faut ajouter à cela le prix élevé des matériaux de base, le stockage des renforts pré-imprégnés périssables dans des congélateurs appropriés et les

nombreuses manipulations critiques qui sont requises durant la mise en forme. Par conséquent, le coût de fabrication des pièces composites avec ces procédés demeure très élevé à l'heure actuelle. Il est important de souligner que, dans le cadre de ces procédés, l'écoulement de la résine se fait essentiellement de l'intérieur du renfort pré-imprégné vers l'extérieur de celui-ci car la résine est déjà présente dans les mèches du renfort, avant l'application du cycle de cuisson. Ces mécanismes d'imprégnation ont donc tendance à former des bulles inter-laminaires.

Pour palier aux faiblesses intrinsèques des procédés de drapage en autoclave telles que leur coût d'outillage élevé et leur long temps de cycle, une nouvelle catégorie de procédés de fabrication des composites a attiré l'attention des industriels et des chercheurs du monde académique dans les dernières décennies. Cette classe de procédés se rapporte à la fabrication de pièces composites par l'injection ou l'infusion d'une résine thermodurcissable sur un renfort fibreux sec, dans des moules fermées. Ces procédés de moulage des composites par injection sur renfort, aussi appelé « *Liquid Composite Molding* » (LCM), offrent une grande flexibilité sur la géométrie des pièces fabriquées et ils possèdent la capacité de produire de moyennes et grandes séries. Les procédés LCM emploient généralement des résines polymères ayant une faible viscosité. Ainsi, de faibles pressions d'injection sont suffisantes pour compléter le remplissage des pièces. De plus, les renforts fibreux secs, employés dans ces procédés LCM, sont souvent moins onéreux que les renforts pré-imprégnés et ils ne requièrent pas de stockage particulier dans des chambres froides, afin de ralentir leur vieillissement. À cet effet, le procédé « *Resin Film Infusion* » (RFI) constitue un compromis intéressant entre les procédés LCM et les procédés de mise en forme des composites en autoclave. Ce compromis découle du fait que le procédé RFI utilise un film de résine partiellement réticulée qui est disposé justement sur un renfort fibreux sec, permettant ainsi l'imprégnation de ce dernier principalement dans le sens de l'épaisseur.

Les procédés LCM utilisent des moules aux cavités qui sont soit rigides, semi-rigides ou souples en fonction des besoins techniques, du fini de surface de la pièce souhaité et des tolérances géométriques préétablies (Rudd 1997). Dans les procédés LCM utilisant des cavités souples, plusieurs approches s'inspirent fondamentalement du procédé d'infusion de résine liquide sous l'action d'une pression de vide appliquée aux évents des moules telles que le procédé « *Liquid*

Resin Infusion » (LRI), le procédé « *Vacuum Assisted Resin Infusion* » (VARI), le procédé « *Seemann Composites Resin Infusion Molding Process* » (SCRIMP) et le procédé d'injection flexible aussi nommé *Polyflex™*. De leur côté, les procédés « *Vacuum Assisted Resin Transfer Molding* » (VARTM) et « *Resin Transfer Molding Light* » (RTM Light) utilisent également la pression de vide pour assister l'imprégnation du renfort fibreux mais à l'intérieur de cavités semi-rigides. Finalement, l'injection de polymère liquide, par l'application d'une pression positive aux ports d'entrée d'un moule, est effectuée généralement à l'intérieur de cavités rigides employées dans le contexte des mises en forme par « *Structural Reaction Injection Molding* » (SRIM), « *Resin Transfer Molding* » (RTM), « *Compression Resin Transfer Molding* » (CRTM) et « *Articulated Compression Resin Transfer Molding* » (ACRTM). Ces procédés LCM en cavités rigides offrent un large éventail d'options de contrôle relativement aux divers paramètres régissant l'étape de remplissage des pièces, ce qui n'est pas toujours le cas de procédés LCM en cavités souples ou semi-rigides. Il est pertinent de mentionner que le procédé RTM utilise plutôt des faibles pressions d'injection et une réactivité de résine plus basse que le procédé SRIM (Osswald, Turng et al. 2008). De plus, la cavité rigide du moule RTM est fixe alors que celle des moules CRTM et ACRTM est mobile. L'utilisation du procédé RTM s'en trouve donc simplifiée, d'un point de vue de contrôle, par rapport aux procédés SRIM, CRTM et ACRTM.

Comparativement aux procédés de fabrication par autoclave ou par compression, les procédés LCM demandent moins d'investissement en outillage (Rudd 1997). En revanche, le coût de l'outillage des moules LCM tend à augmenter avec l'évolution des technologies d'injection car la nouvelle génération de moules conçues est de plus en plus complexe et instrumentée. Il est important de noter que pour les procédés LCM, contrairement aux procédés en autoclave, l'écoulement de la résine liquide se fait principalement de l'extérieur du renfort fibreux sec vers l'intérieur de celui-ci. En effet, durant l'étape de remplissage des pièces, le polymère s'infiltre entre les mèches du renfort fibreux et à l'intérieur de ces dernières. Ces mécanismes d'imprégnation sont donc différents de ceux actifs durant la mise en forme des renforts pré-imprégnés par procédés en autoclave. En effet, ces mécanismes d'imprégnation ont plutôt tendance à former des bulles microscopiques résiduelles à l'intérieur des mèches et d'emprisonner des bulles macroscopiques entre les mèches. Il est important également d'ajouter que l'orientation principale du phénomène d'imprégnation du renfort fibreux n'est pas identique

pour tous les procédés LCM. Dans le cas du procédé RFI, l'imprégnation se fait transversalement au renfort, c'est-à-dire dans le sens de l'épaisseur. Pour ce qui est des procédés LRI, VARI, RTM, VARTM et RTM Light, l'imprégnation du renfort fibreux sec s'effectue principalement dans le plan du renfort. De ce fait, il est plus facile à modéliser et à caractériser. Finalement, les mécanismes d'imprégnation des stratifiés sont hybrides, à savoir mi-transversaux et mi-planaires, pour les procédés SCRIMP, CRTM, ACRTM et *Polyflex*TM, donc plus difficiles à suivre dynamiquement et à étudier expérimentalement.

La sélection de l'une de ces classes de procédés de fabrication est encadrée par les contraintes du procédé et par un compromis entre les coûts de fabrication, le volume de production, la complexité de la géométrie des pièces à mettre en œuvre, les performances mécaniques des pièces fabriquées et le contrôle de l'orientation des fibres (Parnas 2000). À cet effet, la Figure 5 et la Figure 6 présentent graphiquement des comparaisons relatives entre les divers procédés de mise en forme des matériaux composites présentées précédemment, selon ces critères de coût unitaire de production, de performances mécaniques et de complexité géométrique. Lorsque les pièces composites fabriquées ont des formes complexes et qu'elles doivent simultanément posséder de bonnes propriétés mécaniques, tout en minimisant leur coût de revient, la famille de procédés LCM apparaît alors comme le meilleur compromis, tel que démontré par la Figure 5 et la Figure 6. Ce type de compromis entre des critères de performance contradictoires est classique dans plusieurs secteurs industriels de pointe tels que l'aéronautique et l'automobile. L'étude exposée dans cette thèse sera donc focalisée sur les procédés LCM. Plus spécifiquement sur le procédé de moulage des composites par transfert de résine, précédemment nommé « *Resin Transfer Molding* » (RTM), car ce dernier est un procédé mature, robuste et simple à utiliser comparativement à d'autres procédés LCM. De plus, les mécanismes d'imprégnation du renfort fibreux actifs durant le procédé RTM sont plus simples à observer et à modéliser que ceux des procédés RFI, CRTM, SCRIMP ou *Polyflex*TM par exemple. Enfin, le procédé RTM permet aussi de contrôler un grand nombre de paramètres gouvernant le remplissage et l'imprégnation des pièces composites de grande diffusion et à haute performance tels que la température du polymère liquide et du renfort fibreux durant le remplissage, le débit ou la pression d'injection de la résine, l'épaisseur de la cavité ainsi que le taux volumique de fibres du stratifié.

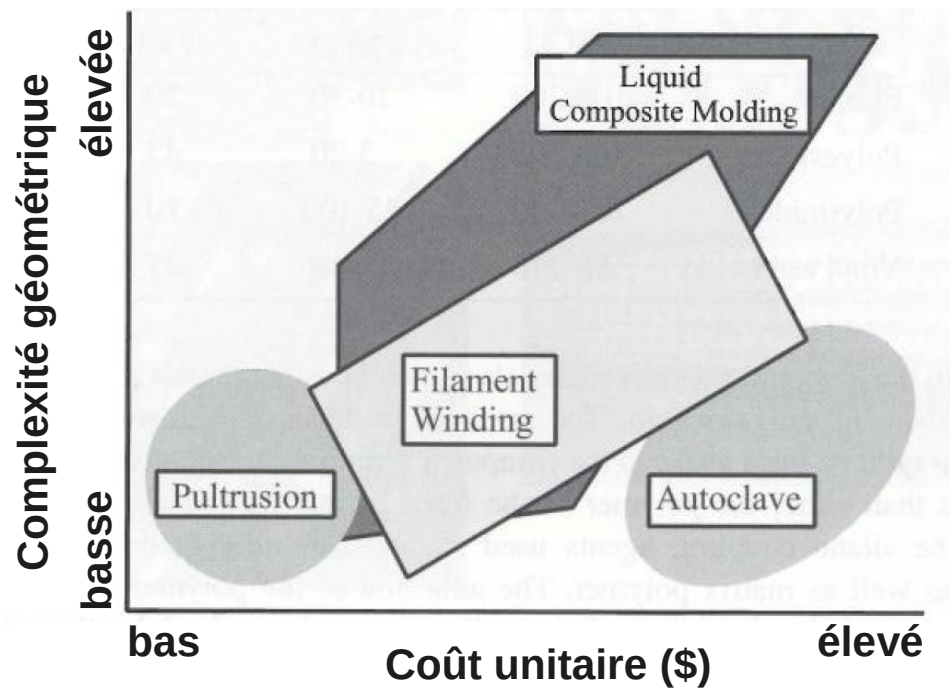


Figure 5 : Comparaison des procédés de fabrication des composites en fonction en fonction du coût unitaire des pièces produites et de leurs complexités géométriques (Parnas 2000).

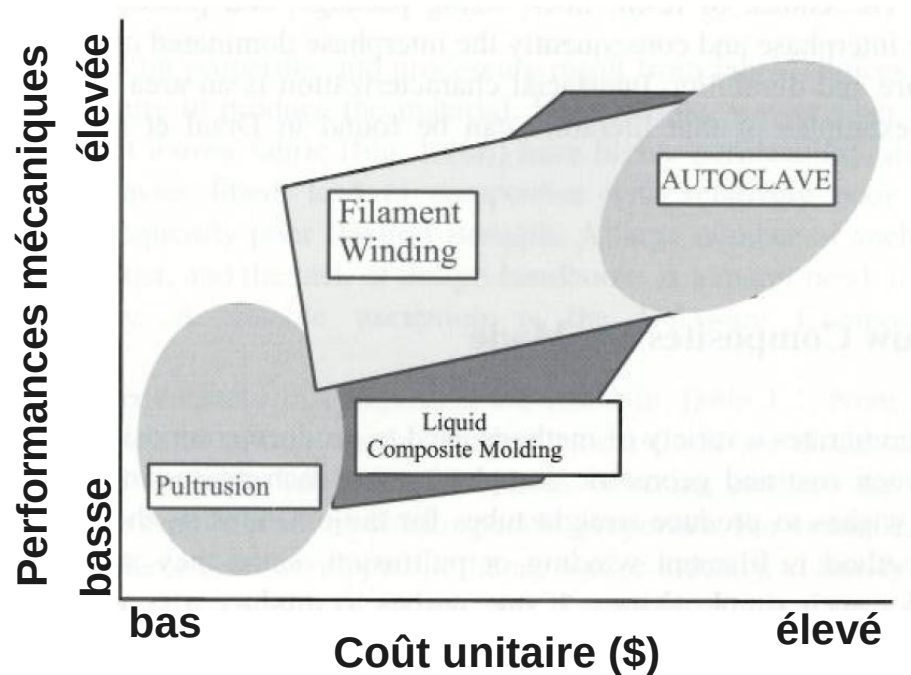


Figure 6 : Comparaison des procédés de fabrication des composites en fonction du coût unitaire des pièces produites et de leurs performances mécaniques résultantes (Parnas 2000).

I.1.3. Procédés de moulage des composites par transfert de résine

Tel que mentionné dans la sous-section précédente, le procédé RTM a été retenu pour réaliser une partie de l'étude expérimentale de cette thèse. Le procédé RTM a connu un essor technologique important ces dernières décennies suite aux efforts consentis pour la recherche sur cette technologie. Le procédé RTM se distingue par son potentiel d'automatisation (Shojaei, Ghaffarian et al. 2003) et des temps de cycle réduits grâce à l'optimisation des stratégies de remplissage et de cuisson des pièces (chauffage du moule et de la résine). Parmi les autres avantages de ce procédé, il faut mentionner à nouveau la capacité de mettre en forme des pièces à la géométrie complexe, l'obtention d'un bon fini de surface des pièces produites, la démonstration d'une bonne reproductibilité des pièces relativement aux autres procédés LCM ainsi que la réduction des émanations de styrène dans l'environnement de travail. La mise en forme des matériaux composites par le procédé RTM se réalise en cinq étapes distinctes telles qu'illustrées à la Figure 7. Ces étapes sont présentées et détaillées ci-dessous.

Étape 1 : Préformage et drapage

Cette première étape consiste à préparer le moule pour la mise en place du renfort fibreux sec. En premier lieu, les parois de la cavité du moule sont scellées à l'aide d'une solution qui colmate les aspérités de surface. Par la suite, plusieurs couches successives d'un agent démoulant sont appliquées minutieusement sur les parois de la cavité qui seront en contact avec la résine thermodurcissable. Cette étape favorise un démoulage facile de la pièce après l'étape de cuisson (Castro 2006). Ces deux étapes furent quotidiennement réalisées lors de la réalisation des trois plans d'expériences portant sur les mécanismes d'imprégnation des renforts fibreux durant les mises en forme par procédé RTM. Lorsque l'agent démoulant a été appliqué, il est possible d'avoir recours à un gel de surface (« *gel coat* »), au besoin, afin d'améliorer les qualités esthétiques des pièces produites, d'attribuer une couleur à ces pièces, de maintenir le positionnement du renfort fibreux durant le drapage et de faciliter davantage le démoulage de la pièce finale. Ensuite, le renfort fibreux est découpé manuellement, à l'aide d'une presse équipée d'un emporte-pièce ou grâce à une table de découpe robotisée selon un patron préétabli. Les plis du renfort fibreux découpé sont empilés et, au besoin, enduits à l'aide d'un liant thermoplastique ou thermodurcissable. Cette enduit va permettre de réaliser le préformage du stratifié sec en

amont de l'étape d'injection du polymère, conférant ainsi au renfort fibreux une géométrie s'approchant sensiblement de la forme finale de la pièce composite. Cette étape de préformage du stratifié sec accélère significativement le chargement et le drapage de ce dernier dans le moule RTM, surtout si la géométrie de la pièce à fabriquer est très complexe. Afin de faciliter l'étude des mécanismes d'imprégnation, la préforme fibreuse de plis NCF utilisée dans le cadre de cette thèse possède une géométrie simple, à savoir celle d'une plaque rectangulaire plane. Par conséquent, l'usage d'un liant de préformage n'est pas justifié et elle ne ferait qu'ajouter des paramètres supplémentaires dans l'étude expérimentale soit la quantité de liant ajoutée, le type de liant et son mode d'application. Il en est de même pour le gel de surface qui a été mis de côté pour cette étude expérimentale.

Étape 2 : Fermeture et préchauffage du moule

Cette étape est simple à décrire. Une fois que la préforme a été chargée dans le moule, ce dernier est fermé et préchauffé si le système de résine choisi le requière. Or, un système de résine vinyl ester combiné à un promoteur et un initiateur ne nécessite pas un tel apport de chaleur pour polymériser. Le moule RTM peut être fermé manuellement ou à l'aide de vérins pneumatiques, hydrauliques ou électromécaniques. Cette étape est critique afin d'obtenir l'étanchéité du moule au niveau du plan de joint et de limiter le cisaillement plan du renfort fibreux, en fonction du mode de fermeture de la cavité et de la géométrie de la préforme. Ce cisaillement intra planaire peut générer potentiellement un plissement dommageable de la préforme. La fermeture du moule entraîne également la compaction du renfort fibreux. Ces forces de compaction du renfort sec couplées à la pression d'injection du polymère peuvent induire des efforts importants dans le moule. Ces efforts peuvent même engendrer un fléchissement indésirable des parois de la cavité si la rigidité de ces dernières n'est pas adéquate, créant ainsi des variations locales d'épaisseur de la cavité et de taux volumique de fibres de la préforme. La conception du moule et du système de fermeture devient donc un point-clé dans le processus de fabrication d'une nouvelle pièce composite par procédé RTM. Puisque la géométrie des pièces composites fabriquées dans cette thèse n'est qu'une plaque plane, un simple mode de fermeture manuel et vertical avec des boulons, ainsi qu'une clé dynamométrique pour contrôler la force de fermeture, est suffisant. En

revanche, le choix des matériaux pour fabriquer le moule RTM sera critique pour garantir la rigidité de ses parois.

Étape 3 : Remplissage du moule

Il s'agit de l'étape d'injection du polymère liquide à l'intérieur de la cavité du moule jusqu'à l'obtention d'une imprégnation complète du renfort fibreux. C'est à cette étape que la majorité des défauts d'imprégnation prennent forme, entraînant potentiellement la mise au rebus de la pièce composite fabriquée. Les causes de l'apparition de ces défauts sont multiples et diversifiées. Parmi celles-ci, il y a un mauvais drapage des fibres, des effets de bord trop importants, une pression d'injection trop grande, des ports d'injection et d'évent mal positionnés, une mauvaise étanchéité du moule, un mélange hétérogène des espèces chimiques engendrant une réticulation inégale du polymère et plus encore. Tous ces éléments stratégiques de conception et de mise en forme ont été pris en considération dans les études expérimentales de cette thèse. À titre complémentaire, une discussion sur les phénomènes physiques actifs durant le remplissage du moule est proposée dans la section suivante.

Étape 4 : Polymérisation (réticulation) de la résine

Au cours de cette étape de cuisson du matériau composite à matrice polymère thermodurcissable, la résine passe tout d'abord de l'état liquide à l'état caoutchouteux solide par l'entremise d'un processus exothermique de réticulation du polymère. Ensuite, cette résine gélifiée poursuit son processus de réticulation et elle atteint un état vitreux solide qui sera l'état final de la résine. C'est lors de cette polymérisation que la pièce composite va acquérir sa géométrie finale et va former un tout avec le renfort fibreux. Bien souvent, les étapes de remplissage du moule et de polymérisation de la résine sont décrites successivement. Or, il faut considérer que la réaction de réticulation est initiée durant la phase d'injection de la résine activée dans le moule. Toutefois, les ingénieurs de procédé s'assurent généralement que le niveau d'avancement de la polymérisation de la résine soit négligeable durant l'étape de remplissage du moule, garantissant ainsi des propriétés rhéologiques du polymère qui sont stables et prévisibles. De cette manière, le moule est rempli adéquatement avant que la gélification de la résine soit entamée, ce qui évite la formation de zones sèches ou d'autres défauts d'imprégnation majeurs. Cette contrainte majeure

a été respectée, dans le cadre des études expérimentales de cette thèse, en ajustant la formulation chimique du mélange retenu de résine vinyl ester, d'initiateur, de promoteur et d'inhibiteur, en fonction de la température de mise en forme. Or, tel que mentionné durant la présentation de l'étape de préchauffage du moule, ce système de résine n'a pas besoin d'un apport thermique supplémentaire et il peut donc réticuler à la température ambiante, à savoir entre 20 et 25 degrés Celsius. Afin de clarifier certains éléments de cette étape névralgique de la mise en forme, une discussion sur les phénomènes physiques actifs durant la cuisson des pièces composites est présentée dans la section suivante.

Étape 5 : Ouverture du moule, démoulage, finition et maintenance

Finalement, le moule est refroidi et ouvert pour permettre le démoulage de la pièce. Durant cette étape, d'autres défauts peuvent faire leur apparition, à savoir le délaminage des stratifiés composites (Hayajneh 2001), la fissuration de la matrice (Ruiz and Trochu 2005), le gauchissement des géométries courbées (Albert and Fernlund 2002) et la détérioration du fini de surface des pièces (Palardy, Hubert et al. 2008). Ces défauts tirent leur origine du retrait volumique de la résine pendant la réticulation, du décalage des déformations thermiques entre les divers constituants du composite et de l'interaction moule-pièce lors du cycle de chauffage/refroidissement du moule (Fernlund, Rahman et al. 2002). À cet effet, ces trois facteurs combinés peuvent générer des contraintes résiduelles qui vont affecter la stabilité dimensionnelle de la pièce ou même atteindre la limite de rupture de la matrice ou de l'interface renfort-matrice (Khoun, de Oliveira et al. 2011). Pour détecter la présence de ces défauts dans les pièces composites, différentes stratégies modernes de contrôle de qualité non-destructif sont à la disposition des ingénieurs de production telles que la thermographie, la tomographie, l'interférométrie et l'inspection aux ultrasons par exemple (Garnier, Pastor et al. 2011; Hernandez, Sket et al. 2011; Junyan, Qingju et al. 2011). Par la suite, la pièce peut nécessiter certaines tâches supplémentaires de post-cuisson et de finition telles que l'ébavurage, le polissage et le peinturage. Lors des trois plans d'expériences étudiant les mécanismes d'imprégnation durant les mises en forme par procédé RTM, les pièces composites fabriquées ont été post-cuites afin de fixer et d'homogénéiser les propriétés finales de la résine réticulée. Lorsque la pièce

composite a été éjectée du moule, il est possible de démarrer l'opération de maintenance et de nettoyage du moule en prévision d'une prochaine injection (Critchlow, Litchfield et al. 2006).

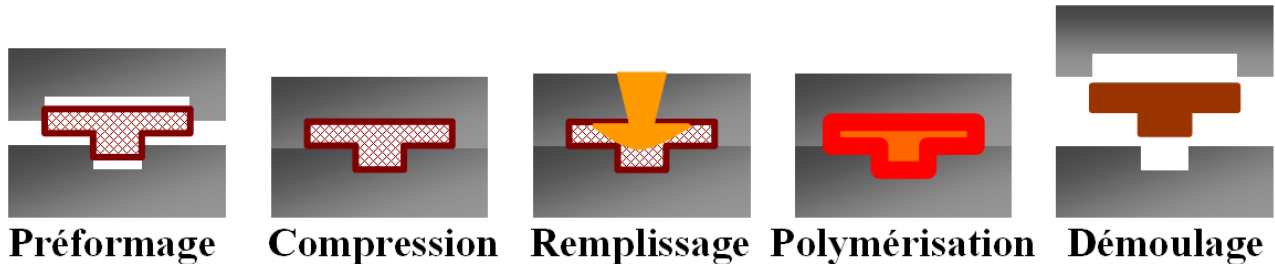


Figure 7 : Le schéma de la mise en forme par procédé RTM (Mallick 1993).

I.2. Phénomènes physiques pendant la mise en forme des procédés LCM

Dans la section qui suit, les principaux phénomènes de transport de masse, de quantité de mouvement et d'énergie thermique dans les milieux poreux seront présentés. Ces phénomènes de transport surviennent essentiellement durant les phases de remplissage et de cuisson des pièces composites fabriquées par les procédés LCM. Ce bref survol des phénomènes physiques va donc permettre de mettre en lumière les paramètres, les contraintes et les défis qui devront être surveillés lors de la présente étude expérimentale sur les mécanismes d'imprégnation microscopique et de saturation macroscopique des renforts fibreux.

I.2.1. Remplissage du renfort fibreux

La phase de remplissage se résume par l'écoulement d'un fluide visqueux (résine) à travers un milieu poreux (renfort fibreux). Pour comprendre et simuler les phénomènes liés aux procédés de moulage des composites par d'injection sur renfort (LCM), il est donc nécessaire de se référer à la dynamique des fluides et aux mécanismes de transport en milieu poreux. Un milieu poreux est un matériau incluant des espaces de vides interstitiels, appelés pores, qui sont connectés de façon à être perméables aux fluides (Dullien 1979).

Porosité et perméabilité du renfort fibreux

À l'échelle macroscopique, le renfort fibreux est principalement caractérisé par sa porosité (ou son taux volumique de fibres) et sa perméabilité. La porosité ϕ est le rapport entre le volume total des vides connectés entre eux et le volume total occupé par le milieu poreux (Bear 1972). La porosité est donc comprise entre 0 et 1. De son côté, le taux volumique de fibres $V_f = 1 - \phi$ est le ratio entre le volume total occupé par les fibres (phase solide) et le volume total occupé par le renfort fibreux (milieu poreux). Le taux volumique de fibres d'un renfort fibreux V_f peut être estimé rapidement de la manière suivante :

$$V_f = \frac{n_{plis} \rho_s}{h_{cavité} \rho_f} \quad (I.1)$$

où n_{plis} , $h_{cavité}$, ρ_s et ρ_f sont respectivement le nombre de plis du renfort fibreux, l'épaisseur de la cavité du moule, la densité surfacique d'un pli du renfort fibreux ainsi que sa masse volumique. Enfin, la perméabilité hydraulique est un paramètre qui représente la faculté du milieu poreux à laisser un fluide le traverser (Bear 1972). L'unité de la perméabilité le mètre carré (m^2). Cette dernière propriété est critique dans les procédés LCM car elle influe sur le temps de remplissage et sur la forme du front de résine progressant dans la cavité du moule sélectionné.

En l'absence de données expérimentales, le modèle capillaire de *Kozeny-Carman* est un modèle très employé pour estimer *a priori* la perméabilité d'un milieu poreux (Chapuis and Aubertin 2003). Pour un renfort fibreux, ce modèle de perméabilité K s'écrit typiquement sous la forme suivante (Gebart 1992) :

$$K = \frac{d_f^2}{16 k_{KC}} \cdot \frac{(1 - V_f)^3}{V_f^2} \quad (I.2)$$

où d_f , V_f et k_{KC} sont respectivement le diamètre du filament des mèches, le taux volumique de fibres du renfort fibreux et la constante de *Kozeny-Carman* qui prend intrinsèquement en considération la tortuosité τ du milieu poreux (voir les Figures 8a et 8b) de la façon suivante (Bear 1972; Johnson 1998) :

$$k_{KC} = k_o \tau^2 \quad (I.3)$$

où k_o est la constante géométrique de *Kozeny*. À titre d'information, la tortuosité représente le rapport entre la distance réelle L_e parcourue par le fluide dans le milieu poreux et la distance équivalence L ou z mesurée le long d'une ligne droite donnée, tel qu'illustré par la Figure 8c :

$$\tau = \frac{L_e}{L} \quad (I.4)$$

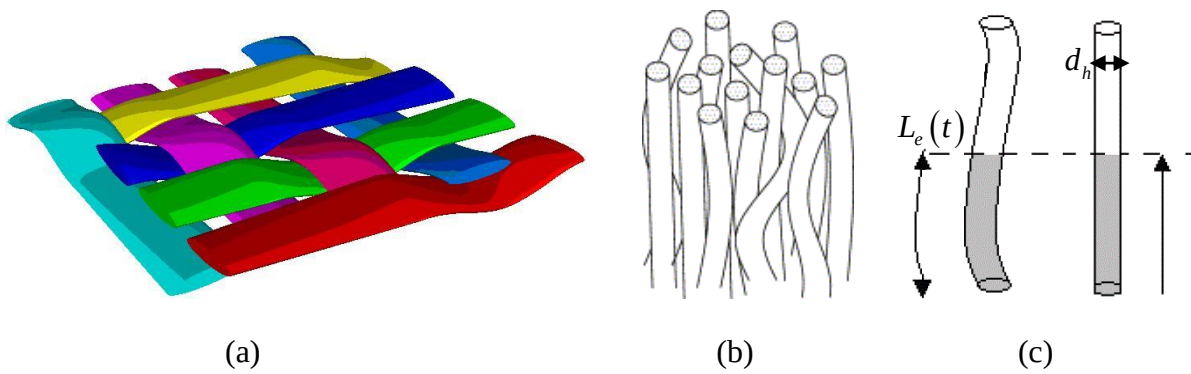


Figure 8 : La tortuosité des mèches de fibres et des filaments dans les renforts fibreux ;

(a) renfort tissé 2D; (b) tortuosité intra-mèche (Tran, Comas-Cardona et al. 2010);

(c) tube capillaire tortueux (Sénécot 2002).

Cependant, le domaine de validité de ce modèle de *Kozeny-Carman* est limité à un certain intervalle de porosité donné (Scheidegger 1974; Gebart 1992; Johnson 1998) et la constante de *Kozeny-Carman* doit être déterminée expérimentalement (Aström, Pipes et al. 1992). De plus, ce modèle a été établi pour des perméabilités isotropes ce qui n'est pas le cas des milieux anisotropes tels que les tissus multidirectionnels ou les tresses (Aström, Pipes et al. 1992). En revanche, ce modèle s'applique plutôt bien aux milieux poreux unidirectionnels tels que les mèches de filaments qui constituent l'ensemble des renforts fibreux (Gebart 1992). Ce modèle de *Kozeny-Carman* sera donc utilisé dans cette thèse pour modéliser la perméabilité axiale des mèches de fibres et pour étudier expérimentalement le phénomène d'imprégnation de ces mèches à l'aide du montage de montée capillaire. Également, plusieurs modèles théoriques ont été développés pour prédire la perméabilité en s'appuyant sur l'architecture de la cellule élémentaire

représentative (CER) du renfort fibreux (Ngo and Tamma 2001). Cependant, il s'avère qu'aucun renfort ne peut être totalement modélisé par la répétition d'une CER car l'architecture d'une cellule varie localement à l'intérieur du renfort fibreux. Il est surtout très risqué d'extrapoler ces modèles pour des empilements de renfort fibreux. Par conséquent, la perméabilité d'un renfort fibreux ou d'un stratifié de renfort fibreux se détermine expérimentalement en mesurant l'évolution de la pression d'injection et de la position du front du fluide imprégnant pour des injections RTM radiales dans le plan (Parnas, Howard et al. 1995; Hoes, Dinescu et al. 2002) ou des injections RTM unidirectionnelles (Demaria, Ruiz et al. 2007; Demaria, Ruiz et al. 2007). Cette dernière approche a justement été utilisée dans le cadre de cette thèse pour caractériser la perméabilité, dans le sens trame, des stratifiés de 6 plis du NCF bidirectionnel de verre sélectionné pour effectuer les injections RTM et les imprégnations capillaires.

De plus, dès qu'un procédé LCM fait intervenir la compaction variable du renfort fibreux pendant le remplissage de la pièce composite, il faut ajouter une équation de couplage hydromécanique (compaction/perméabilité), par l'intermédiaire de la loi de Terzaghi qui s'écrit comme suit :

$$\bar{\sigma} = \bar{\sigma}_{eff} - s p_r \bar{I} \quad (I.5)$$

où $\bar{I}$ est le tenseur identité, $\bar{\sigma}$ est le tenseur des contraintes moyennes dans les préformes fibreuses et $\bar{\sigma}_{eff}$ est le tenseurs des contraintes effectives dans ces mêmes préformes, à savoir les contraintes en l'absence de résine. De leur côté, p_r est la pression hydrostatique de la résine dans les préformes imprégnées et s est le niveau de saturation de cette préforme, qui est nul dans les préformes sèches et compris entre 0 et 1 pour les préformes imprégnées. Ce couplage hydromécanique est nécessaire afin de modéliser les variations locales de perméabilité K et de porosité ϕ générées par les contraintes de compaction $\bar{\sigma}$ appliquée sur le renfort fibreux par un contre-moule semi-rigide ou une bâche à vide (Correia, Robitaille et al. 2005). En revanche, ce couplage hydromécanique n'entre pas en jeu dans les procédés d'injection en moule fermé rigide où l'épaisseur de la cavité demeure fixe durant toute la mise en forme, comme c'est le cas pour le procédé RTM. Par conséquent, ce couplage ne sera donc pas considéré dans cette thèse car le procédé RTM a justement été retenu pour réaliser l'étude expérimentale des mécanismes d'imprégnation des renforts fibreux.

Rhéologie de la matrice polymère thermodurcissable

La viscosité dynamique μ caractérise l'aptitude d'un fluide à diffuser de la quantité de mouvement. Plus la viscosité dynamique d'une résine est élevée, plus la friction interne entre les particules du fluide est importante, et plus il est difficile pour la résine de s'écouler à travers des interstices. La viscosité dynamique influe donc sur le transport des fluides visqueux tels qu'une résine thermodurcissable dans les milieux poreux. Par conséquent, ce paramètre-clé va dicter directement le temps de remplissage dans le procédé RTM, en fonction des conditions d'injection. La viscosité dynamique μ d'une résine thermodurcissable est communément exprimée en unités de Pascal seconde (Pa.s). Dans le cas du procédé RTM, les résines thermodurcissables sont considérées newtoniennes, c'est-à-dire que leurs viscosités dynamiques ne dépendent pas du taux de cisaillement. La viscosité dynamique d'une résine est donc susceptible de varier uniquement en fonction de la température T du polymère et du degré de réticulation de ce dernier α . Ces aspects seront abordés plus en détails dans les prochaines sous-sections. L'évolution temporelle typique de la viscosité dynamique d'une résine thermodurcissable est schématisée à la Figure 9 (Halley and Mackay 1996).

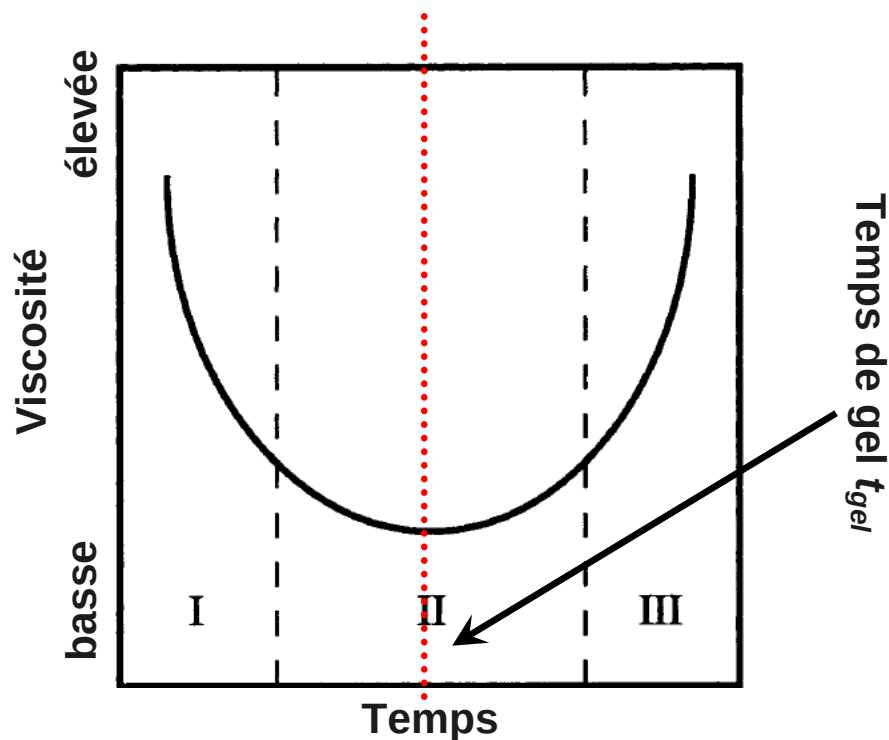


Figure 9 : Évolution de la viscosité en fonction du temps (Halley and Mackay 1996).

Le point de gel est défini comme le temps t_{gel} ou la température T_{gel} à partir desquels les liaisons covalentes entre les chaînes de polymère se forment et un réseau tridimensionnel est constitué tel qu'illustré dans la zone II de la Figure 9 (Halley and Mackay 1996). Pour des températures inférieures à T_{gel} , l'augmentation de la température élève le niveau d'énergie cinétique des molécules et fait décroître la viscosité. Par conséquent, la cinétique de la réaction de polymérisation n'intervient pas encore (voir zone I de la Figure 9) :

$$\mu = f(T) \quad (I.6)$$

Pour des températures supérieures à T_{gel} , l'augmentation de la température accélère la réaction de polymérisation, ce qui initie la réticulation des chaînes moléculaires et la croissance de la viscosité dynamique (voir zone III de la Figure 9) :

$$\mu = f(T, \alpha) \quad (I.7)$$

À cet effet, plusieurs modèles d'évolution de viscosité dynamique existent tels que les modèles usuels de Castro-Macosko (Pichaud, Duteurtre et al. 1999) et de Williams-Landell-Ferry (WLF) (Kiuna, Lawrence et al. 2002). Tout d'abord, le modèle de WLF de base prend uniquement en considération la température du polymère T et ce dernier modèle s'écrit :

$$\ln\left(\frac{\mu}{\mu_r}\right) = \frac{C_1(T - T_r)}{C_2 + T - T_r} \quad (I.8)$$

où μ_r est la viscosité dynamique à une température de référence T_r et les constantes d'appareillage C_1 et C_2 sont indépendantes de la température (Kiuna, Lawrence et al. 2002). Dans la même lignée, certains chercheurs ont même enrichi ce modèle de WLF afin de prendre en compte l'évolution de la température de transition vitreuse T_g du polymère de la manière suivante (Karkanis and Partridge 2000) :

$$\ln\left(\frac{\mu}{\mu_r}\right) = \frac{C_1(T - T_r - T_g)}{C_2 + T - T_r - T_g} \quad (I.9)$$

De son côté, le modèle de Castro-Macosko prédit plutôt la progression de la viscosité dynamique en fonction de la température T du polymère, de l'évolution de son degré de réticulation α et du degré de réticulation de ce même polymère à son point de gel α_{gel} de la façon suivante :

$$\mu = \mu_o \left(\frac{\alpha_{gel}}{\alpha_{gel} - \alpha} \right)^{a+b\alpha} \quad (I.10)$$

où

$$\mu_o(T) = A_\mu e^{\frac{E_\mu}{RT}} \quad (I.11)$$

et où les paramètres A_μ et E_μ sont obtenus par une méthode de régression, R est la constante des gaz parfaits et, enfin, a et b sont des constantes d'appareillage. À titre d'information, l'utilisation de la constante des gaz parfaits R découle de la théorie d'Eyring (Sbirrazzuoli and Vyazovkin 2002).

Par conséquent, puisque l'évolution de la viscosité dynamique de la résine thermodurcissable sélectionnée dans le cadre des études expérimentales de cette thèse dépend directement de la température du polymère et de son niveau de réticulation, cette dernière résine devra être minutieusement caractérisée et suivie afin d'éviter tout gel prématuré durant le remplissage des pièces par procédé RTM. À cette fin, la formulation chimique de cette résine sera modifiée pour garantir un temps de gel de la résine significativement plus long que le temps de remplissage de la pièce. De plus, le vieillissement du lot de résine sera suivi à l'aide de mesures rhéologiques afin d'obtenir des propriétés rhéologiques de la résine qui soient stables, prévisibles et homogènes d'une injection à l'autre. Finalement, tel que mentionné précédemment, les injections RTM et les imprégnations capillaires seront réalisées dans des conditions isothermes à température ambiante.

Équation de conservation de la quantité de mouvement

Le comportement macroscopique d'un écoulement isotherme d'un fluide newtonien au sein d'un renfort fibreux est généralement modélisé par la loi de *Darcy* qui fut établie en 1856 (Darcy 1856). Cette dernière équation constitutive d'origine empirique s'écrit :

$$\vec{q} = -\frac{\overline{K}}{\mu} (\overline{\nabla P} - \rho \vec{g}) \quad (\text{I.12})$$

où $\vec{q}$, $\overline{K}$, $\overline{\nabla P}$, μ , ρ et $\vec{g}$ sont respectivement la vitesse de *Darcy*, aussi appelée la vitesse superficielle, le tenseur de perméabilité du milieu poreux (renfort fibreux), le gradient de pression, la viscosité dynamique et la masse volumique du fluide (résine liquide) ainsi que le vecteur de gravité. De plus, il fut récemment démontré par Pillai que cette loi empirique de *Darcy* pouvait être dérivée à partir du modèle de *Navier-Stokes* (équation de conservation de la quantité de mouvement) utilisé à l'échelle microscopique en lui appliquant les hypothèses simplificatrices pertinentes et en s'appuyant sur la théorie des moyennes volumiques (Pillai 2002).

Or, les contributions de la gravité et des autres forces volumiques dans la loi de *Darcy* sont souvent négligeables devant les forces hydrodynamiques, plus spécifiquement le gradient de pression de l'écoulement. Par la suite, il est possible d'estimer la vitesse d'avancée du front $\vec{v}_{ff}$, aussi appelé vitesse interstitielle, en utilisant la relation de *Dupuit-Forcheimer* suivante :

$$\vec{q} = \phi \vec{v}_{ff} = (1 - V_f) \vec{v}_{ff} \quad (\text{I.13})$$

où ϕ et V_f sont respectivement la porosité et le taux volumique de fibre du renfort fibreux. Il est important de rappeler que la loi de *Darcy* n'est valide que pour des écoulements rampants de fluide newtonien, à savoir pour des nombres de *Reynolds* inférieurs à un. Le nombre de *Reynolds* pour un écoulement en milieu poreux est défini par :

$$\text{Re}_d = \frac{\rho d_h \|\vec{v}_{ff}\|}{\mu} \quad (\text{I.14})$$

où d_h est généralement associé au diamètre hydraulique moyenne des pores et $\|\vec{v}_{ff}\|$ est la norme du vecteur vitesse. Lorsque le milieu poreux étudié peut être représenté par des tubes capillaires parallèles (Gebart 1992), comme c'est le cas des mèches de filaments, le diamètre hydraulique peut être estimé de la façon suivante :

$$d_h = d_f \frac{\phi_m}{(1-\phi_m)} \quad (\text{I.15})$$

où d_f et ϕ_m sont respectivement le diamètre des filaments et la porosité de la mèche de filaments. Lorsque la structure du milieu poreux étudié est plus complexe qu'un ensemble de tubes capillaires parallèles, la dimension caractéristique des pores s'appuie plutôt sur la trace du tenseur de perméabilité $\overline{\overline{K}}$ du milieu poreux par l'intermédiaire de la « distance d'impact de *Brinkman* » d_K (*Brinkman screening distance*) définie de la manière suivante (Johnson 1998) :

$$d_h = d_K = \sqrt{\text{Tr}(\overline{\overline{K}})} \quad (\text{I.16})$$

Cette distance d'impact donne une indication sur l'ordre de grandeur de la distance à partir de laquelle la perturbation du champ de vitesses de l'écoulement devient négligeable (Kaviany 1995). De son côté, Collins a utilisé ce diamètre hydraulique équivalent ou cette distance d'impact de *Brinkman* pour définir le domaine de validité de la loi de *Darcy*, à savoir pour des nombres de *Reynolds* Re_d inférieurs à 1 (Collins 1961). Il faut souligner que la loi de *Darcy* est généralement adéquate pour modéliser l'écoulement du polymère liquide dans les renforts fibreux pour le moulage des composites par procédé RTM. Pour des régimes d'écoulement de fluide à nombres de *Reynolds* plus élevés, des modèles plus complexes doivent être utilisés à partir des équations de *Forcheimer* (Scheidegger 1974), de *Brinkman* (Kaviany 1995) ou de *Navier-Stokes* (Doering and Gibbon 1995). À cet effet, Dybbs et Edwards ont défini quatre régions distinctes de régime d'écoulement dans les milieux poreux telles que présentées dans le Tableau 1 (Dybbs and Edwards 1984). Toutefois, les trois régimes d'écoulement où le nombre de *Reynolds* est supérieur à 1 ne seront pas considérés dans cette thèse.

Tableau 1 : Régimes d'écoulement en milieu poreux

Nombre de <i>Reynolds</i>	Régime dans le milieu poreux
$Re_d \leq 1$	écoulement rampant ou de <i>Darcy</i>
$1 < Re_d \leq 150$	écoulement laminaire non linéaire régulier
$150 < Re_d \leq 300$	écoulement laminaire instable
$300 < Re_d$	écoulement turbulent

En négligeant la contribution gravitationnelle dans la loi de *Darcy* (I.12) et en substituant cette loi de *Darcy* dans la relation de *Dupuit-Forcheimer* (I.13), une nouvelle équation constitutive mettant en relation la vitesse interstitielle et le gradient de pression hydrodynamique est obtenue :

$$\vec{v}_{ff} = \frac{\overline{K}}{(1-V_f) \mu} \nabla p \quad (\text{I.17})$$

Cette équation (I.17) est typiquement employée pour décrire les écoulements rampants, isothermes et newtoniens qui sont observés lors des mises en forme par procédé RTM ou pour la plupart des procédés LCM. Or, cette équation constitutive fait apparaître deux variables inconnues : un champ vectoriel de vitesse de front $\vec{v}$ et un champ scalaire de pression P . Pour résoudre ce problème contenant 2 inconnus et une équation, il faut donc introduire une deuxième équation indépendante qui est naturellement donnée par la conservation de la masse. Cette introduction sera réalisée dans les prochaines sous-sections.

Équation de conservation de la masse

Lors des mises en forme par procédé RTM, les moules sont considérés rigides tel que mentionné précédemment dans la présentation des différents procédés LCM. Par surcroît, si la résine est considérée comme étant incompressible, à savoir la masse volumique ρ de la résine est constante, et que le renfort fibreux est à prime abord indéformable au cours de l'écoulement, c'est-à-dire

que sa porosité ϕ est constante, l'équation de conservation de la masse s'exprimant généralement par :

$$\frac{\partial(\phi \rho)}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\rho \vec{q}) = 0 \quad (\text{I.18})$$

peut être maintenant simplifiée sous la forme suivante :

$$\vec{\nabla} \cdot (\vec{q}) = 0 \quad (\text{I.19})$$

Cet écoulement dans un milieu poreux saturé est souvent désigné comme étant un écoulement monophasique de type piston, aussi appelé « *plug flow* ». En substituant la loi de *Darcy* (I.12) dans l'équation de conservation de la masse (I.19) pour un écoulement saturé incompressible et en négligeant la contribution gravitationnelle, ce qui est généralement le cas pour le procédé RTM, l'équation suivante est obtenue :

$$\vec{\nabla} \cdot \left(\frac{\overline{\overline{K}}}{\mu} \vec{\nabla} P \right) = 0 \quad (\text{I.20})$$

Dans le cas particulier d'une injection RTM en milieu isotrope avec un fluide au comportement newtonien, l'équation différentielle (I.20) dégénère en une simple équation de Laplace pour décrire la distribution spatiale du champ de pression de l'écoulement du polymère, en régime permanent, dans le renfort fibreux :

$$\vec{\nabla} \cdot (\vec{\nabla} P) = \Delta P = 0 \quad (\text{I.21})$$

Dans le cadre de cette thèse, l'écoulement étudié sera unidirectionnel afin d'alléger au maximum l'effort de contrôle et de modélisation des mécanismes d'imprégnation des renforts fibreux. À cet effet, l'équation (I.21) prend la forme suivante lorsqu'elle est exprimée de manière unidimensionnelle :

$$\frac{\partial^2 P(x)}{\partial x^2} = 0 \quad (\text{I.22})$$

En intégrant deux fois sur l'espace l'équation différentielle de Laplace (I.22), la solution linéaire suivante est obtenue :

$$P(x) = a_1 x + a_0 \quad (\text{I.23})$$

où la valeur des constantes d'intégration a_1 et a_0 sont déterminées grâce aux conditions frontières de *Dirichlet* (pression imposée) et/ou de *Neumann* (vitesse imposée) imposées lors de la modélisation.

Or, une des prémisses de départ de cette modélisation macroscopique est que l'écoulement du polymère liquide dans un renfort fibreux est monophasique et que la progression de son domaine est nettement définie, ce qui n'est pas le cas lors des mises en forme par procédés LCM. La validité de cette modélisation est d'autant plus critique pour l'étude des mécanismes d'imprégnation des renforts fibreux et de formation des défauts d'imprégnation par emprisonnement d'air. En effet, les forces capillaires et d'interfaces jouent un rôle de premier plan dans ce type de mécanismes. Dans ce contexte, il s'agit plutôt de modéliser un écoulement diphasique résine-air où la ligne de démarcation entre ces deux phases n'est pas nette, conséquence de la porosité bimodale des renforts fibreux employés. En effet, cette porosité bimodale a tendance à faire apparaître une zone insaturée de longueur finie entre la région sèche et la région complètement saturée du renfort fibreux. Ainsi, pour modéliser l'écoulement de la résine et de l'air, respectivement de masses volumiques ρ_r et ρ_a , dans cette région partiellement saturée, l'équation de conservation de la masse (I.18) doit être appliquée sur chaque phase. De plus, ces deux équations différentielles doivent être modifiées en introduisant une nouvelle variable appelée le degré de saturation s pour chacune des phases de la façon suivante (Peaceman 1977; Patel 1994) :

$$\frac{\partial(\phi \rho_r s_r)}{\partial t} + \bar{\nabla} \cdot (\rho_r \bar{q}_r) = 0 \quad (\text{I.24})$$

$$\frac{\partial(\phi \rho_a s_a)}{\partial t} + \bar{\nabla} \cdot (\rho_a \bar{q}_a) = 0 \quad (\text{I.25})$$

où s_r et s_a sont respectivement les degrés de saturation pour la résine et l'air et où leurs vitesses de Darcy respectives, $\bar{q}_r$ et $\bar{q}_a$, s'appuient sur la loi de Darcy (I.12). Ces vitesses de Darcy sont définies comme suit :

$$\overline{q_r} = - \frac{\overline{K} k_{rr}(s_r)}{\mu_r} \overline{\nabla p_r} \quad (I.26)$$

$$\overline{q_a} = - \frac{\overline{K} k_{ra}(s_a)}{\mu_a} \overline{\nabla p_a} \quad (I.27)$$

où p_r , p_a , μ_r , μ_a , k_{rr} et k_{ra} sont respectivement les pressions de la résine et de l'air, les viscosités dynamiques de la résine et de l'air ainsi que les perméabilités relatives de la résine et de l'air dans le milieu poreux étudié. Il faut souligner que ces perméabilités relatives sont fonction des degrés de saturation de chacune des phases et qu'elles sont généralement déterminées *a priori* à l'aide de mesures expérimentales ou de simulations numériques de l'écoulement en milieux poreux à l'échelle microscopique (Chung Hae Park and Woo 2011). Il a été reconnu précédemment que la perméabilité relative d'une phase dans un renfort fibreux donné n'était pas uniquement fonction de la distribution de la taille des pores du milieu poreux, de l'historique de saturation et du niveau de saturation (Dullien 1988). En effet, dans le cadre de la mise en forme par procédés LCM, ces perméabilités relatives étaient également fonction du nombre capillaire, de l'angle de contact (mouillabilité) entre les phases et du ratio des viscosités dynamiques des phases fluides (Patel 1994).

Avant la formation des défauts d'imprégnation par emprisonnement d'air, il est généralement admis que les écoulements des deux phases sont incompressibles, donc que leurs masses volumiques respectives sont constantes. Toutefois, cette hypothèse peut être remise en question lorsque des mécanismes de formation de zones sèches et de défauts d'imprégnation par emprisonnement d'air entrent en jeu et que des phénomènes de compression et de dissolution des gaz se produisent (Chui, Glimm et al. 1997; Lundstrom 1997; Kang, Lee et al. 2001; Yamaleev and Mohan 2006). De plus, il est important de rappeler que le procédé RTM a été retenu pour réaliser la première partie expérimentale de cette thèse. Dans le cadre de ce type de mise en forme par procédés LCM, la porosité des renforts fibreux est considérée constante. Par conséquent, les équations différentielles (I.24) et (I.25) peuvent être simplifiées de la manière suivante (Pillai and Advani 1996) :

$$\phi \frac{\partial s_r}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\vec{q}_r) = 0 \quad (I.28)$$

$$\phi \frac{\partial s_a}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\vec{q}_a) = 0 \quad (I.29)$$

La résolution de ce système constitué des quatre équations (I.26), (I.27), (I.28) et (I.29) n'est pas encore envisageable car le nombre total d'inconnus est maintenant au nombre de six, à savoir les degrés de saturation s , les champs de pression p et les champs de vitesses de Darcy $\vec{q}$ des deux phases suivies. L'ajout de deux équations indépendantes est donc nécessaire pour permettre la résolution de ce système. Une première équation provient d'une contrainte imposée aux degrés de saturation, à savoir l'unicité de leur somme :

$$s_r + s_a = 1 \quad (I.30)$$

Ensuite, une deuxième contrainte est proposée sous la forme d'une équation d'état reliant les champs de pression de la résine et de l'air ensemble. Cette contrainte additionnelle permet d'obtenir autant d'inconnus que d'équations. Cette équation d'état s'écrit comme suit :

$$p_a - p_r = p_{cap}(s_r) \quad (I.31)$$

où p_{cap} est la pression capillaire entre la phase liquide (résine) et la phase gazeuse (air) et celle-ci est fonction de la saturation de la phase liquide dans le milieu poreux. Toutefois, au même titre que les perméabilités relatives, cette pression capillaire doit être caractérisée *a priori* afin de permettre concrètement la résolution numérique de ce système non-linéaire de six équations hautement couplées (Pillai and Advani 1996). Cette courbe de pression capillaire en fonction de la saturation est généralement obtenue à l'aide de mesures expérimentales et la tendance de cette courbe dépend de plusieurs paramètres tels que la distribution de la taille des pores, l'historique de saturation et des conditions d'essai (équilibre statique ou dynamique).

En s'appuyant sur diverses hypothèses, il devient possible de simplifier le système d'équations couplées et de réduire le nombre d'inconnus à résoudre. Par exemple, il est souvent proposé de ne pas considérer l'écoulement de l'air en aval de l'écoulement de la résine car la perte de charge

occasionnée par le déplacement de ce gaz dans le milieu poreux est négligeable par rapport à celle du polymère liquide (Pillai and Advani 1996). Par conséquent, les équations (I.27), (I.29) et (I.30) n'ont pas besoin d'être considérées pour réaliser cette modélisation. De cette hypothèse découle donc le système simplifié suivant (Lin, Hahn et al. 1998; Chung Hae Park and Woo 2011) :

$$\phi \frac{\partial s_r}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\vec{q}_r) = 0 \quad (\text{I.32})$$

où

$$\vec{q}_r = - \frac{\overline{\overline{K}} k_{rr}(s_r)}{\mu_r} \vec{\nabla} p \quad (\text{I.33})$$

et où

$$p = p_r - p_{cap}(s_r) \quad (\text{I.34})$$

En posant certaines simplifications additionnelles, il est possible de retrouver des modélisations mathématiques d'écoulements insaturés qui sont typiquement utilisées dans les sols et les milieux poreux granulaires telles que les équations de *Richard* et de *Buckley-Leverett* (Richards 1931; Buckley and Leverett 1942). À ce titre, ces deux équations aux dérivées partielles ont aussi été employées par des chercheurs travaillant sur la modélisation du procédé RTM pour simuler l'écoulement diphasique de polymère liquide et d'air dans un renfort fibreux sec (Pillai and Advani 1996; Nordlund and Michaud 2012). Tout d'abord, l'équation de *Richard* découle du système d'équations (I.32) et (I.33) en plus de prendre en considération la contribution gravitationnelle. Cette équation parabolique de type « diffusion » est définie comme suit :

$$c \frac{\partial p_r}{\partial t} - \vec{\nabla} \cdot \left(\frac{\overline{\overline{K}} k_{rr}(s_r)}{\mu_r} (\vec{\nabla} p_r - \rho g \vec{\nabla} z) \right) = 0 \quad (\text{I.35})$$

où c est la capacité volumétrique spécifique de stockage de résine et elle est définie comme suit :

$$c = \phi \frac{\partial s_r}{\partial p_r} \quad (\text{I.36})$$

Toutefois, cette équation de *Richard* a surtout été utilisée dans la modélisation des écoulements lents d'eau souterraine dans les sols, ce qui rend son utilisation plutôt limitée pour la simulation des procédés LCM (Patel 1994).

D'un autre côté, l'équation standard de *Buckley-Leverett* découle plutôt d'une fusion de tout le système d'équations (I.26), (I.27), (I.28), (I.29) et (I.30) en une seule équation. Toutefois, cette équation de *Buckley-Leverett* néglige explicitement la contribution capillaire (I.31). À cet effet, il est possible de simplifier le précédent système d'équations, pour le cas d'un écoulement unidirectionnel (les vecteurs $\vec{q}_r$ et $\vec{q}_a$ deviennent des scalaires q_r et q_a), en proposant une nouvelle variable appelée le taux de débit fractionnaire r du débit volumétrique total q . Cette nouvelle variable est définie comme suit :

$$r = \frac{q_r}{q} \quad (\text{I.37})$$

où

$$q = q_r + q_a \quad (\text{I.38})$$

En substituant les équations (I.26) et (I.27) dans l'équation (I.37) et en procédant à une simplification, le taux de débit fractionnaire r peut être exprimé en fonction des perméabilités relatives des phases de la manière suivante :

$$r(s_r) = \frac{k_{rr}(s_r)}{k_{rr}(s_r) + \frac{\mu_r}{\mu_a} k_{ra}(s_r)} \quad (\text{I.39})$$

En substituant les équations (I.37), (I.38) et (I.39) dans l'équation (I.28), une équation non-linéaire hyperbolique de type « advection », communément appelée l'équation de *Buckley-Leverett*, est enfin obtenue :

$$\frac{\partial s_r}{\partial t} + U \frac{\partial s_r}{\partial x} = 0 \quad (\text{I.40})$$

où

$$U = \frac{q}{\phi} \frac{dr}{ds_r} \quad (\text{I.41})$$

Finalement, certains chercheurs de la communauté des matériaux composites sont allés encore un peu plus loin dans cette modélisation de la saturation des renforts fibreux lors de la mise en forme par procédé RTM. En effet, ces scientifiques ont proposé une équation de transport complète de type « advection-diffusion » comprenant un terme source Q_s et s'écrivant sous la forme suivante (Patel 1994; Breard, Saouab et al. 2003; García, Gascon et al. 2010) :

$$\frac{\partial s}{\partial t} + \frac{\vec{q}}{\phi} \cdot \vec{\nabla} s = \vec{\nabla} \cdot \left(\overline{\overline{D}} \vec{\nabla} s \right) - Q_s \quad (\text{I.42})$$

où $\overline{\overline{D}}$ est un tenseur de dispersion hydrodynamique prenant implicitement en compte le transport de masse diffusif par capillarité. Cette équation différentielle de la saturation tire son inspiration de certains travaux réalisés sur la modélisation et la simulation numérique de l'extraction du pétrole, contenu dans les sables bitumineux, par injection d'eau (Peaceman 1977). Dans le cadre d'une injection RTM unidirectionnelle, le tenseur de dispersion hydrodynamique dégénère en un simple scalaire D aussi appelé coefficient de dispersion hydrodynamique. À cet effet, ce coefficient de dispersion hydrodynamique D a été défini de plusieurs manières différentes par les chercheurs. Tout d'abord, Bréard et al. ont proposé une forme simplifiée de ce coefficient qui était uniquement fonction de la vitesse de Darcy q et qui s'écrivait comme suit (Breard, Saouab et al. 2003) :

$$D = \alpha_d q \quad (\text{I.43})$$

où α_d est un coefficient expérimental d'effet dispersif. D'un autre côté, García et al. ont plutôt proposé un coefficient de dispersion hydrodynamique qui est un peu plus complexe mais toujours fonction de la vitesse de Darcy q (Trochu, Ruiz et al. 2004; García, Gascon et al. 2010) :

$$D = \alpha_m q + \frac{\alpha_M}{q} \quad (\text{I.44})$$

où α_m et α_M sont des coefficients expérimentaux d'effet dispersif pour des vides microscopiques et macroscopiques respectivement.

Des travaux scientifiques sont toujours en cours actuellement afin de modéliser l'évolution macroscopique de la saturation des renforts fibreux à porosité bimodale et de relier cette évolution de la saturation à la formation des vides par emprisonnement d'air. Les études expérimentales des mécanismes d'imprégnation et de la saturation des renforts fibreux réalisées dans cette thèse s'inscrivent justement dans cet axe de recherche. Les données expérimentales ainsi obtenues vont permettre de valider ou même d'enrichir les modèles de saturation déjà existants dans la littérature scientifique sur les écoulements multiphasiques en milieux poreux.

Afin d'obtenir ces données expérimentales sur l'évolution de la saturation ainsi que sur la formation et le transport des bulles pendant les étapes de remplissage RTM et de post-remplissage, plusieurs montages de suivi dynamique de la saturation dynamique ont été développés par le passé. Afin de proposer une solution économique et pratique que peut exercer un suivi de haute résolution de la saturation des renforts fibreux de verre, il est utile d'examiner les outils qui ont d'abord été développés par la communauté scientifique des milieux poreux. À cet égard, Labat et al. ont été parmi les premiers chercheurs qui ont développé un outil pour détecter la formation de bulles par emprisonnement d'air en temps réel dans des renforts fibreux en fonction des conditions d'injection appliquées (Labat, Grisel et al. 2001). Cette méthode intrusive utilisait des électrodes planes sur les parois du moule pour estimer le niveau de saturation locale des renforts fibreux à partir des variations de conductivité électrique. En fait, une augmentation de la tension a été observée lorsque le liquide conducteur d'électricité passait au-dessus des électrodes, alors qu'une chute de tension était plutôt enregistrée lorsque des matériaux non-conducteurs tels que des bulles de gaz passaient entre les électrodes. Cependant, cet outil de suivi est limité aux liquides conducteurs, ce qui est rarement le cas pour les polymères, et aux renforts fibreux non-conducteurs. De plus, cet outil fournit une faible résolution spatiale de la distribution de la saturation dans les renforts fibreux car l'estimation de la saturation est effectuée aux positions des capteurs seulement. Par conséquent, cette solution n'a pas été considérée dans cette thèse.

Les chercheurs de la communauté ont employé d'autres types de signaux transmis dans les milieux poreux granulaires et fibreux, à savoir les ultrasons, les rayons X et les rayons gamma (Justice, Derby et al. 2003; Saraswat, Heider et al. 2007; Bhattad, Willson et al. 2011; Zhou, Hosokawa et al. 2011; Medhat 2012). La transmission de ces signaux de longueurs d'onde différentes ont permis d'étudier la structure interne des milieux poreux, l'évolution des écoulements capillaires dans les matériaux poreux, la formation de bulles dans les renforts fibreux et le piégeage par imbibition des phases non-mouillantes dans les sols. Parmi les signaux transmis, la mesure de l'atténuation des rayons X dans les milieux poreux a récemment reçu une attention particulière. En effet, cette approche a été utilisée par Bhattad et al., Zhou et al. et Setiawan et al. par l'intermédiaire de la micro-tomographie assistée par ordinateur (μ -CT) (Setiawan, Nomura et al. ; Bhattad, Willson et al. 2011; Zhou, Hosokawa et al. 2011). Cet outil a permis à ces auteurs d'observer et de modéliser l'architecture du réseau de milieux poreux granulaires tels que les sables et les grès ainsi que les phénomènes capillaires de piégeage du gaz à l'échelle des pores. Justice et al. ont utilisé la même technologie pour évaluer la distribution des bulles nucléées dans les composites à matrice métallique (Justice, Derby et al. 2003). Cet outil de surveillance non-intrusif est prometteur et a démontré une grande capacité de résolution spatiale ainsi qu'une flexibilité quant à la diversité des matériaux étudiés. Néanmoins, une faible résolution temporelle a été obtenue jusqu'à présent avec le micro-tomographe à rayon X en raison des longues périodes de balayage et d'exposition nécessaires pour obtenir une qualité d'images adéquate. Par conséquent, cette technique est plus adaptée pour étudier et suivre des phénomènes quasi-statiques tels que des écoulements capillaires lents (faibles nombres capillaires) qui ne sont généralement pas rencontrés dans la fabrication LCM, c'est-à-dire inférieure à 10^{-5} (Setiawan, Nomura et al. ; Zhou, Hosokawa et al. 2011). Finalement, cette technologie ne peut pas être facilement couplée à un système d'injection et elle est encore onéreuse à l'heure actuelle, violant ainsi ici notre critère initial de faibles coûts.

Parmi les nouvelles technologies de suivi proposées dans la littérature, l'imagerie par résonance magnétique (IRM) est une technique qui a également reçu une attention particulière de la part des communautés scientifiques des textiles et des composites à matrice polymère. À cet égard, Leisen et Beckham, Neacsu et al. et Endruweit et al. ont utilisé cette technologie d'imagerie pour visualiser la distribution et des écoulements de fluides dans des textiles, dans des échantillons

poreux cylindriques reproduisant à grande échelle des mèches de fibres et dans des renforts fibreux complets (Leisen and W. Beckham 2001; Neacsu, Leisen et al. 2007; Endruweit, Glover et al. 2011). Cette technique non-invasive peut fournir une résolution spatiale et temporelle élevée et elle permet de faire l'acquisition d'images 2D du domaine de saturation toutes les quelques secondes. En outre, l'utilisation de cet outil de suivi ne se limite pas aux tissus translucides ou transparents tels que des renforts fibreux de verre. En effet, Leisen et Beckham et Endruweit et al. ont utilisé avec succès cette approche avec des textiles de nylon et des renforts fibreux en carbone de diverses architectures (Leisen and W. Beckham 2001; Endruweit, Glover et al. 2011). Néanmoins, seuls des polymères liquides contenant de l'hydrogène et du fluor peuvent être étudiés avec l'IRM. Noter également que cette technologie demeure coûteuse et que son utilisation est limitée aux moules non-conducteurs afin d'éviter les problématiques de blindage du signal.

Jusqu'à maintenant, aucune technologie parmi celles présentées ne peut remplir tous les critères permettant de mener à bien le suivi dynamique de la saturation des renforts fibreux, tout en étant couplée à un système d'injection standard. Certains auteurs ont donc considéré et utilisé les technologies de suivi mises au point par la communauté scientifique de la mécanique des sols. En particulier, une technique de suivi, appelée la méthode de suivi par transmission de lumière visible (TLV), a attiré leur attention. En fait, cette dernière technique utilise la concordance entre les indices de refraction du milieu poreux et du fluide d'infiltration et elle s'appuie sur deux principes fondamentaux de l'optique, à savoir les lois de *Beer-Lambert* et de *Fresnel*. À cet effet, la résine vinylester utilisée dans cette thèse a été principalement choisie en raison de sa concordance optique avec la fibre de verre préalablement présentée. L'indice de réfraction du renfort fibreux de verre E est considéré comme proche de 1,56, tandis que celui de la résine vinylester a été calculé à environ 1,564 (Dunkers, Phelan et al. 2001; Wang, Pandita et al. 2009). À cet égard, Mahale et al., Nowak et Chun, Lawrence et al. et Bayldon ont déjà exploité cette similitude entre les indices de réfraction du verre et de la résine thermodurcissable ou d'autres fluides d'infiltration afin d'étudier la saturation, la formation de bulles et l'emprisonnement d'air dans les renforts fibreux (Mahale, Prudhomme et al. 1992; Nowak and Chun 1993; Bayldon 2007; Lawrence, Neacsu et al. 2007). Cette caractéristique optique intéressante sera cruciale pour

la suite des développements d'un dispositif expérimental permettant d'étudier la saturation dynamique d'un renfort fibreux par une résine.

Auparavant, Hoa, Tidwell et Glass ainsi que Niemet et Selker ont développé, validé et utilisé cette méthode de suivi pour étudier la distribution de la saturation dans les milieux poreux 2D translucides de type granulaire (Hoa 1981; Tidwell and Glass 1994; Niemet and Selker 2001). Une bonne cohérence a été observée entre les résultats obtenus par la méthode TLV, ceux estimés par un bilan de masse ou ceux évalués par la méthode de transmission de rayons X. Par ailleurs, certains auteurs de la communauté des matériaux composites ont également utilisé cette approche dans le but de suivre l'évolution de réticulation des polymères renforcés de fibres de verre (GFRP), ou pour suivre les écoulements non saturés dans les renforts fibreux de verre (Bayldon, Luo et al. 2006; Lawrence, Neacsu et al. 2007; Todoroki and Hana 2009; Nordlund and Michaud 2012). En effet, Lawrence et al., Bayldon et al. ainsi que Nordlund et Michaud ont utilisé cette technique pour étudier l'évolution de la saturation pendant des mises en forme par procédés RTM et VARI respectivement (Bayldon, Luo et al. 2006; Lawrence, Neacsu et al. 2007; Nordlund and Michaud 2012). Toutefois, très peu de physique optique a été utilisée dans leurs analyses afin d'effectuer le mappage entre l'atténuation d'intensité de la lumière visible transmise à travers le renfort fibreux avec sa saturation en liquide. En outre, les analyses de la saturation des renforts fibreux de verre effectuées par Nordlund et Michaud s'appuient plutôt sur le suivi des intensités relatives de la lumière réfléchie par le renfort fibreux non pas les intensités relatives de la lumière transmise par ce même renfort (Nordlund and Michaud 2012).

Notez que cette méthode TLV est non-intrusive, à faible coût et exige seulement de simples équipements optiques tels qu'une source de lumière, une caméra numérique et un moule transparent. En outre, cette technique de suivi a démontré une haute résolution spatiale et temporelle, même pour des échantillons de grande taille. Cependant, la méthode TLV est limitée à des milieux poreux minces et translucides tels que des préformes fibreuses de verre contenant peu de plis. Il convient de rappeler que le suivi de la saturation des renforts fibreux en carbone n'est pas possible avec cette approche.

I.2.2. Réticulation de la matrice polymère

Puisque cette thèse se focalise essentiellement sur les mécanismes d'imprégnation des renforts fibreux qui sont observés pendant le remplissage isotherme des pièces composites, les phénomènes de transferts thermiques, lors de l'écoulement de la résine liquide de même que durant sa réticulation, ne seront pas étudiés en détails et considérés ici. Toutefois, il est important de bien comprendre la thermodynamique sous-jacente du processus de réticulation des résines thermodurcissables et d'identifier les paramètres de cette étape critique de la mise en forme afin d'éviter l'apparition de défauts d'imprégnation ou de cuisson supplémentaires dans les pièces composites. En effet, la minimisation de la formation de tels défauts est un défi car ceux-ci pourrait nuire à l'interprétation des résultats extraits de l'analyse des pièces finales, relativement aux mécanismes d'imprégnation. De plus, cette modélisation des transferts thermiques dans les milieux poreux peuvent constituer, à leur tour, une source d'inspiration pour la compréhension et la modélisation des mécanismes d'imprégnation et de transport de matière par l'entremise de l'équation de la saturation dans ces mêmes milieux poreux.

Équation de conservation de l'énergie

Du point de vue des transferts thermiques, l'équation de bilan énergétique, qui régit les transferts de chaleur par advection et par diffusion (Bird, Stewart et al. 2002), doit être adaptée aux milieux poreux. Cette équation de conservation de l'énergie s'écrit comme suit :

$$\rho c_p \frac{DT}{Dt} = \rho c_p \left(\frac{\partial T}{\partial t} + \overline{v_{ff}} \cdot \overline{\nabla T} \right) = \overline{\nabla} \cdot \left(\overline{\overline{D}} \overline{\nabla T} \right) + \mu \Phi + \phi \rho H_r r_\alpha \quad (I.45)$$

où ρ est la masse volumique, c_p est la chaleur spécifique, $\overline{v_{ff}}$ est le champ de vitesses du front de résine, T est la température, $\overline{\overline{D}}$ est le tenseur de diffusion thermique, H_r est l'enthalpie de réaction de réticulation, à savoir la chaleur générée par cette réaction, r_α est la vitesse stœchiométrique de cette même réaction et Φ est un terme de dissipation visqueuse. Ces deux derniers termes Φ et r_α constituent les termes sources de chaleur de l'équation aux dérivées partielles (I.45). Il est intéressant de noter que le terme d'advection $\left(\overline{v_{ff}} \cdot \overline{\nabla T} \right)$ dans l'équation du bilan énergétique (I.45) prend uniquement en compte les effets hydrodynamiques au niveau

macroscopique, mais non à l'échelle des pores. Il représente la chaleur « transportée » par le mouvement d'ensemble des particules de fluide défini par l'équation de *Darcy* (I.12), équation qui suppose un écoulement uniforme. Quant à lui, le terme de dissipation visqueuse Φ dans un milieu poreux est généralement développé de la façon suivante :

$$\Phi = \vec{v}_{ff} \cdot \overline{\overline{K}}^{-1} \cdot \vec{v}_{ff} \quad (I.46)$$

Toutefois, dans le cadre du remplissage RTM, cette contribution est bien souvent négligeable par rapport aux autres termes du bilan thermique de l'équation (I.45). Ce terme de dissipation visqueuse ne sera donc pas considéré ici.

Les échanges thermiques dans un matériau composite dépendent du renfort fibreux et de la matrice polymère. Même s'il est envisageable d'effectuer le suivi de la température dans ces deux phases distinctes et immiscibles, il est plus pratique et usuel de considérer cet ensemble diphasique en équilibre thermique instantané :

$$\langle T \rangle = T_f \approx T_r \quad (I.47)$$

En revanche, cette approche utilise le théorème de la moyenne volumique pour parvenir à ses fins (Parnas 2000). À l'exception de la vitesse du front de résine et de la vitesse stœchiométrique de la réaction de réticulation, tous les paramètres et les inconnus de l'équation aux dérivées partielles (I.45) sont donc des valeurs moyennes devant être évaluées sur un volume de contrôle donné, aussi appelé volume élémentaire représentatif (symbole $\langle \rangle$). De leur côté, la vitesse du front de résine et la vitesse stœchiométrique de réaction sont des valeurs moyennes devant être estimées uniquement dans la phase fluide (résine) située à l'intérieur du volume élémentaire représentatif (symbole $\langle \rangle_r$). En résulte donc, une fois la dissipation visqueuse négligée, une nouvelle forme de l'équation aux dérivées partielles (I.45) :

$$\langle \rho c_p \rangle_{eff} \left(\frac{\partial \langle T \rangle}{\partial t} + \langle \vec{v} \rangle_r \cdot \nabla \langle T \rangle \right) = \nabla \cdot \left(\overline{\overline{D}} \nabla \langle T \rangle \right) + \phi \rho H_r \langle r_\alpha \rangle_r \quad (I.48)$$

où $\langle \rho c_p \rangle_{eff}$ est la capacité thermique volumique effective de l'ensemble composite évaluée à partir des propriétés thermo-physiques des fibres et de la résine de la manière suivante (Batycky and Brenner 1997) :

$$\langle \rho c_p \rangle_{eff} = \phi (\rho c_p)_r + (1 - \phi) (\rho c_p)_f \quad (I.49)$$

L'application du théorème de la moyenne volumique fait aussi apparaître un nouveau terme de dispersion thermique $\overline{\overline{k_{disp}}}$ dans le tenseur de diffusion thermique $\overline{\overline{D}}$ de l'équation (I.48) tel que présenté ci-dessous :

$$\overline{\overline{D}} = \overline{\overline{k_{eff}}} + \overline{\overline{k_{disp}}} \quad (I.50)$$

où $\overline{\overline{k_{eff}}}$ est la conductivité thermique effective de l'ensemble composite évaluée à partir des propriétés thermo-physiques des fibres et de la résine. Cette conductivité thermique effective $\overline{\overline{k_{eff}}}$ est calculée sur le volume élémentaire représentatif (VER). La formulation pour la conductivité thermique effective du VER est définie comme suit :

$$k_{eff} = \frac{1}{V} \int k \, dV \quad (I.51)$$

La conductivité effective dépend plus particulièrement de conductivité thermique de la résine k_r et de la fibre k_f et elle est pondérée par la porosité du renfort fibreux ϕ . La structure du renfort fibreux est également importante puisque son inter-connectivité influence la conduction thermique totale du composite. Dans le cas des composites, la conductivité thermique effective est également déterminée par les résistances de contact entre les fibres. Divers modèles pour la conductivité ont été établis (Kaviany 1995) tels que ceux présentés dans le Tableau 2.

Tableau 1 : Modèles pour la conductivité thermique homogénéisée

Modèles	Formulations mathématiques
---------	----------------------------

Maxwell (Batchelor and O'Brien 1977)	$\frac{k_{eff}}{k_r} = 1 + \frac{3.(k_f / k_r - 1)}{k_f / k_r + 2} . (1 - \phi)$
Arrangement de fibres en parallèles	$\frac{k_{eff}}{k_r} = \phi + (1 - \phi) \frac{k_f}{k_r}$
Arrangement de fibres en séries	$\frac{k_{eff}}{k_r} = \frac{k_f / k_r}{\phi k_f / k_r + 1 - \phi}$
Formulation variationnelle (Hashin and Shtrikman 1962; Hashin 1983)	$\frac{k_{eff}}{k_r} = 1 + \frac{3.(1 - \phi)(k_r / k_f - 1)}{3 + \phi(k_f / k_r - 1)}$
Homogénéisation de l'équation de diffusion (Chang, Wang et al. 1982)	$\frac{k_{eff}}{k_r} = \frac{(2 - \phi)k_r / k_f + 1}{2 - \phi + k_f / k_r}$

De son côté, l'apparition du tenseur de dispersion thermique $\overline{\overline{k_{disp}}}$ découle du fait que le champ de vitesses est non uniforme au niveau microscopique (principalement dans les pores en raison des flux inverses de particules de fluides). Tel que mentionné auparavant, cet écoulement du polymère liquide était plutôt considéré uniforme à l'échelle macroscopique. Cet effet de dispersion influence la distribution de température. En d'autres termes, dans le VER, les valeurs des champs de vitesse et de température peuvent varier localement de façon importante. Les valeurs moyennes intrinsèques en vitesse et en température du fluide pour le VER s'avèrent donc biaisées. Pour prendre en compte la dispersion, il faut donc corriger ces moyennes par l'intermédiaire des valeurs de correction $\overline{v_{ff}}$ et T' pour la vitesse équivalente $\vec{v}$ et la température équivalente T du fluide au niveau du VER de la manière suivante :

$$T = \frac{1}{V_r} \int_r T dV + T' \quad (I.52)$$

$$\overline{v_{ff}} = \frac{1}{V_r} \int_r \overline{v_{ff}} dV + \overline{v_{ff}}' \quad (I.53)$$

où V_r est le volume de fluide dans le VER. Ainsi, le tenseur de diffusion thermique $\overline{\overline{D}}$ regroupant le tenseur de conduction thermique effective $\overline{\overline{k_{eff}}}$ avec le tenseur de dispersion thermique $\overline{\overline{k_{disp}}}$ se décompose de la façon suivante :

$$\overline{\overline{D}} = \frac{\overline{\overline{k_{eff}}}}{\langle \rho c_p \rangle_r} + \phi \overline{\overline{k_{disp}}} \quad (I.54)$$

où ϕ est encore une fois la porosité du milieu poreux. Le tenseur de dispersion est très difficile à évaluer. Il dépend étroitement du nombre adimensionnel de *Péclet* local défini par :

$$Pe = \frac{\langle \rho C_p \rangle_r \langle \|\overline{\mathbf{v}_{ff}}\| \rangle_r}{k_r / L} \quad (I.55)$$

où $\langle \rangle_r$ est la moyenne intrinsèque sur la résine dans le volume représentatif, $\|\overline{\mathbf{v}_{ff}}\|$ est la norme en vitesse du fluide, ρ est sa masse volumique, C_p est sa capacité spécifique, k_r est sa conductivité thermique et L une longueur caractéristique de l'écoulement, par exemple l'épaisseur de la cavité dans les procédés LCM. Ce nombre adimensionnel de *Péclet* représente l'importance relative de l'advection et du transport par rapport à la diffusion. À cet effet, Kaviany a montré que l'effet de dispersion commence à être prédominant pour une valeur de Pe supérieur à 10 si l'écoulement à l'échelle macroscopique est considéré comme unidirectionnel (Kaviany 1995). L'effet de dispersion est également accentué par la différence des propriétés thermiques entre la phase liquide et la phase solide (par exemple rapport des conductivités thermiques k_f / k_r). Finalement, il est pertinent de souligner que, au même titre que la dispersion hydrodynamique, l'effet de dispersion thermique est influencé par la porosité et l'architecture du milieu poreux (Bear 1972). Cet élément pourra être pris en considération plus tard lors de l'étude du phénomène de saturation dans les milieux poreux à structure double échelle tels que le NCF utilisé dans cette thèse.

Noter que dans les mises en forme par procédé RTM, l'épaisseur d'une pièce composite fabriquée est significativement inférieure aux autres dimensions de cette pièce. De plus, la conductivité thermique est généralement considérée isotrope. Donc, il devient possible de réduire la complexité de la modélisation des transferts thermiques durant les mises en forme, telle que présentée à l'équation (I.48), à un problème 2D pour le remplissage non-isotherme de la pièce et à un simple problème 1D pour l'étape de cuisson de cette même pièce (Achim 2009). En choisissant simultanément un intervalle de temps et une longueur caractéristique, il est également possible d'adimensionnaliser cette équation (I.48) de faire apparaître des nombres

adimensionnels clés tels que les nombres de *Brinkman* (inutile dans le cas du RTM), de *Damköhler*, de *Graetz*, de *Fourier*, de *Péclet* et de *Reynolds* (Achim 2009). Ainsi, en comparant ces nombres adimensionnels entre eux, certaines hypothèses simplificatrices pertinentes et cohérentes peuvent être proposées afin de diminuer encore un peu plus la complexité de la modélisation thermique.

Thermochimie

La cinétique de la réaction de réticulation d'une résine a un impact direct sur le temps de cycle des procédés RTM car cette dernière régit l'évolution de la polymérisation. Le degré d'avancement de la polymérisation α , aussi appelé degré de cuisson, est compris entre 0 et 1, où $\alpha=1$ correspond à une résine complètement réticulée. Généralement, la réaction exothermique de polymérisation des résines thermodurcissable est activée par la température et elle s'accélère d'elle-même. La vitesse stœchiométrique de cette réaction peut être modélisée de la façon suivante :

$$\dot{r}_\alpha = \frac{d\alpha(t)}{dt} = f(\alpha(t), T, [Init], [Cat], [Inh], [Acc]) \quad (I.56)$$

où l'évolution du degré d'avancement de la réaction $\alpha(t)$ est décrit par divers types de modèle prenant en considération la température T et les concentrations des espèces chimiques $[C_i]$ présentent dans la formulation, à savoir la concentration d'initiateur $[Init]$, de catalyseur $[Cat]$, d'inhibiteur $[Inh]$ et/ou d'accélérateur $[Acc]$.

Il existe trois types de modèles pour représenter la relation $f(\alpha, T, [C_i])$: des modèles mécanistiques, semi-mécanistiques et phénoménologiques. Les modèles phénoménologiques ne prennent pas en considération les diverses interactions entre les espèces chimiques présentes. De leur côté, les modèles mécanistiques sont construits à partir d'une étude physico-chimique détaillée des espèces intervenant dans la réaction (Horie, Mita et al. 1968). Or, ces interactions thermochimiques restent difficiles à établir. Les modèles phénoménologiques sont donc les plus utilisés dans le domaine des procédés LCM, grâce à l'emploi d'analyses DSC (*Differential Scanning Calorimetry*) sur la résine, bien que ces modèles demeurent approximatifs (White and

Hahn 1992; Bailleul, Guyonvarch et al. 1996). Le Tableau 3 récapitule les différents modèles cinétiques développés pour diverses résines thermodurcissables (Halley and Mackay 1996). Tel que stipulé dans l'introduction de cette section, la réticulation des résines ne sera pas étudiée en profondeur dans le cadre des études expérimentales de cette thèse. Au besoin, quelques modèles de réticulation tels que celui semi-mécanistique de Kamal-Sourour ou ceux phénoménologiques de Bailleul et de Ruiz seront mis à profit pour représenter les cinétiques de réaction des résines vinyl ester et époxydes utilisées dans cette thèse (Ruiz 2004; Achim 2009).

Tableau 2 : Modèles de cinétique de réticulation des résines thermodurcissables

Modèles	Expressions mathématiques	Descriptions des paramètres
n-ième ordre	$\frac{d\alpha}{dt} = k \cdot (1 - \alpha)^n$ $k = A e^{-E_a/RT}$	k = constante de réaction E_a = énergie d'activation N = ordre de la réaction
Polynomial	$\frac{d\alpha}{dt} = k(a_0 + a_1\alpha + a_2\alpha^2)$ $k = A e^{-E_a/RT}$	K = constante de réaction E_a = énergie d'activation a_0, a_1, a_2 = constantes
Auto-catalytique	$\frac{d\alpha}{dt} = (k_1 + k_2\alpha^m)(1 - \alpha)^n$	$k_{1,2}$ = constantes de réaction N, m = ordre de la réaction
Mécanistique	$\frac{\alpha}{\alpha_{gel}} = f([espèces])$	α_{gel} = degré de conversion au temps de gel

Tel qu'illustré plus tôt par l'équation du bilan d'énergie, les transferts thermiques en milieu poreux sont complexes car ils possèdent une interaction avec trois autres phénomènes : l'infiltration de la résine, la réaction de réticulation et les lois de comportement viscoélastique et hydromécanique du matériau. De plus, les propriétés thermo-physiques de la résine comme la masse volumique, la chaleur spécifique et la conductivité thermique évoluent aussi en fonction de la température et du degré de polymérisation (Mijovic and Wang 1988). L'interaction entre ces

quatre phénomènes sont illustrés à la Figure 10 inspirée des travaux de Bear et Bachmat, de Tucker et de Ruiz (Bear and Bachmat 1990; Tucker 1996; Ruiz 2004).

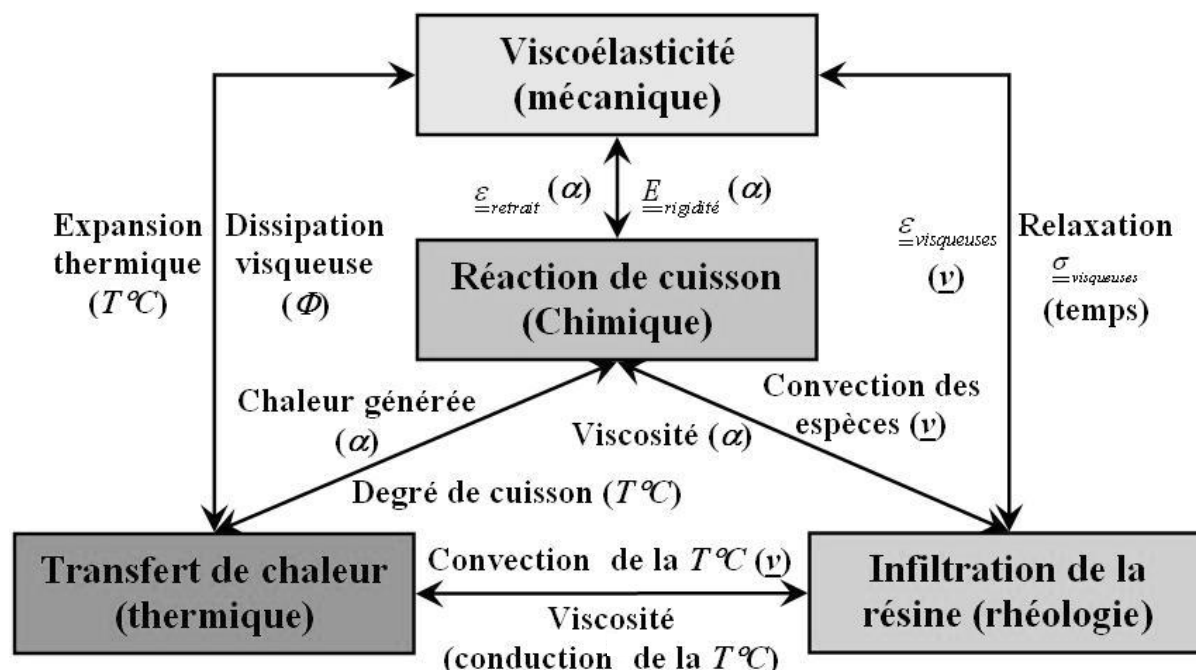


Figure 10 : Schéma des interactions physiques durant les mises en forme par procédé LCM.

En s'intéressant aux mécanismes d'imprégnation des renforts fibreux, cette thèse n'explore pas uniquement ces phénomènes d'un point de vue macroscopique. Elle se penche également sur certains phénomènes physiques et chimiques se déroulant à l'échelle microscopique et elle ouvre un nouveau front de recherche du côté de la science des surfaces. Ce volet de recherche est très récent dans le domaine de la mise en forme des matériaux composites et il vient aussi s'insérer dans le schéma général des interactions présenté à la Figure 10. Par conséquent, il devient donc impératif de comprendre et de modéliser l'ensemble des phénomènes décrits ici car les propriétés finales d'une pièce dépendent de l'histoire chimique, mécanique, rhéologique et thermique pendant la mise œuvre du composite. C'est pourquoi le contrôle des procédés LCM devient une nécessité pour garantir la « santé-matière » des pièces composites fabriquées.

ANNEXE II - BÉNÉFICE DE L'INJECTION RTM À VITESSE DE FRONT CONSTANTE PAR RAPPORT À L'INJECTION RTM À PRESSION CONSTANTE

II.1 Hypothèses simplificatrices et domaine de validité

Le renfort fibreux est considéré isotrope ($K_x=K_{rr}$) dans cette démonstration analytique. L'écoulement est également considéré uniforme et homogène dans l'épaisseur h du renfort fibreux et la résine est initialement exempte de bulles d'air lors de son entrée dans le moule (débullage et dégazage parfait). De plus, le transport des bulles par migration (advection) et par dissolution-diffusion n'est pas considéré en raison de son comportement semi-stochastique. Uniquement le phénomène de formation des bulles par emprisonnement d'air dans le cadre du procédé RTM est considéré dans ce développement mathématique. Les autres mécanismes de formation des bulles (nucléation, génération de sous-produits gazeux durant la réticulation, etc.) n'ont pas été retenus. Finalement, l'impact des bulles microscopiques et macroscopiques sur les propriétés mécaniques des pièces composites est considéré identique. Cette dernière hypothèse pourra être reconsidérée dans de futures optimisations et études expérimentales.

II.2 Formation des bulles par emprisonnement d'air

Pour être en mesure d'effectuer un calcul analytique comparatif pour les diverses stratégies d'injection, une géométrie simplifiée a été proposée à la Figure 1. Pour l'injection unidirectionnelle, il s'agissait d'un carré de côté L . Pour l'injection radiale (divergente ou convergente), il s'agissait d'un cercle de rayon externe R dont le point central (point d'injection ou d'évent) avait un rayon a . Finalement, une autre variable a été définie pour le calcul de l'injection radiale. En fait, cette variable r^c est la position relative du front d'imprégnation, durant une injection unidirectionnelle (linéaire), radiale convergente ou radiale divergente, lorsque ce dernier franchit la vitesse d'imprégnation optimale v_{ff}^{opt} . En d'autres termes :

$$v_{ff}(r^c) = v_{ff}^{opt} \quad (II.1)$$

Il a également été considéré que lorsque le front de résine se propage à la vitesse d'imprégnation optimale v_{ff}^{opt} , aucune bulle n'est formée car la teneur en vides obtenue dans cette situation est négligeable. Pour adimensionnaliser le calcul, les deux nouvelles variables suivantes ont été également proposées :

$$\alpha = a/R \quad (II.2)$$

$$\beta = r^c/R = x^c/L \quad (II.3)$$

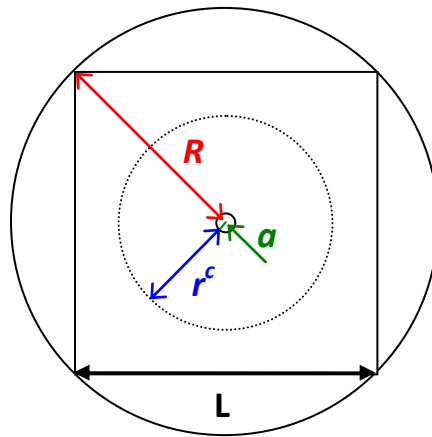


Figure 1 : Configurations géométriques des trois stratégies d'injection.

Par la suite, le modèle empirique de formation des bulles par emprisonnement en fonction de la vitesse d'imprégnation v_{ff} (vitesse du front) ou du nombre capillaire modifié Ca_{ff}^* a été réutilisé.

Notez que le nombre capillaire modifié est défini comme suit :

$$Ca_{ff}^* = \frac{\mu v_{ff}}{\gamma_{lv} \cos \theta} = \frac{v_{ff}}{R_{fluide}} \quad (II.4)$$

où μ , γ_{lv} et θ sont respectivement la viscosité du fluide d'infiltration, sa tension de surface et sa mouillabilité apparente (angle de contact apparent) avec le renfort fibreux. De son côté, R_{fluide} est défini comme étant la pénétrativité du fluide d'infiltration. Ce modèle empirique de formation des bulles par emprisonnement d'air a été plusieurs fois rapporté dans la littérature et dans cette thèse (Ruiz, Achim et al. 2006). Selon ce modèle empirique, de part et d'autre d'une certaine

vitesse d'imprégnation intermédiaire, qualifiée aussi d' « optimale » v_{ff}^{opt} , les teneurs en vides macroscopiques $\%V_{macro}$ ou microscopiques $\%V_{micro}$ augmentent linéairement en fonction du logarithme de la vitesse d'avancée du front de résine (ou du nombre capillaire modifié) :

$$\%V_{macro} = -c_1 - c_2 \log(v_{ff}) \quad (II.5)$$

$$\%V_{micro} = c_3 + c_4 \log(v_{ff}) \quad (II.6)$$

où c_1 , c_2 , c_3 et c_4 sont des constantes généralement déterminées de manière empirique en procédant à des injections RTM contrôlées. Le problème peut être adimensionnalisé en considérant plutôt le nombre capillaire modifié Ca_{ff}^* de la manière suivante :

$$\%V_{macro} = -c_1^* - c_2^* \log(Ca_{ff}^*) \quad (II.7)$$

$$\%V_{micro} = c_3^* + c_4^* \log(Ca_{ff}^*) \quad (II.8)$$

Le problème peut également être considéré indépendant du fluide d'infiltration utilisé en réintroduisant le concept de nombre capillaire modifié optimal Ca_{opt}^* déjà présenté dans cette thèse et défini comme suit :

$$Ca_{opt}^* = \frac{f_{geo}}{2k_o} \cdot \frac{d_f \phi_m}{\tau^2 L_c (1 - \phi_m)} \quad (II.9)$$

où d_f , ϕ_m , τ et L_c sont respectivement le diamètre des filaments, la porosité microscopique des mèches de fibres, la tortuosité des mèches et la longueur caractéristique du renfort fibreux (patron de répétition du tissage). De leur côté, f_{geo} et k_o sont des paramètres géométriques qui dépendent de la distribution de la taille des pores, de l'orientation de l'écoulement par rapport aux mèches ainsi que de la configuration d'empilement des filaments dans les mèches. En effectuant la substitution de l'équation (II.9) dans les équations (II.7) et (II.8), les deux équations suivantes sont obtenues :

$$\%V_{macro} = M \log\left(\frac{Ca_{opt}^*}{Ca_{ff}^*}\right) \quad (II.10)$$

$$\%V_{micro} = m \log \left(\frac{Ca_{ff}^*}{Ca_{opt}^*} \right) \quad (II.11)$$

où les M et m sont respectivement les deux pentes de gauche et de droite du graphique en forme de « V » typique à la formation des bulles par emprisonnement dans les renforts fibreux à porosité bimodale (Patel 1994; Ruiz, Achim et al. 2006; Park, Lebel et al. 2011). Ce phénomène a été schématisé à la Figure 2. Il a été rapporté dans la littérature scientifique que l'amplitude de ces pentes était essentiellement déterminé par l'architecture du renfort fibreux (patron de tissage, espacement entre les mèches, etc.) et des mèches de fibres (Patel 1994; Woo Il, Doh Hoon et al. 2006; Leclerc 2008; Park, Lebel et al. 2011). C'est particulièrement véridique dans le cas de la formation des bulles macroscopiques par emprisonnement d'air découlant du phénomène de « fingering » préférentiel dans les mèches de fibres. En effet, dans cette situation, le phénomène de transport des bulles est négligeable et les bulles macroscopiques ainsi formées entre les mèches de fibres sont statiques (Patel 1994). Toutefois, dans le cas des bulles microscopiques emprisonnées dans les mèches de fibres, la mobilisation de ces dernières à partir d'un certain seuil donné de vitesse d'imprégnation peut devenir significative, générant ainsi une déviation par rapport au comportement attendu (Patel 1994). Or, tel que mentionné dans la section des hypothèses, cette déviation observée ne sera pas étudiée dans cette démonstration mathématique.

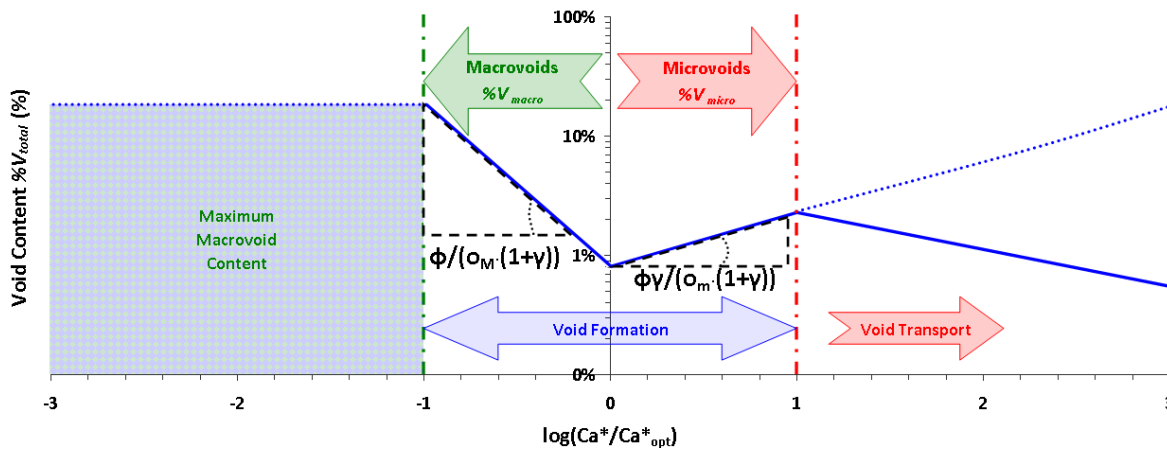


Figure 2 : Modèle typique de formation des bulles par emprisonnement d'air dans un milieu poreux à porosité bimodale (Patel 1994).

Par conséquent, ces pentes M et m peuvent être reliées, en première approximation, à certains paramètres géométriques du renfort fibreux à porosité bimodale tels que sa porosité ϕ et le rapport volumique R_{VER}^{μ} de ses pores microscopiques v_{μ} sur la somme de ses pores v_{ϕ} , aussi appelé « pore volume ratio » par d'autres chercheurs (Pillai and Advani 1998), et défini comme suit :

$$R_{VER}^{\mu} = \frac{v_{\mu}}{v_{\phi}} = \frac{(L_{VER} \cdot l_{VER}) \cdot \sum_{i=1}^2 N_i A_{m,i} \phi_{m,i}}{(L_{VER} \cdot l_{VER}) \cdot \phi \cdot t_{fabric}} \quad (II.12)$$

où N_i , $A_{m,i}$, $\phi_{m,i}$, t_{fabric} , L_{VER} et l_{VER} sont respectivement le nombre de mèches pour chaque couche i par centimètre, l'aire de la section transversale des mèches de la couche i , la porosité microscopiques des mèches de la couche i , l'épaisseur totale du renfort fibreux, la longueur du volume élémentaire représentatif (VER) du renfort fibreux ainsi que sa largeur. Ce ratio peut être simplifié de la manière suivante :

$$R_{REV}^{\mu} = \frac{\sum_{i=1}^2 N_i A_{m,i} \phi_{m,i}}{(t_{fabric} - t_{min})} \quad (II.13)$$

où t_{min} est l'épaisseur minimale théorique pouvant être atteinte durant la compaction du renfort fibreux. Le rapport volumique ψ entre les pores microscopiques v_{μ} et les pores macroscopiques v_M d'un renfort fibreux donné peut également être exprimé en fonction de ce ratio R_{VER}^{μ} de la manière suivante :

$$\psi = \frac{R_{VER}^{\mu}}{1 - R_{VER}^{\mu}} \quad (II.14)$$

Ce dernier ratio va servir à approximer les pentes M et m de formation des bulles macroscopiques et microscopiques par emprisonnement d'air comme suit :

$$M \approx \frac{\phi}{o_M (1 + \psi)} \quad (II.15)$$

$$m \approx \frac{\phi \psi}{o_m (1 + \psi)} \quad (II.16)$$

où o_M et o_m sont des coefficients probabilistes obtenus empiriquement (Woo Il, Doh Hoon et al. 2006). Toutefois, en regardant les résultats obtenus dans cette thèse, il peut être avancé que :

$$o_M \approx 1 \quad (\text{II.17})$$

$$o_m \gg o_M \quad (\text{II.18})$$

En substituant les équations (II.15) et (II.17) dans l'équation (II.10), la prédiction de formation des bulles macroscopiques suivante est obtenue :

$$\%V_{macro} = \frac{\phi}{(1+\psi)} \log \left(\frac{Ca_{opt}^*}{Ca_{ff}^*} \right) = \frac{\phi}{(1+\psi)} \log \left(\frac{v_{ff}^{opt}}{v_{ff}} \right) \quad (\text{II.19})$$

D'un autre côté, en substituant l'équation (II.16) dans l'équation (II.11), la prédiction de formation des bulles microscopiques suivante est obtenue :

$$\%V_{micro} = \frac{\phi \psi}{o_m (1+\psi)} \log \left(\frac{Ca_{ff}^*}{Ca_{opt}^*} \right) = \frac{\phi \psi}{o_m (1+\psi)} \log \left(\frac{v_{ff}}{v_{ff}^{opt}} \right) \quad (\text{II.20})$$

II.3 Démonstration pour une injection RTM unidirectionnelle

Pour l'injection RTM unidirectionnelle à pression constante ΔP_{inj} d'une plaque carrée, la vitesse de Darcy q (vitesse superficielle) s'écrit :

$$q = \frac{K_x}{\mu} \frac{\Delta P_{inj}}{x} \quad (\text{II.21})$$

En utilisant la relation de *Dupuit-Forchheimer* pour laquelle $v_{ff} = q/\phi$, la vitesse d'avancée du front v_{ff} prend la forme suivante :

$$v_{ff} = \frac{dx}{dt} = \frac{K_x}{\mu \phi} \frac{\Delta P_{inj}}{x} \quad (\text{II.22})$$

De plus, en intégrant l'équation (II.22), le temps de remplissage t_{rempl} peut également être évalué :

$$\int_0^L x \, dx = \frac{K_x}{\mu \phi} \Delta P_{inj} \int_0^{t_{rempl}} dt \quad (\text{II.23})$$

$$t_{remp} = \frac{L^2}{2K_x} \frac{\mu\phi}{\Delta P_{cst}} \quad (II.24)$$

Tel que décrit par les équations (II.1), (II.3) et (II.22), la vitesse optimale d'avancement du front s'écrit :

$$v_{ff}^{opt} = \frac{K_x}{\mu\phi} \frac{\Delta P_{inj}}{\beta L} \quad (II.25)$$

La pression d'injection ΔP_{inj} pour cette injection est donc

$$\Delta P_{inj} = v_{ff}^{opt} \frac{\beta L \mu\phi}{K_x} \quad (II.26)$$

En substituant l'équation (II.26) dans l'équation (II.22), l'évolution de la vitesse d'avancée du front en fonction de sa position s'écrit maintenant en fonction de la vitesse optimale :

$$v_{ff}(x) = \frac{v_{ff}^{opt} \beta L}{x} \quad (II.27)$$

Également, en substituant l'équation (II.26) dans l'équation (II.24), le temps de remplissage s'écrit aussi en fonction de la vitesse optimale :

$$t_{remp} = \frac{L}{2v_{ff}^{opt} \beta} \quad (II.28)$$

Pour une injection RTM unidirectionnelle à vitesse de front constante v_{ff}^{moy} mais ayant le même temps de remplissage qu'une injection RTM unidirectionnelle à pression constante, on obtient :

$$v_{ff}^{moy} = \frac{L}{t_{temp}} = \frac{L}{\frac{L}{2v_{ff}^{opt} \beta}} = 2\beta v_{ff}^{opt} \quad (II.29)$$

La teneur totale en vides $\%V_{total}$ dans la pièce carrée résultant d'une injection RTM à vitesse de front constante, en assumant qu'il y a uniquement des défauts d'imprégnation microscopiques ($\beta > 0.5$), s'écrit:

$$\%V_{total} = \int_{x=0}^{x=L} \%V_{micro}(x) Lh dx \quad (II.30)$$

Donc, par substitution des équations (II.20) et (II.29) dans l'équation (II.30), on obtient :

$$\%V_{total} = \int_{x=0}^{x=L} \frac{\phi \psi}{o_m (1+\psi)} \log \left(\frac{v_{ff}^{moy}}{v_{ff}^{opt}} \right) Lh dx = hL^2 \frac{\phi \psi}{o_m (1+\psi)} \log(2\beta) \quad (II.31)$$

D'un autre côté, la teneur totale en vides $\%V_{total}$ dans la pièce carrée résultant d'une injection RTM à vitesse de front constante, en assumant qu'il y a uniquement des bulles macroscopiques ($\beta < 0.5$), s'écrit :

$$\%V_{total} = \int_{x=0}^{x=L} \%V_{macro}(x) Lh dx \quad (II.32)$$

Donc, par substitution des équations (II.19) et (II.29) dans l'équation (II.32), on obtient :

$$\%V_{total} = \int_{x=0}^{x=L} \frac{\phi}{o_M (1+\psi)} \log \left(\frac{v_{ff}^{opt}}{v_{ff}^{avg}} \right) Lh dx = -hL^2 \frac{\phi}{o_M (1+\psi)} \log(2\beta) \quad (II.33)$$

Finalement, la teneur totale en vides $\%V_{total}$ dans la pièce carrée résultant d'une injection RTM à pression constante avec le même temps de remplissage, en assumant qu'il y a des bulles microscopiques et macroscopiques qui sont formées de front constante, s'écrit :

$$\%V_{total} = \int_{x=0}^{x=\beta L} hL \%V_{micro}(x) dx + \int_{x=\beta L}^{x=L} hL \%V_{macro}(x) dx \quad (II.34)$$

$$\%V_{total} = \int_{x=0}^{x=\beta L} \frac{hL \phi \psi}{o_m (1+\psi)} \log \left(\frac{v_{ff}(x)}{v_{ff}^{opt}} \right) dx + \int_{x=\beta L}^{x=L} \frac{hL \phi}{o_M (1+\psi)} \log \left(\frac{v_{ff}^{opt}}{v_{ff}(x)} \right) dx \quad (II.35)$$

En substituant l'équation (II.27) dans l'équation (II.35) et en développant, on obtient :

$$\%V_{total} = \int_{x=0}^{x=\beta L} \frac{hL \phi \psi}{o_m (1+\psi)} \log \left(\frac{\beta L}{x} \right) dx - \int_{x=\beta L}^{x=L} \frac{hL \phi}{o_M (1+\psi)} \log \left(\frac{\beta L}{x} \right) dx \quad (II.36)$$

$$\%V_{total} = \frac{Lh \phi \psi}{o_m (1+\psi) \ln(10)} \int_{x=0}^{x=\beta L} (\ln(\beta L) - \ln x) dx - \frac{Lh \phi}{o_M (1+\psi)} \int_{x=\beta L}^{x=L} (\ln(\beta L) - \ln x) dx \quad (II.37)$$

$$\%V_{total} = \frac{Lh \phi}{(1+\psi) \ln(10)} \left(\frac{\psi}{o_m} \left[x \ln(\beta L) - (x \ln x - x) \right]_{x=0}^{x=\beta L} - \frac{1}{o_M} \left[x \ln(\beta L) - (x \ln x - x) \right]_{x=\beta L}^{x=L} \right) \quad (II.38)$$

$$\%V_{total} = \frac{Lh \phi}{(1+\psi)\ln(10)} \left(\frac{\psi\beta L}{o_m} - \frac{L}{o_M} [\ln(\beta) + 1 - \beta] \right) \quad (II.39)$$

En divisant l'équation (II.39) par l'équation (II.31) ou par l'équation (II.33), on obtient pour le cas $\beta < 0.5$ (seulement des bulles macroscopiques):

$$Ratio \%V_{total} = \frac{\frac{1}{o_m} \cdot (\psi\beta \cdot o_M - o_m \cdot [\ln(\beta) + 1 - \beta])}{-\ln(2\beta)} \quad (II.40)$$

Et pour le cas $\beta > 0.5$ (seulement des vides microscopiques):

$$Ratio \%V_{total} = \frac{\frac{1}{o_M} \cdot (\psi\beta \cdot o_M - o_m \cdot [\ln(\beta) + 1 - \beta])}{\psi \cdot \ln(2\beta)} \quad (II.41)$$

Lorsque le ratio de formation des bulles $Ratio \%V_{total}$ vaut 1, il y a une transition entre une situation où il est préférable d'effectuer une injection à pression constante par rapport à une injection à vitesse de front constante. Cette transition est atteinte pour diverses valeurs de β en fonction du ratio volumique de pores ψ . Cette valeur de transition β^{trans} peut être évaluée à l'aide de la méthode de la sécante ou de la méthode itérative du point fixe si la valeur ψ est connue *a priori*:

$$\beta_{i+1}^{trans} = \frac{1}{2} \cdot e^{-\left[\frac{1}{o_m} \left(\psi \beta_i^{trans} \cdot o_M - o_m \cdot [\ln(\beta_i^{trans}) + 1 - \beta_i^{trans}] \right) \right]} \quad (II.42)$$

À partir de l'équation (II.29), une vitesse moyenne de front v_{ff}^{trans} pour laquelle il y a la transition entre les deux scénarios optimaux d'injection, d'un point de vue de la minimisation de la formation des bulles, peut être déduite, et ce, pour un temps de remplissage identique:

$$\frac{v_{ff}^{trans}}{v_{ff}^{opt}} = 2\beta^{trans}(\psi) \quad (II.43)$$

En effet, si $(v_{ff}^{moy} / v_{ff}^{opt}) < 2\beta^{trans}(\psi)$, il devient avantageux d'effectuer une injection à pression constante. Sinon, il est plutôt avantageux de réaliser une injection à vitesse de front constante. Du

point de vue du temps de remplissage, le temps de remplissage optimal t_{remp}^{opt} se définit comme suit :

$$t_{remp}^{opt} = \frac{L}{v_{ff}^{opt}} \quad (II.44)$$

D'un autre côté, le vrai temps de remplissage t_{remp} pour les deux stratégies d'injection, à savoir l'injection à vitesse de front constante et à pression constante, se définit plutôt comme suit :

$$t_{remp} = \frac{L}{v_{ff}^{moy}} = \frac{L}{2\beta v_{ff}^{opt}} \quad (II.45)$$

Par conséquent, le ratio de temps de remplissage s'écrit:

$$Ratio\ t_{remp} = \frac{t_{remp}}{t_{remp}^{opt}} = \frac{\frac{L}{2\beta v_{ff}^{opt}}}{\frac{L}{v_{ff}^{opt}}} = \frac{1}{2\beta} \quad (II.46)$$

Quant à lui, le temps de remplissage pour lequel il y a une transition (en ce qui concerne la stratégie optimale:

$$t_{remp}^{trans}(\psi) = \frac{L}{2\beta^{trans}(\psi) v_{ff}^{opt}} \quad (II.47)$$

Ainsi, le ratio de temps de remplissage de transition comparativement au temps de remplissage optimal est défini comme suit:

$$Ratio\ t_{remp}^{trans}(\psi) = \frac{t_{remp}^{trans}(\psi)}{t_{remp}^{opt}} = \frac{\frac{L}{2\beta^{trans}(\psi) v_{ff}^{opt}}}{\frac{L}{v_{ff}^{opt}}} = \frac{1}{2\beta^{trans}(\psi)} \quad (II.48)$$

Par conséquent, si $t_{remp} > t_{remp}^{trans}(\psi)$, il devient avantageux de réaliser une injection à pression constante. Sinon, il est préférable d'effectuer une injection à vitesse de front constante. Ce ratio de temps de remplissage de transition a été tracé en fonction du ratio volumique de pores ψ à la Figure pour deux valeurs de facteurs empiriques α_m donnés, à savoir 1 et 8 (ces deux valeurs sont

des valeurs extrêmes de la plage typique des valeurs o_m). Dans la section bleue (inférieure), et ce, jusqu'à la ligne frontière, les ratios de formation des bulles $Ratio \%V_{total}$ décrient par les équations (II.40) et (II.41) sont toujours supérieurs à 1. Par conséquent, la teneur totale en vides est plus élevée pour une injection à pression constante qu'une injection à vitesse de front constante. Dans la section rouge (supérieure), et ce, jusqu'à la ligne frontière, les ratios de formation des bulles $Ratio \%V_{total}$ sont toujours inférieurs à 1. Par conséquent, la teneur totale en vides est plus faible pour une injection à pression constante qu'une injection à vitesse de front constante. Il convient de rappeler que pour la comparaison des deux stratégies d'injection, le temps de remplissage est toujours identique.

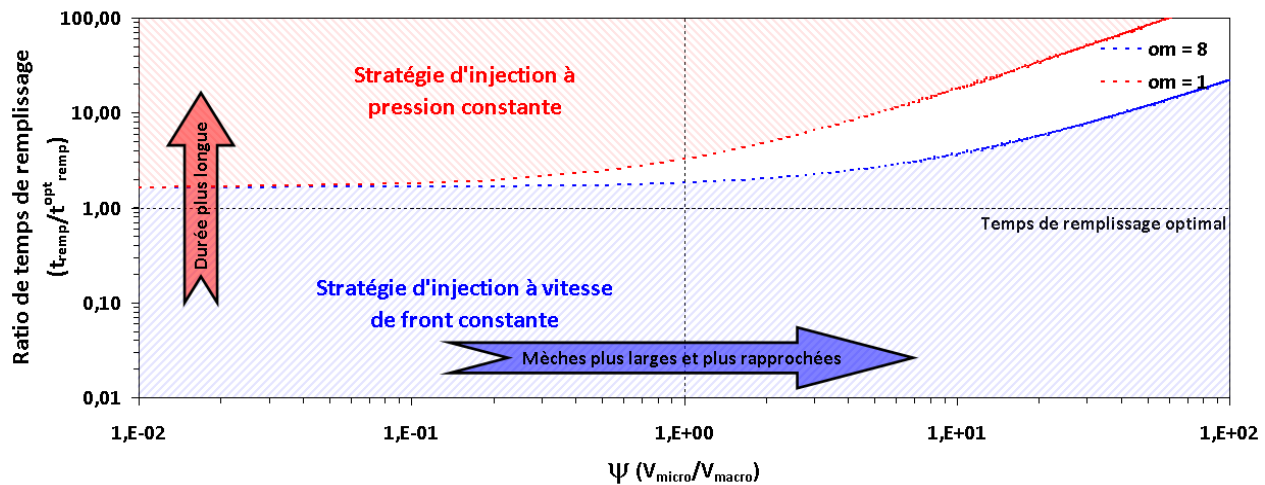


Figure 3 : Diagramme de mouabilité optimale pour une injection RTM unidirectionnelle.

Il est intéressant de noter que, pour une plage typique de facteurs empiriques o_m , il est toujours préférable de procéder à une injection RTM à vitesse de front constante plutôt qu'une injection à pression constante pour des temps de remplissage inférieurs au temps de remplissage optimal. Toutefois, il faut également garder en tête que la pression maximale atteinte au cours des deux stratégies d'injection, pour un temps de remplissage identique, sera différente. En effet, en s'appuyant sur les équations (II.26) et (II.29), le ratio de pression d'injection maximale devient:

$$\frac{\Delta P_{\max}|_{v_{cst}}}{\Delta P_{cst}} = \frac{2v_{ff}^{opt} \mu \phi \beta L / K}{v_{ff}^{opt} \mu \phi \beta L / K} = 2 \quad (\text{II.49})$$

Par conséquent, la pression d'injection à la fin du remplissage de la cavité pour l'injection RTM à vitesse de front constante sera le double de la pression d'injection employée pour le remplissage à pression constante, et ce, pour un même temps de remplissage.

II.4 Démonstration pour une injection RTM radiale convergente

Au départ, il est important d'évaluer la distribution du champ de pression d'une injection RTM radiale convergente afin d'être en mesure d'évaluer le gradient de pression au front. En utilisant l'équation de conservation de la masse et en l'intégrant deux fois, on obtient la distribution de la pression $P(r)$ en fonction de la position radiale r :

$$\frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{\partial P}{\partial r} K_{rr} \right) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{\partial P}{\partial r} K_{rr} \right) = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial P}{\partial r} \right) = 0 \quad (\text{II.50})$$

$$\frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial P}{\partial r} \right) = 0 \quad (\text{II.51})$$

$$r \frac{\partial P}{\partial r} = c_1 \rightarrow \frac{\partial P}{\partial r} = \frac{c_1}{r} \quad (\text{II.52})$$

$$P(r) = c_1 \ln r + c_2 \quad (\text{II.53})$$

$$P(r) = (P_i - P_o) \frac{\ln \left(\frac{r}{r_{ff}(t)} \right)}{\ln \left(\frac{R}{r_{ff}(t)} \right)} + P_o \quad (\text{II.54})$$

De cette équation (II.54), le gradient de pression est déduit :

$$\frac{\partial P}{\partial r} = \frac{(P_i - P_o)}{\ln \left(\frac{R}{r_{ff}(t)} \right)} \frac{1}{r} \quad (\text{II.55})$$

Il est en de même de la vitesse d'avancée radiale de front, en s'appuyant sur la loi de *Darcy* (II.21) et la relation de *Dupuit-Forchheimer*:

$$v_{ff}(r) = \frac{dr}{dt} = \frac{q}{\phi} = \frac{K_{rr}}{\mu\phi} \frac{(P_i - P_o)}{\ln\left(\frac{r_{ff}(t)}{R}\right)} \frac{1}{r} \quad (\text{II.56})$$

Le temps de remplissage peut finalement être calculé en intégrant l'équation (II.56) de la manière suivante :

$$\int_0^{t_{rem}} dt = \int_R^a \frac{dr}{v_{ff}(r)} \quad (\text{II.57})$$

$$t_{rem} = -\frac{\mu\phi}{K_{rr}(P_i - P_o)} \int_a^R \ln\left(\frac{r_{ff}(t)}{R}\right) r dr \quad (\text{II.58})$$

$$t_{rem} = -\frac{\mu\phi}{K_{rr}(P_i - P_o)} \int_a^R r \ln\left(\frac{r}{R}\right) dr \quad (\text{II.59})$$

En substituant l'équation (II.2) dans l'équation (II.59), on obtient la prédiction du temps de remplissage suivante :

$$t_{rem} = \frac{\mu\phi R^2}{4 K_{rr}(P_i - P_o)} (1 + \alpha^2 (2 \ln \alpha - 1)) \quad (\text{II.60})$$

À partir de l'équation (II.60), il devient possible d'évaluer l'évolution de la pression au pourtour de la pièce circulaire au cours d'une injection radiale convergente à vitesse de front constante :

$$v_{ff}^{moy} = \frac{R - a}{t_{rem}} = \frac{4 K_{rr}(P_i - P_o)(1 - \alpha)}{\mu\phi R (1 + \alpha^2 (2 \ln \alpha - 1))} \quad (\text{II.61})$$

Pour une injection radiale convergente à pression constante, la vitesse de front optimale, lors de son passage par une position radiale relative β donnée (II.3), s'écrit :

$$v_{ff}^{opt} = \frac{K_{rr}(P_i - P_o)}{\mu\phi} \frac{1}{\ln\left(\frac{r^c}{R}\right)} \frac{1}{r^c} = \frac{K_{rr}(P_i - P_o)}{\mu\phi} \frac{1}{\ln(\beta)} \frac{1}{\beta R} \quad (\text{II.62})$$

En remaniant les termes, on obtient également :

$$v_{ff}^{opt} \cdot \beta \ln \beta = \frac{K_{rr} (P_i - P_o)}{\mu \phi R} \quad (II.63)$$

La substitution de l'équation (II.63) dans l'équation (II.61) donne :

$$v_{ff}^{moy} = \frac{4 v_{ff}^{opt} \cdot \beta (1 - \alpha) \ln \beta}{(\alpha + 1)(\alpha - 1) - 2\alpha^2 \ln \alpha} \quad (II.64)$$

De plus, en substituant l'équation (II.63) dans l'équation (II.56), on obtient l'évolution de la vitesse de front en fonction de sa position mais en utilisant la vitesse d'imprégnation optimale comme référence de calcul :

$$v_{ff}(r) = \frac{v_{ff}^{opt} \cdot \beta \ln \beta}{\ln \left(\frac{r_{ff}(t)}{R} \right)} \frac{R}{r} \quad (II.65)$$

En divisant l'équation (II.64) par v_{ff}^{opt} , on obtient le ratio de vitesses $R_{v_{ff}}$ qui suit:

$$R_{v_{ff}} = \frac{4 B (1 - \alpha) \ln B}{(\alpha + 1)(\alpha - 1) - 2\alpha^2 \ln \alpha} \quad (II.66)$$

Un ratio de vitesse de référence $R_{v_{ff}}^{ref}$ a été fixé à 1 et cette valeur est atteinte pour divers couples de valeurs de B pour un α donné. Les couples de valeurs de transition $B^{trans-max}$ et $B^{trans-min}$ peuvent être évaluées à l'aide d'une méthode itérative du point fixe si la valeur de α est connue :

$$B_{i+1}^{trans-max} = \frac{(\alpha + 1)(\alpha - 1) - 2\alpha^2 \ln \alpha}{4(1 - \alpha) \ln(B_i^{trans})} \quad (II.67)$$

et

$$B_{i+1}^{trans-min} = e^{\left(\frac{(\alpha + 1)(\alpha - 1) - 2\alpha^2 \ln \alpha}{4(1 - \alpha) (B_i^{trans})} \right)} \quad (II.68)$$

Si $R_{v_{ff}} > 1$ ($B^{trans-min} < B < B^{trans-max}$), uniquement des bulles microscopiques seront générées durant l'injection RTM radiale convergente à vitesse de front constante. Par conséquent, la teneur totale en vides dans la pièce circulaire, en assumant qu'il y aura seulement des bulles microscopiques, sera:

$$\%V_{total} = \int_{r=a}^{r=R} 2\pi h r \%V_{micro}(r) dr \quad (II.69)$$

Donc, par substitution de l'équation (II.64) dans l'équation (II.69), on obtient :

$$\%V_{total} = \frac{2\pi h \phi \psi}{o_m (1+\psi) \ln(10)} \int_{r=a}^{r=R} r \ln \left(\frac{-4\beta(1-\alpha) \ln \beta}{2\alpha^2 \ln \alpha - (\alpha+1)(\alpha-1)} \right) dr \quad (II.70)$$

$$\%V_{total} = \frac{2\pi h \phi \psi \ln \left(\frac{4\beta(1-\alpha) \ln \beta}{(\alpha+1)(\alpha-1) - 2\alpha^2 \ln \alpha} \right)}{o_m (1+\psi) \ln(10)} \left[\frac{r^2}{2} \right]_{aR}^R \quad (II.71)$$

$$\%V_{total} = \frac{\pi R^2 h \phi (1-\alpha^2) \psi \ln \left(\frac{4\beta(1-\alpha) \ln \beta}{(\alpha+1)(\alpha-1) - 2\alpha^2 \ln \alpha} \right)}{o_m (1+\psi) \ln(10)} \quad (II.72)$$

Si $R_{v_{ff}} < 1$ ($B < B^{trans-min}$ or $B > B^{trans-max}$), uniquement des bulles macroscopiques seront générées durant l'injection RTM radiale convergente à vitesse de front constante. Par conséquent, la teneur totale en vides dans la pièce circulaire, en assumant qu'il y aura seulement des bulles macroscopiques, sera:

$$\%V_{total} = \int_{r=a}^{r=R} 2\pi h r \%V_{macro}(r) dr \quad (II.73)$$

Donc, en substituant l'équation (II.64) dans l'équation (II.73), on obtient :

$$\%V_{total} = \frac{2\pi h \phi}{o_M (1+\psi) \ln(10)} \int_{r=a}^{r=R} r \ln \left(\frac{(\alpha+1)(\alpha-1) - 2\alpha^2 \ln \alpha}{4\beta(1-\alpha) \ln \beta} \right) dr \quad (II.74)$$

$$\%V_{total} = \frac{2\pi h \phi \ln \left(\frac{(\alpha+1)(\alpha-1) - 2\alpha^2 \ln \alpha}{4\beta(1-\alpha) \ln \beta} \right)}{o_M (1+\psi) \ln(10)} \left[\frac{r^2}{2} \right]_{\alpha R}^R \quad (II.75)$$

$$\%V_{total} = \frac{\pi R^2 h \phi (1-\alpha^2) \ln \left(\frac{(\alpha+1)(\alpha-1) - 2\alpha^2 \ln \alpha}{4\beta(1-\alpha) \ln \beta} \right)}{o_M (1+\psi) \ln(10)} \quad (II.76)$$

D'un autre côté, la teneur totale en vides dans la pièce circulaire pour l'injection RTM radiale convergente à pression constante, tout en conservant le même temps de remplissage, s'écrit comme suit :

$$\%V_{total} = 2\pi h \left(\int_{r=a}^{r=r^{c1}} r \%V_{micro}(r) dr + \int_{r=r^{c2}}^{r=R} r \%V_{micro}(r) dr + \int_{r=r^{c1}}^{r=r^{c2}} r \%V_{macro}(r) dr \right) \quad (II.77)$$

Par conséquent, en substituant l'équation (II.65) dans l'équation (II.77), on obtient :

$$\%V_{total} = 2\pi h \left(\int_{r=\alpha R}^{r=\beta_1 R} r \%V_{micro}(r) dr + \int_{r=\beta_2 R}^{r=R} r \%V_{micro}(r) dr + \int_{r=\beta_1 R}^{r=\beta_2 R} r \%V_{macro}(r) dr \right) \quad (II.78)$$

$$\begin{aligned} \%V_{total} = & \frac{2\pi h \phi \psi}{o_m (1+\psi) \ln(10)} \int_{r=\alpha R}^{r=\beta_1 R} r \ln \left(\frac{\beta \ln \beta}{\ln(r/R)} \frac{R}{r} \right) dr \\ & + \frac{2\pi h \phi \psi}{o_m (1+\psi) \ln(10)} \int_{r=\beta_2 R}^{r=R} r \ln \left(\frac{\beta \ln \beta}{\ln(r/R)} \frac{R}{r} \right) dr \\ & - \frac{2\pi h \phi}{o_M (1+\psi) \ln(10)} \int_{r=\beta_1 R}^{r=\beta_2 R} r \ln \left(\frac{\beta \ln \beta}{\ln(r/R)} \frac{R}{r} \right) dr \end{aligned} \quad (II.79)$$

L'équation (II.79) ne peut pas être résolue analytiquement. Donc, la solution de cette équation doit être estimée numériquement. En effet, en employant :

$$r = a + \frac{(R-a)i}{n} = R \left(\alpha + \frac{(1-\alpha)i}{n} \right) \quad (\text{II.80})$$

et

$$dr = \frac{(R-a)}{n} = \frac{R(1-\alpha)}{n} \quad (\text{II.81})$$

On peut intégrer numériquement l'équation (II.79) comme suit :

$$I_{m1} = \int_{r=\alpha R}^{r=\beta_1 R} r \ln \left(\frac{\beta \ln \beta}{\ln(r/R)} \frac{R}{r} \right) dr = \sum_{i=1}^{n_{\beta 1}} r_i \cdot \ln \left(\frac{\beta \ln \beta}{\ln(r_i/R)} \frac{R}{r_i} \right) \Delta r \quad (\text{II.82})$$

$$I_{m1} = \frac{(1-\alpha)}{n} \cdot R^2 \sum_{i=0}^{n_{\beta 1}} \left(\alpha + \frac{(1-\alpha)i}{n} \right) \cdot \ln \left(\frac{\beta \ln \beta}{\ln \left(\alpha + \frac{(1-\alpha)i}{n} \right)} \cdot \frac{1}{\left(\alpha + \frac{(1-\alpha)i}{n} \right)} \right) \quad (\text{II.83})$$

$$I_{m1} = \frac{(1-\alpha)}{n} \cdot R^2 \cdot m_1 \quad (\text{II.84})$$

et

$$I_{m2} = \int_{r=\beta_2 R}^{r=R} r \ln \left(\frac{\beta \ln \beta}{\ln(r/R)} \frac{R}{r} \right) dr = \sum_{i=n_{\beta 2}}^n r_i \cdot \ln \left(\frac{\beta \ln \beta}{\ln(r_i/R)} \frac{R}{r_i} \right) \Delta r \quad (\text{II.85})$$

$$I_{m2} = \frac{(1-\alpha)}{n} \cdot R^2 \sum_{i=n_{\beta 2}}^n \left(\alpha + \frac{(1-\alpha)i}{n} \right) \cdot \ln \left(\frac{\beta \ln \beta}{\ln \left(\alpha + \frac{(1-\alpha)i}{n} \right)} \cdot \frac{1}{\left(\alpha + \frac{(1-\alpha)i}{n} \right)} \right) \quad (\text{II.86})$$

$$I_{m2} = \frac{(1-\alpha)}{n} \cdot R^2 \cdot m_2 \quad (\text{II.87})$$

et finalement

$$I_M = \int_{r=\beta_1 R}^{r=\beta_2 R} r \ln \left(\frac{\beta \ln \beta}{\ln \left(\frac{r}{R} \right)} \frac{R}{r} \right) dr = \sum_{i=n_{\beta 1}}^{n_{\beta 2}} r_i \cdot \ln \left(\frac{\beta \ln \beta}{\ln \left(\frac{r_i}{R} \right)} \frac{R}{r_i} \right) \Delta r \quad (\text{II.88})$$

$$I_M = \frac{(1-\alpha)}{n} \cdot R^2 \sum_{i=n_{\beta 1}}^{n_{\beta 2}} \left(\alpha + \frac{(1-\alpha)i}{n} \right) \cdot \ln \left(\frac{\beta \ln \beta}{\ln \left(\alpha + \frac{(1-\alpha)i}{n} \right)} \cdot \frac{1}{\left(\alpha + \frac{(1-\alpha)i}{n} \right)} \right) \quad (\text{II.89})$$

$$I_M = \frac{(1-\alpha)}{n} \cdot R^2 \cdot M \quad (\text{II.90})$$

En sommant chacune des composantes de l'intégrale numérique, on obtient :

$$\%V_{total} = \frac{2\pi R^2 h \phi \cdot \frac{(1-\alpha)}{n}}{(1+\psi) \ln(10)} \left(\frac{\psi \cdot m_1}{o_m} + \frac{\psi \cdot m_2}{o_m} - \frac{M}{o_M} \right) \quad (\text{II.91})$$

Par conséquent, le ratio de formation de bulles s'écrit comme suit:

$$\text{Ratio } \%V_{total} = \frac{\frac{2}{n(1+\alpha)} \cdot \left(m_1 + m_2 - \frac{o_m \cdot M}{\psi \cdot o_M} \right)}{\ln \left(\frac{4\beta(1-\alpha) \ln \beta}{(\alpha+1)(\alpha-1) - 2\alpha^2 \ln \alpha} \right)} \quad (\text{II.92})$$

ou

$$\text{Ratio } \%V_{total} = - \frac{\frac{2}{n(1+\alpha)} \cdot \left(\frac{\psi \cdot o_M \cdot m_1}{o_m} + \frac{\psi \cdot o_M \cdot m_2}{o_m} - M \right)}{\ln \left(\frac{4\beta(1-\alpha) \ln \beta}{(\alpha+1)(\alpha-1) - 2\alpha^2 \ln \alpha} \right)} \quad (\text{II.93})$$

Lorsque le ratio de formation des bulles $\text{Ratio } \%V_{total}$ vaut 1, il y a une transition entre une situation où il est préférable d'effectuer une injection à pression constante par rapport à une injection à vitesse de front constante. Cette transition est atteinte pour diverses valeurs de β en fonction du ratio volumique de pores ψ et de la taille relative du pore d'évent α . Cette valeur de

transition β^{trans} peut être évaluée à l'aide de la méthode de la sécante ou de la méthode itérative du point fixe si les valeurs ψ et α sont connues *a priori*:

$$\beta_{i+1}^{trans} = \frac{(1+\alpha)(\alpha-1) - 2\alpha^2 \ln(\alpha)}{4(1-\alpha) \ln(\beta_i^{trans})} \cdot e^{\left[\frac{2}{n(1+\alpha)} \left(m_1 + m_2 - \frac{o_m \cdot M}{\psi \cdot o_M} \right) \right]} \quad (II.94)$$

À partir de l'équation (II.64), une vitesse moyenne de front v_{ff}^{trans} pour laquelle il y a la transition entre les deux scénarios optimaux d'injection, d'un point de vue de la minimisation de la formation des bulles, peut être déduite, et ce, pour un temps de remplissage identique:

$$\frac{v_{ff}^{moy}}{v_{ff}^{opt}} = \zeta^{trans} = \frac{4 \beta^{trans}(\alpha, \psi)(1-\alpha) \ln \beta^{trans}(\alpha, \psi)}{(\alpha+1)(\alpha-1) - 2\alpha^2 \ln \alpha} \quad (II.95)$$

En effet, si $(v_{ff}^{moy} / v_{ff}^{opt}) < \zeta^{trans}$, il devient donc avantageux de réaliser une injection radiale convergente à pression constante. Sinon, il est préférable d'effectuer une injection à vitesse de front constante. Du point de vue du temps de remplissage, le temps de remplissage optimal t_{rem}^{opt} se définit comme suit :

$$t_{rem}^{opt} = \frac{R(1-\alpha)}{v_{ff}^{opt}} \quad (II.96)$$

D'un autre côté, le vrai temps de remplissage t_{rem} pour les deux stratégies d'injection, à savoir l'injection à vitesse de front constante et à pression constante, se définit plutôt comme suit :

$$t_{rem} = \frac{R(1-\alpha)}{v_{ff}^{moy}} = \frac{R(1-\alpha)}{\frac{4 v_{ff}^{opt} \cdot \beta(1-\alpha) \ln \beta}{(\alpha+1)(\alpha-1) - 2\alpha^2 \ln \alpha}} \quad (II.97)$$

Par conséquent, le ratio de temps de remplissage s'écrit:

$$Ratio \ t_{rem} = \frac{t_{rem}}{t_{rem}^{opt}} = \frac{(\alpha+1)(\alpha-1) - 2\alpha^2 \ln \alpha}{4 \beta(1-\alpha) \ln \beta} \quad (II.98)$$

Quant à lui, le temps de remplissage pour lequel il y a une transition (en ce qui concerne la stratégie optimale:

$$t_{rem}^{trans}(\alpha, \psi) = \frac{R(1-\alpha)}{4 v_{ff}^{opt} \beta^{trans}(\alpha, \psi)(1-\alpha) \ln \beta^{trans}(\alpha, \psi)} \quad (II.99)$$

$$(\alpha+1)(\alpha-1) - 2\alpha^2 \ln \alpha$$

Ainsi, le ratio de temps de remplissage de transition comparativement au temps de remplissage optimal est défini comme suit:

$$Ratio \ t_{rem}^{trans}(\alpha, \psi) = \frac{t_{rem}^{trans}(\alpha, \psi)}{t_{rem}^{opt}} = \frac{(\alpha+1)(\alpha-1) - 2\alpha^2 \ln \alpha}{4 \beta^{trans}(\alpha, \psi)(1-\alpha) \ln \beta^{trans}(\alpha, \psi)} \quad (II.100)$$

Par conséquent, si $t_{rem} > t_{rem}^{trans}(\alpha, \psi)$, il devient avantageux de réaliser une injection à pression constante. Sinon, il est préférable d'effectuer une injection à vitesse de front constante. Ce ratio de temps de remplissage de transition a été tracé en fonction du ratio volumique de pores ψ et de la taille relative du port d'évent α à la Figure 4 pour deux valeurs de facteurs empiriques o_m donnés, à savoir 1 et 8 (ces deux valeurs sont des valeurs extrêmes de la plage typique des valeurs o_m). Dans la section bleue (inférieure), et ce, jusqu'à la ligne frontière, les ratios de formation des bulles $Ratio \%V_{total}$ décrient par les équations (II.92) et (II.93) sont toujours supérieurs à 1. Par conséquent, la teneur totale en vides est plus élevée pour une injection à pression constante qu'une injection à vitesse de front constante. Dans la section rouge (supérieure), et ce, jusqu'à la ligne frontière, les ratios de formation des bulles $Ratio \%V_{total}$ sont toujours inférieurs à 1. Par conséquent, la teneur totale en vides est plus faible pour une injection à pression constante qu'une injection à vitesse de front constante. Il convient de rappeler que pour la comparaison des deux stratégies d'injection, le temps de remplissage est toujours identique.

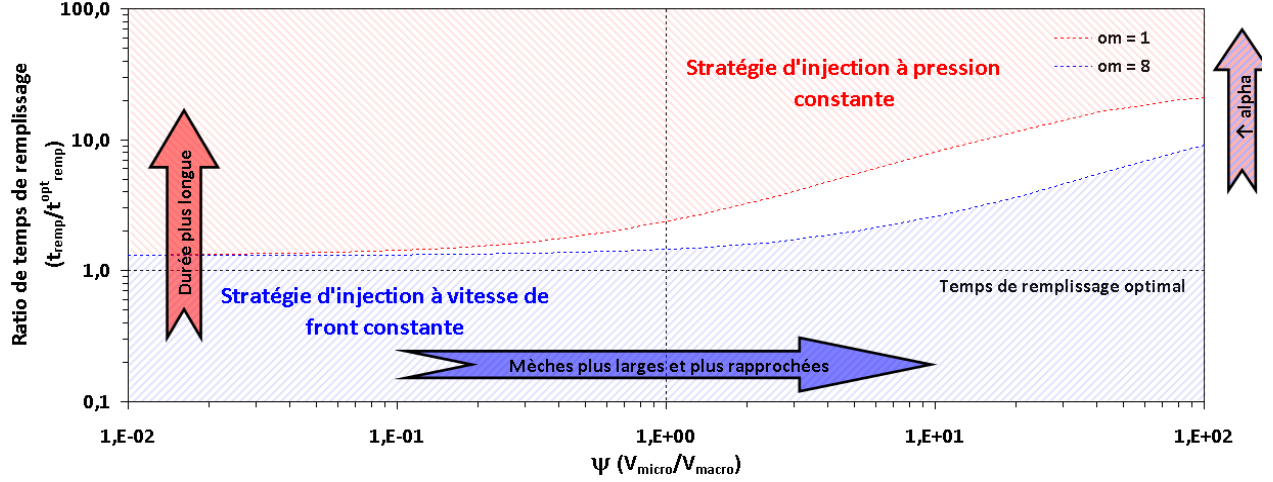


Figure 4 : Diagramme de moulabilité optimale pour une injection RTM radiale convergente.

Il faut également garder en tête que la pression maximale atteinte au cours des deux stratégies d'injection, pour un temps de remplissage identique, sera différente. En effet, en s'appuyant sur les équations (II.56) et (II.61), le ratio de pression d'injection maximale χ devient:

$$\chi = \frac{4(1-\alpha) \cdot f(\rho)}{(\alpha-1)(\alpha+1) - 2\alpha^2 \ln(\alpha)} \quad (\text{II.101})$$

où

$$f(\rho) = \rho \ln(\rho) \quad (\text{II.102})$$

et ainsi:

$$f_{\max} : \frac{\partial f}{\partial \rho} = \ln(\rho) + \frac{\rho}{\rho} = 0 \quad (\text{II.103})$$

$$\ln(\rho) = -1 \rightarrow \rho = e^{-1} \approx 0.367879$$

Par conséquent,

$$\chi = \frac{4\rho(1-\alpha)}{2\alpha^2 \ln(\alpha) - (\alpha-1)(\alpha+1)} \quad (\text{II.104})$$

Par conséquent, la pression d'injection à la fin du remplissage de la cavité pour l'injection RTM à vitesse de front constante sera χ fois la pression d'injection employée pour le remplissage à pression constante, et ce, pour un même temps de remplissage.

II.5 Démonstration pour une injection RTM radiale divergente

Au départ, il est important d'évaluer la distribution du champ de pression d'une injection RTM radiale convergente afin d'être en mesure d'évaluer le gradient de pression au front. En utilisant l'équation de conservation de la masse et en l'intégrant deux fois, on obtient la distribution de la pression $P(r)$ en fonction de la position radiale r :

$$\frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{\partial P}{\partial r} K_{rr} \right) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{\partial P}{\partial r} K_{rr} \right) = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial P}{\partial r} \right) = 0 \quad (\text{II.105})$$

$$\frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial P}{\partial r} \right) = 0 \quad (\text{II.106})$$

$$r \frac{\partial P}{\partial r} = c_1 \rightarrow \frac{\partial P}{\partial r} = \frac{c_1}{r} \quad (\text{II.107})$$

$$P(r) = c_1 \ln r + c_2 \quad (\text{II.108})$$

$$P(r) = (P_i - P_o) \frac{\ln \left(\frac{r}{r_{ff}(t)} \right)}{\ln \left(\frac{a}{r_{ff}(t)} \right)} + P_o \quad (\text{II.109})$$

De cette équation (II.109), le gradient de pression est déduit :

$$\frac{\partial P}{\partial r} = \frac{(P_i - P_o)}{\ln \left(\frac{a}{r_{ff}(t)} \right)} \frac{1}{r} \quad (\text{II.110})$$

Il est en de même de la vitesse d'avancée radiale de front, en s'appuyant sur la loi de *Darcy* (II.21) et la relation de *Dupuit-Forchheimer*:

$$v_{ff}(r) = \frac{q}{\phi} = \frac{K_{rr}}{\mu\phi} \frac{(P_i - P_o)}{\ln\left(\frac{r_{ff}(t)}{a}\right)} \frac{1}{r} \quad (\text{II.111})$$

Le temps de remplissage peut finalement être calculé en intégrant l'équation (II.111) de la manière suivante :

$$\int_0^{t_{temp}} dt = \int_a^R \frac{dr}{v_{pore}} \quad (\text{II.112})$$

$$t_{temp} = \frac{\mu\phi}{K_{rr}(P_i - P_o)} \int_a^R \ln\left(\frac{r_{ff}(t)}{a}\right) r dr \quad (\text{II.113})$$

$$t_{temp} = \frac{\mu\phi}{K_{rr}(P_i - P_o)} \int_a^R r \ln\left(\frac{r}{a}\right) dr \quad (\text{II.114})$$

En substituant l'équation (II.2) dans l'équation (II.114), on obtient la prédiction du temps de remplissage suivante :

$$t_{temp} = \frac{\mu\phi R^2}{4 K_{rr}(P_i - P_o)} \left(\left(\ln\left(\frac{1}{\alpha}\right)^2 - 1 \right) + \alpha^2 \right) \quad (\text{II.115})$$

À partir de l'équation (II.115), il devient possible d'évaluer l'évolution de la pression au centre de la pièce circulaire au cours d'une injection radiale divergente à vitesse de front constante :

$$v_{ff}^{moy} = \frac{R-a}{t_{temp}} = \frac{4 K_{rr}(P_i - P_o)(1-\alpha)}{\mu\phi R \alpha^2 \left(\frac{1}{\alpha^2} \left(\ln\left(\frac{1}{\alpha}\right)^2 - 1 \right) + 1 \right)} \quad (\text{II.116})$$

Pour une injection radiale divergente à pression constante, la vitesse de front optimale, lors de son passage par une position radiale relative β donnée (II.3), s'écrit :

$$v_{ff}^{opt} = \frac{K_{rr}}{\mu\phi} \frac{(P_i - P_o)}{\ln\left(\frac{r^c}{a}\right)} \frac{1}{r^c} = \frac{K_{rr}}{\mu\phi} \frac{(P_i - P_o)}{\ln\left(\frac{\beta}{\alpha}\right)} \frac{1}{\beta R} \quad (\text{II.117})$$

En remaniant les termes, on obtient également :

$$v_{ff}^{opt} \cdot \beta \ln\left(\frac{\beta}{\alpha}\right) = \frac{K_{rr} (P_i - P_o)}{\mu \phi R} \quad (II.118)$$

La substitution de l'équation (II.118) dans l'équation (II.116) donne :

$$v_{ff}^{moy} = \frac{4 v_{ff}^{opt} \beta (1-\alpha) \ln\left(\frac{\beta}{\alpha}\right)}{\alpha^2 \left(\frac{1}{\alpha^2} \left(\ln\left(\frac{1}{\alpha}\right)^2 - 1 \right) + 1 \right)} = \frac{4 v_{ff}^{opt} \beta (1-\alpha) \ln(\beta/\alpha)}{(\alpha-1)(\alpha+1) - 2 \ln(\alpha)} \quad (II.119)$$

De plus, en substituant l'équation (II.118) dans l'équation (II.111), on obtient l'évolution de la vitesse de front en fonction de sa position mais en utilisant la vitesse d'imprégnation optimale comme référence de calcul :

$$v_{ff}(r) = \frac{v_{ff}^{opt} \cdot \beta \ln\left(\frac{\beta}{\alpha}\right) \frac{R}{r}}{\ln\left(\frac{r_{ff}(t)}{a}\right)} \quad (II.120)$$

En divisant l'équation (II.119) par v_{ff}^{opt} , on obtient le ratio de vitesses $R_{v_{ff}}$ qui suit:

$$R_{v_{ff}} = \frac{4 B (1-\alpha) \ln(B/\alpha)}{(\alpha-1)(\alpha+1) - 2 \ln(\alpha)} \quad (II.121)$$

Un ratio de vitesse de référence $R_{v_{ff}}^{ref}$ a été fixé à 1 et cette valeur est atteinte pour diverses valeurs de B pour un α donné. Les valeurs de transition B^{trans} peuvent être évaluées à l'aide d'une méthode itérative du point fixe si la valeur de α est connue :

$$B_{i+1}^{trans} = \frac{(\alpha-1)(\alpha+1) - 2 \ln(\alpha)}{4(1-\alpha) \ln(B_i^{trans}/\alpha)} \quad (II.122)$$

Si $R_{v_{ff}} > 1$ ($B > B^{trans}$), uniquement des bulles microscopiques seront générées durant l'injection RTM radiale divergente à vitesse de front constante. Par conséquent, la teneur totale en vides dans la pièce circulaire, en assumant qu'il y aura seulement des bulles microscopiques, sera:

$$\%V_{total} = \int_{r=a}^{r=R} 2\pi h r \%V_{micro}(r) dr \quad (II.123)$$

Donc, par substitution de l'équation (II.119) dans l'équation (II.123), on obtient :

$$\%V_{total} = \frac{2\pi h \phi \psi}{o_m(1+\psi) \ln(10)} \int_{r=a}^{r=R} r \ln \left(\frac{4\beta(1-\alpha) \ln(\beta/\alpha)}{(\alpha-1)(\alpha+1)-2\ln(\alpha)} \right) dr \quad (II.124)$$

$$\%V_{total} = \frac{2\pi h \phi \psi \ln \left(\frac{4\beta(1-\alpha) \ln(\beta/\alpha)}{(\alpha-1)(\alpha+1)-2\ln(\alpha)} \right)}{o_m(1+\psi) \ln(10)} \left[\frac{r^2}{2} \right]_{\alpha R}^R \quad (II.125)$$

$$\%V_{total} = \frac{\pi R^2 h \phi \psi (1-\alpha^2) \ln \left(\frac{4\beta(1-\alpha) \ln(\beta/\alpha)}{(\alpha-1)(\alpha+1)-2\ln(\alpha)} \right)}{o_m(1+\psi) \ln(10)} \quad (II.126)$$

Si $R_{V_{ff}} < 1$ ($B < B^{trans}$), uniquement des bulles macroscopiques seront générées durant l'injection RTM radiale divergente à vitesse de front constante. Par conséquent, la teneur totale en vides dans la pièce circulaire, en assumant qu'il y aura seulement des bulles macroscopiques, sera:

$$\%V_{total} = \int_{r=a}^{r=R} 2\pi h r \%V_{macro}(r) dr \quad (II.127)$$

Donc, en substituant l'équation (II.119) dans l'équation (II.127), on obtient :

$$\%V_{total} = \frac{2\pi h \phi}{o_M(1+\psi) \ln(10)} \int_{r=a}^{r=R} r \ln \left(\frac{(\alpha-1)(\alpha+1)-2\ln(\alpha)}{4\beta(1-\alpha) \ln(\beta/\alpha)} \right) dr \quad (II.128)$$

$$\%V_{total} = \frac{2\pi h \phi \ln \left(\frac{(\alpha-1)(\alpha+1)-2\ln(\alpha)}{4\beta(1-\alpha) \ln(\beta/\alpha)} \right)}{o_M(1+\psi) \ln(10)} \left[\frac{r^2}{2} \right]_{\alpha R}^R \quad (II.129)$$

$$\%V_{total} = \frac{\pi R^2 h \phi (1-\alpha^2) \ln \left(\frac{(\alpha-1)(\alpha+1)-2\ln(\alpha)}{4\beta(1-\alpha) \ln(\beta/\alpha)} \right)}{o_M(1+\psi) \ln(10)} \quad (II.130)$$

D'un autre côté, la teneur totale en vides dans la pièce circulaire pour l'injection RTM radiale divergente à pression constante, tout en conservant le même temps de remplissage, s'écrit comme suit :

$$\%V_{total} = \int_{r=a}^{r=r^c} 2\pi h r \%V_{micro}(r) dr + \int_{r=r^c}^{r=R} 2\pi h r \%V_{macro}(r) dr \quad (II.131)$$

Par conséquent, en substituant l'équation (II.120) dans l'équation (II.131), on obtient :

$$\%V_{total} = \int_{r=a}^{r=\beta R} 2\pi h r \%V_{micro}(r) dr + \int_{r=\beta R}^{r=R} 2\pi h r \%V_{macro}(r) dr \quad (II.132)$$

$$\begin{aligned} \%V_{total} = & \frac{2\pi h \phi \gamma}{o_m (1+\gamma) \ln(10)} \int_{r=\alpha R}^{r=\beta R} r \ln \left(\frac{\beta \ln \left(\frac{\beta}{\alpha} \right) R}{\ln \left(\frac{r}{a} \right) r} \right) dr \\ & - \frac{2\pi h \phi}{o_M (1+\gamma) \ln(10)} \int_{r=\beta R}^{r=R} r \ln \left(\frac{\beta \ln \left(\frac{\beta}{\alpha} \right) R}{\ln \left(\frac{r}{a} \right) r} \right) dr \end{aligned} \quad (II.133)$$

L'équation (II.133) ne peut pas être résolue analytiquement. Donc, la solution de cette équation doit être estimée numériquement. En effet, en employant :

$$r = a + \frac{(R-a)i}{n} = R \left(\alpha + \frac{(1-\alpha)i}{n} \right) \quad (II.134)$$

et

$$dr = \frac{(R-a)}{n} = \frac{R(1-\alpha)}{n} \quad (II.135)$$

On peut intégrer numériquement l'équation (II.133) comme suit :

$$I_m = \int_{r=\alpha R}^{r=\beta R} r \ln \left(\frac{\beta \ln \left(\frac{\beta}{\alpha} \right) R}{\ln \left(\frac{r}{a} \right) r} \right) dr = \sum_{i=1}^n r_i \cdot \ln \left(\frac{\beta \ln \left(\frac{\beta}{\alpha} \right) R}{\ln \left(\frac{r_i}{\alpha R} \right) r_i} \right) \Delta r \quad (\text{II.136})$$

$$I_m = \frac{(1-\alpha)}{n} \cdot R^2 \sum_{i=0}^{n_\beta} \left(\alpha + \frac{(1-\alpha)i}{n} \right) \cdot \ln \left(\frac{\beta \ln \left(\frac{\beta}{\alpha} \right)}{\ln \left(1 + \frac{(1-\alpha)i}{\alpha n} \right)} \cdot \frac{1}{\left(\alpha + \frac{(1-\alpha)i}{n} \right)} \right) \quad (\text{II.137})$$

$$I_m = \frac{(1-\alpha)}{n} \cdot R^2 \cdot m \quad (\text{II.138})$$

et

$$I_M = \int_{r=\beta R}^{r=R} r \ln \left(\frac{\beta \ln \left(\frac{\beta}{\alpha} \right) R}{\ln \left(\frac{r}{a} \right) r} \right) dr = \sum_{i=1}^n r_i \cdot \ln \left(\frac{\beta \ln \left(\frac{\beta}{\alpha} \right) R}{\ln \left(\frac{r_i}{\alpha R} \right) r_i} \right) \Delta r \quad (\text{II.139})$$

$$I_M = \frac{(1-\alpha)}{n} \cdot R^2 \sum_{i=n_\beta}^n \left(\alpha + \frac{(1-\alpha)i}{n} \right) \cdot \ln \left(\frac{\beta \ln \left(\frac{\beta}{\alpha} \right)}{\ln \left(1 + \frac{(1-\alpha)i}{\alpha n} \right)} \cdot \frac{1}{\left(\alpha + \frac{(1-\alpha)i}{n} \right)} \right) \quad (\text{II.140})$$

$$I_M = \frac{(1-\alpha)}{n} \cdot R^2 \cdot M \quad (\text{II.141})$$

En sommant chacune des composantes de l'intégrale numérique, on obtient :

$$\%V_{total} = \frac{2\pi R^2 h \phi \cdot \frac{(1-\alpha)}{n}}{(1+\psi) \ln(10)} \left(\frac{\psi \cdot m}{o_m} - \frac{M}{o_M} \right) \quad (\text{II.142})$$

Par conséquent, le ratio de formation de bulles $Ratio \%V_{total}$ s'écrit comme suit:

$$Ratio \%V_{total} = \frac{\frac{2}{n(\alpha+1)} \left(m - \frac{o_m \cdot M}{\psi \cdot o_M} \right)}{\ln \left(\frac{4\beta(1-\alpha) \ln(\beta/\alpha)}{(\alpha-1)(\alpha+1) - 2\ln(\alpha)} \right)} \quad (II.143)$$

ou

$$Ratio \%V_{total} = - \frac{\frac{2}{n(\alpha+1)} \left(\frac{\psi \cdot o_M \cdot m}{o_m} - M \right)}{\ln \left(\frac{4\beta(1-\alpha) \ln(\beta/\alpha)}{(\alpha-1)(\alpha+1) - 2\ln(\alpha)} \right)} \quad (II.144)$$

Lorsque le ratio de formation des bulles $Ratio \%V_{total}$ vaut 1, il y a une transition entre une situation où il est préférable d'effectuer une injection à pression constante par rapport à une injection à vitesse de front constante. Cette transition est atteinte pour diverses valeurs de β en fonction du ratio volumique de pores ψ et de la taille relative du port d'injection α . Cette valeur de transition β^{trans} peut être évaluée à l'aide de la méthode de la sécante ou de la méthode itérative du point fixe si les valeurs ψ et α sont connues *a priori*:

$$\beta_{i+1}^{trans} = \frac{(1+\alpha)(\alpha-1) - 2\ln(\alpha)}{4(1-\alpha)\ln(\beta_i^{trans}/\alpha)} \cdot e^{\left[\frac{2}{n(\alpha+1)} \left(\frac{\psi \cdot o_M \cdot m}{o_m} - M \right) \right]} \quad (II.145)$$

À partir de l'équation (II.119), une vitesse moyenne de front v_{ff}^{trans} pour laquelle il y a la transition entre les deux scénarios optimaux d'injection, d'un point de vue de la minimisation de la formation des bulles, peut être déduite, et ce, pour un temps de remplissage identique:

$$\frac{v_{ff}^{moy}}{v_{ff}^{opt}} = \zeta^{trans} = \frac{4 \beta^{trans}(\alpha, \psi) (1-\alpha) \ln(\beta^{trans}(\alpha, \psi)/\alpha)}{(\alpha-1)(\alpha+1) - 2\ln(\alpha)} \quad (II.146)$$

En effet, si $(v_{ff}^{moy}/v_{ff}^{opt}) < \zeta^{trans}$, il devient donc avantageux de réaliser une injection radiale convergente à vitesse de front constante. Sinon, il est préférable d'effectuer une injection à

pression constante Du point de vue du temps de remplissage, le temps de remplissage optimal t_{rem}^{opt} se définit comme suit :

$$t_{rem}^{opt} = \frac{R(1-\alpha)}{v_{ff}^{opt}} \quad (II.147)$$

D'un autre côté, le vrai temps de remplissage t_{rem} pour les deux stratégies d'injection, à savoir l'injection à vitesse de front constante et à pression constante, se définit plutôt comme suit :

$$t_{rem} = \frac{R(1-\alpha)}{v_{ff}^{moy}} = \frac{R(1-\alpha)}{\frac{4 v_{ff}^{opt} \beta(1-\alpha) \ln(\beta/\alpha)}{(\alpha-1)(\alpha+1)-2\ln(\alpha)}} \quad (II.148)$$

Par conséquent, le ratio de temps de remplissage s'écrit:

$$Ratio\ t_{rem} = \frac{t_{rem}}{t_{rem}^{opt}} = \frac{(\alpha-1)(\alpha+1)-2\ln(\alpha)}{4 \beta(1-\alpha) \ln(\beta/\alpha)} \quad (II.149)$$

Quant à lui, le temps de remplissage pour lequel il y a une transition (en ce qui concerne la stratégie optimale:

$$t_{rem}^{trans}(\alpha, \psi) = \frac{R(1-\alpha)}{\frac{4 v_{ff}^{opt} \beta^{trans}(\alpha, \psi)(1-\alpha) \ln(\beta^{trans}(\alpha, \psi)/\alpha)}{(\alpha-1)(\alpha+1)-2\ln(\alpha)}} \quad (II.150)$$

Ainsi, le ratio de temps de remplissage de transition comparativement au temps de remplissage optimal est défini comme suit:

$$Ratio\ t_{rem}^{trans}(\alpha, \psi) = \frac{t_{rem}^{trans}(\alpha, \psi)}{t_{rem}^{opt}} = \frac{(\alpha-1)(\alpha+1)-2\ln(\alpha)}{4 \beta^{trans}(\alpha, \psi)(1-\alpha) \ln(\beta^{trans}(\alpha, \psi)/\alpha)} \quad (II.151)$$

Par conséquent, si $t_{rem} > t_{rem}^{trans}(\alpha, \psi)$, il devient avantageux de réaliser une injection à vitesse de front constante. Sinon, il est préférable d'effectuer une injection à pression constante. Ce ratio de temps de remplissage de transition a été tracé en fonction du ratio volumique de pores ψ et de la taille relative du port d'injection α à la Figure 5 pour deux valeurs de facteurs empiriques ϕ_m donnés, à savoir 1 et 8 (ces deux valeurs sont des valeurs extrêmes de la plage typique des valeurs

o_m). Dans la section rouge (inférieure), et ce, jusqu'à la ligne frontière, les ratios de formation des bulles $Ratio \%V_{total}$ décrient par les équations (II.143) et (II.144) sont toujours inférieurs à 1. Par conséquent, la teneur totale en vides est plus élevée pour une injection à vitesse de front constante qu'une injection pression constante. Dans la section bleue (supérieure), et ce, jusqu'à la ligne frontière, les ratios de formation des bulles $Ratio \%V_{total}$ sont toujours supérieurs à 1. Par conséquent, la teneur totale en vides est plus faible pour une injection à vitesse de front constante qu'une injection à pression constante. Il convient de rappeler que pour la comparaison des deux stratégies d'injection, le temps de remplissage est toujours identique.

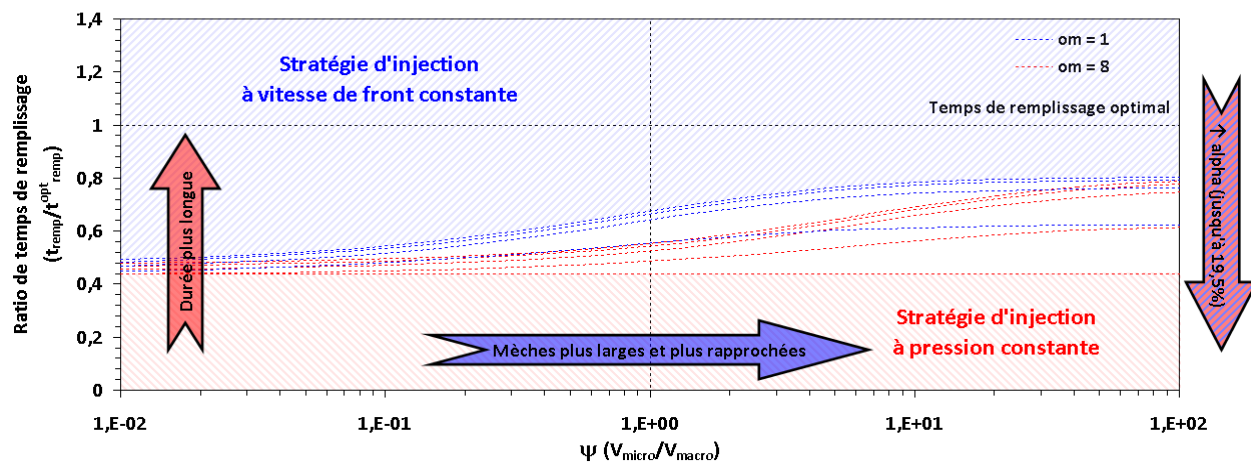


Figure 5 : Diagramme de moulabilité optimale pour une injection RTM radiale divergente.

Toutefois, il faut également garder en tête que la pression maximale atteinte au cours des deux stratégies d'injection, pour un temps de remplissage identique, sera différente. En effet, en s'appuyant sur les équations (II.111) et (II.116), le ratio de pression d'injection maximale χ devient:

$$\chi = \frac{4(1-\alpha)\ln(\alpha)}{2\ln(\alpha) - (\alpha-1)(\alpha+1)} \quad (\text{II.152})$$

Par conséquent, la pression d'injection à la fin du remplissage de la cavité pour l'injection RTM à vitesse de front constante sera χ fois la pression d'injection employée pour le remplissage à pression constante, et ce, pour un même temps de remplissage.