

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC

ÉTUDE DE LA COMPACTION ET DU PRÉFORMAGE DE RENFORTS À FIBRES  
UNIDIRECTIONNELLES DE LIN RETENUES PAR UN LIANT PAPIER OU MAT

DOCTORAT PRÉSENTÉ À  
L'UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À TROIS-RIVIÈRES  
COMME EXIGENCE PARTIELLE  
DU DOCTORAT EN INGÉNIERIE  
OFFERT EN EXTENSION  
EN VERTU D'UN PROTOCOLE D'ENTENTE  
AVEC L'UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À CHICOUTIMI

PAR  
RODRIGUE STÉPHANE MBAKOP

FÉVRIER-2020

Université du Québec à Trois-Rivières

Service de la bibliothèque

Avertissement

L'auteur de ce mémoire ou de cette thèse a autorisé l'Université du Québec à Trois-Rivières à diffuser, à des fins non lucratives, une copie de son mémoire ou de sa thèse.

Cette diffusion n'entraîne pas une renonciation de la part de l'auteur à ses droits de propriété intellectuelle, incluant le droit d'auteur, sur ce mémoire ou cette thèse. Notamment, la reproduction ou la publication de la totalité ou d'une partie importante de ce mémoire ou de cette thèse requiert son autorisation.

**UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À TROIS-RIVIÈRES**

**DOCTORAT EN INGÉNIERIE (PH.D.)**

Programme offert par l'Université du Québec à Trois-Rivières

**ÉTUDE DE LA COMPACTION ET DU PRÉFORMAGE DE RENFORTS À FIBRES  
UNIDIRECTIONNELLES DE LIN RETENUES PAR UN LIANT PAPIER OU MAT**

**PAR**

**RODRIGUE STÉPHANE MBAKOP**

**GILBERT LEBRUN**

Directeur de recherche

---

Université du Québec à Trois-Rivières

**ERIC LORANGER**

Président du jury

---

Université du Québec à Trois-Rivières

**FRANCOIS BROUILLETTE**

Codirecteur de recherche

---

Université du Québec à Trois-Rivières

**JEAN-FRANCOIS CHATELIN**

Évaluateur externe

---

École de technologie supérieure de Montréal

**EDUARDO-ANTONIO-JULIAN RUIZ**

Évaluateur externe

---

École polytechnique de Montréal

Thèse soutenue le 21 Novembre 2019

## REMERCIEMENTS

Je tiens à remercier ici tous ceux qui de près ou de loin ont contribué d'une manière ou d'une autre à la réussite de mes travaux de thèse.

En premier lieu, mon directeur de thèse, le Professeur Gilbert Lebrun, pour sa disponibilité, son soutien, et ses nombreux conseils avisés. Vraiment merci du fond du cœur. Également, le Professeur François Brouillette, mon co-directeur pour son soutien et sa disponibilité. Merci d'avoir apporté à mon travail une ouverture dans le monde formidable de la chimie.

Je remercie aussi l'Institut d'innovations en écomatériaux, écoproduits et écoénergies (I2E3) qui m'a accordé l'accès à ses laboratoires et permis de bénéficier d'un soutien technique important pour mes travaux.

Toute ma gratitude à Dany Lemay, Brian Brousseau, Isabelle Boulan, et Jonathan St-Arnaud pour l'énorme soutien technique et leurs conseils pratiques.

J'exprime ma reconnaissance à mes collègues les docteurs M. Habibi, E. Ameri, K. Sodoke, M. Mejri, Mouandhoime Zahame Oulame, A. Couture, K. Agbelenko et mes amis pour leur support et leurs conseils.

Je remercie tous les professeurs qui ont contribué à bâtir ma formation de scientifique. En particulier, les professeurs Luc Laperrière, Demagna Koffi, Lotfi Toubal.

Merci à ma femme Gislene («GIGI ») toi qui a toujours été là pour me remonter le moral et me pousser vers l'avant. Merci à mes parents et à tous mes frères et sœurs pour leur encouragement et leur soutien.

Merci à Toi Éternel Dieu tout puissant, pour ton soutien et pour m'avoir donné la santé et la force nécessaires pour mener de bout en bout ce projet dans les meilleures conditions possibles.

## RÉSUMÉ

De nos jours, les renforts à fibres naturelles font l'objet de nombreux développements tant dans l'industrie qu'en recherche. L'objectif ultime étant d'augmenter considérablement la proportion de composites à base de fibres naturelles biodégradables dans la fabrication des pièces industrielles. Les procédés de moulage par transfert de résine ou par infusion de résine sont parmi les plus utilisés. Dans ces procédés, la compaction et la capacité du renfort à épouser la géométrie du moule avec le moins de défauts possibles (conformation à des géométries à double courbure) lors de l'étape du préformage ont une importance significative dans la production des préformes sèches complexes et la qualité des pièces fabriquées. Ce rapport étudie la réponse en compaction planaire et le préformage de deux renforts fabriqués à partir de fils unidirectionnels de lin alignés et maintenus ensemble par une fine couche de fibres courtes de lin ou de pâte kraft. Des essais de compaction planaire ont été réalisés afin d'évaluer l'influence de la température du moule, de la pression, de l'humidité et du nombre de couches de renforts sur la compaction et la qualité des préformes 3D. Des composites moulés à l'aide d'une résine époxyde et à partir des renforts compactés suivant certaines valeurs de paramètres de préformage (humidité et température) ont été testés mécaniquement. Finalement, les effets d'un traitement ignifuge sur la compaction des renforts et les propriétés mécaniques des composites ont été investigués. Il semble que la température, la pression et l'humidité augmentent la déformation permanente alors que le nombre de couches agit inversement. De plus, les préformes fabriquées à chaud et à l'état humide ont une meilleure stabilité dimensionnelle (dimensions et géométrie) que les préformes obtenues à sec et à température ambiante. À taux volumiques de fibres constant de 45 %, la compaction à chaud des renforts (secs ou humides) conduit à une augmentation de la résistance en traction et en flexion mais n'a pas d'effet significatif sur le module en traction. La phosphorylation des fibres entraîne une baisse de la résistance en traction du composite.

## ABSTRACT

Nowadays, natural fiber reinforcements are the subject of numerous developments both in industry and in research. The goal is to significantly increase the proportion of biodegradable natural fiber composites in the manufacturing of industrial parts. Resin transfer molding (RTM) or resin infusion (RI) are among the most commonly used processes. In these processes, the compaction and the capacity of the reinforcement to conform to the geometry of the mold (conformation to double curvature geometries) with the least possible defects during the preforming step have a significant importance in the production of the dry complex preform and the quality of manufactured parts. This report investigates the planar compaction response and preforming of two reinforcements made from unidirectional flax yarn aligned and held together by a thin layer of short flax fibers or kraft pulp. Planar compaction tests were conducted to evaluate the influence of mold temperature, pressure, humidity and number of reinforcement layers on the compaction and quality of the 3D preforms. Composites molded samples from epoxy resin and the reinforcements compacted according to certain values of preforming parameters (humidity and temperature) were mechanically tested. Finally, the effects of a flame-retardant treatment on compaction of reinforcements and the mechanical properties of composites were investigated. It seems that temperature, pressure and humidity increase the permanent deformation while the number of layers acts inversely. In addition, preforms made under hot and wet conditions have better dimensional stability (dimensions and geometry) than preforms obtained under dry and room temperature preforming. At a fiber volume ratio of 45 %, the hot compaction of the reinforcements (dry or wet) leads to an increase in tensile and flexural strength but has no significant effect on the tensile modulus of composites. Phosphorylation of the fibers causes a decrease in the tensile strength of the composite.

## TABLE DES MATIÈRES

REMERCIEMENTS .....	i
RÉSUMÉ .....	ii
ABSTRACT .....	iii
TABLE DES MATIÈRES .....	iv
LISTE DES TABLEAUX .....	viii
LISTE DES FIGURES .....	x
LISTE DES ABRÉVIATIONS .....	xv
LISTE DES SYMBOLES .....	xvi
LISTE DES ÉQUATIONS .....	xvii
Chapitre 1 - INTRODUCTION .....	1
1.1 Généralités sur les matériaux composites .....	1
1.1.1 Le marché actuel des composites .....	1
1.1.2 Qu'est-ce qu'un matériau composite .....	2
1.1.3 Les matériaux composites à fibres synthétiques .....	3
1.1.4 Les matériaux composites à fibres végétales .....	5
1.2 Architecture des renforts fibreux .....	14
1.3 Problématique des renforts .....	15
1.4 Objectifs .....	18
Chapitre 2 - REVUE DE LA LITTÉRATURE SCIENTIFIQUE .....	21
2.1 Le préformage .....	21

2.1.1	Le préformage des renforts à fibres synthétiques .....	21
2.1.2	Le préformage des renforts à fibres naturelles.....	23
2.1.3	Conclusion sur le préformage des renforts fibreux .....	28
2.2	La compaction planaire .....	28
2.2.1	Réponse en compaction des renforts synthétiques.....	28
2.2.2	Réponse en compaction des renforts à fibres naturelles .....	32
2.2.3	Conclusion sur la compaction des renforts .....	34
2.3	La perméabilité des préformes fibreuses .....	34
2.4	Les propriétés mécaniques .....	38
2.5	Les traitements chimiques .....	41
2.6	Le formage des contenants en papier-carton .....	43
2.6.1	Défauts typiques rencontrés lors du formage des contenants 3D en papier.....	44
2.6.2	Le formage des contenants 3D en papier-carton.....	46
2.7	Conclusion partielle.....	47
	Chapitre 3 - MATÉRIAUX ET MÉTHODES .....	49
3.1	Matériaux .....	49
3.1.1	La pâte kraft .....	49
3.1.2	Les fibres de lin.....	50
3.1.3	La résine époxyde .....	50
3.1.4	Le fluide pour les essais de perméabilité .....	51
3.2	Méthodes .....	51
3.2.1	La phosphorylation des fibres de lin .....	51
3.2.2	Fabrication des renforts.....	52

3.2.3 Compaction planaire .....	55
3.2.4 Montage expérimental de préformage 3D .....	59
3.2.5 Précompaction des renforts pour les essais de perméabilité et le moulage des composites .....	61
3.2.6 Essais de perméabilité.....	62
3.2.7 Fabrication des plaques composites et essais mécaniques.....	66
<b>Chapitre 4 - ÉTUDE DE LA COMPACTION PLANAIRE ET DU PRÉFORMAGE.....</b>	<b>68</b>
4.1 Introduction .....	68
4.2 Préformage 3D.....	69
4.2.1 Méthodologie des tests de préformage .....	69
4.2.2 Résultats des tests de préformage .....	71
4.3 Méthodologie des essais de compaction et résultats .....	74
4.3.1 Méthodologie des essais de compaction .....	74
4.3.2 Résultats des essais de compaction.....	76
4.4 Résultats de l'analyse de variance.....	94
4.5 Conclusion partielle.....	95
<b>Chapitre 5 - EFFET DES PARAMÈTRES DE COMPACTION SUR LES PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES DE COMPOSITES À FIBRES UNIDIRECTIONNELLES DE LIN .....</b>	<b>100</b>
5.1 Introduction .....	100
5.2 Précompaction des renforts en vue des tests de perméabilité des préformes et les propriétés mécaniques des composites .....	101
5.3 Résultats .....	102
5.3.1 Essais de perméabilité.....	102

5.3.2 Essais de traction et analyse des échantillons fracturés .....	108
5.4 Conclusion partielle.....	120
Chapitre 6 - EFFETS DE LA PHOSPHORYLATION SUR LA COMPACTION DES RENFORTS UD/MAT ET LES PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES DES COMPOSITES UD/MAT LIN-ÉPOXY .....	123
6.1 Introduction .....	123
6.2 Méthodologie des essais de compaction et résultats .....	124
6.2.1 Méthodologie des essais de compaction .....	124
6.2.2 Résultats des tests de compaction .....	125
6.3 Essais de traction et analyses micrographiques.....	141
6.3.1 Compaction des renforts en vue du moulage des plaques .....	141
6.3.2 Résultats des tests de traction .....	142
6.3.3 Analyses des faciès de rupture .....	152
6.4 Conclusion partielle.....	156
Chapitre 7 - CONCLUSIONS GÉNÉRALES .....	160
7.1 Résumé des résultats importants .....	160
7.2 Travaux futurs .....	163
LISTE DES RÉFÉRENCES .....	165
Annexe A - CARACTÉRISTIQUES DE LA PÂTE KRAFT .....	185
Annexe B - DOSAGE DU TAUX DE PHOSPHORE .....	188
Annexe C - LISTE DE PUBLICATIONS .....	190

## LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1.1: Propriétés typiques de quelques fibres synthétiques [15, 16].	4
Tableau 1.2: Tableau comparatif entre les avantages des fibres végétales et ceux des fibres synthétiques [16, 23].	6
Tableau 1.3: Propriétés mécaniques et masses volumiques de certaines fibres végétales et synthétiques [42].	12
Tableau 2.1: Valeurs publiées dans la littérature pour le module et la résistance en tension des composites lin/époxy.	40
Tableau 3.1: Densités surfaciques des renforts étudiés. Les exposants réfèrent aux chapitres dans lesquels ces renforts sont utilisés.	54
Tableau 4.1: Conditions de préformage.	70
Tableau 4.2: Études des effets des paramètres de préformage sur la compaction : Plan des essais de compaction planaires.	75
Tableau 4.3: Différentes épaisseurs (mm) mesurées lors des essais de compactage avec leurs incertitudes (SD).	78
Tableau 4.4: Résultat de l'ANOVA pour le pourcentage de déformation permanente.	94
Tableau 4.5: Résultat de l'analyse ANOVA pour le pourcentage de fluage.	95
Tableau 5.1: Effets des paramètres de compaction et de préformage sur la perméabilité et les propriétés mécaniques : paramètres d'études.	102
Tableau 5.2: Valeurs de perméabilités rapportées dans la littérature pour différents renforts et différentes architectures.	104
Tableau 5.3: Quelques valeurs du module élastique en tension et de la résistance en tension publiées dans la littérature pour des composites UD lin-Époxy.	112
Tableau 5.4: Valeurs de la résistance et du module en flexion des composites UD lin-époxy publiées dans la littérature.	120

Tableau 6.1: Effets de la phosphorylation sur la compaction : matrice des tests de compaction.....	125
Tableau 6.2: Valeurs moyennes des épaisseurs mesurées à la fin des essais de compaction, fluage et recouvrement.....	126
Tableau 6.3: Effets de la phosphorylation et du tissage sur les propriétés mécaniques en tension : paramètres d'études.....	141
Tableau 6.4: Effets des conditions de préformage et de la phosphorylation sur les différents modules des composites. ....	150

## LISTE DES FIGURES

Figure 1.1: Voiture Kestrel [28].....	7
Figure 1.2: Comparaison des propriétés spécifiques en tension (résistance et module) des fibres naturelles par rapport aux fibres synthétiques [36]. .....	8
Figure 1.3: Coupe transversale de la tige de lin. Image reprise de [38].....	9
Figure 1.4: Paroi cellulaire d'une fibre de lin : coupe transversale (en bas) et vue tridimensionnelle (en haut). Illustration modifiée de [41].....	10
Figure 1.5: Différentes architectures de renforts. Images reprises de [60]......	15
Figure 1.6: Renforts : (a) UD/papier (b) UD/mat. .....	16
Figure 2.1: (a) Géométrie prismatique. Défauts de préformage: (b) rides, (c) flambement de fils, (d) rupture de fils et (e) hétérogénéité du motif de tissage [70]. .....	23
Figure 2.2: Préforme de lin, architecture taffetas: (a) rides en dehors de la zone utile, (b) position des surépaisseurs et (c) zoom sur les boucles (ou flambements) [64]. .....	25
Figure 2.3: (a) Courbe de cisaillement issu d'un test de cisaillement en biais et phénomènes mésoscopiques [60] et (b) angle de blocage [63]. .....	25
Figure 2.4: Géométries du (a) poinçon double dôme et de (b) la matrice ouverte (b) [91]......	27
Figure 2.5: Préformes faites de plis 0/90° de renforts non-tissés de lin de différents grammages : (a) 300 g.m <sup>-2</sup> et (b) 450 g.m <sup>-2</sup> [92]. .....	27
Figure 2.6: schémas cycle unique de compaction. Image modifiée de [95]. .....	30
Figure 2.7: Principaux facteurs affectant la nidification des fibres [99].....	30
Figure 2.8: Illustration de l'imbrication dans les renforts tissés (a) et dans les renforts NCF (b) [103]......	32

Figure 2.9: Perméabilité unidirectionnelle (a) et perméabilité radiale (b).....	36
Figure 2.10: Illustration du retour élastique; avec les dimensions (rayon $R_0$ et angle $\alpha_0$ ) de la pièce telle que fabriquée et les dimensions (rayon $R_1$ et angle $\alpha_1$ ) après les effets du recouvrement élastique [46]. .....	45
Figure 2.11: Rides sur les parois d'une pièce [46].....	45
Figure 2.12 : Composant d'emballage en papier carton [78].....	47
Figure 3.1: Pâte kraft.....	49
Figure 3.2: Fibres courtes de lin.....	50
Figure 3.3: Équipements de fabrication du renfort UD/mat et UD/papier : (a) Dispositif d'alignement des fils, (b) formette dynamique, (c) presse à rouleau et (d) séchoir à bande.....	53
Figure 3.4: Différents renforts étudiées: (a) UD/mat, (b) UD/papier, (c) UD/mat phosphorylé et tissus de lin de type sergé 2/2. ....	54
Figure 3.5: Montage de compaction.....	56
Figure 3.6: Principe de mesure d'épaisseur. ....	56
Figure 3.7: Montage expérimental de préformage.....	59
Figure 3.8: Vue agrandie du moule et de ses principaux composants [171].....	60
Figure 3.9: Cadre support servant au transfert des renforts. ....	61
Figure 3.10: Mesure de rayons au front d'écoulement. ....	63
Figure 3.11: Montage expérimental de perméabilité [141].....	64
Figure 4.1: Préformes hémisphériques UD/mat.....	71
Figure 4.2: Préformes hémisphériques UD/papier.....	72
Figure 4.3: Préforme 3D UD/mat: vues externe (a) et interne (b) .....	73
Figure 4.4: Évolution de l'épaisseur lors d'un cycle unique de compaction. ....	77
Figure 4.5: Effet de la température de compaction des renforts UD/mat (Pmax = 0,5 MPa, 6 couches) : sur la variation d'épaisseur durant le fluage. ....	79

Figure 4.6: Effet de la température de compaction des renforts UD/mat ( $P_{\max} = 0,5 \text{ MPa}$ , 6 couches): sur le pourcentage de fluage.....	80
Figure 4.7: Effet de la température de compaction des renforts UD/mat ( $P_{\max} = 0,5 \text{ MPa}$ , 6 couches): sur le recouvrement d'épaisseur.....	82
Figure 4.8: Effet de la température de compaction des renforts UD/mat ( $P_{\max} = 0,5 \text{ MPa}$ , 6 couches): sur le pourcentage de déformation permanente.....	83
Figure 4.9: Effet du nombre de couches de renforts UD/mat ( $P_{\max} = 2,2 \text{ MPa}$ , .....	85
Figure 4.10: Effet du nombre de couches de renforts UD/mat ( $P_{\max} = 2,2 \text{ MPa}$ , .....	87
Figure 4.11: Effet du nombre de couches de renforts UD/mat ( $P_{\max} = 2,2 \text{ MPa}$ , .....	88
Figure 4.12: Effet du nombre de couches de renforts UD/mat sur la compaction.....	88
Figure 4.13: Effet de la pression de compaction des renforts UD/mat (6 couches, $T = 23 \text{ }^{\circ}\text{C}$ ): sur la variation d'épaisseur.....	90
Figure 4.14: Effet de la pression de compaction des renforts UD/mat (6 couches, .....	91
Figure 4.15: Effet de la pression de compaction des renforts UD/mat (6 couches, .....	92
Figure 4.16: Effet de la pression de compaction des renforts UD/mat (6 couches, .....	93
Figure 5.1: Perméabilités : (a) $K_x$ et (b) $K_y$ .....	103
Figure 5.2: Micrographies (50 X) composites sains (voir Tableau 5.1): (a) NC, .....	105
Figure 5.3: Micrographies 100X des échantillons sains de composites renforcés par les renforts traités suivant le Tableau 5.1 : a(1-2) NC, b(1-2) MD2323,.....	107
Figure 5.4: Fractions volumiques des fibres pour les composites fabriqués.....	109
Figure 5.5: Courbes typiques contrainte-déformation des composites UD/mat renforcés par les renforts traités suivant le Tableau 5.1.....	110
Figure 5.6: Propriétés mécaniques en traction des composites : (a) résistance et .....	111

Figure 5.7: Effets de la pré-compaction sur la résistance en traction des préformes non imprégnées par la résine (voir Tableau 5.1 pour la désignation des renforts).....	114
Figure 5.8: Effet de la pré-compaction sur la surface des échantillons fracturés pendant les essais de traction.....	116
Figure 5.9: Micrographies (100X) des faciès de rupture des échantillons de composites UD/mat testés en traction : (a) NC, (b) MD23100 et (c) MW23100 .....	117
Figure 5.10: Effets des paramètres de préformage sur la résistance et le module en flexion.....	119
Figure 6.1: Variation d'épaisseur durant le fluage : renforts secs : (a) ambiant et (c) 100°C. Renforts saturés en eau : (b) ambiant et (d) 100 °C.....	128
Figure 6.2: Effets de la température de compaction et de l'humidité sur le pourcentage de fluage.....	130
Figure 6.3: Recouvrement d'épaisseur après le fluage: renforts secs (a) ambiant et (c) 100 °C. Renforts saturés en eau (b) ambiant et (d) 100 °C.....	133
Figure 6.4: Effet de la phosphorylation sur la déformation permanente renforts secs (a) ambiant et (c) 100 °C. Renforts saturés en eau (b) ambiant et (d) 100 °C. ....	136
Figure 6.5: Taux volumiques de fibres des composites fabriqués. ....	142
Figure 6.6 : Courbes typiques contrainte-déformation des essais de traction sur les éprouvettes (voir Tableau 6.3 pour description des désignations).....	143
Figure 6.7: Micrographies des échantillons composites sains (grossissement 42 X) :.....	144
Figure 6.8: Micrographies des échantillons composites (grossissement 50 X) : TFNC(a) et TFW100(b). ....	145
Figure 6.9: Effets de la phosphorylation sur la résistance en traction des composites.....	147
Figure 6.10: Module de Young des composites fabriqués.....	150
Figure 6.11: Déformation à la contrainte maximale des éprouvettes testées.....	152
Figure 6.12: Surface de rupture des éprouvettes de traction.....	153

Figure 6.13: Micrographie (35 X) échantillons testés : MNC (a), MD100 (b), MW100 (c), MTNC (d), MTW100 (e).....	154
Figure 6.14: Micrographie (100 X) des échantillons testés : MNC (a), MTNC (b), MW100 (c) et MTW100 (d) .....	155
Figure 6.15: Micrographie (35 X) des échantillons testés : TFNC (a) et TFW100 (b).....	156
Figure A.1: Résultats de l'analyse de la pâte kraft.....	186
Figure A.2: Table de distribution de la longueur des fibres.....	187

## LISTE DES ABRÉVIATIONS

CMO	Composites à matrice organiques
CMC	Composites à matrices céramiques
CMM	Composites à matrice métalliques
CFN	Composites à fibres naturelles
DAP	Phosphate de diammonium
EP	Ester de phosphate
FN	Fibre naturelle
I2E3	Institut d'innovations en écomatériaux, écoproducts et écoénergies
NCF	Renfort non tissé ou non serti “Non Crimp Fabrics” (en anglais)
PF	Pourcentage de fluage
PDP	Pourcentage de déformation permanente
PLA	Acide polylactique (en anglais polylactic acid “PLA”)
RI	Infusion de résine “Resin infusion” (en anglais)
RTM	Moulage par transfert de résine “Resin transfer molding”
SD	Écart type (“Standard deviation”, en anglais)
UE	Union européenne
UQTR	Université du Québec à Trois-Rivières
WPC	Wood plastic composites

## LISTE DES SYMBOLES

E	Module de Young (GPa)
$V_f$	Taux volumique de fibres
$V_m$	Taux volumique de matrice
$\varepsilon$	Déformation à la rupture (%)
$\sigma$	Contrainte en traction (MPa)
$\sigma_f$	Résistance des fibres
$\sigma_l$	Résistance apparente des renforts secs
$\rho_f$	Densité des fibres
$\rho_m$	Densité de la matrice (mélange durcisseur + résine)

**LISTE DES ÉQUATIONS**

Équation 3.1 .....	62
Équation 3.2 .....	63
Équation 3.3 .....	63
Équation 3.4 .....	65
Équation 4.1 .....	76
Équation 4.2 .....	76
Équation B.1 .....	189
Équation B.2 .....	189
Équation B.3 .....	189

## Chapitre 1 - INTRODUCTION

### 1.1 Généralités sur les matériaux composites

#### 1.1.1 Le marché actuel des composites

Selon une étude de marché de la firme Lucintel, le marché global des composites devrait atteindre 113.2 milliards de dollars US à l'horizon 2022 [1]. Ce marché concerne divers secteurs allant de la production de larges composants pour l'industrie aérospatiale aux petits biens de consommation. Ce regain est dû aux nombreux avantages qu'offrent les matériaux composites en termes de propriétés mécaniques telles que la résistance mécanique ou la rigidité, la diminution de masse et la réduction des besoins énergétiques pour la production des pièces. On peut aussi citer les nombreuses innovations réalisées dans les procédés de fabrication, d'usinage et de recyclabilité des pièces en matériaux composites ces dernières années [2]. Dans le domaine des composites à fibres synthétiques, le marché est principalement dominé par la fibre de carbone et la fibre de verre. Ces composites, en raison de leur « faible coût » et de leur haute performance, sont utilisés dans divers secteurs tels que : l'aérospatial, l'automobile, l'énergie, la construction des infrastructures, la marine, l'architecture, les équipements sportifs [1]. Cependant, ces fibres synthétiques (carbone, aramide, verre, ...) sont parfois victimes des fluctuations ou des hausses de prix ou encore de pénuries de matières premières nécessaires à leur fabrication du fait de la hausse de la demande. Un autre souci est celui de la recyclabilité et de l'impact environnemental des composites à fibres synthétiques. En effet, les pouvoirs publics et les citoyens sont de plus en plus sensibles aux questions environnementales. Ceci conduit à une hausse de la demande en matériaux à faible impact environnemental, recyclables et capables de concurrencer les matériaux synthétiques couramment utilisés. Pour répondre à cette demande, les scientifiques et les industriels ont développé de nouveaux matériaux composites à base de fibres naturelles (en abrégé CFN ou NFC pour “Natural Fibre Composite” en anglais) ou de bois. Ces derniers présentent les avantages suivants: faible densité, moins abrasif (moins d'usure lors de

l’usinage), bonnes propriétés spécifiques (module et résistance spécifiques), facilement recyclables, bonnes propriétés d’isolation sonore et thermique, grande variété et disponibilité des fibres (en longueur et diamètre), faible consommation d’énergie pour la production, générateur d’emplois ruraux dans l’agroalimentaire ou l’agriculture [3, 4].

En raison de ces nombreux avantages, les CFN sont de plus en plus utilisés pour la fabrication de pièces automobiles (passage de roues, tableau de bord, coque arrière de siège, etc.) [5-9]. Les autres secteurs industriels d’application des CFN sont: le sport et les loisirs, l’énergie éolienne, l’emballage, les équipements personnels, le ferroviaire, les aménagements résidentiels, la mobilité et le transport en général. L’un des grands objectifs visés par le développement des CFN est celui de remplacer les fibres de verre par les fibres naturelles dans certaines applications utilisant des composites. En 2010, les biocomposites (à fibres de bois et CFN) représentaient 13 % des parts du marché des composites dans l’union européenne (UE). Cette proportion devrait doubler voire quadrupler en 2020 selon l’ampleur des incitatifs législatifs en matière de protection de l’environnement [10].

### 1.1.2 Qu’est-ce qu’un matériau composite

Un matériau composite est formé de plusieurs composants élémentaires non miscibles dont l’association confère des propriétés et des performances qu’aucun des composants pris séparément ne possède. Généralement, l’un des constituants, le renfort, se présente sous forme de granules ou de fibres (courtes ou longues). Le renfort assure la tenue mécanique (résistance, rigidité). Un autre constituant, la matrice, sert de lien ou de liant au renfort et répartit ou transfère les efforts (résistance en compression ou en flexion par exemple) et assure la protection des renforts au milieu extérieur. Dans certains cas et suivant les applications il peut être nécessaire de rajouter des constituants complémentaires, appelés charges ou additifs, afin d’apporter une propriété spécifique (mécanique, électrique, thermique, couleur, résistance au feu, diminution du retrait, faciliter de démolage, résistance au vieillissement, amélioration de l’interface fibre/matrice) au matériau composite [11].

On peut distinguer trois grandes familles de matériaux composites en fonction de la nature de la matrice [12]. Premièrement, les composites à matrice organique (CMO); ils représentent la proportion la plus importante à l’échelle industrielle. Deuxièmement, les

composites à matrice céramique (CMC); ils sont principalement utilisés dans des applications de très haute technicité et travaillant à températures extrêmes (spatial, nucléaire, militaire, l'aéofreinage). Troisièmement, les composites à matrice métallique (CMM).

En fonction du taux volumique ou massique de renfort, on distingue les composites de grande diffusion (à peu près 95 % des composites utilisés) qui ont des propriétés mécaniques plutôt faibles (taux de renfort d'environ 30% et coût similaire pour la matrice et le renfort) mais un coût compatible avec une production en grande série. Il existe aussi les composites à hautes performances; ceux-ci présentent un taux de fibres élevé (50 % et plus), des propriétés spécifiques élevées et un coût unitaire important (coût du renfort plus élevé que celui de la matrice) [12]. Dans le cas des CMO, les matrices thermodurcissables et thermoplastiques sont les plus couramment utilisées. Les matrices thermodurcissables sont initialement liquides, la structure des polymères est transformée sous forme de réseau tridimensionnel (par réticulation) sous l'effet d'un traitement thermique (chaleur, rayonnement thermique) ou physico-chimique (catalyse, durcisseur). Cette transformation est irréversible. Dans le cas des matrices thermoplastiques, elles peuvent être alternativement ramollies par chauffage et durcies par refroidissement dans un intervalle de température donné. Cette réversibilité favorise la recyclabilité des matériaux composites thermoplastiques; ce qui en retour améliore le cycle de vie des composites et réduit la production de déchets issus des composites [13, 14]. Ici, les chaînes polymériques sont linéaires et la mobilité des molécules n'est pas limitée comme dans le cas des thermodurcissables.

#### 1.1.3 Les matériaux composites à fibres synthétiques

Les composites à fibres synthétiques sont les plus couramment utilisés, notamment ceux à fibres de verre, de carbone et d'aramide (Kevlar). Le Tableau 1.1 présente quelques propriétés mécaniques de fibres synthétiques. En 2015, les composites à fibres de verre dominaient le marché avec un revenu de près de 41,88 milliards \$USD tandis que le marché des fibres de carbone représentait 33,9 % du volume global [17]. Ces fibres sont parmi les plus utilisées dans l'industrie.

Tableau 1.1: Propriétés typiques de quelques fibres synthétiques [15, 16].

Fibres	Densité $\rho_f$ (kg.m <sup>-3</sup> )	Module de Young $E_f$ (GPa)	Contrainte en traction $\sigma_f$ (MPa)	$E_f/\rho_f$ (MPa/kg.m <sup>-3</sup> )	$\sigma_f/\rho_f$ (mPa/kg.m <sup>-3</sup> )
Alumine (FP)	3900	380	1400	97,5	359
Bore	2650	420	3500	158,5	1321
SiC (Nicalon)	2600	250	2200	96,2	846
Carbone	2540	70	2200	27,6	866
Verre-E	1860	380	2700	204,3	1452
Aramidé	1450	130	2900	89,7	2000
Poly- éthylène (Spectra 1000)	970	172	2964	177,3	3056

Les fibres de verre sont prisées dans certaines industries (aéronautique et défense, énergie éolienne, transport ou automobile) en raison de leur résistance spécifique, leur résistance à l'eau, leurs propriétés spécifiques et leur diversités (type E, A, R, C, D, ECR) permettant leur utilisation dans différentes applications et secteurs industriels. Le diamètre des fibres de verre varie entre 3,25 et 14  $\mu\text{m}$  [15]. Les fibres de carbone sont utilisées dans divers secteurs industriels tels que l'aéronautique (dans les avions Airbus A350 et Boeing 787, les composites à fibres de carbone représentent environ 50 % du poids), l'automobile de haut de gamme et le sport. On enregistre une demande croissante de ces fibres dans ces secteurs. On estime à 130 milliards de dollars américain le montant des ventes en fibres de carbone à l'horizon 2020 [7]. Le diamètre de ces fibres varie entre 5 et 14  $\mu\text{m}$  [18].

#### 1.1.4 Les matériaux composites à fibres végétales

Les composites à fibres naturelles (CFN) en général, et ceux utilisant les fibres végétales en particulier, connaissent ces dernières décennies un regain d'attention afin d'exploiter leur potentiel pour limiter l'impact environnemental des composites à fibres synthétiques et ainsi remplacer dans les applications non structurales les composites à fibres de verre. Le Tableau 1.2 présente une comparaison entre les fibres végétales et certaines fibres synthétiques (verre, carbone) à la fois sur les plans économiques, techniques et de l'impact environnemental. Dans le domaine de l'automobile ou des transports, les CFN sont surtout utilisés pour les pièces intérieures (panneau intérieur des portières, dossier arrière de véhicules) [8, 19, 20]. Cependant, des compagnies commencent à les utiliser dans la fabrication des carrosseries de voiture ; c'est le cas avec la voiture Kestrel® (Figure 1.1) qui est un véhicule électrique développé par la compagnie canadienne Motive Industries et dont la carrosserie est faite d'un composite à fibres végétales de chanvre. Des travaux sont également réalisés afin d'utiliser les CFN dans d'autres applications structurales telles que les pales de turbine [21, 22]. Les fibres végétales peuvent être utilisées avec les résines thermoplastiques ou thermodurcissables. Cependant, une des difficultés rencontrées avec ces fibres se situe au niveau de leur compatibilité avec certaines résines. En effet, la plupart des résines ont un caractère hydrophobe tandis que les fibres végétales sont hydrophiles. Ceci crée un problème d'interface fibre/matrice dont une des conséquences est la réduction des propriétés mécaniques. Nombres de solutions ont été mises en œuvre pour améliorer cette interface dans les CFN, notamment en soumettant les fibres à des traitements chimiques tels que l'alkylation et l'acétylation [24-27]. D'autres travaux ont été réalisés pour développer de nouvelles résines biosourcées en remplacement des résines synthétiques [29-31]. De même différentes architectures de fibres (unidirectionnelles, les tissus non sertis ou "non crimp fabric") sont développées afin d'obtenir de meilleures performances dans les composites [16, 32-34].

Tableau 1.2: Tableau comparatif entre les avantages des fibres végétales et ceux des fibres synthétiques [16, 23].

Aspects	Fibres végétales	Fibres de verre	Fibres de carbone
<b>Économiques</b>			
Production mondiale (Tonnes/année)	31 000 000	400 000	55 000
Distribution pour composite (Tonnes)	Modérée (40000)	Élevée (600000)	Modérée (35000)
Coût de fibre brute (£/kg)	Faible (~0,5 – 1,5)	Faible (~1,3)	Élevé (12)
<b>Techniques</b>			
Densité (g.cm <sup>-3</sup> )	Faible (~1,35 – 1,55)	Élevée (2,55 – 2,70)	Faible (1,70 – 2,20)
Module d'élasticité, E (GPa)	Modéré (~30 – 80)	Modéré (70 – 85)	Élevé (150 – 500)
Résistance en traction, $\sigma$ (GPa)	Faible (~0,4 – 1,5)	Modérée (2,0 – 3,7)	Élevée (1,3 – 6,3)
Déformation à la rupture, $\epsilon$ (%)	Faible (~1,4 – 3,2)	Élevée (2,5- 5,3)	Faible (0,3 – 2,2)
Module d'élasticité spécifique, $E_s$ (GPa.cm <sup>-3</sup> )	Modéré (~20 – 60)	Faible (27 – 34)	Élevé (68 – 290)
Résistance spécifique, $\sigma_s$ (GPa.cm <sup>-3</sup> )	Modérée (~0,3 – 1,1)	Faible (0,7 – 1,5)	Élevée (0,6 – 3,7)
<b>Écologiques</b>			
Consommation d'énergie (MJ/kg)	Faible (4 – 15)	Modérée (30 – 50)	Élevée (> 130)
Émissions de CO <sub>2</sub> (kg/kg de fibre)	Aucune	Modérée	Très élevée
Source renouvelable	Oui	Non	Non
Recyclable	Oui	Partiellement	Partiellement
Biodégradable	Oui	Non	Non



Figure 1.1: Voiture Kestrel [28].

#### 1.1.4.1 La fibre végétale

Les fibres végétales peuvent être courtes ou longues en fonction de l'endroit où elles sont extraites sur la plante. Par exemple, elles peuvent être extraites au niveau des graines (coton, kapok), des feuilles (sisal, abaca), ou encore des tiges (lin, chanvre, bouleau, jute, ramie). Du fait de leur abondance, de leur faible coût en termes de matière première, de leur faible densité, de leurs hautes propriétés mécaniques spécifiques, certaines de ces fibres telles que le lin, le chanvre ou le jute se présentent comme des concurrents sérieux à la fibre de verre [22]. L'un des avantages des fibres végétales est leur faible densité (entre  $1,35$  et  $1,55$  g/cm $^3$ ) comparée à celle de la fibre de verre qui est de  $2,56$  g.cm $^{-3}$  soit une diminution de masse d'environ 40 % [22]. Leur module spécifique peut dans certains cas (comme le lin et le jute) être supérieur à celui de la fibre de verre [22, 35]. C'est ce que confirme le diagramme d'Ashby (voir Figure 1.2) comparant la résistance et le module spécifique en tension de certaines fibres naturelles avec ceux des fibres synthétiques [36]. On peut y voir que la fibre de lin est parmi celles ayant les meilleures propriétés spécifiques en tension. Ce qui est l'une des raisons de son choix comme fibres dans le cadre de cette thèse.

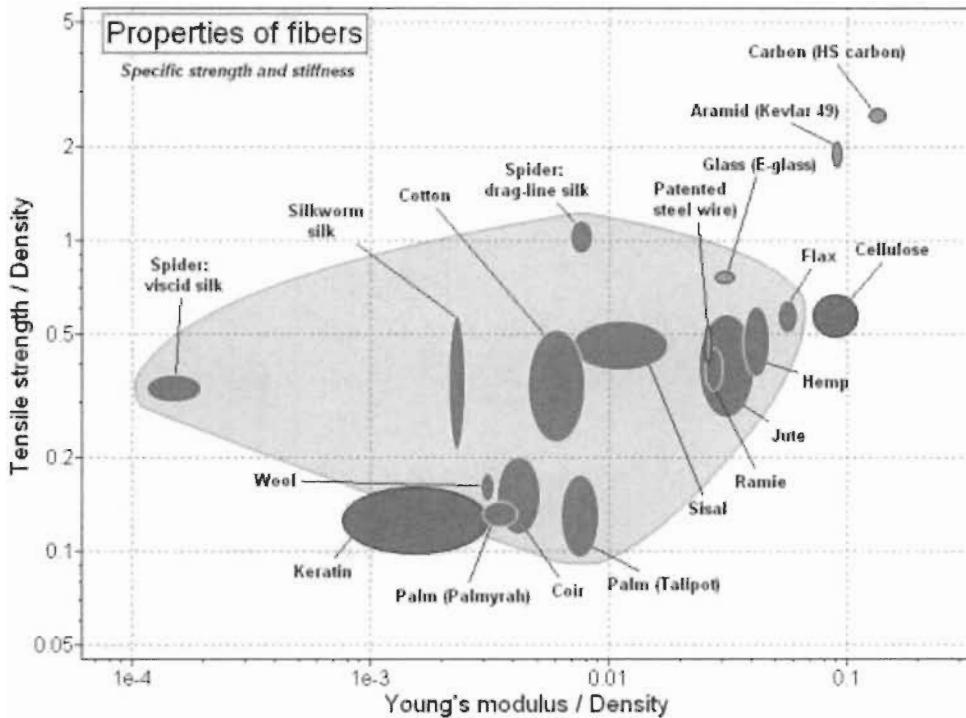


Figure 1.2: Comparaison des propriétés spécifiques en tension (résistance et module) des fibres naturelles par rapport aux fibres synthétiques [36].

#### 1.1.4.2 Généralités sur la fibre de lin

##### 1.1.4.2.1 *De la plante à la fibre*

Le lin est une plante annuelle. Une fois arrivée à maturité, elle est récoltée (généralement vers le mois de juillet) et empaquetée en petites bottes. Pour obtenir les fibres, les plantes subissent différentes transformations dont les principales sont :

- *Le rouissage* : les bottes sont laissées à l'air libre à même le sol de la plantation afin de favoriser le séchage. L'alternance des pluies et de soleil favorise la séparation de l'écorce fibreuse de la tige par les micro-organismes et les bactéries présentes dans le sol; ce sont ces organismes qui éliminent la pectose [37].
- *Le teillage* : c'est un processus mécanique qui permet d'extraire le bois contenu dans la tige pour ne conserver que les fibres. Cette étape comprend les phases suivantes : l'égrenage, l'étirage, le broyage et le battage. Les fibres obtenues peuvent être longues ou courtes [37].

- *Le peignage* : les fibres sont parallélisées, calibrées et étirées sous forme de rubans doux et lustrées pour être prêtes à être filées [37].
- *La filature* : cette étape permet de transformer les fibres en fils. C'est à cette étape que le fil subit une torsion contribuant à maintenir les fibres de différentes longueurs sous forme de fil continu [37].

#### 1.1.4.2.2 Structure et composition de la fibre de lin

La Figure 1.3 présente la coupe transversale d'une tige de lin. Celle-ci comprend, de l'intérieur vers l'extérieur, les parties suivantes :

- *La lacune* : vide intérieur de la plante.
- *Le xylène ou bois* : il comprend les trachéides et les vaisseaux et joue un rôle important dans le transport de l'eau.
- *Des faisceaux de fibres* : ils contiennent plusieurs dizaines de fibres de lin collées entre elles par une interphase à base de pectine appelée lamelle mitoyenne.
- *Le parenchyme cortical (ou écorce) et l'épiderme*.

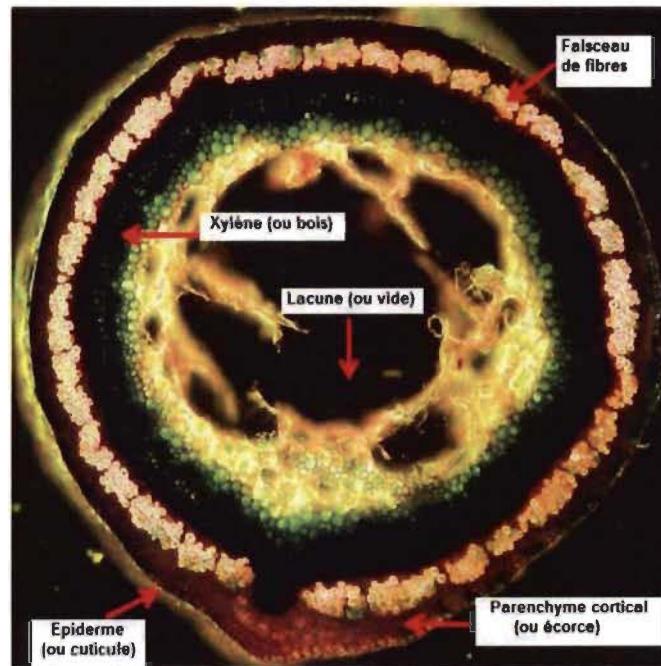


Figure 1.3: Coupe transversale de la tige de lin. Image reprise de [38].

La Figure 1.4 présente la coupe transversale de la paroi cellulaire d'une fibre de lin.

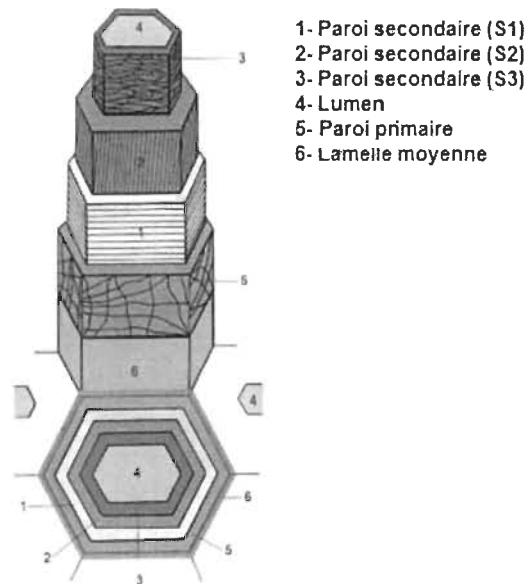


Figure 1.4: Paroi cellulaire d'une fibre de lin : coupe transversale (en bas) et vue tridimensionnelle (en haut). Illustration modifiée de [41].

Celle-ci comprend : *Une paroi secondaire* comprenant trois couches successives (S1, S2, S3) et dont S2 est la plus épaisse. Ces couches sont constituées de microfibrilles de cellulose différemment orientées.

- *Le lumen, qui joue un rôle dans la circulation d'eau.*
- *La paroi primaire et la lamelle mitoyenne.*

La composition en pourcentage massique de la fibre de lin est la suivante:

- 64 à 71 % de *cellulose* [39]; la cellulose est le principal constituant de la fibre de lin. Ce polymère possède un module de Young de 138 GPa et une contrainte ultime à la rupture de l'ordre de 17.8 GPa (ce qui est 7 fois supérieure à celle de l'acier) [40].
- 18,6 à 20,6 % d'*hémicelluloses* [39]; la présence de cette gamme de polymères dans les parois des fibres favorise l'absorption d'eau ; ce qui peut poser un problème en termes de vieillissement en milieux humide, de compatibilité avec les résines à caractère hydrophobe et de perméabilité avec certaines composantes hydrophiles des résines organiques.
- 2 % de *pectines*; la pectine maintient la cohésion des faisceaux de fibres. Elle

contrôle aussi la porosité des parois et la croissance de la plante et est surtout présente dans la paroi primaire de la fibre [42].

- Les autres constituants sont : la lignine (2 - 5 %), la cire (1 à 2 %) et finalement de l'eau (8 à 10 %) [39, 42].

#### *1.1.4.2.3 Propriétés physiques de la fibre de lin*

La densité des fibres de lin varie entre 1,4 g.cm<sup>-3</sup> et 1,5 g.cm<sup>-3</sup> [42-44]. Leur taux d'absorption d'humidité est en moyenne de 7 % [43]. Les fibres élémentaires de lin ont une longueur généralement comprise entre 5 et 80 mm avec une moyenne autour de 30 mm. Leur diamètre moyen est estimé à 20 µm [42]. Les microfibrilles de la fibre de lin sont principalement orientées à 10° par rapport à l'axe de la fibre dans la paroi S2 [42]. La faiblesse de cet angle est un facteur qui pourrait expliquer les bonnes propriétés des fibres de lin comparativement aux autres fibres naturelles [42].

#### *1.1.4.2.4 Propriétés mécaniques de la fibre de lin*

Du fait de sa composition, la fibre de lin à elle seule constitue un composite où les microfibrilles forment le renfort et la pectine et l'hémicellulose constituent la matrice. Avec une loi de mélange, on peut estimer le module de la fibre de lin à partir des modules et des fractions massiques de ses constituants. Le Tableau 1.3 rapporte les propriétés mécaniques de la fibre de lin par rapport à certaines fibres naturelles et synthétiques. Il en ressort que la fibre de lin est parmi les fibres les plus rigides. De plus, son module spécifique (E/ρ) est supérieur à celui de la fibre de verre; ce qui offre de nombreuses possibilités pour des applications de pièces structurelles [45].

Tableau 1.3: Propriétés mécaniques et masses volumiques de certaines fibres végétales et synthétiques [42].

Types de fibre	Contrainte de rupture $\sigma_r$ (MPa)	Module d'élasticité E (GPa)	Densité $\rho$ (g.cm <sup>-3</sup> )	E/ $\rho$ (GPa/g.cm <sup>-3</sup> )	$\sigma_r/\rho$ (MPa/g.cm <sup>-3</sup> )
Naturelles					
Lin	400 – 2000	30 – 110	1,5	20 – 73,3	266,6 – 1333,3
Chanvre	550 – 1100	60 – 70	1,5	20 – 46,6	366,6 – 733,3
Jute	400 – 800	10 – 30	1,5	6,6 – 20	266,6 – 533,3
Sisal	600 – 700	28 – 38	1,3	21,5 – 29,2	461,5 – 538,4
Ramie	550	44	1,5	29,3	366,6
Noix de coco	220	6	1,3	4,6	169,2
Coton	300 – 600	6 – 13	1,5	4 – 8,6	200 – 400
Synthétiques					
Verre-E	2300 – 2500	72 – 74	2,5	28,8 – 29,6	920 – 1000
Kevlar 49	2900	130	1,5	86,6	1933,3
Carbone	2500 – 3200	230 – 390	1,8	127 – 216,6	1388,8 – 1777,7

#### 1.1.4.3 Effets de certains facteurs sur les fibres cellulosiques.

De nombreux facteurs, parmi lesquels la composition chimique des constituants de la fibre, l'humidité, la température et le procédé de transformation, ont des effets sur les propriétés des fibres de lin.

##### 1.1.4.3.1 La composition chimique

La cellulose est le constituant le plus abondant et le plus rigide dans la fibre naturelle. L'augmentation de la cristallinité de la cellulose entraîne une augmentation de la résistance et de la rigidité des fibres mais une réduction de l'extensibilité et de la flexibilité [46]. À l'inverse, une proportion plus importante de la phase amorphe se traduit par une augmentation de l'extensibilité et une réduction du module d'élasticité. Dans le cas de la pulpe destinée à la fabrication du papier, l'hémicellulose augmente le potentiel de liaisons

des fibres ce qui se traduit par une augmentation de l'extensibilité du papier [46]. La lignine (2-3 wt%, [47]) présente dans les parois des fibres, affecte le potentiel de liaison et la flexibilité des fibres. Un taux élevé de lignine affecte négativement l'extensibilité du papier [46].

#### *1.1.4.3.2 Influence de l'humidité*

La présence d'hémicellulose dans la paroi de la fibre de lin est l'un des facteurs favorisant l'absorption d'humidité. L'excès d'humidité relative dans les CFN entraîne le gonflement des fibres, l'augmentation de la rugosité de surface et un affaiblissement des liaisons interfaciales entre la fibre et la matrice [48]. L'absorption d'humidité entraîne, dans le cas des fibres de lin, des dommages à l'intérieur de la fibre et une modification des propriétés d'interface entre les microfibrilles de cellulose et la matrice de sorte que la fibre ne recouvre pas ses propriétés après séchage [48]. Le gonflement des fibres entraîne la formation de microfissures dans le composite. L'eau agit comme un plastifiant en interagissant à l'échelle inter et intramoléculaire dans la cellulose et dans les liaisons intermoléculaires entre les fibres et les fibrilles, ce qui favorise les déformations et le réarrangement des microfibrilles cellulosiques [46, 49]. L'augmentation du taux d'humidité dans le papier fragilise les liaisons entre les fibres; ce qui permet un certain degré de glissement entre celles-ci. Dans le cas du papier, cet affaiblissement se traduit par un déplacement des courbes contrainte-déformation vers les hautes extensibilités et les faibles rigidités [46, 50, 51].

#### *1.1.4.3.3 Influence de la température*

L'augmentation de la température des fibres fait en sorte que la paroi des fibres se ramollit. Ce phénomène se traduit à l'échelle des fibres par une réduction de leur rigidité axiale [46, 49, 52]. Du fait de cette élévation de température, les molécules d'eau contenues dans les fibres se vaporisent; ce qui réduit la cohésion de la structure de la fibre. Cette vaporisation induit la formation de fissures et d'autres endommagements irréversibles [48]. Des travaux montrent que la perte d'eau commence à 60 °C; tandis qu'à 120 °C l'eau a totalement disparu et les cires superficielles sont dégradées. Les pectines se décomposent à partir de 180 °C alors que les hémicelluloses et la cellulose ne se décomposeraient pas avant

230 °C [42, 53].

## 1.2 Architecture des renforts fibreux

Il existe différentes architectures de renforts fibreux allant des renforts unidirectionnels aux renforts tridimensionnels. Les renforts planaires (unidirectionnels cousus, tissus...) se composent de fils de lin de différents Tex (le Tex étant la masse du fil par kilomètre de longueur), lesquels sont composés de milliers de fibres individuelles retenues entre elles par torsion du fil. Parmi les renforts planaires, on distingue :

- Les renforts *unidirectionnels (UD) de type non tissé* ("Non crimp fabric", NCF): le renfort UD standard offre une tenue mécanique maximale dans le sens des fibres. Ce dernier nécessite un liant pour maintenir les fils entre eux. Ce liant peut être une résine, un fil cousu (dans le cas des renforts UD de type NCF) ou alors un liant continu [54, 55]. Les architectures UD de type NCF (Figure 1.5a) sont faites de mèches très denses majoritairement orientées dans une direction et de quelques fils de plus faible densité cousus aux mèches denses UD pour leur servir de liant. Dans le cas des architectures NCF, la tenue mécanique est aussi maximale dans le sens des fibres puisque les mèches sont peu ondulées. Ces renforts sont difficiles à manipuler et à mettre en forme sur des surfaces complexes ou à double courbure (tétraédrique, prismatique, sphérique). Il existe aussi des renforts UD utilisant une couche poreuse de papier [55] ou de fibres courtes de lin comme liant des fibres UD [54]. Ces renforts sont en développement à l'UQTR et sont présentés dans la section suivante
- Les *renforts tissés* (Figure 1.5b): les mèches sont entrelacées par tissage dans différentes directions. Les renforts tissés sont plus facilement conformables sur les géométries complexes telles que les pyramides et les tétraèdres [41, 56-58]. On distingue les tissés 2D qui n'ont que deux réseaux de mèches généralement perpendiculaires (chaîne et trame) et les tissés 3D qui sont faits de mèches permettant de relier un certain nombre de plis [59].
- Les *mats* (Figure 1.5c): ils sont constitués de fils aléatoirement orientés dont la longueur est généralement de l'ordre de quelques millimètres à quelques centimètres. Les mats sont des renforts déformables, peu couteux et quasi- isotropes dans le plan.

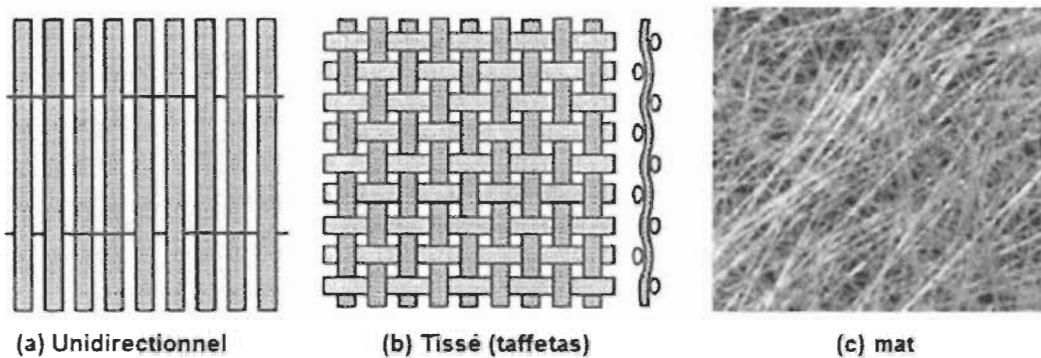


Figure 1.5: Différentes architectures de renforts. Images reprises de [60].

### 1.3 Problématique des renforts

En général, les architectures unidirectionnelles sont peu (ou pas) endommagées comparativement aux renforts tissés qui peuvent être endommagés par le métier à tisser, lequel nécessite l'utilisation de fils tordus pour permettre le tissage sans casser les fils. Ainsi, à cause du tissage, les renforts tissés ont de moins bonnes propriétés mécaniques que les renforts UD puisque les fils des renforts obtenus sont à la fois ondulés et tordus, désorientant ainsi fortement les fibres des composites après moulage. De plus, l'opération de tissage ou la couture peut endommager les fibres et affecter les propriétés des composites. En contrepartie, l'une des principales difficultés dans l'utilisation des renforts UD est la nécessité de maintenir les fibres parallèles pendant la manipulation ou le moulage. Pour cela, différentes solutions existent parmi lesquelles la pré-imprégnation à l'aide d'une résine thermodurcissable, l'utilisation de films qui agissent comme liant pour les fils UD ou encore de fils cousus (renforts UD cousus). Cependant, la pré-imprégnation nécessite une phase supplémentaire consommatrice d'énergie et/ou de temps pour la fusion et/ou l'imprégnation du renfort. De plus, les renforts cousus ou tissés peuvent être endommagés par l'opération de tissage (tel que mentionné ci-dessus) et les fibres se présentent localement désorientées; même pour les renforts UD cousus car le fil liant vient localement comprimer et désorienter les fibres. Pour répondre à ces problématiques, de nouveaux renforts hybrides à base de fils UD de lin déposés sur une couche poreuse de papier (désigné par UD/papier à la Figure 1.6a) ou de mat de lin (désignés par UD/mat à la Figure 1.6b) de fibres courtes de lin sont en développement

à l’Institut d’Innovations en Écomatériaux, Écoproduits et Écoénergies, à base de biomasse (I2E3) de l’UQTR [54, 55, 61].

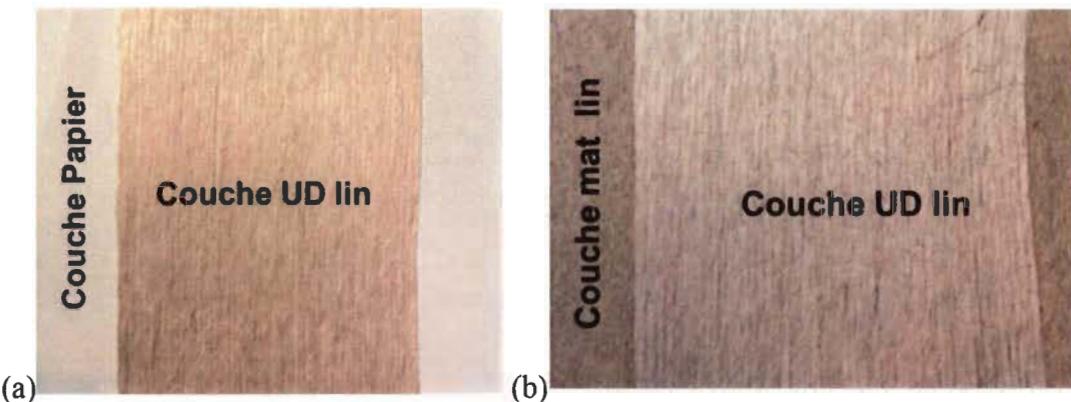


Figure 1.6: Renforts: (a) UD/papier et (b) UD/mat.

Dans ces renforts, la couche de mat ou papier sert de liant pour les fils UD ; liant continu sur toute la surface du renfort UD par opposition à celui utilisé dans les NCF avec fils cousus à intervalle régulier. Des travaux antérieurs [54, 61, 62] ont montré que l'utilisation d'une fine couche poreuse de mat de lin ou de papier kraft comme liant pour les fibres de lin UD aide à maintenir les fibres bien orientées et alignées afin de maximiser les propriétés en traction des composites UD. Parmi les procédés de mise en forme des matériaux composites à renforts fibreux, les procédés de moulage par injection sur renfort (ISR) continuent de faire l'objet de nombreux travaux de recherche et sont très utilisés dans l'industrie en raison du coût peu élevé, de la qualité et des propriétés finales des pièces [3, 44, 60, 63-67]. Dans ces procédés, l'une des phases les plus importantes est celle du préformage à la géométrie du moule du renfort. En effet, la qualité finale de la préforme est garante de sa bonne imprégnation par la résine (du fait de l'uniformité ou non de la perméabilité de la préforme) et de la tenue de la pièce finale (tenue mécanique, thermique et chimique). Si la préforme présente des défauts de type vides ou replis des couches de renfort, en plus de perturber l'écoulement global de la résine; ceux-ci créent des défauts majeurs dans la pièce finale qui affecteront considérablement ses propriétés mécaniques. Pour limiter ces problèmes, le renfort doit pouvoir se conformer aisément sur différentes géométries (de la plus simple à la plus

complexe), ce qui veut dire qu'il doit épouser la complexité de la géométrie du moule et ce avec le moins de défauts possibles.

Dans la littérature, des études ont été faites sur le préformage des renforts tissés ou cousus faits de fibres synthétiques ou naturelles. Pour ces architectures, les principaux défauts concernent généralement les instabilités en compression (flambement locaux) formant des replis qui surviennent lorsque l'angle limite de cisaillement (angle de blocage) entre les fils de trame et de chaîne est dépassé [33, 58]. De plus, dans les renforts tissés, les fibres sont localement perturbées et désorientées tandis que le renfort peut former des replis ou des hétérogénéités du réseau de tissage lors du préformage sur des moules à géométries complexes [58, 68-70]. Pour ce qui est du préformage des renforts UD, les études concernent surtout les pré-imprégnés [71, 72]. Pour le préformage à sec des architectures UD de type NCF, un des défauts observés est le glissement entre les mèches, lequel peut avoir un effet important sur la perméabilité et la résistance de la pièce [73, 74]. Cependant peu (ou pas) d'études existent sur le préformage de renforts unidirectionnels (non-imprégnés de résine) dont les fibres sont maintenues par un liant continu comme ceux développés à l'UQTR.

Certains paramètres matériaux et procédés peuvent influencer la déformabilité et la conformation géométrique de ces renforts. Des défauts de type plissement, déchirure, désalignement des fibres, ondulations, boucles (ou flambement local des fils), décohésion des couches, glissement du réseau de fils et destruction du motif du renfort peuvent apparaître lors du préformage de ces renforts sur des moules à géométries complexes [58, 75]. Dans le cas des renforts tissés, la fréquence de ces défauts peut être réduite en contrôlant la répartition des forces imposées par l'outillage et l'angle limite de cisaillement intrapli. Dans le cas du préformage des renforts UD/papier et UD/mat, les défauts ne sont pas contrôlés à l'aide de l'angle limite de cisaillement car ce dernier ne s'applique pas à ce type de renfort (car les fils sont orientés dans une seule direction et il n'y a donc pas d'intersections entre les fils dans une couche). Il faut donc trouver de nouveaux paramètres et critères permettant de caractériser et contrôler l'apparition des défauts pour ainsi améliorer la conformabilité de ces renforts. Par ailleurs, des études ont été faites sur l'utilisation du papier en remplacement du plastique pour la fabrication des contenants alimentaires [46, 76]. Ces études ont montré qu'il est possible de fabriquer des contenants 3D à géométries complexes à condition de bien

maîtriser les paramètres suivants: la température (du poinçon et de la matrice), la pression (du serre-flan ou de fermeture du moule), la teneur en humidité dans le papier et grammage du papier. Par exemple, la température et l'humidité favorisent le ramollissement du papier, sa déformation et son formage sous géométrie 3D tandis que le refroidissement permet de fixer la géométrie de la préforme 3D [46, 50, 76-83].

La question centrale de cette thèse est d'abord de déterminer s'il est possible de fabriquer des préformes 3D à partir des renforts UD/mat et UD/papier en utilisant l'action des paramètres procédés suivants: pression de compaction, température du moule de compaction, teneur en humidité dans le papier et nombre de couches de renforts à l'image de ce qui se fait pour la fabrication des contenants 3D en papier-carton. Si oui et sachant que de tous les modes de déformation intervenant durant le préformage, la compaction transverse (perpendiculaire au plan du stratifié) est celui qui influence le plus le taux de fibres de la préforme et par voie de conséquence les propriétés finales de la pièce composite, on peut se poser la question de savoir comment ces paramètres affectent la réponse en compaction transverse des renforts UD/mat et UD/papier. Il faut ensuite déterminer quelle est l'influence de ces paramètres sur la perméabilité des préformes ainsi obtenues ainsi que les propriétés mécaniques (en tension et en flexion) des composites fabriqués à partir de ces préformes? En effet, il est important de s'assurer que la perméabilité des renforts et les propriétés mécaniques ne sont pas dégradées par les conditions de compactage (et par extension de préformage). Enfin, comment la phosphorylation, qui est un traitement augmentant l'hydrophilie des fibres naturelles et leur résistance au feu (tout en ne modifiant pas leur morphologie), affecte la compaction et les propriétés mécaniques des composites? De même, comment les renforts UD/mat et UD/papier se comparent à des renforts commerciaux pour ce qui concerne le comportement en compaction et les propriétés mécaniques obtenues pour des plaques moulées avec des renforts pré-compactés dans les mêmes conditions? Ces interrogations nous permettent donc de définir les objectifs de cette thèse.

#### 1.4 Objectifs

Après une revue de littérature sur le sujet (Chapitre 2) et une description des équipements expérimentaux utilisés pour les travaux (Chapitre 3) et afin de répondre aux interrogations

soulevées dans la section précédente, les objectifs suivants seront poursuivis :

- Vérifier s'il est possible de former de bonnes préformes 3D à partir des renforts UD/mat et UD/papier, comme dans le cas des contenants 3D en papier-carton, en jouant sur les paramètres procédés suivant : pression, température, humidité et nombre de couche de renforts dans le stratifié.
- Étudier les effets de ces paramètres sur la compaction planaire des renforts UD/mat et UD/papier. Ces deux premiers points sont étudiés au chapitre 4.
- Évaluer l'influence de ces paramètres sur la perméabilité et les propriétés mécaniques des composites fabriqués à partir des préformes lin UD/mat ou UD/papier obtenues dans les mêmes conditions. Ceci permettra de valider ainsi jusqu'où les paramètres de préformage affectent la perméabilité et les propriétés des composites obtenus. Ces travaux sont décrits au Chapitre 5.
- Évaluer l'influence de la phosphorylation sur la réponse en compaction et les propriétés mécaniques des composites fabriqués à partir des renforts UD/mat. La phosphorylation rend les fibres ignifugées (avantage important pour les composites à fibres naturelles) mais augmente le caractère hydrophile des fibres, ce qui réduit leur compatibilité avec les matrices hydrophobes. La conséquence est une mauvaise interface fibre-matrice et donc un mauvais transfert de charges mécaniques. Toutefois, dans une optique où l'on utilise l'humidité pour fabriquer les préformes dans nos travaux, des fibres plus hydrophiles pour le formage (donc plus susceptibles au gonflement) et plus résistantes au feu pourraient-elles constituer un avantage? Cette question a été évaluée et fait l'objet du Chapitre 6.
- Comparer le comportement en compaction transverse des renforts UD/mat de type  $[0/90]_n$  avec celui d'un stratifié à renforts commerciaux tissés. Comparer ensuite les propriétés mécaniques des composites moulés avec les deux types de renfort ayant subi les mêmes traitements de compaction avant le moulage. Cet aspect sera aussi abordé au chapitre 6.

Pour répondre à ces questions complexes et par le fait même pour restreindre l'étendue des travaux à réaliser, le pourcentage volumique de fibres dans les stratifiés a été maintenu

constant à environ 45 %, et ce dans tous les stratifiés étudiés. L'effet du pourcentage de fibres sur la compaction sera évalué dans des travaux futurs.

## Chapitre 2 - REVUE DE LA LITTÉRATURE SCIENTIFIQUE

Dans la section précédente, nous avons rappelé quelques données sur les fibres naturelles et les composites (à fibres naturelles et synthétiques). Le présent chapitre de revue de la littérature comporte six parties principales. Les deux premières portent respectivement sur le préformage et la compaction planaire des renforts à fibres synthétiques et naturelles. La partie 3 présente quelques résultats sur la perméabilité des renforts fibreux en général et celle des fibres naturelles en particulier. La quatrième et la cinquième partie décrivent respectivement l'état des connaissances sur les propriétés mécaniques des composites à fibres naturelles et sur l'ignifugation des fibres naturelles. La sixième section s'intéresse au formage des contenants 3D en papier-carton.

### 2.1 Le préformage

#### 2.1.1 Le préformage des renforts à fibres synthétiques

La majeure partie des travaux de préformage porte sur les renforts synthétiques; ces derniers sont disponibles sous différentes architectures (tissus, tricot, ...). Par exemple, Mohammed et coll. [84] ont étudié le préformage de quatre architectures différentes de tissus en fibres de verre sur un moule hémisphérique. Dans cette étude la conformation est évaluée en fonction de la densité des défauts (rides), de l'orientation finale des fibres et de l'avalement de matière (profil de la bordure de la préforme, c'est-à-dire la partie située en dehors de la demi-sphère). La géométrie sphérique permet de mettre en évidence l'influence significative de l'architecture du renfort sur le mode de déformation principal (cisaillement plan), sur l'orientation finale des fibres et sur l'occurrence des défauts (rides, flambements localisés des fils, glissement des fils). Cette étude illustre aussi le lien entre la distribution des angles de cisaillement et la formation de défauts. Dans les zones de fort cisaillement (près de l'équateur de l'hémisphère), le taux volumique de fibres peut devenir supérieur à la limite de compaction; ce qui pourrait occasionner la formation de replis et le flambage localisé des

fil. D'autres études, comme celles de Rozant et coll. [85] sur les renforts tissés et les renforts tricotés en fibres de verre, confirment l'influence du cisaillement plan mais aussi l'effet de certains paramètres matériaux (espace entre fils et largeur des fils) sur le préformage. Généralement, l'angle limite de cisaillement entre les fils de trame et de chaîne est l'un des critères les plus utilisés pour prévoir l'apparition de défauts (les replis et les flambements de fils) sur les préformes de tissus [69, 85-88]. Toutefois, d'autres paramètres en dehors de l'angle de cisaillement pourraient servir d'indicateur à la formation des rides [88]. Allaoui et coll. [69] dans leurs travaux sur le préformage de tissus de carbone sur un poinçon tétraédrique obtiennent des replis dans des zones à faible cisaillement tandis que les zones de fort cisaillement n'en présentent pas; ce qui indique que le critère "angle de blocage" pour détecter le début de la formation des replis ne doit pas être appliqué à tout type d'architecture. Il s'avère que, dans ce cas, la rigidité en tension des fils est suffisamment importante pour limiter la formation de replis. Ainsi, les trois composants de l'état de contrainte (tension, cisaillement plan et flexion) jouent un rôle important dans l'occurrence de défauts hors plan (flambement, replis). Lors du préformage 3D de renforts multicouches, la séquence d'empilement, la pression exercée par le serre-flan et le coefficient de frottement interplis peuvent avoir une forte influence sur la qualité finale de la préforme. Allaoui et coll. [70] ont montré l'effet considérable du frottement interplis sur la qualité finale d'une préforme prismatique (Figure 2.1a) faite à l'aide d'un tissu 2D en fibres de carbone. Dans les tissus, le frottement interplis résulte de la superposition du frottement fils/fils (lié au glissement relatif entre les fils de plis consécutifs) et le choc entre les fils transverses des couches consécutives. Si les forces de frottement sont importantes, elles généreront des forces tangentielles considérables qui entraveront le mouvement relatif des plis ; ce qui favorisera l'amorçage des replis (Figure 2.1b), les flambements de fils (Figure 2.1c), les ruptures de fils (Figure 2.1d) et les hétérogénéités du motif de tissage (Figure 2.1e). Les hétérogénéités de motif des tissus sont principalement dues aux contraintes sévères générées par les conditions limites de la géométrie (faible rayon de courbure au point triple) et la pression exercée par un pli de dessus sur celui de dessous. Dans certaines zones de la préforme, le glissement relatif des fils de trame et de chaîne provoque des hétérogénéités du motif de tissage se traduisant localement par une densité des fils plus faible [70].

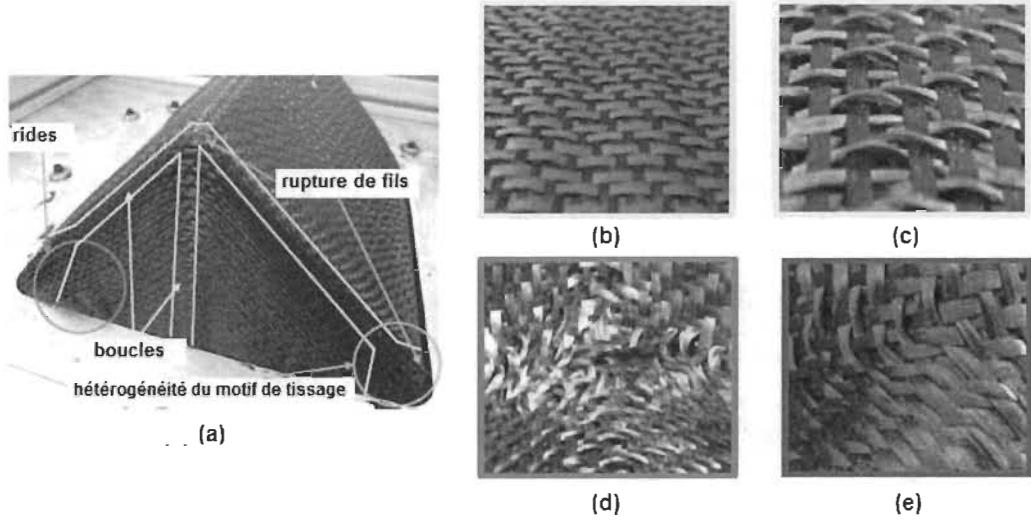


Figure 2.1: (a) Géométrie prismatique. Défauts de préformage: (b) replis, (c) flambement de fils, (d) rupture de fils et (e) hétérogénéité du motif de tissage [70].

Ainsi, la compétition entre les chocs transverses de fils (qui favorisent les défauts) et le compactage (qui les amoindri) contrôle l'occurrence et l'amplitude des défauts. Ces travaux montrent que certains défauts liés au frottement peuvent être réduits si le glissement relatif des couches est plus faible que la longueur de l'unité cellulaire (maille élémentaire) du tissu [70]. Pour les tissus de carbone, Nezami et coll. [89] ont étudié l'influence de l'orientation initiale des plis (séquence d'empilement) par rapport aux parois du moule, l'interaction entre les plis (frottement) et la géométrie du moule sur l'apparition de défauts de préformage. Dans le cas des préformes multicouches, les mouvements relatifs entre les couches induisent la formation de certains défauts (distorsion de fibres avec ou sans vides (petits ou larges), rupture de filaments) qui peuvent être plus ou moins importants selon l'orientation relative des plis.

### 2.1.2 Le préformage des renforts à fibres naturelles

La majorité des travaux sur le préformage 3D des renforts 2D à fibres naturelles concerne les tissus. Généralement, le renfort est préformé sur un dispositif externe ayant la même géométrie que le moule d'injection mais permettant d'imposer des forces de déformation plus importantes que lors de la fermeture du moule d'injection. Les déformations qui se produisent durant le préformage d'un renfort multicouche sont une combinaison de plusieurs

phénomènes complexes (traction biaxiale, cisaillement intraplis, compaction, flexion). Selon l'architecture et l'orientation du renfort par rapport au poinçon, le nombre de plis et la complexité géométrique du poinçon, certains défauts apparaissent.

Moothoo et coll. [64] ont étudié le préformage d'un renfort de lin de type taffetas sur un dispositif de formage muni d'un poinçon tétraédrique et d'une matrice (moule femelle) ouverte permettant la prise d'images par caméra. Les auteurs observent la présence de certains défauts comme des surépaisseurs et des replis sur certaines faces de la préforme et en dehors de la zone utile (Figure 2.2). Ces replis s'expliquent par le fait que sous l'effet des déformations imposées par le dispositif, les mèches viennent en contact les unes avec les autres au fur et à mesure que le cisaillement intraplis augmente. L'augmentation progressive et continue de ce contact se traduit par une augmentation des phénomènes de compression latérale entre les mèches, une augmentation de la rigidité de cisaillement et une diminution de l'angle entre les fils de trame et les fils de chaîne. En-dessous d'un certain angle, dit angle de blocage, les fils commencent à onduler, ce qui se traduit par l'apparition de replis. Cette étude montre que certains paramètres comme la constitution des mèches, le nombre de fibres par fils, l'alignement des fibres ainsi que l'architecture (taffetas, toile, sergé) du renfort ont une influence significative sur sa déformabilité et la qualité finale de la préforme. Les auteurs observent aussi qu'il est possible de réduire l'amplitude des replis ou du moins de limiter leur apparition en augmentant localement la tension dans les fils des renforts grâce à un serre-flan. La Figure 2.3a présente les courbes de cisaillement obtenues dans le test de cisaillement intraplis (cisaillement treillis). On y distingue trois zones caractéristiques du cisaillement des tissus et les angles correspondants. Au début de la zone 1, l'effort mesuré est faible car il y n'a pas encore de contact entre les mèches de même direction et les seuls efforts sont causés par le frottement entre fils de chaîne et fils de trame. Dans la zone 2, les mèches commencent à se toucher et l'angle de blocage (Figure 2.3b) est atteint. Ce contact entre mèches voisines s'accompagne d'un début de compaction latérale. Cette dernière est d'abord partielle dans la zone 2 puis s'intensifie dans la zone 3; ce qui se traduit par l'augmentation nette de l'effort de cisaillement. À partir de la zone 3, on commence observer la formation de replis [60, 90]. La Figure 2.3b, décrit l'angle de blocage et les deux manières de le calculer en fonction de la rotation des fils de trame (en rouge) [63].

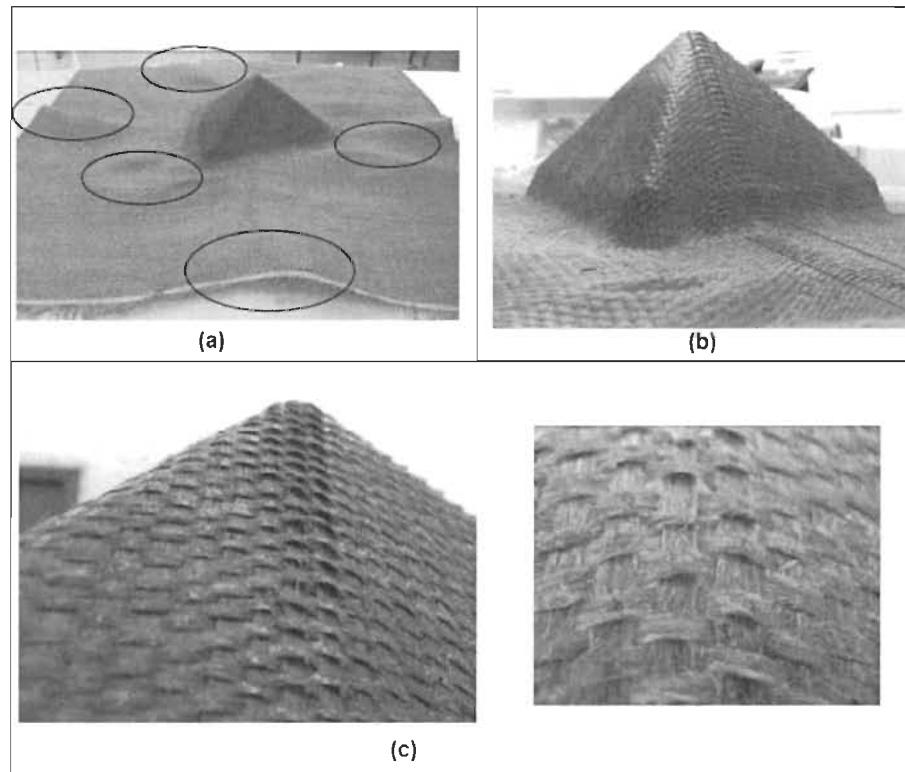


Figure 2.2: Préforme de lin, architecture taffetas: (a) rides en dehors de la zone utile, (b) position des surépaisseurs et (c) zoom sur les boucles (ou flambements) [64].

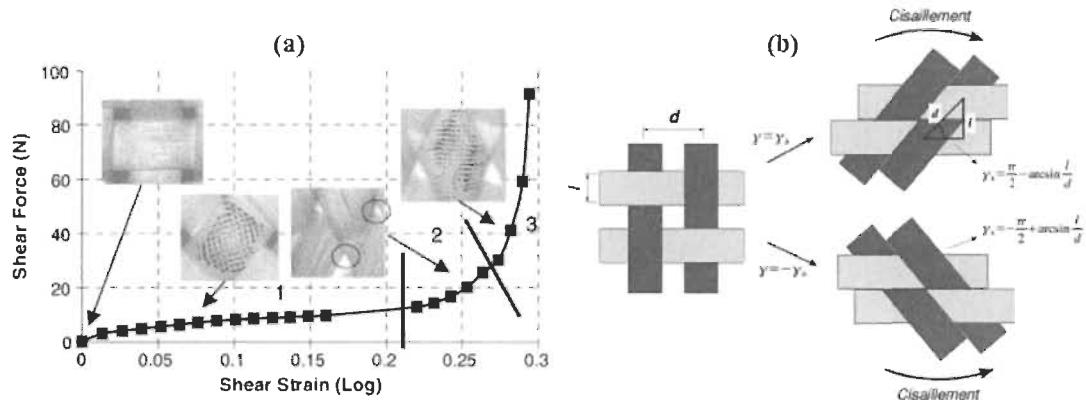


Figure 2.3: (a) Courbe de cisaillement issu d'un test de cisaillement en biais et phénomènes mésoscopiques [60] et (b) angle de blocage [63].

Les paramètres géométriques des renforts ne sont pas les seuls à influencer leur préformage. Capelle et coll. [33] ont examiné le préformage à sec de renforts tissés faits de fils de lin détordus (“untwisted”, en anglais). Ils ont utilisé le même montage expérimental que Moothoo et coll. [56] afin de modifier localement la pression moyennant une optimisation de la géométrie du serre-flan. Les replis ont été substantiellement réduits grâce à des ajustements locaux de la tension (diminution de la tension dans les fils passant par le point triple du poinçon et augmentation dans les fils présentant du flambage). Leurs résultats montrent que les paramètres procédé (pression de serre-flan, géométrie du moule) ont une forte influence sur la qualité finale de la préforme. Un bon ajustement de ces paramètres permet d'améliorer la qualité des préformes. En variant le ratio entre les fils de trame et de chaîne, on peut aussi améliorer la formabilité des tissus. Par exemple, Vanleeuw et coll. [91] ont étudié la déformabilité et le formage d'un tissu quasi-unidirectionnel de lin (95,5 % de fils de chaîne et 4,5 % de fils de trame) en utilisant une machine de formage munie d'un poinçon en double dôme pénétrant une matrice ouverte (Figure 2.4 a et b). La faible proportion de fils de trame dans le tissu induit peu d'interactions chaîne-trame et limite l'action des forces de frottement dans la phase initiale du cisaillement [91]. Une autre conséquence de cette distribution des fils est que les préformes obtenues ne présentent pas de défauts visibles (replis, ouvertures). En effet, la distribution des angles de cisaillement sur la préforme montre que partout les angles de cisaillement restent bien inférieurs à l'angle de blocage du renfort. Ouagne et coll. [58] ont étudié les défauts tels que le flambement ou le désalignement des mèches lors du préformage de tissus de lin sur un moule tétraédrique. Leurs travaux montrent qu'il est difficile de prévenir le flambement des fils juste en ajustant seulement les paramètres procédés (la pression de serre-flanc, l'orientation des renforts, ...). L'optimisation ou l'adaptation de l'architecture du renfort en fonction du moule de préformage est nécessaire, tant à l'échelle mésoscopique (espacement entre les fils de trame et de chaîne) que macroscopique. Toutefois, il est aussi possible de réduire significativement la formation de certains défauts tels que le flambement et le glissement des fils en optimisant la géométrie du serre-flan pour permettre d'augmenter ou réduire localement la tension dans certains fils pendant le préformage comme l'ont montré Capelle et coll. [33].

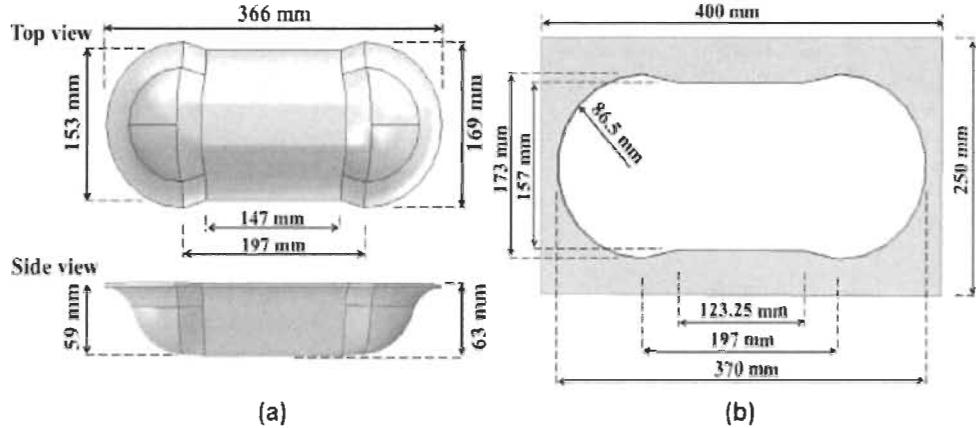


Figure 2.4: Géométries du (a) poinçon double dôme et de (b) la matrice ouverte (b) [91].

Un autre avantage de l'optimisation de la géométrie du serre-flanc est qu'il n'est plus nécessaire d'optimiser le tissu à préformer pour le préformage de géométries complexes. Omrani et coll. [92] ont étudié la déformabilité et le préformage de renforts non tissés (mats) à fibres de lin. Ils ont observé que moyennant un bon ajustement de la pression du serre-flanc et une densité surfacique de renfort suffisamment élevée, il est possible de former des préformes ayant des géométries complexes (Figure 2.5 a et b) sans défauts apparents, notamment les replis ou les vides.

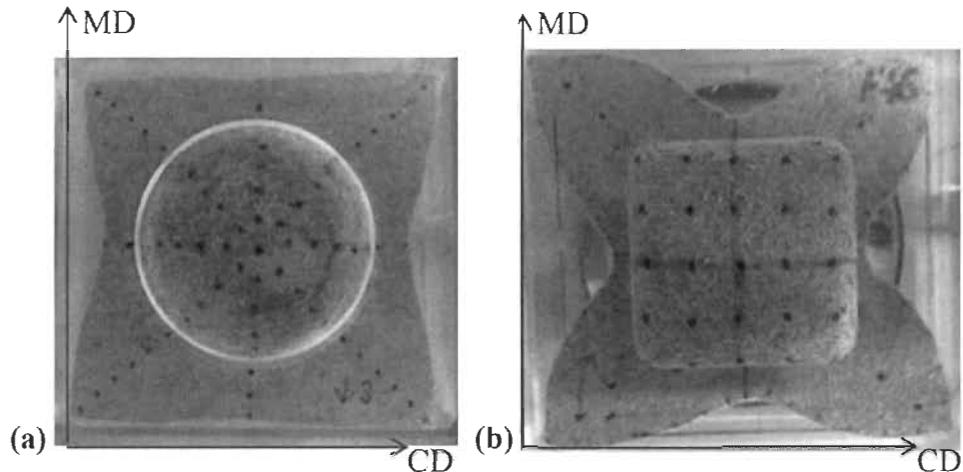


Figure 2.5: Préformes faits de plis 0/90° de renforts non-tissés de lin de différents grammages : (a) 300 g.m<sup>-2</sup> et (b) 450 g.m<sup>-2</sup> [92].

Néanmoins, les préformes obtenues peuvent présenter localement des différences de densité surfacique des fibres (et donc de taux volumiques de fibres); ce qui peut fausser la perméabilité des préformes et induire des zones de faiblesse dans les composites obtenus

après moulage. Ainsi, deux facteurs importants à contrôler lors du préformage de ce type d'architecture sont : la force de serre-flan et la densité surfacique locale du renfort ou de la préforme.

### 2.1.3 Conclusion sur le préformage des renforts fibreux

La majorité des travaux sur le préformage des renforts non imprégnés concerne principalement les tissus, les mats ou les architectures 3D tissées ou cousues. Le préformage de ces architectures peut conduire à l'apparition de divers défauts de préformage : les replis, les déchirures, les flambements localisés, le désalignement des fils, la décohésion du renfort ou de la préforme. Pour limiter la formation de ces défauts, différentes approches plus ou moins coûteuses sont déployées : l'optimisation du moule de préformage afin d'appliquer localement un type précis de contrainte, l'optimisation du renfort ou des fils, l'ajustement localisé de la densité surfacique du renfort. De plus, pour fixer la préforme 3D et éviter sa déconsolidation après préformage (sous l'effet du retour élastique) en vue du moulage ultérieur, il est courant d'utiliser un liant aérosol de résine; mais cette étape supplémentaire est génératrice de coût (en temps et en capital). Aucun des travaux de la littérature n'a examiné le préformage 3D des renforts UD comprenant un liant continu (mat ou papier) comme ceux développés à l'I2E3 de l'UQTR.

## 2.2 La compaction planaire

### 2.2.1 Réponse en compaction des renforts synthétiques

La compaction désigne la condition d'un renfort soumis à une force appliquée perpendiculairement à son plan [93]. La littérature sur l'étude de la compaction des renforts à fibres synthétiques est abondante. Robitaille et coll. [94] se sont intéressés au comportement en compaction et en relaxation de différents renforts en fibres de verre. La relaxation (des contraintes) mesure ou définit la variation (baisse) dans le temps de la pression nécessaire pour maintenir constante l'épaisseur de la préforme; ce phénomène est présent dans les procédés comme le RTM [3]. En revanche, si une pression constante est appliquée à une préforme, son épaisseur diminuera graduellement avec le temps. Ce phénomène désigne le fluage et est présent dans les procédés de moulage par infusion sous vide [3]. Leurs travaux

montrent que le paramètre qui influence le plus la compaction et celui qui agit le plus sur la relaxation ne sont pas identiques. La compaction est majoritairement influencée par le nombre de cycles de chargement tandis que la relaxation dépend du taux de compaction.

Leurs travaux montrent aussi que l'architecture du renfort, le nombre de couches, le temps de maintien sous pression, le taux de compaction et la pression maximale atteinte ont une influence sur le  $V_f$  final [94]. La Figure 2.6 présente un cycle unique de compaction. Le renfort est compacté jusqu'à l'épaisseur désirée. Une fois atteinte, cette épaisseur est maintenue pendant une durée de temps fixe, après quoi, la charge de compaction est retirée le plus rapidement possible afin de permettre au renfort de recouvrir librement son épaisseur. Ce recouvrement comporte trois phases : une phase rapide induite par le retour élastique du renfort après relâchement de la charge de compaction, une phase beaucoup plus lente et durant laquelle l'épaisseur recouvrée dépend du temps (phase viscoélastique). La troisième partie représente la déformation non recouvrée et représente la déformation permanente [95, 96]. Somashekhar et coll. [97] ont étudié la compaction de renforts de types mat et taffetas en fibres de verre en fonction du nombre de cycles de chargement et de certains paramètres procédés.

Leur étude démontre qu'après plusieurs cycles consécutifs de chargement/déchargement, la déformation permanente est du même ordre de grandeur que la déformation élastique et augmente à la fois avec le nombre de cycles et le nombre de couches de renfort. L'étude montre aussi que la déformation permanente dépend de l'architecture du renfort, du  $V_f$  final, du temps de maintien à  $V_f$  final et de la vitesse de compaction. Wu et coll. [98] se sont intéressés aux effets des paramètres de compaction et de préformage (température de compaction, température d'activation du liant, teneur en liant et temps d'activation) sur le taux volumique de fibres et l'épaisseur résiduelle d'une préforme de tissus de verre NCF contenant un liant époxyde sous forme de poudre. Leur étude montre que la température de compaction influence fortement la fraction volumique de fibres et l'épaisseur résiduelle de la préforme. De plus, la présence de liant dans les renforts influence significativement la réponse en compaction.

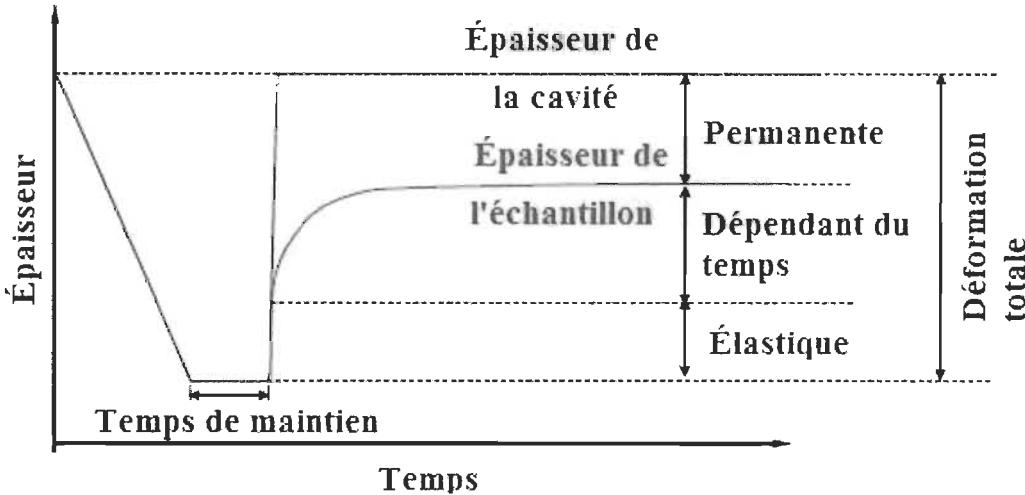


Figure 2.6: schémas cycle unique de compaction. Image modifiée de [95].

Gutiérrez et coll. [99] ont étudié l'effet des paramètres de vibration (amplitude et fréquence) sur la réponse en compaction et l'imbrication des fils et fibres (communément appelée "nesting" à la Figure 2.7) de deux architectures de renforts en fibres de verre. Comme le montre la Figure 2.7, l'imbrication (ou la nidification) peut se produire par suite du déplacement géométrique entre les fils adjacents ou par suite de l'insertion des fils d'une couche entre les fils de la couche voisine. Cette étude montre l'importance de la nidification des fibres sur l'augmentation du  $V_f$  lorsque le nombre de couches de renfort augmente. Cette étude montre aussi que, selon l'architecture du renfort, la force de fermeture du moule peut être réduite considérablement par rapport à un essai de compaction sans vibration.

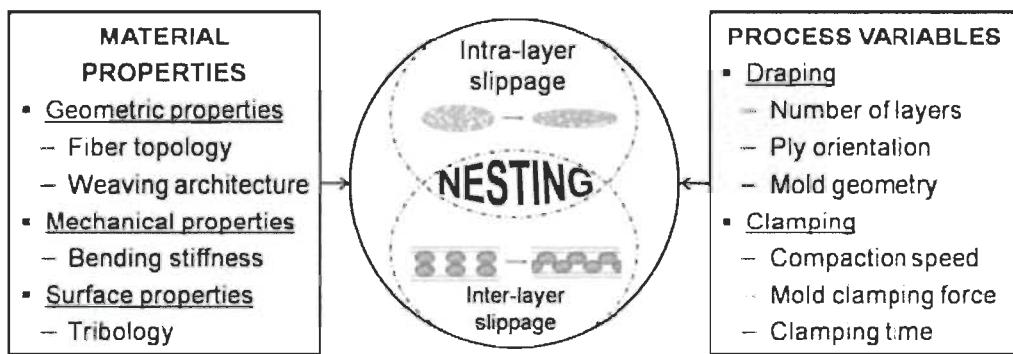


Figure 2.7: Principaux facteurs affectant la nidification des fibres [99].

Les fréquences de vibration ont un impact évident sur la nidification (et sur le  $V_f$ ) tandis

que l'effet de l'amplitude est minime. Par ailleurs d'autres paramètres telles que la rigidité en flexion et les propriétés de surface (tribologie) des fibres peuvent influencer la nidification. Renaud et coll. [100] ont étudié l'influence de la lubrification à l'eau, de la température, du motif de tissage et de la présence d'un enzymage de polymère à la surface des fibres sur le fluage en compaction de tissus 3D interlock en fibres de carbone. Ils ont montré que la température et la lubrification à l'eau améliorent la capacité de compactage de ces tissus et que les effets de ces deux paramètres sont combinatoires. Dans le cas des renforts contenant un enzymage, l'augmentation de la température de compaction conduit à la diminution de la viscosité du polymère constituant l'enzymage sur les fibres; ce qui se traduit par une réduction du coefficient de frottement et donc une amélioration de la capacité de compaction.

Kruckenberg et coll. [101] ont évalué le comportement en compaction quasi-statique de différentes architectures de renforts secs et lubrifiés de fibres de verre grâce à une solution de glycérine diluée avec de l'eau. Ils ont montré que les renforts lubrifiés étaient plus faciles à compacter que les renforts secs. De plus, en raison de la nidification, les empilements contenant plus de couches étaient plus faciles à compacter que ceux qui en contenaient moins. Chen et al [102] ont identifié cinq facteurs qui influencent la compaction de différentes architectures de renforts en fibres de verre: déformation de la section droite des fils, aplatissement des fils, flexion des fils, condensation des vides et espaces et nidification. L'amplitude de ces phénomènes dépend de l'architecture du renfort. Par exemple, la nidification est un facteur dominant pour les tissus. La condensation des vides et espaces est un facteur important pour les mats à fibres courtes et les tissus. Li et coll. [103] ont décrit le processus de nidification et son influence sur la compaction de différentes architectures de renforts NCF en fibres de carbone. Dans le cas des NCF, la nidification est due à l'enfoncement de certains fils (fils de couture par exemple) et la distorsion des faisceaux de fibres au niveau des espaces intra-couches contrairement aux tissus où la nidification se produit du fait d'un déplacement transverse (hors-plan) des fils entre couches adjacentes (voir Figure 2.8). Leur étude révèle aussi le fait que, pour ces renforts, la lubrification et la vitesse de compaction n'ont pas d'effet significatif sur le processus de compaction mais ont un effet sur la relaxation.

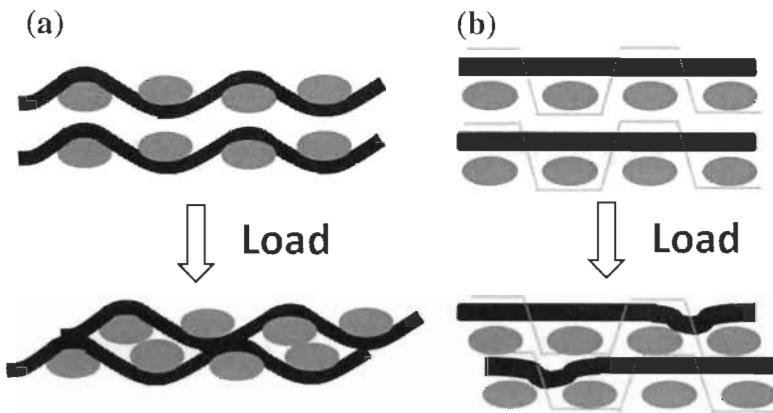


Figure 2.8: Illustration de l'imbrication dans les renforts tissés (a) et dans les renforts NCF (b) [103].

Pour des NCF en fibres de carbone, Yang et coll. [104] ont montré que la nidification et le modèle de tissage ont peu d'effet sur la variation d'épaisseur par couche de renfort. Wei et coll. [105] ont étudié les effets de la teneur en liant chimique et de différents paramètres procédés sur le comportement en compaction de tissus en fibres de carbone. L'augmentation de la teneur en liant conduit à l'augmentation de la proportion viscoélastique de l'épaisseur recouvrée à la fin des tests de compaction et de la proportion de déformation permanente. Réduire la vitesse de compaction permet d'augmenter le taux de fibres mais augmente par le fait même la durée de préformage.

### 2.2.2 Réponse en compaction des renforts à fibres naturelles

L'utilisation de renforts à fibres naturelles dans les procédés de moulage par injection sur renfort (moulage par transfert de résine, par infusion...) requiert, comme dans le cas des renforts synthétiques, la caractérisation de leur réponse en compaction. Les renforts en fibres naturelles, en plus d'exhiber certains comportements évoqués précédemment dans le cas des renforts synthétiques, présentent de nombreuses particularités au compactage.

Francucci et coll. [106] ont étudié l'effet de la structure des fibres et de l'absorption de fluide sur la réponse en compaction de tissus de jute et mats de sisal comparativement à un mat en fibres de verre. La pression de compaction nécessaire pour atteindre un  $V_f$  élevé est plus importante pour les renforts en fibres naturelles en raison de la structure rugueuse des

fibres générant des forces de frottement inter-fibres élevées, ce qui contribue à augmenter la force de compactage. Ces forces de frottement limitent considérablement le  $V_f$  maximal atteignable avec les fibres naturelles comparativement aux fibres de verre pour les procédés de moulage par injection sur renfort. Par ailleurs, la proportion de déformation permanente dans les renforts en fibres naturelles est plus importante que dans ceux en fibres de verre en raison de la structure poreuse des fibres naturelles, de l'effondrement de leur paroi, de la fermeture du lumen et de la rupture des fibres [106]. Ils ont aussi montré qu'il est possible, dans le cas des tissus et des mats, d'augmenter la proportion de déformation permanente avec des cycles de compaction. L'architecture du renfort joue aussi un rôle important dans le comportement en compaction. Francucci et coll. [3] ont montré que, lors du compactage d'une préforme constituée de tissus de jute, la pression maximale de compaction et la déformation permanente augmentent avec la vitesse de compaction. Les fortes vitesses de compaction n'offriraient pas assez de temps pour permettre le déplacement et le réarrangement des fibres (par nidification notamment). Par ailleurs, avec l'augmentation du  $V_f$ , la pression de compaction et la déformation permanente augmentent tandis que la relaxation des contraintes diminue. Madsen [107] montre que les renforts alignés (UD) présentent le plus haut degré de compaction comparativement aux autres architectures planaires. D'autres facteurs influencent la compaction des renforts en fibres naturelles (FN). Umer et coll. [66] ont montré que l'augmentation du diamètre des fils de lin entraîne une diminution de la force de compaction des renforts (de type mat) étudiés tandis que la pression de compaction augmente avec la longueur des fils. Selon les auteurs, bien qu'il y ait plus de fibres dans les fils de plus grand diamètre, leur empaquetage est y est plus efficace car il y a moins de points de croisement de fils dans la préforme; de sorte que ces fils offrent assez d'espace pour le réarrangement des fibres durant la compaction. L'augmentation de la pression de compaction dans le cas des mats constitués des fils les plus longs serait causée par la multiplication des points de contact fibre-fibre du fait de l'augmentation de leur longueur. Gu et coll. [108] ont étudié l'effet de la température et de la pression sur la compaction de tissus de ramie. Ils montrent que les hautes températures et pressions de compaction permettent d'augmenter le  $V_f$  et la déformation permanente, ce qui se traduit par une augmentation des propriétés mécaniques. L'augmentation de la déformation résulte

principalement de la déformation des fibres (fermeture du lumen et effondrement des parois) et des fils, de la nidification et insertion de fibres entre couches adjacentes du stratifié. Toutefois, au-delà d'une certaine pression (0,5 MPa) et/ou température (120 °C) de compaction, les propriétés en tension et flexion des composites, faits de ces renforts ainsi compactés, diminuent de façon significative. Les auteurs attribuent cette diminution à une dégradation de la fibre sous l'effet de la compaction à haute température. Shah et coll. [109] ont identifié les principaux mécanismes de déformation en compaction à différentes échelles (fibres, fils, tissus) et pour diverses architectures de préforme (mat de fibres aléatoires, renforts tissés et non tissés). Pour toutes les architectures, l'effondrement des parois des fibres et la déformation de la section des fils et des fibres sont des modes dominants dans les fibres végétales. À l'échelle du fil, la condensation des vides entre les fibres est un mécanisme dominant dans les mats de fibres aléatoires [109]. L'imbrication des couches adjacentes et la densification sont dominantes dans les tissus. Ils observent qu'à hautes pressions de compaction, les empilements de tissus à faible nombre de couches sont plus faciles à compacter que ceux ayant le plus de couches; ceci serait dû au fait que la nidification devient graduellement plus difficile lorsque le nombre de couches augmente, probablement à cause d'une transmission non uniforme de la force de compaction à travers les couches de l'empilement [109].

### 2.2.3 Conclusion sur la compaction des renforts

Il ressort de cette étude que la réponse en compaction des renforts à fibres naturelles est viscoélastique et que ceux-ci subissent des déformations permanentes dont l'amplitude dépend de plusieurs paramètres tels que : la pression de compaction, le nombre de couches de renforts, la température du moule de compaction, l'état de lubrification du renfort, le type de lubrifiant et l'architecture du renfort. Les renforts à fibres naturelles sont plus susceptibles de subir des déformations permanentes que ceux à fibres synthétiques en raison notamment de leur structure.

## 2.3 La perméabilité des préformes fibreuses

La perméabilité  $K$  d'une préforme fibreuse est une propriété qui rend compte de sa

capacité à se laisser imprégner par un fluide. Dans les cas des procédés d'injection sur renfort (procédés LCM, pour "liquid composite molding", dont le RTM fait partie), plus cette grandeur est élevée, plus aisée est l'imprégnation de la préforme, plus rapide est le remplissage du moule et plus faibles sont les coûts de fabrication des pièces [16, 109]. La perméabilité des renforts peut être influencée par différents facteurs tels que la nature des fibres (synthétiques ou naturelles), le type de résine ou du fluide (époxyde, phénolique, ...), l'architecture du renfort, le taux volumique de fibres, la viscosité de la résine, etc. [15, 106, 109-119]. Il existe différentes approches pour déterminer la perméabilité des préformes fibreuses: l'approche unidirectionnelle ou 1-D (Figure 2.9a), l'approche radiale ou 2-D (Figure 2.9b) et l'approche transverse (dans le sens de l'épaisseur de la préforme) [111, 119-121]. Par ailleurs, suivant que le renfort est saturé en résine ou non pendant l'essai de perméabilité, on distingue la perméabilité saturée et la perméabilité non saturée ou transitoire [112]. Plusieurs études ont été menées afin de déterminer la perméabilité de différentes architectures de renforts à fibres naturelles. Francucci et coll. [112] ont montré que, dans le cas des fibres de jute et en deçà d'un taux de porosité de 75 % (donc pour un  $V_f$  de 25 % et plus), la perméabilité saturée est plus importante que la non saturée. Toutefois, dans les deux types de perméabilité (saturée ou non), l'absorption du fluide par les fibres naturelles doit être prise en compte. Pour la perméabilité non saturée, l'absorption du fluide par les fibres conduit à une réduction de la quantité de fluide disponible pour l'écoulement principal; ce qui entraîne une baisse de vitesse du front d'écoulement et donc de la perméabilité. Parallèlement, le fait de saturer le renfort avant l'essai de perméabilité peut entraîner le gonflement des fibres naturelles. Ce gonflement entraîne une réduction du diamètre moyen des canaux d'écoulement ce qui résulte en une baisse de la perméabilité [112].

Nguyen et coll. [122] ont montré que la perméabilité saturée des préformes faites de fils de lin est fortement influencée par la nature du fluide d'essai. La raison de cette dépendance est le gonflement des fibres du fait de l'absorption du liquide. Habibi et coll. [110] ont évalué les effets de la densité surfacique des couches de renfort et de la longueur des fibres sur la porosité et la perméabilité d'un mat à fibres courtes de lin fabriqué à partir d'un procédé papetier.

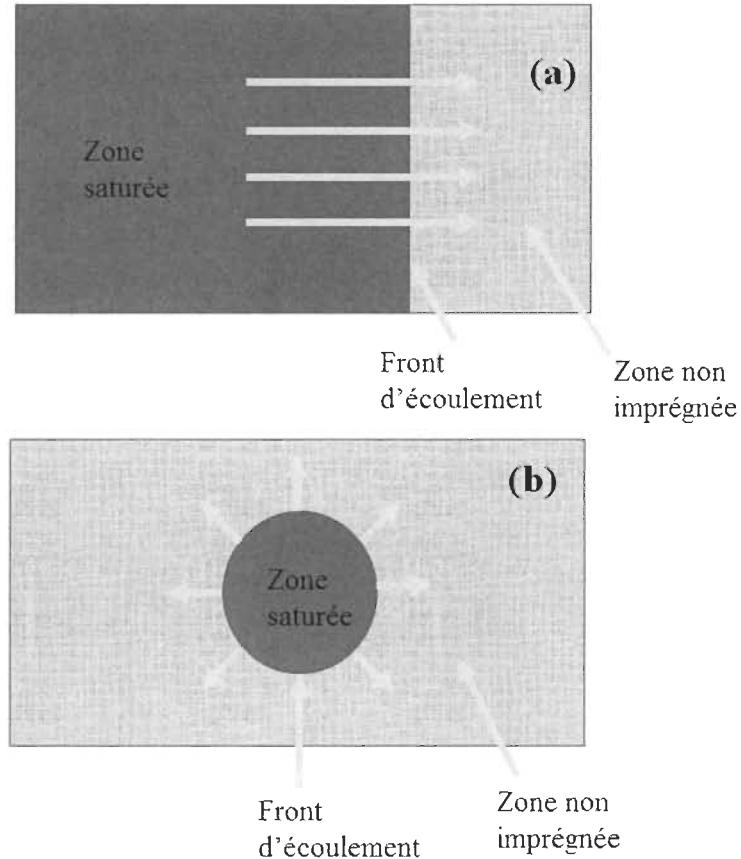


Figure 2.9: Permeabilité unidirectionnelle (a) et perméabilité radiale (b).

L'augmentation de la densité surfacique des renforts entraîne une réduction de la taille des pores tandis qu'à  $V_f$  identiques et pour une même densité surfacique des renforts, un mat de fibres longues (10 mm) aura une perméabilité supérieure à celle d'un mat de fibres courtes (5 mm). Selon les auteurs, cette dernière observation s'expliquerait par le fait que les pores sont plus larges dans le mat à fibres longues et qu'il y a plus d'intersections fibres à fibres dans le mat à fibres courtes de lin susceptibles de ralentir l'écoulement de la résine [110].

La perméabilité d'un renfort de type UD/mat est affectée par la perméabilité de ses constituants (couche UD et couche mat). En effet, Habibi [16] observe que pour un taux volumique de fibre constant, l'augmentation du grammage de la couche mat à fibres courtes entraîne une diminution de la perméabilité du renfort UD/mat par rapport à celle du renfort UD. Dans le même ordre d'idée, Ameri et coll. [55] ont évalué, pour des renforts UD/papier, les effets du grammage de la couche papier et celle de la couche UD sur les valeurs de perméabilité radiale. Ils montrent que la perméabilité de ce renfort dans la direction des fils

UD est principalement influencée par le grammage des couches UD. Toutefois, la perméabilité de ce renfort est inférieure à celle du renfort UD sans couche de papier. Cette étude met aussi en évidence la nécessité de déterminer la vitesse optimale d'injection de la résine afin de contrôler les écoulements capillaires ou inertiels dans les renforts pour ainsi minimiser la porosité dans la pièce moulée [123]. Leclerc et coll. [124] ont investigué les mécanismes de formation des porosités dans des composites renforcés par différentes architectures des renforts. Ils ont observé qu'en plus de dépendre des paramètres procédés (pression ou débit d'injection, température du moule), la formation, la proportion et le type de vide étaient fonction de l'architecture du renfort. Le nombre capillaire, qui est le rapport des forces visqueuses sur les forces capillaires permet de fixer les bornes séparant un régime d'écoulement dominé par la formation de macroporosités d'un régime dominé par la formation de microporosités. Ils ont aussi montré que l'effet des microvides et macrovides sur la résistance en traction des composites n'est pas identique.

Le diamètre des fils de lin a également une influence sur la perméabilité des renforts. Kelly et coll. [125] ont évalué différents diamètres de fils allant de petit (0,35 mm), moyen (0,56 mm) et grand (0,81 mm) sur la perméabilité des mats. Ils ont observé que la perméabilité des fils de diamètre moyen est plus grande que celle des fils de diamètre petit qui à son tour est plus grande que celle des fils de plus grand diamètre. Il apparaît que dans les fils de grands diamètres, les fibres et les fils sont moins compacts et on retrouve à leur surface beaucoup de filaments sans torsion et désordonnées. Selon les auteurs, ces filaments pourraient bloquer les canaux d'écoulement de la résine et donc réduire la perméabilité des mats [125]. Toutefois, comme l'ont montré Rodriguez et coll. [126], à niveau de porosité identique, les mats (sisal) de fibres naturelles, en raison de l'aisance à développer des canaux pour l'écoulement de la résine et de leur flexibilité, peuvent avoir une perméabilité supérieure à celle des mats de fibres de verre.

En conclusion, la perméabilité des préformes est influencée par le type de résine, la nature et la longueur des fibres, l'architecture du renfort, le taux volumique de fibres, la vitesse de la résine et le diamètre des fils. Pour les renforts UD/mat ou UD/papier, leur perméabilité diminue avec l'augmentation du grammage du liant (mat ou papier). De plus, en raison de la double échelle (du moins en termes de longueur de fibres) des renforts UD/mat ou UD/papier,

il est possible d'assister à la formation de microporosités et ou de macroporosités dans les composites moulés à partir de ces renforts. Ce qui requiert de déterminer une vitesse optimale d'injection de résine lors du moulage.

## 2.4 Les propriétés mécaniques

Plusieurs travaux de recherche ont été réalisés afin de montrer le potentiel des CFN dans divers secteurs industriels tels que l'automobile, la construction, l'aéronautique [5, 8, 9, 19, 20, 22, 127-132]. Alves et coll. [132] ont démontré, à travers une analyse de cycle de vie, les avantages, en termes de réduction de la consommation en carburant et de diminution de masse, à utiliser des CFN à fibres de jute comparativement aux composites à fibres de verre pour la fabrication du capot avant d'un véhicule tout terrain. Shah et coll. [22] ont montré que les composites à fibres (UD) de lin pouvaient se positionner comme de potentiels remplaçants des composites à fibres de verre dans des éoliennes de petite dimension (diminution de la masse des fibres d'environ 45 %). Goutianos et coll. [35] ont étudié l'effet de la torsion des fils sur les propriétés mécaniques des CFN. Pour des fibres de lin, cette torsion doit être assez élevée pour permettre le tissage ou le tricotage mais assez basse pour limiter l'effet du désalignement des fibres dans les composites (entraînant une chute de propriétés mécaniques) tout en favorisant l'imprégnation du fil.

Les renforts UD se prêtent bien à la fabrication de composites destinés aux applications structurales car ils permettent de maximiser la rigidité et la résistance [61]. Dans ce type d'application, les UD sont principalement utilisés sous forme de préimprégnés et les procédés de fabrication utilisés sont le thermoestampage [72, 133, 134] ou le placement automatique des fibres (suivi de la cuisson en autoclave) [135-137]. Pour les renforts secs, différents procédés tels que l'infusion de résine ou le RTM permettent d'obtenir des composites ayant de bonnes performances. Ces procédés nécessitent une étape de préformage qui peut être très délicate surtout dans le cas des UD car il faut pourvoir maintenir le parallélisme des fils UD. Pour cela, différentes approches sont utilisées pour limiter le désalignement des fils.

Le tissage permet de limiter quelque peu le désalignement des fils mais peut endommager les fibres. Une autre possibilité est d'utiliser un liant continu [61, 138-140]. Lebrun et coll. [61] ont montré que l'utilisation d'un liant continu en papier pour maintenir l'alignement des

fils UD permet de minimiser la variabilité des valeurs de résistance et de module en tension des composites comparativement aux composites UD-lin-époxy classiques; même si leurs propriétés mécaniques restent quelque peu inférieures.

La perméabilité des renforts UD/papier nécessite cependant une optimisation notamment au niveau de la structure de la couche papier. Habibi et coll. [141] ont montré que pour améliorer la perméabilité des renforts UD/papier, il faut que le grammage du liant soit plus faible et qu'une forte proportion de fibres longues (5 ou 10 mm) de lin soit intégrée au liant afin d'ouvrir davantage sa structure et ainsi d'en augmenter la porosité pour l'imprégnation. Une autre conséquence de cette modification du liant est l'amélioration de la résistance et du module d'élasticité du composite comparativement à un composite UD/papier-époxy classique. Habibi et coll. [54] ont aussi remplacé la couche papier par un mat de fibres courtes de lin comme liant des fils UD. Même si l'ajout du mat se traduit par une baisse légère de la résistance et du module longitudinal en tension et en flexion, comparativement aux composites UD-lin époxy classiques, il occasionne une augmentation significative de ces mêmes propriétés dans la direction perpendiculaire aux fibres UD et une réduction de la variabilité. Ces améliorations sont causées par la couche mat qui maintient la cohésion des fils UD et leur alignement durant la fabrication des composites tout en améliorant les propriétés transverses. Mais plus encore, une homogénéisation de la porosité est observée du fait de l'utilisation de ce type de liant. En effet, comme le mat est fabriqué directement sur la couche UD par projection des fibres courtes sur sa surface, ces dernières peuvent combler les aspérités existantes entre les fils UD, aidant par le fait même à stabiliser les propriétés mécaniques en limitant les zones riches en résine. L'ajout de ce type de liant modifie la surface de rupture des éprouvettes en tension, qui passe d'un aspect en dents de scie (pour les composites UD-lin époxy) accompagné de fissures longitudinales à une surface de rupture relativement plate et confinée (pour les composites UD/mat-époxy) présentant peu ou pas de fissures longitudinales. Toutefois, à  $V_f$  constant, l'augmentation du grammage du liant mat au détriment de celui de la couche UD se traduit par une baisse des propriétés mécaniques [54]. Le Tableau 2.1 montre qu'à taux volumiques de fibres similaires, les composites faits de renforts UD/mat présentent des propriétés en tension équivalentes à celles publiées dans la littérature.

Tableau 2.1: Valeurs publiées dans la littérature pour le module et la résistance en tension des composites lin/époxy.

Type de composite	Types de renfort	Technique de fabrication	Vf (%)	Module de tension longitudinale (GPa)	Résistance en tension longitudinale (MPa)	Réf.
Lin/époxy	UD/mat	RTM	40,0 ±0,0	25,9 ± 1,0	292,4 ± 8,4	[54]
Lin/époxy	UD	IR	40,0 ±0,0	28,0 ± 0,0	133,0 ± 0,0	[145]
Lin/époxy [0,90] <sub>n</sub>	UD	RTM	40,0 ± 2,0	15,0 ± 0,8	159,6 ± 9,3	[142]
	UD/mat			14,6 ± 0,3	138,1 ± 3,3	
Lin/époxy	UD	Moulage par compression	42,0 ±1,0	22,0 ± 0,6	362,0 ± 19,0	[146]
Lin/époxy	UD	RTM	42,0 ±0,0	35,0 ± 3,0	280,0 ± 15,0	[44]
Lin/époxy [0,90]	Cousus biaxial équilibré	Préimprégné	42,3 ± 0,3	11,1 ± 0,2	101,0 ± 2,0	[147]

Habibi et coll. [142] ont étudié les effets de différentes séquences d'empilement ([0/90]<sub>n</sub>, [0]<sub>n</sub>, [ $\pm 45$ ]<sub>n</sub>) sur les propriétés mécaniques en tension, compression et cisaillement des composites UD/mat-époxy. Il ressort que dans le cas du composite [0/90]<sub>n</sub> lin-époxy, l'effet du liant mat des renforts sur les propriétés en tension n'est pas significatif lorsqu'on compare les mêmes propriétés aux composites lin-époxy faits de renforts UD classiques.

Finalement, les préformes et renforts à fibres naturelles sont plus difficiles à compacter que ceux à fibres de verre, ce qui affecte leurs propriétés [106, 107, 143]. D'après Bo Madsen [107], cette différence tiendrait à la structure des préformes à fibres naturelles qui sont principalement constituées de fils discontinus et torsadés comparativement à celle des

préformes en fibres de verre dont les fils sont continus et parallèles. Par conséquent, différentes approches existent pour augmenter le taux de fibres dans les CFN [106, 108, 144]. Gu et coll. [108] ont montré que l'augmentation de la température et de la pression de compaction des préformes constituées de tissus de ramie pouvait permettre d'augmenter les propriétés mécaniques (en tension et en flexion) des composites ramie-époxy. Cependant, au-delà d'une pression de compaction de 0,5 MPa et une température de 120 °C, les propriétés mécaniques commencent à chuter car cette combinaison de paramètres peut endommager les fibres [108].

En conclusion, à taux volumique de fibres identiques, les propriétés mécaniques des composites UD/mat lin-époxy ou UD/papier-époxy se comparent assez bien à celles publiées dans la littérature pour les composites UD lin-époxy. De plus, la présence du liant (mat ou papier) conduit à une augmentation significative de la résistance et du module dans le sens transverse et une réduction de la variabilité des propriétés mécaniques observées dans le cas des composites UD lin-époxy classiques. Cette augmentation peut être rattachée à la présence du liant qui agit comme un mat dans le sens travers tout en limitant le désalignement des fils et la formation de zones riches en résine entre les fils UD).

## 2.5 Les traitements chimiques

Les propriétés mécaniques des composites à fibres naturelles (CFN) sont tributaires de la capacité à extraire ou modifier, en totalité ou en partie les composants non cellulosaques (hémicellulose, cire, pectine, lignine, etc.) qui constituent les fibres naturelles (FN) [148]. Différents traitements chimiques ont été développés afin d'extraire ces composants tout en apportant par la même occasion certaines propriétés aux FN (ignifugation, mouillabilité, hydrophobisation, etc.). En vue de leur utilisation dans des applications aussi exigeantes que l'aérospatiale, la marine, les équipements électroniques ou la construction, la résistance au feu des CFN doit être développée [39, 149-151]. Il existe différentes approches pour augmenter la résistance au feu d'un polymère: on peut modifier sa composition chimique, traiter la pièce polymère en surface ou encore incorporer un retardateur de flamme dans le matériau [150]. Pour les FN, les fibres peuvent être traitées avec un retardateur de flamme avant leur imprégnation par la matrice [39]. Il existe différents agents retardateurs de

flamme : à base d’halogènes, de silicones, de dérivés du phosphore (ester de phosphate, acide phosphorique, de phosphate de diammonium (DAP), tributylphosphate etc.) [150, 152-155]. La composition chimique des FN (notamment celles issues des plantes) influence aussi leur résistance intrinsèque aux flammes. La lignine contribue plus à la formation de charbon et donc à la résistance aux flammes que l’hémicellulose et la cellulose. Il en résulte par exemple, selon Chapple et coll. [39], que la fibre de coco, qui a une faible teneur en cellulose (36 – 43 %) et une haute teneur en lignine (41 – 45 %), devrait avoir une plus grande résistance aux flammes que le coton qui a une très forte teneur en cellulose (85 – 90 %). Les FN ayant une faible teneur en lignine se dégradent à hautes températures, cependant, ces fibres ne sont pas assez résistantes à l’oxydation (laquelle est due aux liaisons aromatiques apportées par la lignine) [39]. Les fibres avec une faible cristallinité et un haut degré de polymérisation et d’orientation fibrillaire constituerait les meilleurs choix en termes de résistance au feu [39]. Une dégradation thermique et une formation de charbon précoce conduisent à la résistance aux flammes des fibres cellulosiques [39].

Shi et coll. [155] ont phosphorylé des fibres kraft en utilisant des esters de phosphates (EP) en présence d’urée fondu. L’avantage d’un tel procédé de phosphorylation par rapport à celui utilisant l’acide phosphorique est qu’il préserve, entre autres, la coloration blanche des fibres kraft et leur dimension (longueur) par rapport aux fibres non traitées. Les fibres kraft phosphorylées avec des EP ont un excellent potentiel retardateur de flamme. Par ailleurs, Shi et coll [156] ont montré que la capacité de rétention d’eau et de gonflement des fibres kraft augmentent par suite de la phosphorylation. En effet, la phosphorylation augmente la densité de groupements phosphates ( $\text{OPO}_3^{2-}$ ) à la surface des fibres; ces groupements sont hydrophiles. Debeli et coll. [152] ont observé que le phosphate de diammonium permettait d’améliorer la mouillabilité et l’adhésion des fibres de ramie avec des résines acide polylactique (en anglais polylactic acid “PLA”) mais diminue la température de dégradation du composite ramie-PLA. Suardana et coll. [153] ont observé que l’augmentation de la teneur en phosphate de diammonium lors de la phosphorylation affecte la rigidité des fibres et peut nuire à la formation de l’interface fibre matrice, à la résistance (traction et flexion) et au module en tension du composite. Sain et coll. [151] ont obtenu une baisse du module en tension et en flexion des composites à base de

polypropylène renforcés par des coques de riz traitées soit à l'hydroxyde de magnésium ou soit à l'hydroxyde d'aluminium comparativement au composite sans traitement. Cette baisse est principalement attribuée à la faible compatibilité entre ces retardateurs de flamme et la matrice. Une conclusion similaire est obtenue par Shukor et coll. [157] pour des composites PLA renforcés par des fibres de kenaf traitées à l'aide du phosphate d'ammonium. L'augmentation de la teneur en phosphate d'ammonium augmente la résistance au feu mais diminue les propriétés mécaniques (résistance et module en flexion et impact). Cependant, si les fibres sont prétraitées à l'hydroxyde de sodium avant l'incorporation du phosphate d'ammonium, les auteurs observent une hausse de ces propriétés mécaniques avec la teneur en hydroxyde de sodium jusqu'à un seuil à partir duquel elles chutent à nouveau. La raison est que ce traitement alcalin permet d'améliorer l'interface entre la matrice et les fibres notamment en nettoyant la surface de ces dernières (extraction des couches de cire), ce qui permet à la résine de mieux imprégner les fibres et donc d'avoir une bonne interface [157, 158].

En conclusion, la phosphorylation des fibres naturelles augmente leur résistance aux flammes mais s'accompagne d'une baisse de certaines propriétés mécaniques lorsque des fibres traitées sont utilisées dans les composites à matrice thermoplastique ou thermodurcissable. Une des raisons est que ces traitements rendent les fibres plus hydrophiles, ce qui réduit leur compatibilité avec les matrices hydrophobes. La conséquence est une mauvaise interface fibre-matrice et donc un mauvais transfert de charges mécaniques. Toutefois, dans une optique où l'on utilise l'humidité pour fabriquer des préformes (comme nous faisons dans les travaux de cette thèse), des fibres plus hydrophiles mais aussi résistantes au feu pourraient-elles constituer un avantage? Cette question sera examinée au chapitre 5.

## 2.6 Le formage des contenants en papier-carton

Depuis quelques années, on assiste au développement de nouveaux procédés pour la fabrication de contenants rigides en papier et papier-carton. Les techniques utilisées peuvent fortement inspirer le préformage des renforts UD-lin à liant papier puisque celui-ci est fait de fibres courtes (comme les contenants) et agit en continu à la surface des fibres UD. Dans la littérature, le développement des contenants passe par l'amélioration de la déformabilité

du papier [46, 77, 78, 81, 82, 159-162]. L'objectif principal de ces travaux est de développer de nouveaux contenants en papier capables de remplacer les plastiques dans les emballages rigides [76, 77, 82, 159, 160, 163]. La principale différence entre le papier et le papier carton se situe surtout au niveau du grammage. Le papier à un grammage compris entre 40 g/m<sup>2</sup> (papier journal) et 120 g/m<sup>2</sup> tandis que les cartons possèdent des grammages qui dépassent les 160 g/m<sup>2</sup> et peuvent atteindre 600 g/m<sup>2</sup> [164]. Dans la suite du rapport, nous utiliserons le terme papier pour désigner le papier ou le papier-carton. Le formage 3D du papier donne lieu à certains défauts décrits ci-dessous.

### 2.6.1 Défauts typiques rencontrés lors du formage des contenants 3D en papier

#### 2.6.1.1 *Fissure et déchirure du papier*

Pour le formage des contenants 3D en papier, on distingue généralement deux procédés principaux : les procédés de formage dans lesquels le papier est maintenu fixe par un serre-flan (hydroformage, pressage à chaud) et ceux dans lesquels le papier glisse sous le serre-flan et est entraîné dans la cavité de formage (procédé d'emboutissage) [46]. Dans les procédés de formage à papier fixe, la ruine du matériau intervient principalement en tension. Lorsque le papier peut glisser sous le serre-flan, des fissures apparaissent. Ces dernières résultent de la combinaison entre le frottement papier-métal, les forces de compression, les forces de cisaillement et les moments de courbure dans les zones à faible rayon de courbure. Ces défauts peuvent être limités en ajustant la force appliquée sur le serre-flan et en réduisant le frottement [46, 76, 82].

#### 2.6.1.2 *Instabilités géométriques post-formage*

En raison de sa nature viscoélastique, le papier peut subir un recouvrement élastique. Les effets de ce-dernier sont divers : reproduction inadéquate de la géométrie et des dimensions du moule et retour élastique des parois de la pièce après un certain temps comme le montre la Figure 2.10. La pièce formée a initialement un rayon de courbure  $R_0$  et fait un angle  $\alpha_0$  avec l'horizontale. Après formage et sous l'action du recouvrement élastique, ces dimensions valent désormais  $R_1$  et  $\alpha_1$ . Les origines de ce phénomène sont diverses selon que le papier est fixe ou mobile durant le formage.

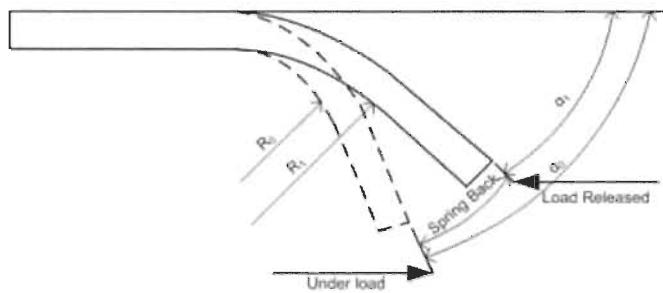


Figure 2.10: Illustration du retour élastique; avec les dimensions (rayon  $R_0$  et angle  $\alpha_0$ ) de la pièce telle que fabriquée et les dimensions (rayon  $R_1$  et angle  $\alpha_1$ ) après les effets du recouvrement élastique [46].

Un séchage excessif ou incorrect du papier lors du formage et le relâchement des contraintes liées au séchage sont des aspects importants à considérer [46]. Un séchage adéquat avant formage et un bon conditionnement des pièces formées permettent de limiter ces instabilités [78].

#### 2.6.1.3 Replis

Les replis (Figure 2.11) sont principalement induits par des forces de compression dans le plan du papier, de façon similaire à la fabrication des préformes pour les matériaux composites, et se manifestent par des rugosités plus ou moins marquées à la surface des pièces. Il est possible de réduire l'intensité et la fréquence des replis en augmentant la pression du serre-flan mais pas trop pour éviter la déchirure [46].

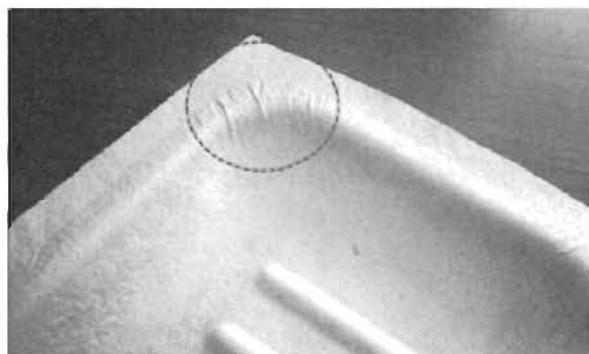


Figure 2.11: Replis sur les parois d'une pièce [46].

#### 2.6.1.4 *La décoloration du papier*

Ce défaut se produit lorsque le frottement entre le papier et les parois du moule est très important ou lorsque le papier est surchauffé pendant le formage. Ce défaut, qui se manifeste par un brunissement ou jaunissement du papier, peut être atténué en ajustant la température de préformage et en réduisant le frottement [46].

#### 2.6.2 Le formage des contenants 3D en papier-carton

Le rôle principal de la chaleur (température) et l'humidité dans le formage 3D du papier concerne surtout le ramollissement du papier, la réduction du frottement avec les parois du moule, le séchage et la fixation de la forme à la pièce après formage.

Hauptmann et coll. [78] ont étudié l'influence de certains paramètres procédés sur la qualité des contenants en papier-carton fabriqués sur une machine d'emboutissage. Les résultats montrent que la force induite par le serre-flan, la somme des températures du poinçon et de la cavité de formage et l'humidité sont les facteurs les plus influents sur la formabilité du papier. Le grammage du papier a aussi une forte influence sur la stabilité géométrique de la préforme. Cette étude fait ressortir le fort potentiel du papier pour la fabrication de contenants rigides en vue de remplacer ceux à base de plastique. La Figure 2.12 présente quelques pièces fabriquées à partir du papier. Toutefois, les auteurs n'ont pas étudié l'influence des paramètres matériaux (comme le coefficient de frottement entre le papier et le moule) sur la formabilité. Vishtal et coll. [77] ont étudié l'influence des propriétés du papier sur la formabilité 2D et 3D. Leur étude montre que les critères de choix d'un type de papier sont fortement liés au procédé de formage qui lui sera appliqué. Par exemple, dans les procédés de formage où le papier glisse sous le serre-flan (emboutissage, estampage), l'aspect final de la pièce dépend du coefficient de frottement dynamique papier-métal, de la déformation en compression, de la rigidité et de l'élasticité transverse du papier ainsi que des propriétés de base (grammage, épaisseur, densité). Un coefficient de frottement élevé améliore l'aspect de la préforme mais peut conduire à des fissures ou à la décoloration. La température et la teneur en humidité du papier, l'épaisseur nominale du moule, la force induite par le serre-flan et la température du moule ont aussi une grande importance dans le

processus de formage [77].

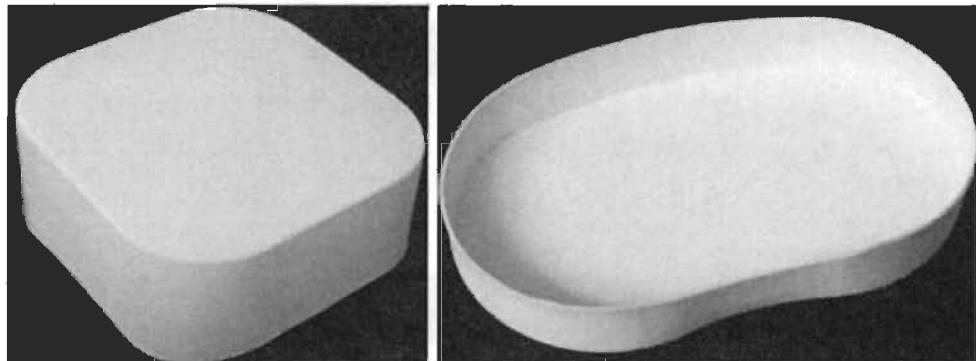


Figure 2.12 : Composant d’emballage en papier carton [78].

En conclusion, il est possible de fabriquer de bonnes pièces 3D à partir du papier-carton à condition de bien ajuster les paramètres procédés (force de serre-flan, température, humidité, grammage) et matériaux (coefficient de frottement) du papier. La température (du moule et du papier), la teneur en humidité du papier, la force induite par le serre-flan ont aussi une grande influence sur la formabilité (géométrie et dimension) tandis le coefficient de frottement influence l’aspect esthétique de la pièce.

## 2.7 Conclusion partielle

Notre étude bibliographique nous a permis de passer en revue les principaux défis à surmonter pour fabriquer de bonnes préformes 3D pour les composites à partir des principales architectures de renforts commercialisées. Les principaux défauts de préformage sont les replis, les désalignement/rupture des fils, glissement des fils, hétérogénéités du motif de tissage, décohésion du renfort ou de la préforme. De tous les modes de déformation auxquels sont soumis les renforts durant le préformage 3D, la compaction des renforts est le mode de déformation qui influence le plus la teneur en fibres et donc les propriétés mécaniques de la pièce composite finale. La compaction des fibres naturelles est influencée par la pression de compaction, la température des plateaux de compaction, l’état de lubrification du renfort (notamment la présence d’humidité), le nombre de couches de renforts, la nature des fibres et l’architecture du renfort. De plus, la réponse en compaction des fibres naturelles est viscoélastique et comprend une part de déformation permanente dont l’ampleur dépend des paramètres de compaction. La teneur en fibres affecte la perméabilité de la préforme au même

titre que l'architecture du renfort, la nature et la structure des fibres, le type de résine et la vitesse d'injection. Pour les renforts UD/mat ou UD/papier à liants continus mat ou papier, la perméabilité diminue avec l'augmentation du grammage du liant (papier ou mat) mais dépend surtout de celle des couches UD. De même les propriétés longitudinales en traction (résistance et module) des composites UD/mat-époxy ou UD/papier-époxy diminuent avec l'augmentation du grammage du liant comparativement aux composites UD lin-époxy classiques. Cependant, les propriétés dans le sens transverse augmentent considérablement avec le grammage du liant tandis que les porosités ont tendance à diminuer. Afin d'augmenter la résistance au feu des CFN en vue de leur utilisation dans l'aérospatiale, la construction et l'automobile, différents traitements phosphorylants sont développés. L'augmentation de résistance au feu peu s'accompagner d'une baisse plus ou moins importante de certaines propriétés mécaniques, dépendamment de la nature et/ ou de la concentration de l'agent retardant, notamment en tension ou en flexion. En lien avec le préformage des renforts UD/mat et UD/papier à liant continu, des travaux montrent qu'il est possible de fabriquer des contenants 3D en papier-carton. Toutefois, cela requiert un bon ajustement des paramètres importants que sont la température du moule, la teneur en humidité du papier, la force de serre-flan, le grammage du papier.

## Chapitre 3 - MATÉRIAUX ET MÉTHODES

Nous présenterons premièrement les fibres et les renforts étudiés. Par la suite, seront présentés les méthodes et équipements utilisés pour fabriquer les renforts et réaliser les différents essais de préformage 3D, de compaction planaire, de moulage et de caractérisation pour atteindre les objectifs généraux définis précédemment.

### 3.1 Matériaux

#### 3.1.1 La pâte kraft

Le premier matériau utilisé est constitué par les fibres courtes de bois de la pâte kraft (Figure 3.1) de densité  $1,4 \text{ g/cm}^3$  et de pourcentage massique d'environ 10 % de fibres dans la pâte pour 90 % d'eau. La pâte est fournie par Produits Forestiers Résolu (St-Félicien, Québec) sous forme de feuilles séchées de pâte kraft blanchie ("dry lap" en anglais). Par la suite, ces feuilles sont transformées en pâte en ajoutant de l'eau à une certaine quantité de feuilles déchiquetées par Innofibre du Cégep de Trois-Rivières. D'autres informations sur cette pâte sont disponibles à l'Annexe A. La longueur moyenne arithmétique des fibres kraft est de  $1,14 \pm 0,03 \text{ mm}$ , déterminée à l'aide d'un appareil FQA ("Fiber Quality Analyser") de la compagnie OpTest Equipment Inc.



Figure 3.1: Pâte kraft.

### 3.1.2 Les fibres de lin

Le deuxième matériau consiste en des fibres courtes de lin (Figure 3.2).



Figure 3.2: Fibres courtes de lin.

Elles sont obtenues au moyen d'une tranche à papier à partir d'un ruban de lin tex 5000 (de la compagnie Safilin Inc. Szczytno, Pologne) coupé en fibres courte d'une longueur d'environ  $6 \pm 1$  mm. Le troisième matériau est constitué par les fils UD continus de lin tex 400. Deux niveaux de torsion des fils ont été utilisés: 30 tours par mètre (pour le chapitre 4) et 40 tours par mètre (pour les chapitres 5 et 6). Ces deux niveaux de torsion relèvent plus de la disponibilité des fils au moment des essais que d'un ajustement voulu de ce paramètre. Ils n'affectent en rien les conclusions tirées dans les chapitres respectifs. Ces fils sont également fournis par la compagnie Safilin Inc. Pour l'étude des effets de la phosphorylation, les fibres sont phosphorylées suivant les étapes décrites dans les sections suivantes.

### 3.1.3 La résine époxyde

Le mélange de résine utilisé comprend la résine époxy 820 et le durcisseur 824 fournis par Adtech Plastic Inc. Le ratio résine-durcisseur est de 18 % de durcisseur en masse, en conformité avec les recommandations du fournisseur. D'après les fiches techniques du fabricant, la viscosité dynamique du mélange résine époxy-durcisseur est de 425 mPa.s (425 cP) et la densité de la matrice cuite est de  $\rho_m = 1,09 \text{ g.cm}^{-3}$  [165].

### 3.1.4 Le fluide pour les essais de perméabilité

Le fluide utilisé pour les essais de perméabilité des renforts est une huile moteur de grade 20W-50. Sa viscosité est de 440 mPa.s à 21 °C, mesurée avec un viscosimètre Brookfield (Brookfield Engineering Inc.). Ce fluide est choisi parce que sa viscosité est proche de celle de la résine utilisée pour mouler les composites mais aussi parce qu'il peut reproduire le comportement d'une résine hydrophobe; permettant d'éviter des problèmes tels que le gonflement des fibres qui se produisent lorsque des résines à base d'eau (comme les résines phénoliques) sont utilisées pour mesurer la perméabilité de préformes à fibres naturelles [112, 165].

## 3.2 Méthodes

### 3.2.1 La phosphorylation des fibres de lin

Les fibres courtes et les fils présentés précédemment sont phosphorylées afin d'augmenter leur capacité à retarder la propagation de la flamme. La première étape consiste à préparer l'ester de phosphate qui sera par la suite utilisé pour phosphoryler le lin.

#### 3.2.1.1 *Préparation de l'ester de phosphate*

Dans un bécher, mettre 210 g de décanol 99 % et agiter pendant 30 minutes à 80 °C à l'aide d'un agitateur magnétique. Par la suite, ajouter doucement 60 g d'acide poly-phosphorique 115 %. Après solubilisation de l'acide poly-phosphorique, cesser de chauffer et laisser refroidir le mélange jusqu'à 60 °C. A cette température, rajouter au mélange, par petite quantité, 60 g de pentoxyde de phosphore (P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>). L'ajout du pentoxyde de phosphore provoque un dégagement de chaleur assez violent. Il faut procéder avec beaucoup de précaution. Le mélange est finalement laissé pendant la nuit sous agitation à 80 °C.

#### 3.2.1.2 *Phosphorylation des fibres*

Dans un bécher, ajouter 382,5 g d'ester de phosphate préparé en 3.2.1.1 et 517,5 g d'urée à 1350 ml d'eau déionisée. Agiter le mélange à faible vitesse de rotation et à température ambiante jusqu'à la dissolution totale de l'urée et l'obtention d'un mélange blanchâtre et légèrement visqueux. Par la suite, tremper 375 g de fibres de lin dans le mélange obtenu et

laisser imprégner toute la nuit. Pour les fibres courtes, le trempage peut se faire directement dans un bécher tandis que pour les fibres longues, il faut préalablement les bobiner autour d'un noyau en verre avant de les tremper dans le bécher. Le surplus du mélange est éliminé par filtration sous vide tandis que le substrat est transféré sur un plateau et mis au four à 150 °C pendant 3 h et 30 min. La réaction est arrêtée par l'ajout de 2 litres d'eau déionisée. Les fibres de lin phosphorylées sont lavées plusieurs fois à l'eau déionisée et séchées à 50 °C. Le taux de phosphore déterminé pour les deux types de fibres (longues et courtes) est de 0,5 %; ce qui représente environ 0,5 mg de phosphore par gramme de fibres de lin. Le protocole de dosage des fibres est disponible en Annexe B.

### 3.2.2 Fabrication des renforts

La couche de liant mat (fibres courtes de lin) ou papier (fibres kraft) est fabriquée directement sur les fils UD par projection d'une suspension (eau + fibres kraft) ou (eau + fibres courtes de lin phosphorylées ou non) à l'aide d'une formette dynamique (Figure 3.3b) de la compagnie ALIMAND Inc. Cette suspension de fibres courtes (lin ou kraft) est d'abord obtenue en dispersant une certaine masse de fibres de lin ou de fibres kraft dans un volume d'eau à raison d'environ 1 g de fibres sèches par litre d'eau ou selon la consistance souhaitée. Cette suspension est ensuite déposée dans le réservoir de la formette dynamique (voir Figure 3.3b). Sur la face interne du tambour rotatif de la formette (tambour d'essorage) est déposée une toile sur laquelle se formera, par projection, la couche liant mat (fibres courtes de lin) ou papier (fibres kraft) sur les fils UD de lin préalablement déposés à l'intérieur du tambour. La suspension est pompée à travers une conduite jusqu'à la buse de projection dont la sortie donne sur la toile située sur la face interne du tambour. La buse se déplace verticalement à l'intérieur du tambour à vitesse constante dans un mouvement de va-et-vient de sorte qu'il se forme une couche mat ou papier uniforme sur les fils UD de lin. Après formation, la couche de renfort UD/mat ou UD/papier est passée sous une presse à rouleau (Figure 3.3c) afin d'en enlever l'excès d'eau avant d'être passée au séchoir à ruban (Figure 3.3d) pendant 10 minutes à une température de 100 °C [16, 165, 166].

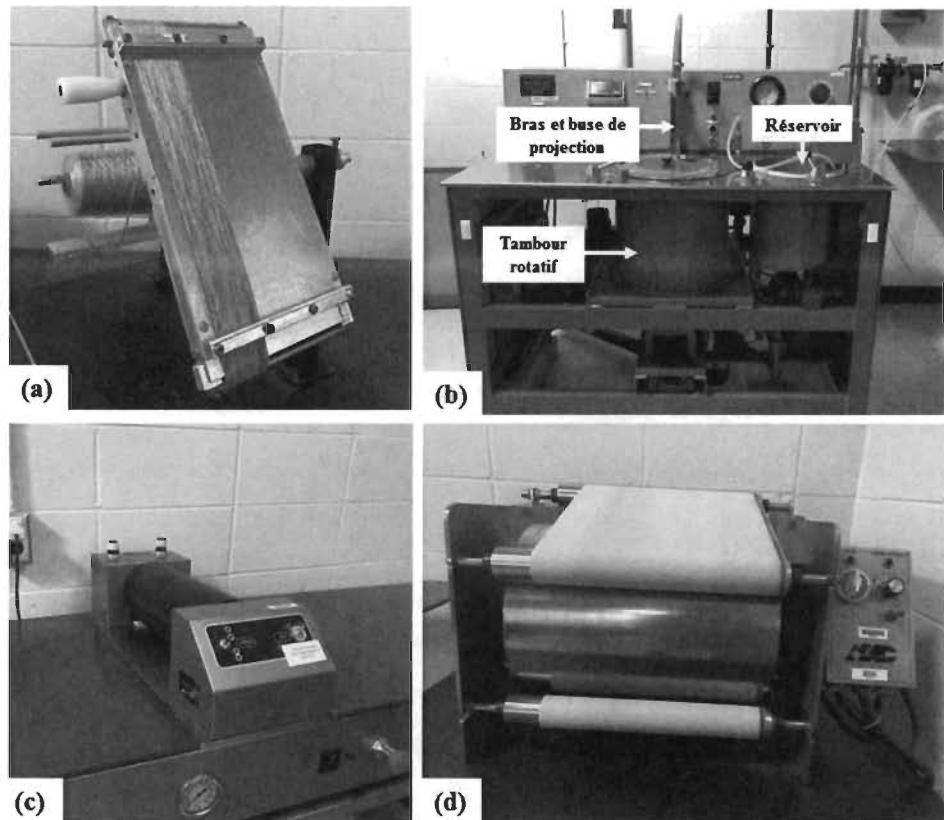


Figure 3.3: Équipements de fabrication du renfort UD/mat et UD/papier : (a) Dispositif d'alignement des fils, (b) formette dynamique, (c) presse à rouleau et (d) séchoir à bande.

La Figure 3.4 présente les différents renforts étudiés dans ce rapport. Les Figure 3.4(a-c) présentent respectivement les renforts UD/mat, UD/papier et UD/mat phosphorylé. Il apparaît que la coloration du renfort UD/mat phosphorylé (Figure 3.4c) est plus blanchâtre que celle du renfort UD/mat dont les fibres n'ont pas été traitées (Figure 3.4a). Ce changement de coloration pourrait être le signe d'un retrait de lignine et d'agent colorant par suite du procédé de phosphorylation. Des analyses supplémentaires de la structure des fibres avant et après traitement seront nécessaires pour étayer davantage ces explications. Toutefois, il a été constaté au “toucher” que les fibres phosphorylées étaient beaucoup plus douces ou soyeuses que les fibres non traitées. La Figure 3.4d présente un tissu de lin de type sérégé 2/2, utilisé pour comparer son comportement à celui des renforts UD/mat pour ce qui concerne la compaction et les essais mécaniques des composites. Ce tissu de code TF11T50A est fournis par TEXONIC Inc. Dans la suite, ce tissu sera désigné par TF. Le Tableau 3.1 présente les grammages des différents renforts utilisés dans cette étude.

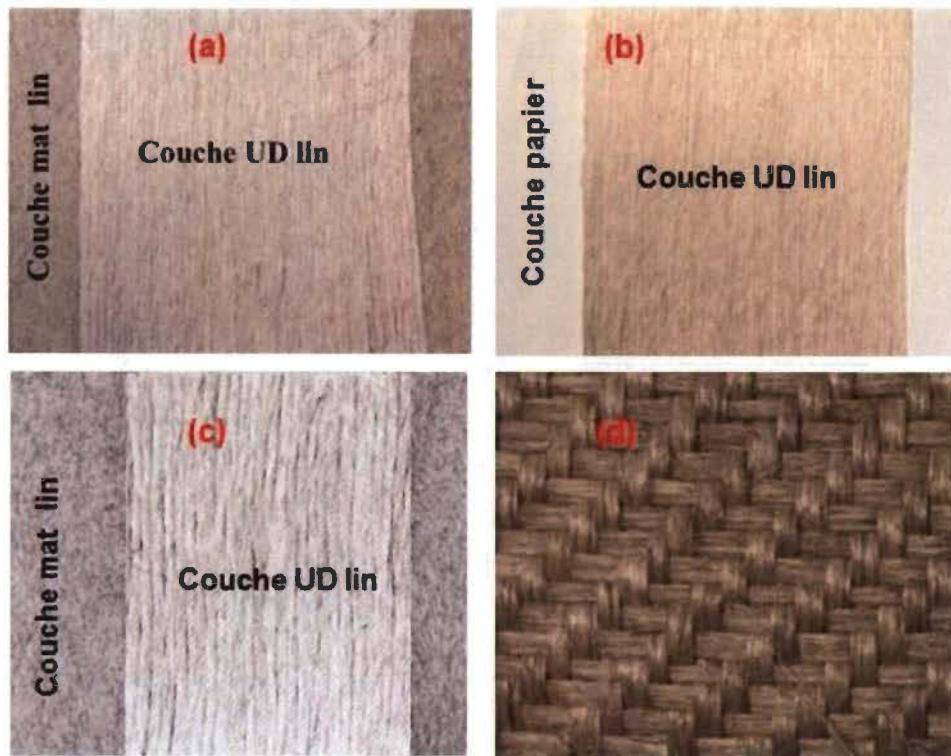


Figure 3.4: Différents renforts étudiées: (a) UD/mat, (b) UD/papier, (c) UD/mat phosphorylé et tissus de lin de type sergé 2/2.

Tableau 3.1: Densités surfaciques des renforts étudiés. Les exposants réfèrent aux chapitres dans lesquels ces renforts sont utilisés.

	Grammage ( $\text{g.m}^{-2}$ )		
Renforts	Renfort complet	Liant mat lin	Liant papier
UD/papier <sup>4</sup>	$301 \pm 12$	-	$55 \pm 9$
UD/mat <sup>4</sup>	$302 \pm 7$	$58 \pm 2$	-
UD/mat <sup>5,6</sup>	$278 \pm 4$	$47 \pm 5$	-
UD/mat traité <sup>6</sup>	$271 \pm 9$	$48 \pm 7$	-
Tissus de lin <sup>6</sup>	$345 \pm 8$	-	-

Comme on peut le constater, le grammage des tissus est significativement supérieur à celui des renforts UD/mat. Néanmoins et d'après la littérature, la réponse en compaction d'un renfort donné est similaire lorsque la densité surfacique globale de l'empilement de renforts (combinaison des masses surfaciques et du nombre de couches de renforts) est similaire d'un type de renfort à l'autre [167, 168]. Les propriétés mécaniques des composites tissus lin-époxy seront comparer à celles de nos composites afin de situer nos renforts UD/mat par rapport à une architecture de renforts commerciaux.

### 3.2.3 Compaction planaire

#### 3.2.3.1 *Montage de compaction planaire*

La Figure 3.5 présente le montage utilisé pour les essais de compaction planaire tandis que la Figure 3.6 présente le principe de mesure d'épaisseur lors de ces essais. Le montage de compaction est installé sur une machine Instron (modèle LM-U150/I) équipée d'une cellule de charge d'une capacité de 150 kN. Les données de chaque essai réalisé sont enregistrées par un contrôleur muni du logiciel Testloop™ (v. 4.0.014) produit par Lab Integration Inc. Le montage de la Figure 3.5 comprend :

- Deux plateaux d'acier rigides de dimension 100 cm x 100 cm x 3,81 cm utilisés pour la compaction. Les plateaux sont montés sur la machine d'essai, le plateau supérieur étant solidaire de la traverse mobile de la machine d'essai tandis que le plateau inférieur est posé sur le support en acier de la machine (voir Figure 3.6). Pour assurer l'application d'une pression uniforme sur la surface des renforts, le plateau supérieur est appuyé sur une bille d'acier coincée entre le plateau et la vis de la cellule de charge et retenue par quatre ressorts ajustables en tension. Ce montage permet au plateau supérieur de pivoter légèrement dans toutes les directions pour s'ajuster aux épaisseurs des renforts et uniformiser la pression appliquée. Chacun des plateaux est percé de trois trous pour permettre l'insertion de cartouches chauffantes réparties de façon à uniformiser la température des plateaux avant les essais.

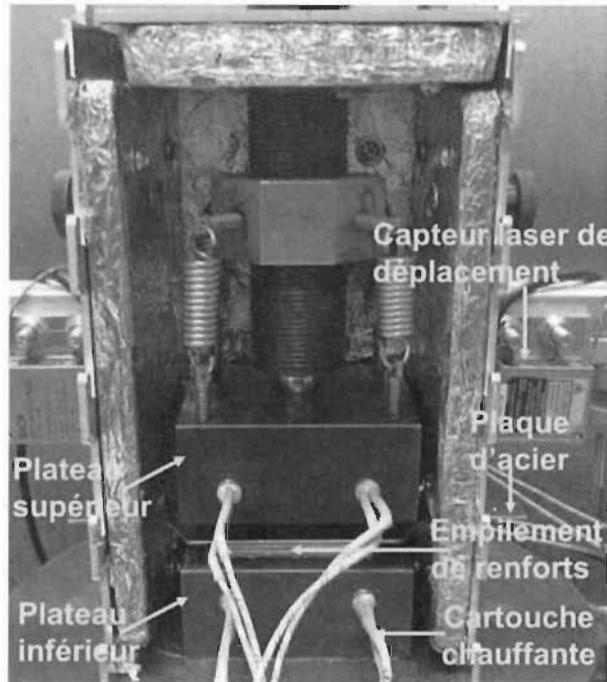


Figure 3.5: Montage de compaction.

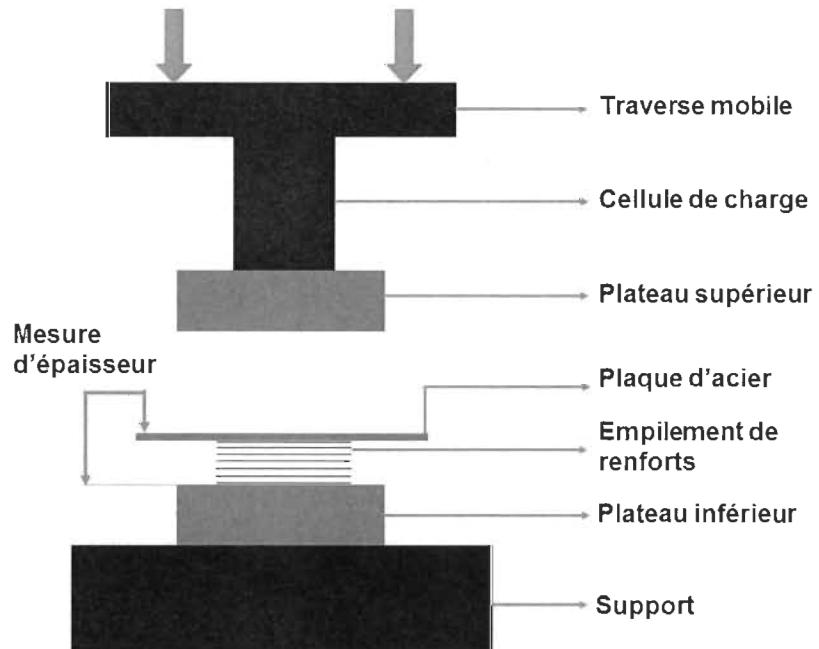


Figure 3.6: Principe de mesure d'épaisseur.

- 6 cartouches chauffantes d'une puissance de 100 W chacune fonctionnant sous un voltage de 120 VAC, obtenues de McMaster-Carr Inc. sous le numéro d'item 3618K34, sont utilisées pour chauffer les plateaux. Elles sont insérées à raison de trois dans chaque

plateau, deux sont insérées dans les faces avant des plateaux (voir Figure 3.5) et les troisièmes (non représentées sur la Figure 3.5) sont situées au milieu des plateaux et insérées par les faces arrière. Chaque cartouche a une longueur de 3 pouces (7,62 cm) et un diamètre de 0,95 cm.

- Deux thermocouples de type K, OMEGA modèle KMQSS-04OU-12, ont été insérés dans chaque plateau (un par plateau) afin de mesurer la température. Chaque thermocouple est inséré à environ 4,762 mm ( $\approx$  3/16 po) sous la surface de contact des plateaux (et donc des renforts) et à 44,45 mm du bord droit du plateau.
- Deux capteurs de déplacement laser SICK® 0D Mini Prime (modèle B035C15Q15, résolution 6  $\mu$ m, linéarité  $\pm$  30  $\mu$ m, plage de mesure 20-50 mm) sont utilisés pour mesurer le fluage et la relaxation des renforts pendant et après la compaction. Ils sont placés de chaque côté des plateaux de compression (gauche et droite sur la Figure 3.5) pour recueillir l'évolution temporelle de l'épaisseur du renfort en focalisant le faisceau laser sur le haut d'une mince plaque d'acier placée sur le dessus des renforts avant de débuter l'essai.
- Le contrôle et l'enregistrement de la température et des déplacements obtenus des capteurs lasers se fait par ordinateur à l'aide d'un programme préparé avec le logiciel LabVIEW™ de National Instruments Inc.

### 3.2.3.2 Mesure de l'épaisseur des préformes

Afin de mesurer l'épaisseur initiale des renforts, on place une pile de renforts sur la plaque inférieure. Ensuite, une mince plaque d'acier de 0.096 kg est placée sur le dessus de l'échantillon (voir Figure 3.6) afin de pouvoir réfléchir les faisceaux laser émis par les capteurs lasers. Le déplacement de cette plaque, du fait de la compression ou du recouvrement du renfort, est capté par les lasers et utilisé pour le calcul de l'épaisseur du renfort à chaque instant. Dans un premier temps, la plaque d'acier est placée directement sur le plateau inférieur de compaction sans les renforts et on mesure sa position avec les capteurs lasers. Par la suite, dans la configuration présentée à la Figure 3.6, la plaque d'acier est posée sur l'empilement de renforts et on mesure à nouveau la position de celle-ci. La différence entre les deux positions donne l'épaisseur initiale du renfort. On utilise le même principe

pour déterminer l'épaisseur du renfort à chaque instant.

### 3.2.3.3 *Essais de compaction planaire*

Dans cette étude, un cycle unique de compaction a été effectué. Le processus comporte trois étapes principales : la fermeture du moule, le maintien sous pression constante pendant un certain temps (compaction par fluage) et l'ouverture du moule (recouvrement d'épaisseur). À l'étape de fermeture, une vitesse constante de 1 mm/min est appliquée jusqu'à la pression maximale désirée  $P_{max}$ . L'échantillon est ensuite maintenu sous pression ( $P_{max}$ ) pendant cinq minutes. Un temps de fluage de 5 minutes est adopté sur la base de ce qui se fait dans la littérature [94, 169]. En fin de fluage, la traverse est ramenée à sa position initiale à une vitesse de 100 mm/min permettant à l'empilement de renfort de recouvrir librement son épaisseur. 25 minutes sont allouées pour permettre le recouvrement. Les renforts étudiés ont deux niveaux de lubrifications: sec (D) ou humide (W). L'état sec correspond aux renforts conditionnés à l'air ambiant (environ 7 % de teneur en humidité) tandis que pour l'état humide, chaque couche de renfort est imprégnée de 1,091 g d'eau (équivalent à environ 1 g d'eau déminéralisée par gramme de fibres ou environ 50 % en masse de teneur en humidité) pour assurer un taux d'humidité élevé avant l'essai. Des essais de rétention d'eau ("water retention value") ont été réalisés sur les fibres (lin et kraft). Les résultats de ces essais nous ont permis de définir un niveau d'humidité qui permettrait d'avoir un pourcentage élevé de molécules d'eau libre au sein des fibres. L'humidité relative dans la salle durant les essais était d'environ 50%. Le niveau d'humidité dans les renforts n'a pas été contrôlé avec précision lors de chaque essai, puisque l'objectif était d'abord de montrer l'effet global de l'humidité et de la température sur les courbes de compaction. Les résultats sont donc qualitatifs pour ce qui concerne l'humidité mais très informatifs en termes d'influence de ce paramètre sur le comportement en compaction planaire. Avant l'essai, la déformation du montage expérimental a été déterminée en effectuant un essai de compression plaque à plaque (sans renforts) aux températures (des plateaux de compaction) ambiante ( $T = 23^{\circ}\text{C}$ ) et élevée ( $T = 100^{\circ}\text{C}$ ). La déformation du montage est ensuite soustraite de celle des renforts pour les essais à ces températures.

### 3.2.4 Montage expérimental de préformage 3D

La Figure 3.7 présente une vue générale du montage utilisé pour les essais de préformage 3D des renforts UD/mat et UD/papier. Les éléments principaux du montage sont [170, 171]:

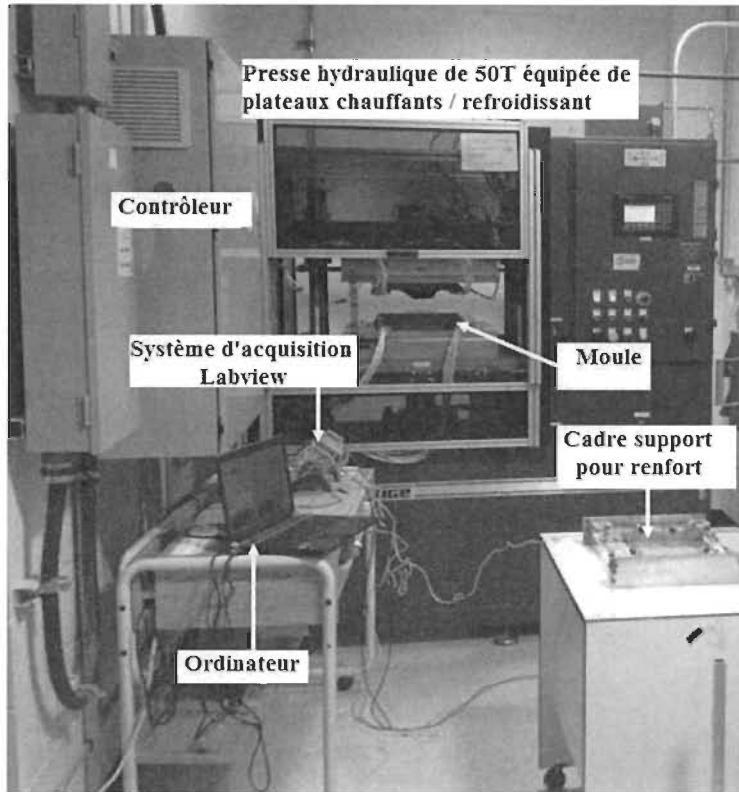


Figure 3.7: Montage expérimental de préformage.

- Un ordinateur muni d'un système LabVIEW™ de National Instruments Inc est utilisé pour le chauffage, le contrôle de la température du moule et l'acquisition des données.
- Une presse hydraulique de 50 tonnes impériales (45,4 tonnes métriques) de marque Wabash MPI et de modèle G50H-24 (Figure 3.7). La presse est constituée de deux plateaux chauffants munis de canaux de refroidissement à l'eau. La température des plateaux ainsi que la force de fermeture de la presse sont asservies par un module de contrôle interne à la presse. Sur cette presse est installé un moule bipartite en acier constitué d'une matrice fixe et d'un poinçon mobile. Le moule est montré à la Figure 3.8. Une plaque d'isolant thermique est intercalée entre chaque partie du moule et les plateaux afin de réduire les pertes de chaleur et les temps de chauffage.

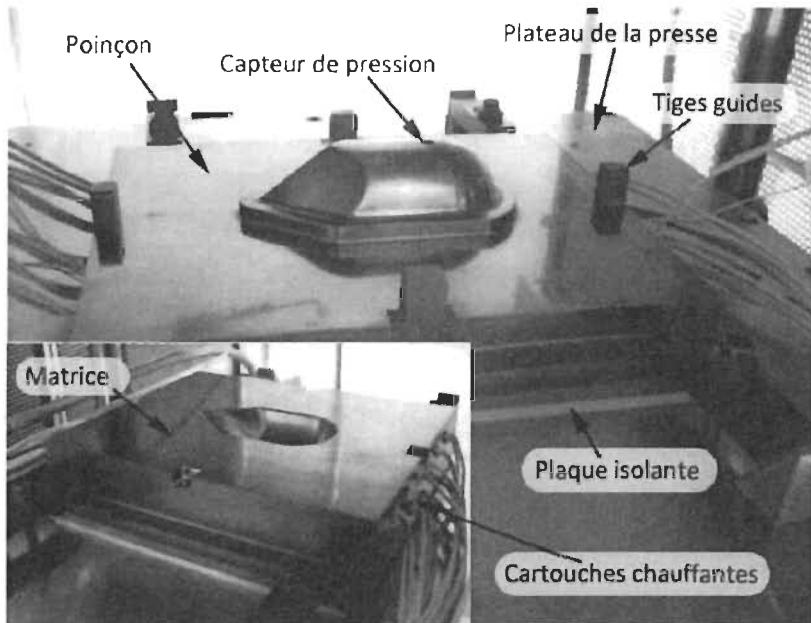


Figure 3.8: Vue agrandie du moule et de ses principaux composants [171].

- Le moule (Figure 3.8) est chauffé à l'aide de 35 cartouches chauffantes cylindriques et sa température est contrôlée en boucle fermée par le système d'acquisition/contrôle de données LabView™. Il comprend un quart de sphère à une extrémité d'un rayon à mi-épaisseur de 38 mm, une partie cylindrique au centre (de même rayon que la sphère et d'une longueur d'environ 44,5 mm) et deux plats qui se font face à l'autre extrémité. La longueur totale du moule est de 144,3 mm et l'épaisseur de la cavité est de 3,35 mm (0,132 po). Neuf thermocouples (quatre dans le poinçon et cinq dans la matrice) sont insérés, dont certains positionnés à 1,6 mm de la surface moulante, pour lire la température du moule et contrôler celle-ci. Un capteur de pression à diaphragme est inséré au sommet de la partie cylindrique du poinçon afin de mesurer en temps réel la pression appliquée sur la pièce tout au long du moulage. Les deux parties du moule sont guidées par 4 tiges guides de type "Side locks" situées au centre des côtés du moule. Les tiges permettent d'assurer une bonne précision sur la position relative du poinçon et de la matrice lors de la fermeture.
- Un cadre support (Figure 3.9) est utilisé pour le transport des préformes vers la presse. Le cadre support peut être utilisé seul ou inclure un film (de polyimide dans ce cas-ci) sur lequel est déposé le renfort. Le renfort ou le film est soutenu par 8 pinces à papier

fixées à l'extrémité de 8 ressorts à force constante disposés à raison de deux ressorts par côté du cadre. Chaque ressort applique une force de 3 Newtons. Plus de détails sont fournis dans des travaux précédents [171].

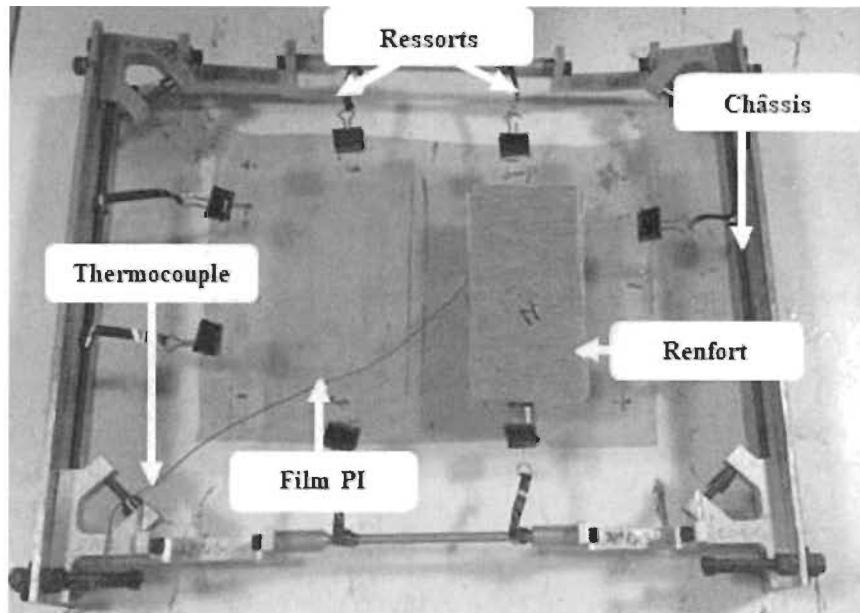


Figure 3.9: Cadre support servant au transfert des renforts.

### 3.2.5 Précompaction des renforts pour les essais de perméabilité et le moulage des composites

Dans cette section, les renforts (UD/mat phosphorylés ou non et tissus) sont compactés en vue d'être utilisés pour les tests de perméabilité et le moulage des plaques composites. Seules la température et l'humidité sont retenus dans la suite comme paramètres d'études. En effet, à ce stade, le premier objectif ici est de vérifier que la perméabilité des préformes n'est pas affectée par les conditions de préformage. Pour cela, la perméabilité d'une préforme non précompactée sera comparée à celles des différentes préformes ayant été compactées suivant différentes valeurs de paramètres de préformage. Dans le même ordre d'idées, le deuxième objectif est de déterminer quels sont les effets de ces paramètres de préformage sur les propriétés mécaniques (en tension et en flexion) des composites. Des composites UD/mat lin phosphorylé-résine époxy sont fabriqués pour évaluer les effets de ce traitement sur les propriétés mécaniques en tension des composites. Enfin, un composite tissu de lin- résine époxy est moulé afin de comparer ses propriétés mécaniques en tension à celles des

composites renforcés par nos renforts UD/mat (phosphorylés ou non). Deux matrices d'essais (voir Tableau 5.1 du chapitre 5 et Tableau 6.1 du chapitre 6) sont développées pour mener ces études. Dans ces tableaux, un empilement de renforts, dans les conditions sec (D) ou humide (W) telles que définies à la section 3.2.3.3, a été compacté à température (des plateaux de compaction) ambiante (23 °C) et élevée (100 °C) à une pression de compaction de 0,5 MPa. Une fois atteinte, cette pression a été maintenue pendant 5 minutes, après quoi, les préformes, compactées en vue des essais de perméabilité ou le moulage des composites, sont retirés des plateaux de compaction et laissées à température ambiante pendant au moins 48 heures pour leur permettre de recouvrir en épaisseur et/ou de sécher dans le cas des renforts humides (condition W). Avant les essais de perméabilité ou le moulage des plaques composites, toutes les préformes (précompactées ou non) ont été séchées dans un four à convection pendant deux heures à 70 °C. Les échantillons ont été compacté sur une presse manuelle de 50 tonnes impériales de type DAKE (modèle 44-250) équipée de deux plateaux chauffants de 317,5 mm x 317,5 mm.

### 3.2.6 Essais de perméabilité

#### 3.2.6.1 *Aspects théoriques*

La méthode de l'écoulement radial a été utilisée pour déterminer la perméabilité planaire dans les directions "X" (longitudinale, sens des fils UD) et "Y" (direction transverse). L'imprégnation est faite à partir d'une injection centrale à pression d'injection constante [123, 141, 172, 173]. À partir de la loi de Darcy, il est possible de calculer la perméabilité K du renfort connaissant la viscosité du fluide et sa vitesse d'écoulement [115, 118, 119, 141, 174-176]. La forme tensorielle de la loi de Darcy peut être décrite par l'équation 3.1:

$$\bar{u} = - \frac{K}{\mu} \nabla P \quad (3.1)$$

Où  $\bar{u}$  est la vitesse moyenne de Darcy, c'est-à-dire la vitesse du front d'écoulement observée à l'échelle macroscopique,  $\mu$  est la viscosité du fluide,  $\nabla P$  est le gradient de pression et  $K$  est le tenseur de perméabilité du milieu poreux. Dans le cas particulier d'un renfort orthotrope,

le front d'écoulement est elliptique et le tenseur de perméabilité se réduit à l'équation 3.2 où  $K_X$  et  $K_Y$  représentent la perméabilité dans les directions  $X$  et  $Y$  [119];

$$K = \begin{pmatrix} K_X & 0 \\ 0 & K_Y \end{pmatrix} \quad (3.2)$$

Les composantes  $K_X$  et  $K_Y$  peuvent être obtenues en utilisant l'équation 3.3 [113, 141, 172, 173];

$$F = \frac{R_{X,e}}{R_{X0,e}} \left[ 2 \ln \frac{R_{X,e}}{R_{X0,e}} - 1 \right] = \frac{4K_e \Delta P t}{\phi \mu R_{X0,e}^2} \quad (3.3)$$

Avec  $R_{X,e}$  est le rayon équivalent du front d'écoulement,  $\Delta P$  est la chute de pression,  $t$  est la durée de l'écoulement,  $K_e$  est la perméabilité effective,  $R_{X0,e}$  le rayon équivalent d'injection à l'entrée et  $\phi$  est la porosité du renfort (égale à  $1-V_f$ ). Une fois que  $K_e$  est déterminée, les perméabilités  $K_X$  et  $K_Y$  peuvent être calculées à partir des équations

$K_X = K_e / m_1$  et  $K_Y = K_e \times m_1$  avec  $m_1$  correspondant à la pente de la droite du graphe de  $R_Y$  versus  $R_X$ .  $R_X$  et  $R_Y$  étant les positions (voir Figure 3.10) mesurées du front d'écoulement le long des axes  $X$  et  $Y$  respectivement [113].

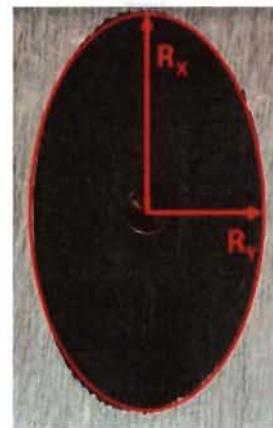


Figure 3.10: Mesure de rayons au front d'écoulement.

### 3.2.6.2 Montage expérimental de mesure de la perméabilité

Le montage de perméabilité (Figure 3.11) comprend une plaque de 420 mm x 260 mm rigide en acier d'une épaisseur de 25 mm servant de base, une plaque de 370 mm x 220 mm

en verre trempée de 20 mm d'épaisseur par-dessus laquelle est déposée et une seconde plaque d'acier de 25 mm d'épaisseur munie de trois ouvertures parmi lesquelles la plus grande (165 mm x 125 mm) est située en son milieu. Cette ouverture permet de visualiser et d'enregistrer, au moyen d'une caméra vidéo, l'évolution du front d'écoulement pendant l'imprégnation tandis que la plaque d'acier superposée permet de prévenir toute déflexion de la plaque de verre durant l'essai. Huit cales d'épaisseur précises permettent de contrôler l'épaisseur de la cavité du moule. Un joint d'étanchéité placé entre la plaque de base et la plaque de verre permet d'étanchéiser le moule. L'épaisseur du joint d'étanchéité est légèrement plus grande que celle des cales d'épaisseur contrôlant l'épaisseur de la cavité du moule; ce qui permet au joint d'élargir quand les vis de fermeture du moule sont serrées. Cet élargissement permet de prévenir un écoulement préférentiel du fluide en bordure du renfort [141]. Le fluide utilisé pour les essais de perméabilité est présenté à la section 3.1.4. Tous les essais ont été effectués sous un vide de 13,26 psi (0,0914 MPa) en utilisant une pompe à vide (modèle Humm-Vac™ 12CFM de la compagnie Easy composites Ltd, Stoke-on-Trent, UK). Le montage expérimental complet est bien décrit dans des travaux précédents [123, 141].

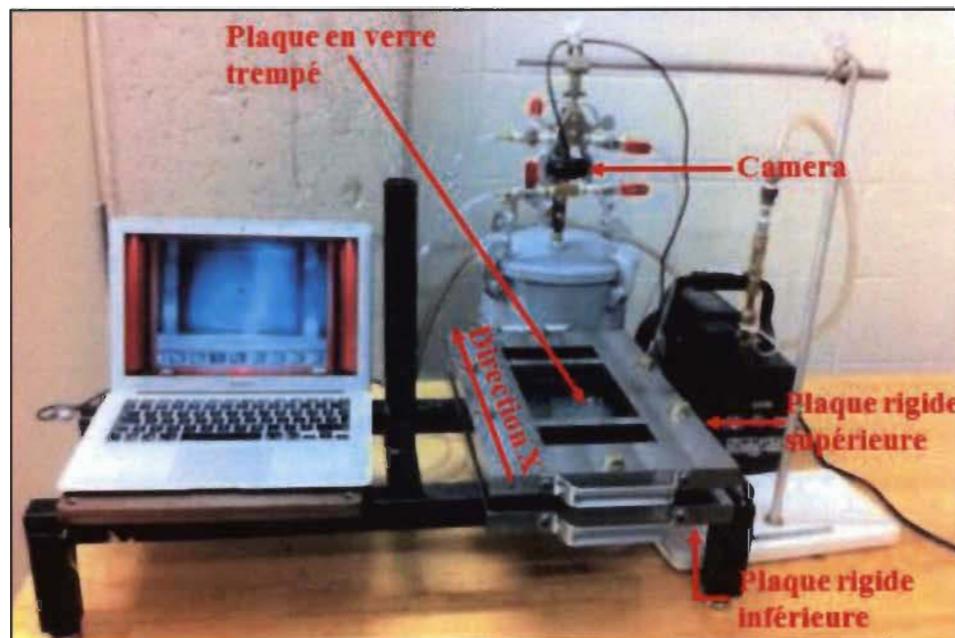


Figure 3.11: Montage expérimental de perméabilité [141].

Les échantillons pour les tests de perméabilité sont faits de six couches de renforts UD/mat de dimension (140 mm x 140 mm) et sont préparés suivant des conditions qui seront définies dans le chapitre 4; les perméabilités  $K_X$  et  $K_Y$  pour chacune de ces conditions seront mesurées trois fois. Chaque échantillon a été percé en son centre d'un trou circulaire de diamètre 12 mm. L'épaisseur requise de la cavité a été calculée avec l'équation 3.4 pour obtenir un taux volumique de fibre ( $V_f$ ) d'environ 45 % pour chaque essai ( $V_f$  constant).

$$V_f = \frac{n \times m_r}{h \times \rho_f} \quad (3.4)$$

Dans cette équation,  $n$  correspond au nombre de couches de renfort dans l'empilement,  $m_r$  ( $\text{g.m}^{-2}$ ) à la densité surfacique de chaque couche de renfort,  $\rho_f$  à la densité des fibres ( $1,45 \text{ g.cm}^{-3}$ ) et  $h$  à l'épaisseur de la cavité. En raison des niveaux de compaction (0,5 MPa), d'humidité et de température adoptés dans cette étude, l'épaisseur du renfort après compaction de certaines préformes est telle que le plus faible taux volumique de fibres atteignable est proche de 45 %. Mouler à une épaisseur correspondant à un  $V_f$  plus faible entraînerait la présence d'un espace vide au-dessus de l'empilement de renforts. Cet espace viendrait invalider l'essai de perméabilité et rendrait impossible le moulage des plaques composites nécessaires pour les essais mécaniques. À l'inverse, un très fort taux volumique nécessiterait un niveau de compaction plus élevé dans la préforme; avec pour conséquence probable la dégradation des fibres de lin [108]. Par conséquent, un  $V_f$  de 45 % a été adopté pour les essais de perméabilité et de moulage des plaques. L'évolution du front d'écoulement a été capturée à l'aide de la caméra vidéo. Les vidéos ont par la suite été converties en images du front d'écoulement extraites à intervalle constant de 1 seconde. Les images ont par la suite été binarisées grâce à un logiciel de traitement d'images. Grâce à un programme de traitement d'image développé sous Matlab<sup>TM</sup>, les meilleures ellipses épousant les contours du front d'écoulement à chaque intervalle de temps ont pu être déterminées. Ces ellipses ont été utilisées pour calculer les rayons  $R_X$  et  $R_Y$  et la perméabilité équivalente ( $K_e$ ) en utilisant l'Équation 3.3. Finalement,  $K_X$  et  $K_Y$  sont calculés à partir de  $K_e$  [113]. Pour chaque essai, les fils UD de lin étaient toujours orientées à  $0^\circ$  par rapport à la longueur du moule (direction X).

### 3.2.7 Fabrication des plaques composites et essais mécaniques

#### 3.2.7.1 *Fabrication des plaques composites*

Les plaques composites sont fabriquées au moyen du procédé RTM. Le moule RTM est en acier et comprend: une partie inférieure, une partie supérieure et un cadre de fixation. Tous les éléments du moule sont décrits dans des travaux précédents [54, 62, 140]. Quatre cales d'épaisseur en aluminium sont utilisées à chaque coin du moule, entre la partie inférieure et la partie supérieure, afin d'ajuster la hauteur de la cavité nécessaire pour atteindre la fraction volumique de fibre ciblée, telle que déterminée au moyen de l'équation 3.4. Le mélange résine et durcisseur est celui présenté à la section 3.1.3. Le montage d'injection inclus un compresseur et un pot de pression étanche dans lequel le récipient contenant le mélange résine + durcisseur est placé. Après avoir scellé le pot de pression, le vide y est appliqué pendant 8 minutes afin de dégazer la résine. Après ce temps, le vide est enlevé du pot et ce dernier est par la suite connecté au moule. La pression est appliquée à l'intérieur du pot jusqu'à un maximum de 4 bars. Lorsque la pression augmente dans le pot, le mélange résine + catalyseur entre dans le moule et imprègne le renfort. Afin de faciliter l'imprégnation et en raison du haut taux volumique de fibres adopté dans cette étude, le moule a été préchauffé à 70 °C avant le début de l'injection. Après 3 heures de cuisson à 70 °C, les plaques ont subi une post-cuisson à 70 °C pendant 3 heures supplémentaires.

#### 3.2.7.2 *Essais de traction et de flexion*

Les échantillons ont été coupés dans le sens des fibres, selon la norme ASTM D 3039 pour les essais de tension et ASTM D790 pour les essais de flexion 3-points. Pour ces derniers, l'échantillon était placé de sorte que la contrainte de tension soit appliquée sur la couche UD tandis que la couche mat (le liant) était en contact avec le point d'appui central. Les essais ont été réalisés sur une machine Instron, model 4206, montée des cellules de charge de 150 kN (essais de traction) et 25 kN (essais de flexion) avec des vitesses de chargement de 5 et 2 mm/min pour la tension et la flexion respectivement [54]. Un minimum de 4 et 5 essais ont été réalisés pour les essais de tension et de flexion respectivement. De plus, des microographies ont été réalisées sur les échantillons fracturés à différents grossissements et à l'aide d'un microscope électronique à balayage (MEB) SEM HITACHI

model SUI5IO et d'un microscope optique Leitz Metallovert. Dans le chapitre 5, le même appareil Instron, muni d'une cellule de charge de 10 KN, a été utilisé pour effectuer des essais de traction sur des préformes non-imprégnées de résine (préformes sèches) et pré-compactées selon certaines conditions.

## Chapitre 4 - ÉTUDE DE LA COMPACTION PLANAIRE ET DU PRÉFORMAGE

### 4.1 Introduction

La revue de littérature nous a montré les principales difficultés (formation de replis, désalignement et rupture des fils, nécessité d'utiliser un liant pour faciliter la manipulation et limiter le désalignement des fils, ...) à surmonter pour fabriquer de bonnes préformes 3D à partir des principales architectures de renforts en général et des unidirectionnelles en particulier. Nous avons vu que de nouveaux renforts UD/mat et UD/papier, développés à l'UQTR et utilisant un liant papier ou mat pour maintenir les fils UD, facilitaient la manipulation des fils UD (et donc du renfort) durant le moulage, permettant ainsi de limiter la variabilité des propriétés mécaniques et d'augmenter les propriétés en tension dans le sens transverse des fils. Même si une baisse de la résistance en traction du composite est observée (du fait de l'utilisation du liant mat ou papier) dans le sens fils comparativement à un composite UD lin-époxy classique, la baisse est toujours relativement négligeable. La compaction transverse (hors-plan) est l'un des modes de déformation ayant cours durant le préformage 3D. Ce mode influence directement l'épaisseur finale des préformes et donc indirectement la teneur en fibres et les performances mécaniques des pièces moulées. Le comportement en compaction peut être influencé par la température de moule de compaction, l'état de lubrification du renfort, la nature du renfort, le nombre de couches de renfort et la pression de compaction. Par ailleurs, dans l'industrie agroalimentaire par exemple, on utilise de plus en plus des contenants 3D en papier-carton en remplacement de ceux fabriqués à partir du plastique. Les paramètres procédés les plus influents dans le formage de contenants 3D en papier-carton sont: la température, la teneur en humidité du papier, le grammage, la force de serre-flan. Le premier objectif de ce chapitre est de répondre à la question de savoir s'il est possible de fabriquer des préformes 3D à partir des renforts UD/mat ou UD/papier à liant continu grâce à l'action des paramètres procédés (pression,

température, humidité et nombre de couche de renforts) à l'image de ce qui se fait pour la fabrication des contenants 3D en papier carton. Par la suite, si la réponse est affirmative, nous verrons comment ces paramètres affectent la réponse en compaction des renforts UD/mat ou UD/papier par le biais d'essais de compaction planaire.

## 4.2 Préformage 3D

Cette section présente les résultats d'essais de préformage 3D utilisant les renforts UD/mat et UD/papier. La première partie de cette section décrit la méthodologie des tests de préformage et la seconde analyse les résultats de ces tests.

### 4.2.1 Méthodologie des tests de préformage

Le Tableau 4.1 présente les détails expérimentaux des tests effectués. L'état sec (D) ou Humide (W) sont tels que définis à la section 3.2.3.3. Un empilement  $[0/90]_2$  de quatre couches sèches ou humides de renforts UD/mat et UD/papier, initialement à température ambiante ( $23^\circ\text{C}$ ), a été préformé sur la partie sphérique du moule (Figure 3.8) maintenu à une température de  $23^\circ\text{C}$  (préformage à l'ambiente) ou  $100^\circ\text{C}$  (préformage à chaud). Le choix de préformer uniquement sur la partie sphérique du moule est motivé par le souci d'économiser les fibres de lin et parce que la géométrie sphérique est suffisante pour tester les modes de déformation intervenant lors du préformage 3D notamment le cisaillement intraplis, interplis et la compaction hors plan. Le temps de maintien de la préforme dans le moule fermé était de 5 minutes. Après ce délai, la préforme a été retirée du moule et laissée à l'air libre où elle peut éventuellement séchée (dans le cas préformes humides). Dans le cas d'un préformage humide, chaque couche de la pile de renforts a été humidifiée avec environ 1 g d'eau par gramme de fibres à l'aide d'un jet d'eau avant d'être préformée. Toutes les préformes ont été réalisées à la même vitesse de fermeture du moule et pression d'emboutissage, qui sont respectivement de 100 mm/min et 5 MPa.

Tableau 4.1: Conditions de préformage.

Désignation	État	Température de l'échantillon (°C)	Température du moule (°C)	Renfort	Description
M-W-23-100	Humide (W)	23	100	UD/mat	Préforme UD/mat à base de renforts humides et sous 100 °C
M-D-23-100	Sec (D)	23	100	UD/mat	Préforme UD/mat à base de renforts secs et sous 100 °C
P-W-23-100	Humide (W)	23	100	UD/papier	Préforme UD/papier à base de renforts humides et sous 100 °C
P-D-23-23	Sec (D)	23	23	UD/papier	Préforme UD/papier à base de renforts secs et sous 23°C

#### 4.2.2 Résultats des tests de préformage

La Figure 4.1 présente la vue extérieure, la vue interne et la vue de face de renforts UD/mat préformés à 100 °C dans des conditions humides et sèches alors que la Figure 4.2 présente les vues externes et de face des préformes UD/papier obtenues sous conditions humide et sèche respectivement à 100 °C et 23 °C.

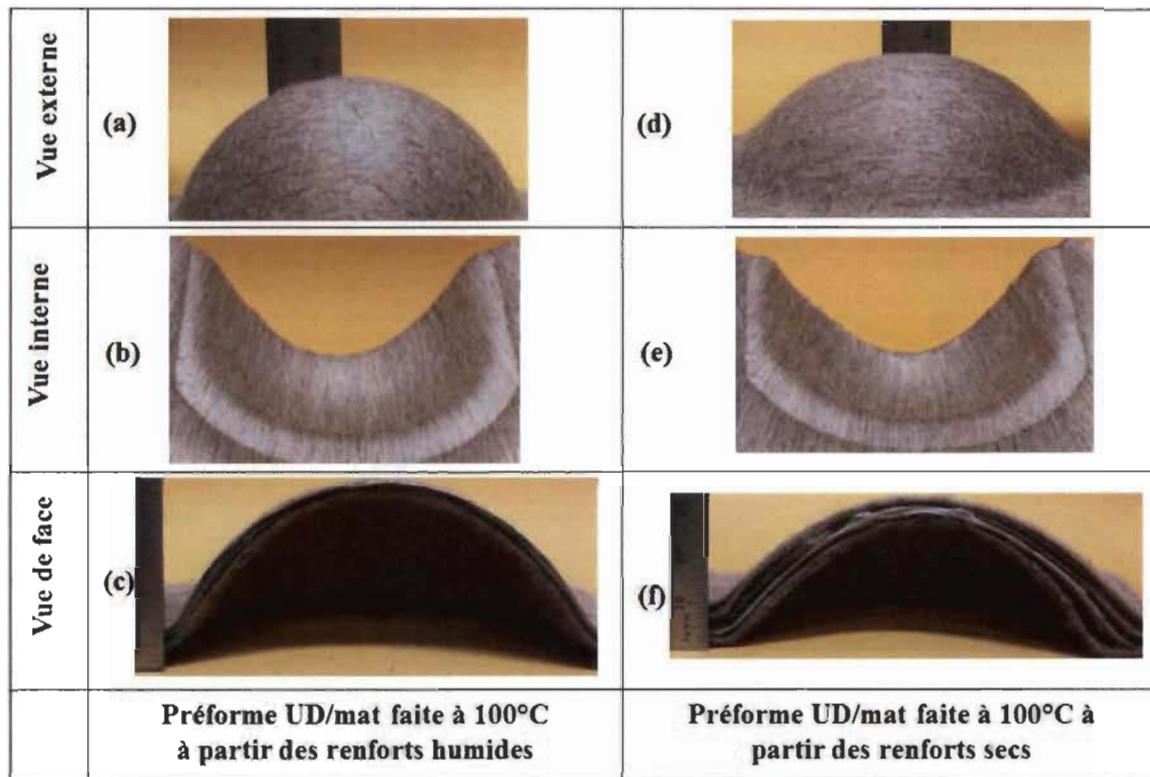


Figure 4.1: Préformes hémisphériques UD/mat.

Les Figure 4.1 et 4.2 (a et b) montrent clairement que sous conditions humides (M-W-23-100 et P-W-23-100), les préformes maintiennent beaucoup mieux la géométrie du moule (montrée à la Figure 3.8) que dans les conditions sèches (M-D-23-100) et (P-D-23-23). En comparant la Figure 4.1 (a versus d et c versus f) pour les renforts UD/mat, il apparaît clairement que dans les conditions humides, le rayon de la pièce est maintenu et presque aucun décollement des couches individuelles n'est observé. Il en est de même pour les renforts UD/papier en comparant les Figures 4.2 a et c de même que b et d.

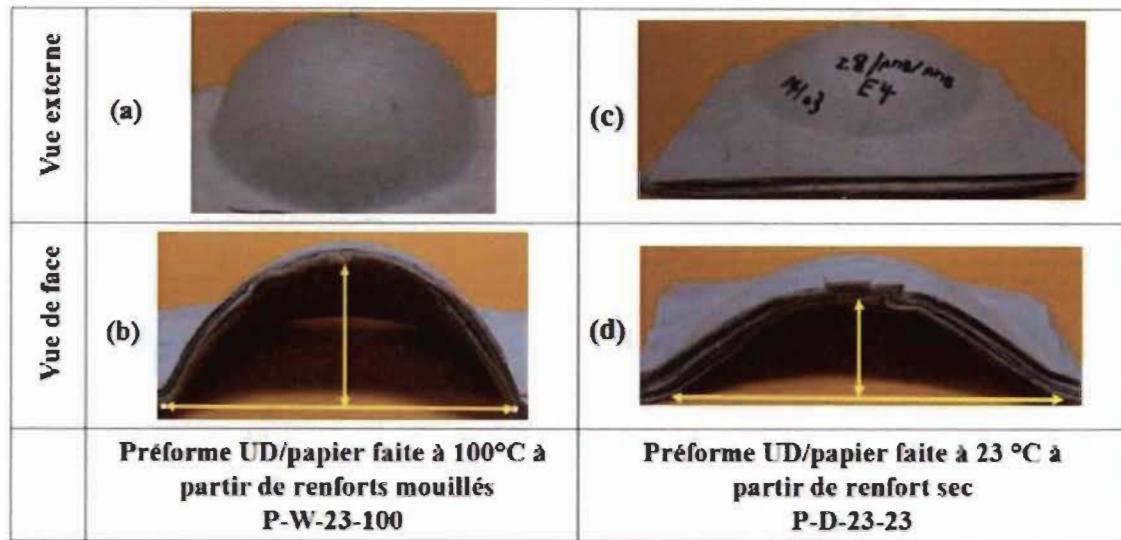


Figure 4.2: Préformes hémisphériques UD/papier.

Non seulement l'important effet du retour élastique observé dans les préformes réalisées à sec contribue au décollement des plis individuels, mais il semble qu'une plus forte déformabilité des liants humides (au moins pour le liant papier comme il a aussi été démontré en [78] pour le moulage de papier) combinée aux liaisons hydrogènes créées entre les fibres UD de lin et les liants lors du séchage sont tels que les préformes conservent leur forme après le démoulage sans qu'il y ait déchirure du liant. En effet, dans les conditions sèches, les préformes ont tendance à former des replis importants (Figure 4.2d) et à déchirer tandis que la plus grande déformabilité des renforts humides limite la formation de replis et le déchirement du liant papier. Le parallélisme des fibres de lin UD est également très bien maintenu après la mise en forme comme le montre la Figure 4.2b. Une telle stabilité géométrique est due à la synergie des effets induits par la pression, la température et l'humidité, ainsi qu'à la présence de liants mat ou papier constitués de fibres courtes uniformément réparties sur la surface des fibres UD de lin. L'effet est similaire au processus d'estampage de papier dans l'industrie de l'emballage [76-78, 159]. L'eau agit comme lubrifiant pour faciliter les mouvements inter et intraplis des fibres et la déformation du liant, favorisant ainsi le réarrangement des fibres et le maintien du parallélisme de celles-ci lors du préformage. De plus, la température élevée

agit sur la lignine et l'hémicellulose constituant la paroi fibreuse en les ramollissant, permettant aussi une augmentation de la déformabilité des fibres et de leur réarrangement [78, 159]. Le séchage contribue à la création de liaisons hydrogènes à l'interface entre les couches de fibres UD et les liants de mat (ou de papier). Tous ces phénomènes contribuent à maintenir la stabilité géométrique de la préforme 3D après sa sortie du moule de préformage. Ces résultats sont encourageants car ils montrent le fort potentiel de ce type de renfort (utilisant un mat ou une couche perméable de papier comme liant) pour la production en série de préformes complexes (à double courbure) de fibres naturelles pour différents types de pièces.

Les essais réalisés sur la partie sphérique ont permis de dégager les conditions permettant d'obtenir des préformes présentant peu de défauts de préformage et épousant bien la géométrie du moule de préformage (voir Figure 3.8). Les Figures 4.3a et 4.3b présentent respectivement la vue externe et interne d'une préforme fabriquée à partir de renforts UD/mat humides sur un moule dont la température est fixée 100 °C. On remarque que la préforme reproduit et préserve assez bien la géométrie du moule.

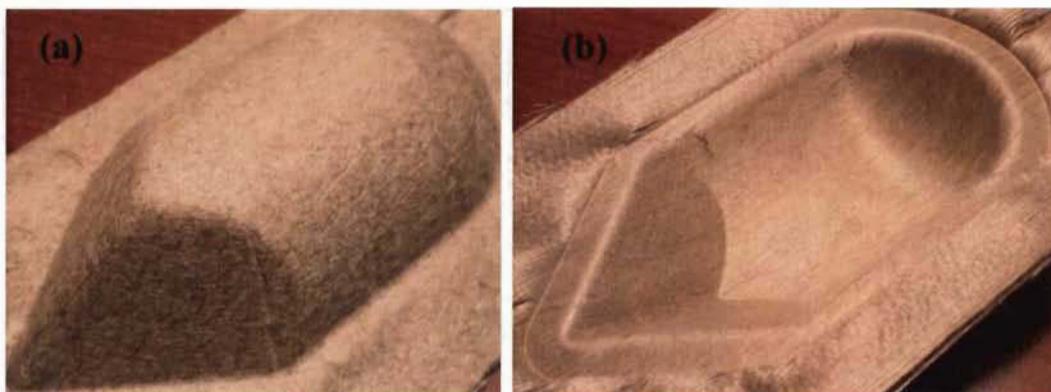


Figure 4.3: Préforme 3D UD/mat: vues externe (a) et interne (b)

Ce qui nous permet de dire qu'il est possible de fabriquer de bonnes préformes 3D à partir des renforts UD/mat à conditions de bien ajuster les paramètres comme la température et le niveau d'humidité comme c'est le cas dans pour la fabrication des contenants 3D en papier carton.

## 4.3 Méthodologie des essais de compaction et résultats

### 4.3.1 Méthodologie des essais de compaction

Une séquence d'empilement  $[0/90]_n$  constituée de six ou douze couches de renforts, secs ou humides, a été compactée à une vitesse de constante de 1 mm/min afin d'atteindre la pression de compactage fixe de 0,5 MPa ou 2,2 MPa ( $P_{max}$ ). Les échantillons ont une surface de 6 cm  $\times$  6 cm. Le Tableau 4.2 présente la matrice des essais de compaction réalisés. Cette matrice est issue d'un plan factoriel complet  $2^4$  portants sur les quatre variables (pression de compaction, température de compaction, teneur en humidité et nombre de couches de renforts) et dont les deux niveaux de variations sont décrits dans la suite de ce paragraphe. Chaque essai a été répété deux fois et la valeur moyenne des deux déplacements mesurés par les capteurs laser a été enregistrée et utilisée pour calculer l'épaisseur de l'échantillon pendant l'essai. Afin de simplifier la désignation des conditions d'essai, dans la dernière colonne du Tableau 4.2, M réfère au liant mat, D (pour sec ou "Dry" en anglais) et W (pour humide ou "Wet" en anglais) aux conditions sèches et humides, 23 et 100 à la température des plateaux de compaction, tandis que 0,5 et 2,2 se rapportent aux pressions de compactage (0,5 ou 2,2 MPa). Le dernier chiffre correspond au nombre de couches de renforts dans la préforme (6 ou 12). L'état sec correspond aux renforts conditionnés à l'air ambiant (environ 7 % de teneur en humidité) tandis que pour l'état humide, chaque couche de renfort est imprégnée de 1,091 g d'eau (équivalent à environ 1 g d'eau déminéralisée par gramme de fibres ou environ 50 % en masse de teneur en humidité) pour assurer un taux d'humidité élevé avant l'essai. Des essais de rétention d'eau ("water retention value") ont été réalisés sur les fibres (lin et kraft). Les résultats de ces essais nous ont permis de définir un niveau d'humidité qui permettrait d'avoir un pourcentage élevé de molécules d'eau libre au sein des fibres. L'humidité relative dans la salle durant les essais était d'environ 50 %.

Tableau 4.2: Études des effets des paramètres de préformage sur la compaction : Plan des essais de compaction planaires.

Essai no.	Renfort	Humidité	Température (°C)	Pression (MPa)	Nombre de couches	Désignation expérience
1	UD/mat	Sec	23	0,5	6	M-D-23-0,5-6
2	UD/mat	Sec	23	0,5	12	M-D-23-0,5-12
3	UD/mat	Sec	23	2,2	6	M-D-23-2,2-6
4	UD/mat	Sec	23	2,2	12	M-D-23-2,2-12
5	UD/mat	Sec	100	0,5	6	M-D-100-0,5-6
6	UD/mat	Sec	100	0,5	12	M-D-100-0,5-12
7	UD/mat	Sec	100	2,2	6	M-D-100-2,2-6
8	UD/mat	Sec	100	2,2	12	M-D-100-2,2-12
9	UD/mat	Humide	23	0,5	6	M-W-23-0,5-6
10	UD/mat	Humide	23	0,5	12	M-W-23-0,5-12
11	UD/mat	Humide	23	2,2	6	M-W-23-2,2-6
12	UD/mat	Humide	23	2,2	12	M-W-23-2,2-12
13	UD/mat	Humide	100	0,5	6	M-W-100-0,5-6
14	UD/mat	Humide	100	0,5	12	M-W-100-0,5-12
15	UD/mat	Humide	100	2,2	6	M-W-100-2,2-6
16	UD/mat	Humide	100	2,2	12	M-W-100-2,2-12

Le niveau d'humidité n'a pas été contrôlé avec précision lors de chaque essai, puisque l'objectif était d'abord de montrer l'effet global de l'humidité et de la température sur les courbes de compaction. Les résultats sont donc qualitatifs pour ce qui concerne l'humidité mais très informatifs en termes d'influence de ce paramètre sur le comportement en compaction planaire. Néanmoins et avant l'essai avec échantillon humide, chaque couche d'échantillon a été maintenue durant une heure dans une boîte

étanche en plexiglas pour permettre l'homogénéisation du mouillage tout en limitant l'évaporation de l'eau. Le pourcentage de fluage et de déformation permanente sont calculés à partir des équations 4.1 et 4.2 où  $PF$ ,  $PDP$ ,  $T_0$ ,  $T_1$ ,  $T_2$  et  $T_3$  représentent respectivement le pourcentage de fluage, le pourcentage de déformation permanente, l'épaisseur initiale, l'épaisseur au début du fluage (après l'application de la pression), l'épaisseur à la fin de l'essai de fluage et l'épaisseur à la fin de l'essai de recouvrement [3, 177].

$$PF = 100 \times \frac{T_1 - T_2}{T_1} \quad (4.1)$$

$$PDP = 100 \times \frac{T_0 - T_3}{T_0} \quad (4.2)$$

#### 4.3.2 Résultats des essais de compaction

La Figure 4.4 présente une courbe typique du changement d'épaisseur de la préforme en fonction du temps avec les différentes étapes du processus. Ces étapes sont aussi présentes dans le procédé de préformage et elles se décrivent comme suit. De  $T_0$  à  $T_1$ , la presse se ferme. A l'épaisseur  $T_1$ , la pression  $P_{max}$  est atteinte et l'essai de fluage commence. Après 5 min de fluage, l'épaisseur  $T_2$  est atteinte, puis la presse est ouverte et la phase de recouvrement d'épaisseur débute. On peut voir que le changement d'épaisseur de  $T_1$  à  $T_2$  est très faible. A la Figure 4.4, l'agrandissement montre le moment où se produit la séparation entre la mince plaque d'acier (qui appuie sur les renforts) et le plateau supérieur de compaction qui est solidaire de la traverse mobile de la machine d'essai. Ce moment indique également le début du recouvrement d'épaisseur libre de toute contrainte externe. À partir du début du retrait rapide du plateau supérieur de compaction jusqu'à la séparation complète entre le plateau supérieur et la plaque d'acier, il s'écoule environ deux secondes. Le Tableau 4.3 montre les épaisseurs moyennes et les écarts-types (dénotés  $SD$  dans le tableau) mesurés pour chaque type d'essai.

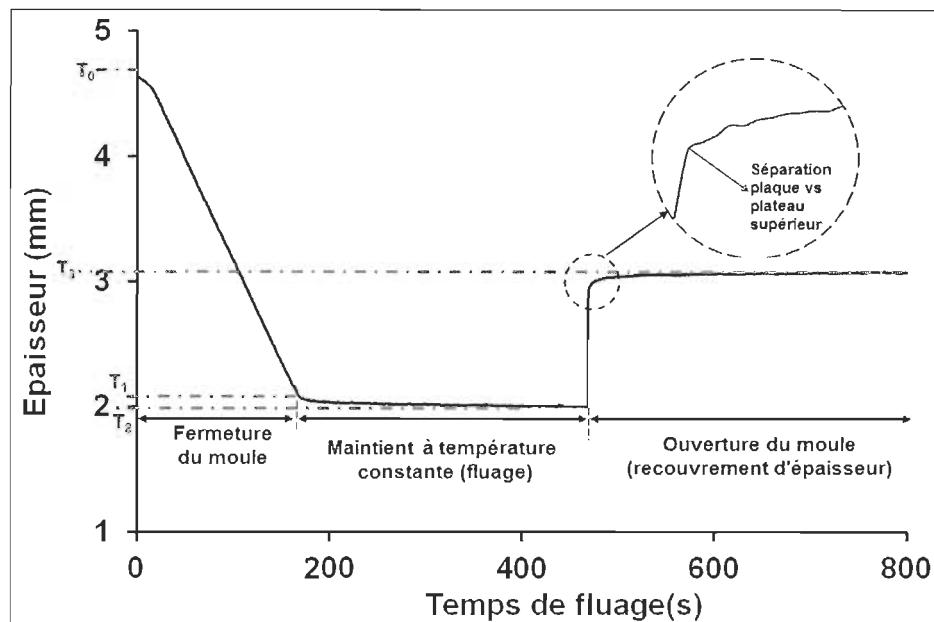


Figure 4.4: Évolution de l'épaisseur lors d'un cycle unique de compaction.

Pour des conditions d'essais similaires, il est montré que l'épaisseur initiale ( $T_0$ ) des échantillons humides est toujours supérieure à celle des échantillons secs (d'environ 24 %) mais les épaisseurs  $T_1$  et  $T_2$  sont toujours plus faibles (comparer les essais 1 et 9, 2 et 10, etc.). Ceci est dû à la présence d'eau qui entraîne initialement le gonflement de la fibre (fibre fortement hydrophile) mais agit aussi comme lubrifiant pendant la compaction, facilitant ainsi les mouvements des fibres et la nidification des mèches de fibres (intercalage des fils individuels) de fibres. De plus, les épaisseurs  $T_1$  et  $T_2$  des échantillons compactés à chaud (secs ou humides) sont toujours inférieures à celles des échantillons compactés à température ambiante pour des conditions similaires (comparer les essais 1 et 5, 2 et 6, etc.). Comme cela sera expliqué dans les sections suivantes, un retrait important (diminution d'épaisseur) est subit par les échantillons à haute température en raison du séchage. Les résultats du Tableau 4.3 seront utilisés ci-après, en appui aux courbes de fluage et de recouvrement d'épaisseur, pour analyser les résultats expérimentaux.

Tableau 4.3: Différentes épaisseurs (mm) mesurées lors des essais de compactage avec leurs incertitudes (SD).

Essai #	Désignation	T <sub>0</sub>	SD_T <sub>0</sub>	T <sub>1</sub>	SD_T <sub>1</sub>	T <sub>2</sub>	SD_T <sub>2</sub>	T <sub>3</sub>	SD_T <sub>3</sub>
1	M-D-23-0,5-6	4,76	0,10	2,64	0,06	2,53	0,04	3,81	0,06
2	M-D-23-0,5-12	9,93	0,41	5,58	0,23	5,39	0,23	8,01	0,34
3	M-D-23-2,2-6	4,86	0,06	1,92	0,09	1,84	0,09	3,62	0,03
4	M-D-23-2,2-12	9,45	0,13	4,13	0,04	3,98	0,04	7,08	0,04
5	M-D-100-0,5-6	3,93	0,24	2,14	0,07	2,03	0,07	2,60	0,12
6	M-D-100-0,5-12	7,48	0,48	4,72	0,05	4,49	0,06	5,48	0,11
7	M-D-100-2,2-6	4,08	0,11	1,70	0,01	1,61	0,02	2,35	0,02
8	M-D-100-2,2-12	8,17	0,19	3,68	0,05	3,50	0,06	4,81	0,07
9	M-W-23-0,5-6	5,53	0,21	2,15	0,05	2,02	0,05	3,76	0,15
10	M-W-23-0,5-12	10,71	0,16	4,48	0,10	4,27	0,10	7,74	0,05
11	M-W-23-2,2-6	5,33	0,17	1,28	0,04	1,19	0,04	3,34	0,05
12	M-W-23-2,2-12	11,24	0,75	3,40	0,05	3,24	0,05	7,48	0,24
13	M-W-100-0,5-6	5,33	0,15	2,00	0,03	1,88	0,02	2,97	0,08
14	M-W-100-0,5-12	10,96	0,24	4,10	0,08	3,90	0,08	4,00	0,23
15	M-W-100-2,2-6	5,35	0,11	1,41	0,05	1,33	0,04	2,48	0,05
16	M-W-100-2,2-12	10,74	0,26	3,28	0,10	3,15	0,09	5,22	0,14

#### 4.3.2.1 Influence de la température et de l'humidité

Les Figures 4.5 à 4.8 montrent l'influence de la température et de l'humidité sur la réponse au compactage d'un empilement de 6 couches de renforts UD/mat sous une pression de 0,5 MPa. La Figure 4.5 présente les effets de la température et de l'humidité sur la variation d'épaisseur durant l'essai de fluage. Cette variation est calculée à partir des mesures d'épaisseurs pour chaque essai du Tableau 4.2.

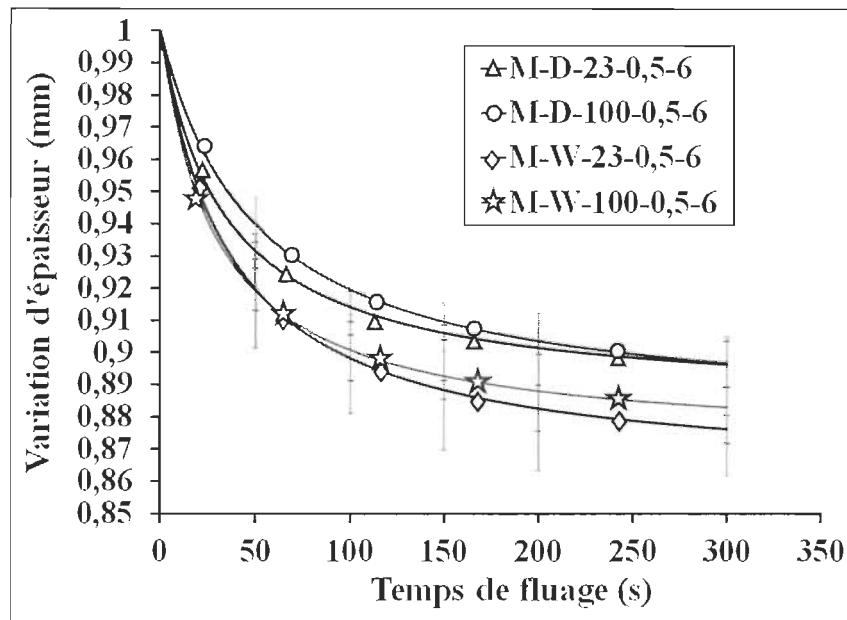


Figure 4.5: Effet de la température de compaction des renforts UD/mat ( $P_{max} = 0,5$  MPa, 6 couches): sur la variation d'épaisseur durant le fluage.

La variation d'épaisseur est montrée (plutôt que l'épaisseur réelle variant avec le temps) en prenant 1 mm comme valeur initiale lorsque l'épaisseur  $T_1$  est atteinte. Ceci est fait en soustrayant à l'épaisseur initiale du renfort en début de fluage l'épaisseur mesurée à chaque instant durant cette phase pour ensuite ajouter 1 au résultat. Tel que présenté à la Figure 4.5, les variations d'épaisseur lors du fluage sont inférieures à 0,13 mm pour la plupart des essais présentés (#1, #5, #9 et #13). Pour les deux températures, la diminution d'épaisseur est plus prononcée pour les conditions humides. Cependant, la variabilité des résultats des courbes est telle qu'il est difficile de les considérer pour évaluer l'influence de la température et de l'humidité sur le fluage. Par conséquent, les pourcentages de fluage, calculés en utilisant l'équation 4.1, ont été utilisés comme illustré sur la Figure 4.6. La Figure 4.6 montre que l'augmentation de la température de compaction de 23 °C à 100 °C entraîne une augmentation du pourcentage de fluage dans les échantillons secs.

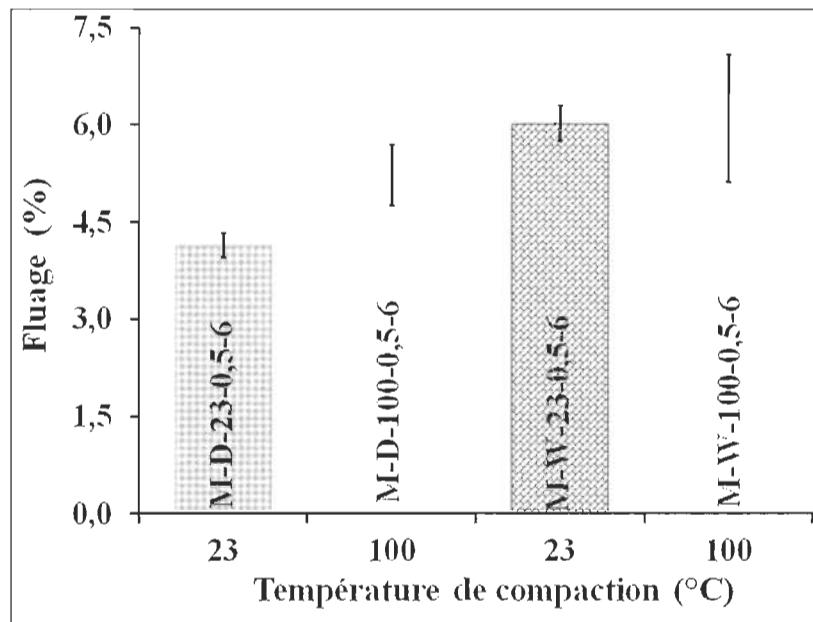


Figure 4.6: Effet de la température de compaction des renforts UD/mat ( $P_{\max} = 0,5$  MPa, 6 couches): sur le pourcentage de fluage.

On ne note pas d'effet de l'augmentation de la température sur le pourcentage de fluage des renforts humides, mais on observe une augmentation du fluage des renforts humides par rapport aux renforts secs. Comme mentionné ci-dessus en lien avec le Tableau 4.3, l'épaisseur  $T_0$  est toujours plus élevée pour les conditions humides; mais après la première phase de compression (de l'épaisseur  $T_0$  à l'épaisseur  $T_1$ ) et même à la fin du fluage (à  $T_2$ ), le contraire est observé, c'est-à-dire que les épaisseurs  $T_1$  et  $T_2$  sont toujours plus basses pour les conditions humides. Initialement, l'absorption d'eau par les fibres entraîne une augmentation de l'épaisseur de l'empilement de renforts, mais lorsque la compression commence, l'effet lubrifiant de l'eau (combiné au ramollissement des fibres) produit des variations plus importantes d'épaisseurs dans les empilements humides que dans les empilements secs. Cet effet facilite le mouvement entre les fibres d'une même couche ou entre les couches adjacentes de l'échantillon. Il facilite aussi la réorganisation du réseau de fibres (condensation des vides et des espaces entre les fibres) et la déformation de la section des fils [102].

Globalement et compte tenu de la forte variation d'épaisseur de  $T_0$  à  $T_1$  (comparé au passage de  $T_1$  à  $T_2$ ), ces résultats suggèrent que la majorité des déformations de la préforme et du réarrangement des fibres a lieu pendant la phase de fermeture du moule (de  $T_0$  à  $T_1$ ), avec peu de modifications pendant l'étape de fluage mais seulement une stabilisation, bien que la présence d'eau augmente les déplacements de fibres pendant le fluage d'où une augmentation du pourcentage de fluage dans cette condition. De plus, le ramollissement des fibres à haute température pourrait augmenter la déformation de la section des fils et leur aplatissement. Gu et coll. [108] ont aussi observé que pour des préformes de tissus de ramie, la compaction à chaud de ces préformes permet d'augmenter la déformation des fils et des fibres ainsi que l'imbrication des fils et les déplacements de couches adjacentes.

Pendant et après l'ouverture du moule, l'échantillon recouvre son épaisseur. La Figure 4.7 rend compte de l'évolution de l'épaisseur durant ce recouvrement. Deux phénomènes importants sont observés en ce qui concerne les conditions humides. Premièrement, à la température ambiante, l'essai 9 (M-W-23-0,5-6 sur la Figure 4.7) montre une augmentation d'épaisseur beaucoup plus importante que les autres essais. L'eau étant toujours présente à l'intérieur de l'échantillon (et en partie sur le plateau de compression inférieure), les fibres peuvent réabsorber l'eau pour gonfler à nouveau lorsque la pression de compactage est relâchée puisque nous sommes à température ambiante (23 °C). Ainsi, l'augmentation d'épaisseur serait due au recouvrement élastique des fibres combiné au gonflement, ce qui entraînerait une augmentation d'épaisseur beaucoup plus importante que pour les essais réalisés à sec et à chaud. Deuxièmement, le même essai réalisé à 100° C (essai 13 ou M-W-100-0,5-6 sur la Figure 4.7) montre un comportement opposé. Du début de l'essai jusqu'à  $t = 75$  s, le comportement est similaire à celui des autres essais. Mais à partir de ce point et pour le reste de l'essai, le recouvrement d'épaisseur est contrebalancé par la contraction (ou le retrait) induite par le séchage des fibres sous l'effet de la température élevée (100 °C) des plateaux de compression inférieur et supérieur.

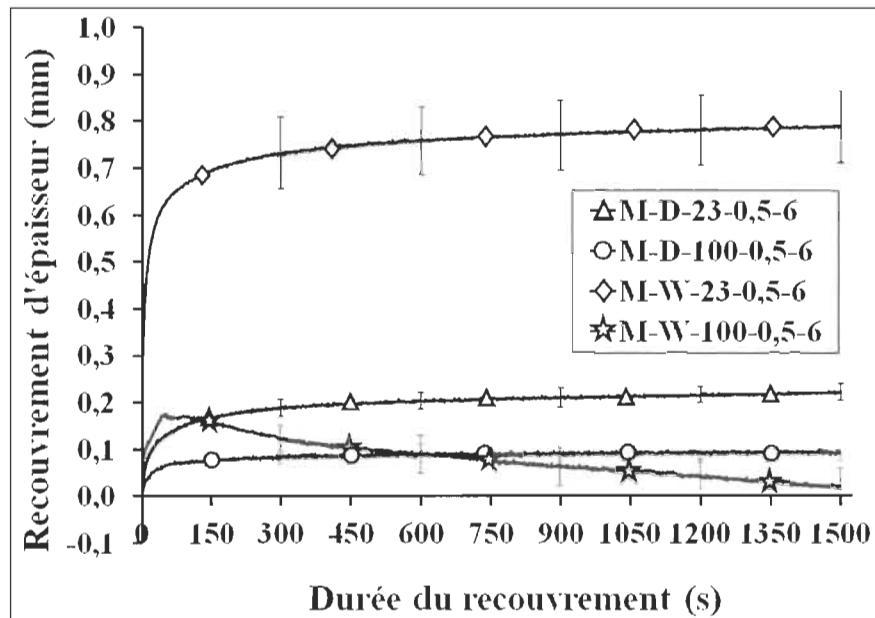


Figure 4.7: Effet de la température de compaction des renforts UD/mat ( $P_{\max} = 0,5$  MPa, 6 couches): sur le recouvrement d'épaisseur.

Le recouvrement d'épaisseur se produit simultanément avec l'évaporation de l'eau de sorte que l'augmentation d'épaisseur initiale est plus que compensée par le retrait que subit le renfort à partir de 100 s après le début du recouvrement. Les échantillons secs (essai 1, M-D-23-0,5-6 et essai 5, M-D-100-0,5-6) présentent des recouvrements d'épaisseur intermédiaires à ceux observés pour les échantillons humides, avec un recouvrement plus important pour l'essai 1 effectué à température ambiante. Le peu d'humidité présent dans les renforts secs (humidité de saturation à l'ambiante) est enlevé à 100 °C, de sorte que le retrait que ça implique pourrait être la cause (du moins partiellement) du plus faible retrait à sec pour l'essai M-D-100-0,5-6. De plus, à température élevée et dépendamment de leur composition (en lignine, hémicellulose et en cellulose) ainsi que de la teneur en humidité, les fibres cellulosiques peuvent se ramollir de sorte que sous la compression transversale, la déformation des fibres et par extension la déformation de la section transversale du fil sont facilitées et peuvent conduire à des déformations irréversibles (déformations permanentes) plus importantes qui ne peuvent être recouvrées après l'ouverture du moule [46, 52, 82, 108].

Ces résultats sont appuyés par la Figure 4.8 qui montre le pourcentage de déformation permanente (calculé selon l'équation 4.2) à la fin de la période de recouvrement. On observe une augmentation de la déformation permanente à la fois avec la température et l'humidité. Pour les renforts humides, d'autres explications peuvent être faites à partir de l'équation 4.2 et du Tableau 4.3 en gardant à l'esprit le fait que la déformation permanente est calculée à partir des épaisseurs  $T_0$  (l'épaisseur initiale avant la compaction) et  $T_3$  (l'épaisseur finale à la fin du recouvrement). Pour le cas M-W-23-0,5-6 de la Figure 4.7, le recouvrement est élevé dans les conditions humides dû à la réabsorption d'eau après le retrait de la pression de compaction, mais la déformation permanente est aussi élevée parce que le gonflement initial des fibres (et donc de l'échantillon) du fait de l'absorption d'eau a induit une épaisseur  $T_0$  extrêmement élevée comparativement aux renforts secs. L'épaisseur  $T_0$  est aussi élevée pour les échantillons humides compactés à chaud (essai 13, M-W-100-0,5-6).

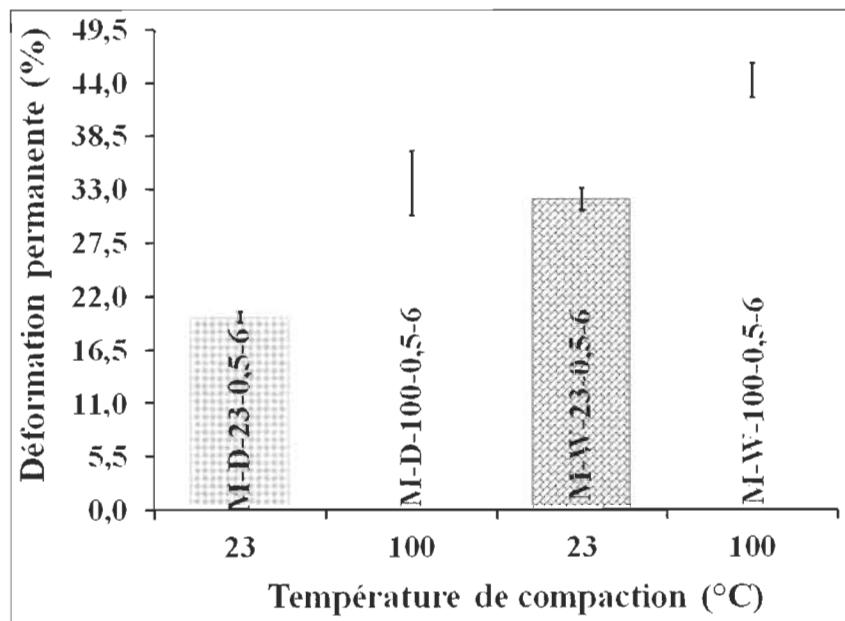


Figure 4.8: Effet de la température de compaction des renforts UD/mat ( $P_{\max} = 0,5$  MPa, 6 couches): sur le pourcentage de déformation permanente.

Cependant, dans ce cas particulier, le retrait du renfort qui se produit pendant l'évaporation d'eau empêche le recouvrement de telle sorte que la différence  $T_0 - T_3$  est maximisée, d'où une déformation permanente calculée selon l'équation 4.2 est aussi maximisée. Puisque les renforts UD/mat utilisent une fine couche de mat de fibres de lin (orientées aléatoirement) comme liant pour les fibres UD, il est également possible de retrouver des fibres courtes imbriquées entre des fils continus de lin appartenant aux couches adjacentes [97, 106]. Cela peut également contribuer à augmenter la déformation permanente. Francucci et coll. [3] ont observé, lors de la compaction à température ambiante pour des empilements de tissus de jute, que la déformation permanente des échantillons humides était inférieure à celle des échantillons secs. Ce résultat est différent de celui de la Figure 4.8. Cette différence pourrait s'expliquer par le fait que non seulement Francucci et coll. [3] ont travaillé sur un type de fibre différent, mais en plus, le retour élastique des tissus (après relâchement de la contrainte de compaction) est totalement différent car une partie du recouvrement d'épaisseur est due à la ré-ondulation des fils dans le tissu. Cela ne se produit pas dans le cas des renforts UD/mat. Cependant, dans leurs travaux sur le compactage à chaud de tissus de fibres de ramie, Gu et coll. [108] ont également noté une augmentation de la déformation permanente des tissus secs de ramie avec l'augmentation de la température de compactage. Ils attribuent ces observations à la nidification des fils, au déplacement des couches adjacentes de tissus, à l'effondrement de la paroi cellulaire des fibres et à la fermeture du lumen de celles-ci.

#### 4.3.2.2 *Influence du nombre de couches*

Les Figures 4.9 à 4.12 montrent l'effet du nombre de couches de renfort sur la réponse en compaction en comparant les empilements de 6 ou 12 couches sèches ou humides des renforts UD/mat sous une pression de 2,2 MPa et à une température de 23 °C. Le même effet du nombre de couches a été observé pour une pression de 0,5 MPa et c'est pourquoi ce cas n'est pas montré ici.

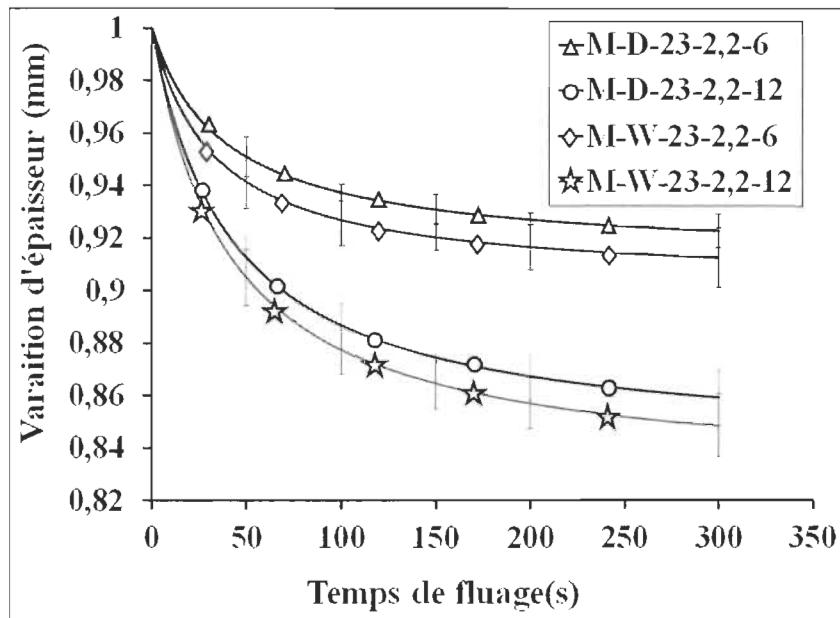


Figure 4.9: Effet du nombre de couches de renforts UD/mat ( $P_{max} = 2,2$  MPa,  $T = 23$  °C): sur la variation d'épaisseur durant le fluage.

Il ressort de la Figure 4.9 que l'augmentation du nombre de couches de renforts dans l'échantillon entraîne une augmentation de la variation d'épaisseur pendant le fluage, que ce soit pour des échantillons secs ou humides. Par exemple, cette variation est d'environ 0,08 mm pour M-D-23-2,2-6 contre environ 0,14 mm pour M-D-23-2,2-12. Cet effet a également été observé par Debnath et coll. [177, 178] dans leur étude de la réponse au fluage de renforts non-tissés de jute mélangés à du polypropylène dans des conditions sèches et humides. Dans une préforme à 12 couches, il y a beaucoup plus de vide et d'espace à réduire ou à condenser que dans celle à 6 couches. Par conséquent, à pression de fluage identique, les contacts fibres à fibres et les frottements interfibres (et donc la résistance à la compression) apparaissent plus rapidement dans le cas des préformes à six couches que dans celles à 12; ce qui signifie que la variation d'épaisseur sera plus faible dans la préforme à 6 couches [179].

De plus, en raison de l'architecture des renforts UD/mat (faite de fibres UD maintenues par un liant mat constitué de fibres courtes aléatoires), la diminution

d'épaisseur peut être aussi causée par la déformation de la section des fils et l'aplanissement des fils comme l'ont montré Chen et coll. [102]. L'amplitude de ces phénomènes augmente avec le nombre de couches dans l'échantillon jusqu'à un état d'équilibre dépendant de la pression de compaction et du matériau constituant la préforme.

La Figure 4.10 montre que l'augmentation du nombre de couches de renforts de 6 à 12 réduit le pourcentage de fluage dans les échantillons humides et secs obtenu de l'équation 4.1. Ceci est dû au fait que l'épaisseur  $T_1$  (épaisseur au début du fluage) augmente plus avec le nombre de couches que le changement d'épaisseur dû au fluage (comparer les essais 3 et 4 et les essais 11 et 12 du Tableau 4.3). L'épaisseur  $T_1$  augmente de 1,92 à 4,13 mm de l'essai 3 à 4 (6 à 12 couches) soit plus du double, tandis que le changement d'épaisseur dû au fluage ( $T_1 - T_2$ ) s'accroît de 0,08 mm à 0,15 mm seulement. Cet effet est plus important dans les conditions humides. Puisqu'on est à 23 °C (aucun retrait de séchage) et tel que mentionné à la section 4.3.2.1, la présence d'eau permet une compression initiale (de  $T_0$  à  $T_1$ ) plus élevée à l'état humide du fait de l'effet lubrifiant de l'eau, effet qui affecte plus la compression initiale (avec un  $T_1$  plus faible) que la compression au fluage (passage de  $T_1$  à  $T_2$ ). Il en ressort que  $T_1$  étant plus faible à l'état humide, puisque l'équation 4.1 est calculée avec un  $T_1$  plus faible au dénominateur, le pourcentage de fluage devient alors plus élevé à l'état humide qu'à l'état sec. C'est donc une augmentation "artificielle" du pourcentage de fluage dans la mesure où ce n'est pas la compression de fluage (de  $T_1$  à  $T_2$ ) qui augmente mais l'épaisseur  $T_1$  qui est plus faible à l'état humide. Une différence ( $T_1 - T_2$ ) aussi faible observée en passant de 6 à 12 couches supporte l'observation ci-dessus à l'effet que la majorité de la déformation du réseau de fibres se produit pendant la fermeture du moule (de  $T_0$  à  $T_1$ ). De plus,  $T_1$  dépend plus du nombre de couches que de la présence d'humidité.

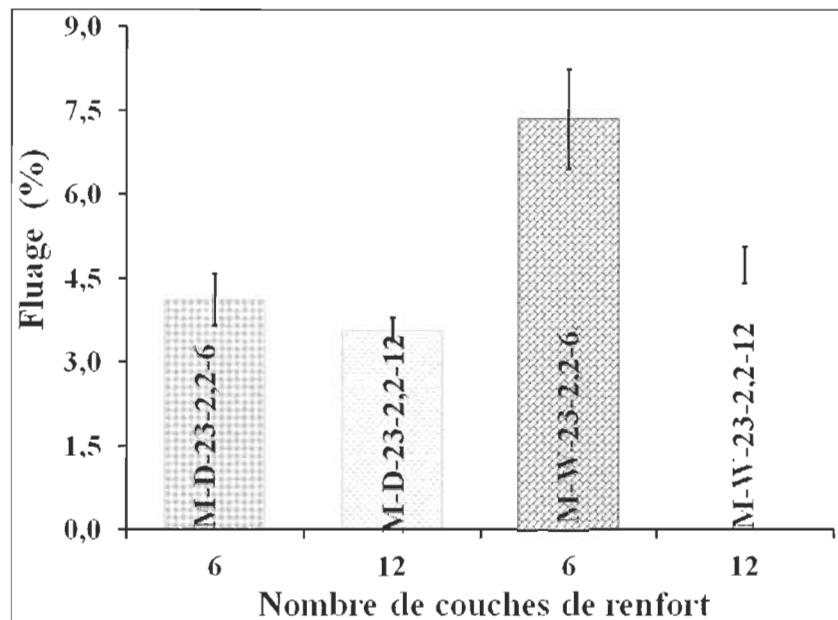


Figure 4.10: Effet du nombre de couches de renforts UD/mat ( $P_{\max} = 2,2 \text{ MPa}$ ,  $T = 23 \text{ }^{\circ}\text{C}$ ): sur le pourcentage de fluage.

De fait,  $T_1$  diminue de 1,92 à 1,28 mm en comparant les essais sec (essai 3) et humide (essai 11) à 6 couches et de 4,13 à 3,40 mm pour les essais sec (essai 4) et humide (essai 12) à 12 couches alors qu'il passe de 1,92 à 4,13 mm en comparant l'effet du nombre de couches des essais 3 et 4 secs (et de 1,28 à 3,40 mm pour les essais 11 et 12 humides) du Tableau 4.3.

Pour le recouvrement d'épaisseur, la Figure 4.11 montre que, à température ambiante, l'épaisseur de recouvrement augmente significativement avec le nombre de couches et cet effet est plus important pour les échantillons humides (essais 11 et 12).

La Figure 4.12 montre cependant que l'augmentation du nombre de couches n'a pratiquement aucun effet sur le pourcentage de déformation permanente dans les échantillons secs. Pour les échantillons humides, il est difficile de conclure compte-tenu des écart-types. En effet, le pourcentage de déformation permanente est de  $37,27 \pm 1,21$  pour M-W-23-2,2-6 contre  $33,30 \pm 3,05$  pour M-W-23-2,2-12.

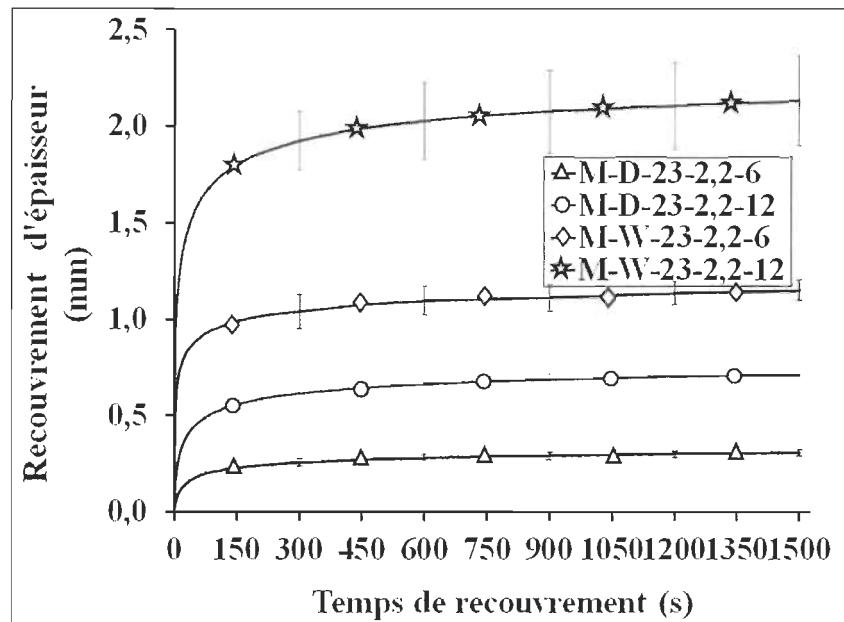


Figure 4.11: Effet du nombre de couches de renforts UD/mat ( $P_{\max} = 2,2 \text{ MPa}$ ,  $T = 23^\circ\text{C}$ ): sur le recouvrement d'épaisseur.

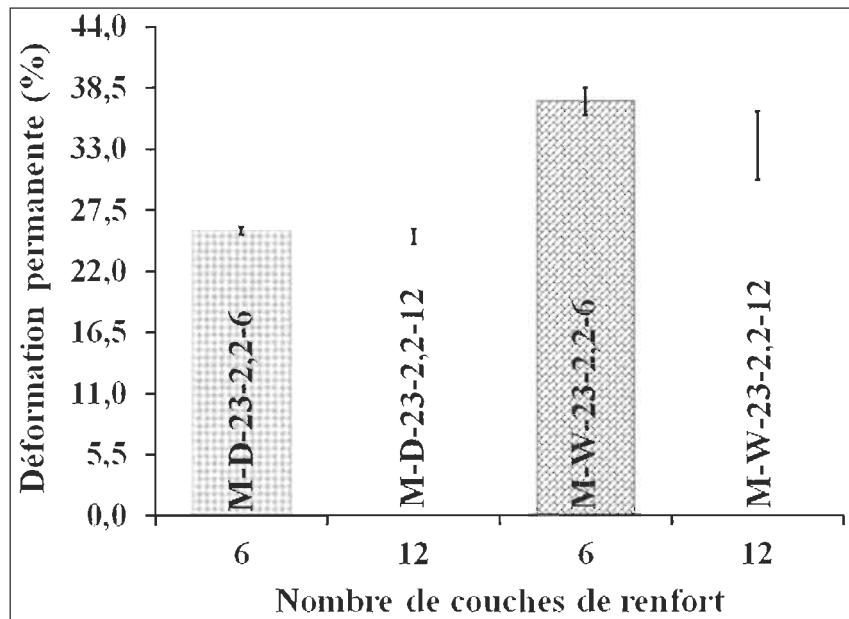


Figure 4.12: Effet du nombre de couches de renforts UD/mat sur la compaction ( $P_{\max} = 2,2 \text{ MPa}$ ,  $T = 23^\circ\text{C}$ ): le pourcentage de déformation permanente.

Le Tableau 4.3 révèle que l'épaisseur finale  $T_3$  augmente avec le nombre de couches dans l'empilement, ce qui détermine également l'épaisseur initiale  $T_0$  dans les conditions sèche et humide (comparer  $T_3$  et  $T_0$  pour les essais 3 et 4 et pour les essais 11 et 12). Cependant, si l'on compare les essais 11 et 12 du Tableau 4.3, on remarque que le passage de 6 à 12 couches pour les conditions humides et à 23 °C, se traduit par une augmentation de  $T_0$  de 110 % (de 5,33 à 11,24 mm) et de  $T_3$  de 123,95 % (de 3,34 à 7,48 mm). En considérant l'équation 4.2, ceci signifie une baisse relative de  $(T_0 - T_3)$  accompagnée d'une hausse relative de  $T_3$  pour le cas 12 couches, d'où une baisse du pourcentage de déformation permanente. Il a été suggéré par Shah et al. [167], dans le cas des tissus de soie, que l'augmentation du nombre de couches rend difficile l'occurrence de la nidification en raison d'une transmission non uniforme de la force de compression appliquée à travers les différentes couches. Il est donc possible que la pression appliquée soit transférée plus facilement à travers l'empilement à 6 couches de renforts humides puisque l'épaisseur est plus faible, ce qui amènerait un pourcentage de recouvrement d'épaisseur aussi plus faible (les plis individuels ayant été soumis à la pression de façon plus efficace). En conséquence, les échantillons humides constitués de 12 plis pourraient être moins affectés par les phénomènes irréversibles conduisant à une déformation permanente (fermeture du lumen, effondrement de la paroi cellulaire) que ceux faits de 6 plis.

#### 4.3.2.3 *Influence de la pression*

Dans cette section, on s'intéresse à l'influence de la pression sur la réponse en compaction d'échantillons secs et humides constitués de 6 couches de renforts à température ambiante. Les mêmes tendances ont été observées avec des échantillons constitués de 12 couches.

D'après la Figure 4.13 et pour les échantillons humides et secs, il est montré que la variation d'épaisseur pendant le fluage est plus grande pour les échantillons compactés à 0,5 MPa que pour ceux compactés à 2,2 MPa.

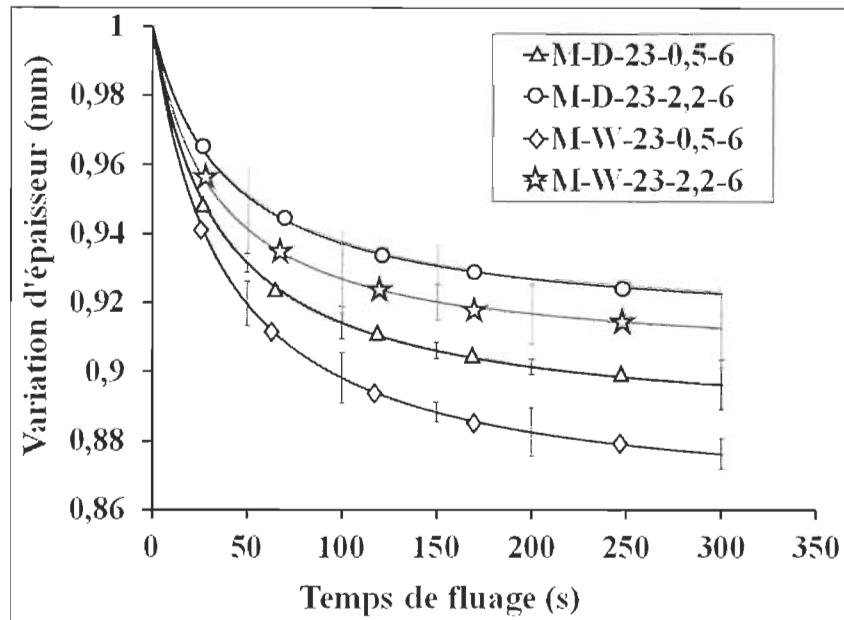


Figure 4.13: Effet de la pression de compaction des renforts UD/mat (6 couches,  $T = 23 \text{ }^{\circ}\text{C}$ ): sur la variation d'épaisseur durant le fluage.

Bien que cela semble étrange à prime abord, tel que mentionné plus haut, puisque la majeure partie de la déformation de la pile de renforts se produit dans la phase de fermeture (de  $T_0$  à  $T_1$ ), le fait d'atteindre  $T_1$  à une pression plus faible fait que celle-ci est beaucoup plus élevée qu'à 2,2 MPa et puisque toute compaction supplémentaire (de  $T_1$  à  $T_2$ ) devient beaucoup plus difficile à obtenir, le fluage s'en trouve globalement plus élevé à 0,5 MPa. Cette observation est confirmée par les résultats du Tableau 4.3 montrant que dans la phase de compaction (fermeture du moule), la diminution d'épaisseur (de  $T_0$  à  $T_1$ ) est beaucoup plus importante dans les échantillons compactés à 2,2 MPa que dans ceux compactés à 0,5 MPa, tandis que pendant le fluage ( $T_1$  à  $T_2$ ) c'est le contraire qui est observé (comparer dans le Tableau 4.3, les essais 1 et 3 pour l'état sec et 9 et 11 pour l'état humide). On remarque aussi une plus forte variation d'épaisseur pour les échantillons humides pour une même pression de compaction, supportant l'idée d'un effet de lubrification mentionné précédemment.

De même, lorsqu'on compare le fluage en termes de pourcentage de l'épaisseur initiale  $T_1$  (selon l'Équation 4.1), la Figure 4.14 montre un plus fort pourcentage à l'état

humide. On observe aussi que l'augmentation de la pression de compaction n'induit pas d'effet sur le pourcentage de fluage des échantillons secs alors qu'une augmentation est observée pour les renforts humides. Les phénomènes de lubrification induits par la présence d'eau à l'intérieur et entre les fibres (et leurs conséquences) semblent amplifiés avec une augmentation de la pression.

La Figure 4.15 montre que le recouvrement d'épaisseur augmente avec la pression de compaction d'une part et qu'un recouvrement beaucoup plus important est observé pour les conditions humides. Puisqu'il y a réabsorption d'eau par les fibres (et gonflement de celles-ci) après l'enlèvement de la pression de compaction; un recouvrement d'épaisseur plus élevé est observé pour les renforts humides comparativement aux renforts secs. De plus, pour les renforts secs et en l'absence de lubrification par l'eau, la réorganisation des fibres à l'intérieur des fils et entre les couches de renforts est plus difficile et donc réduite.

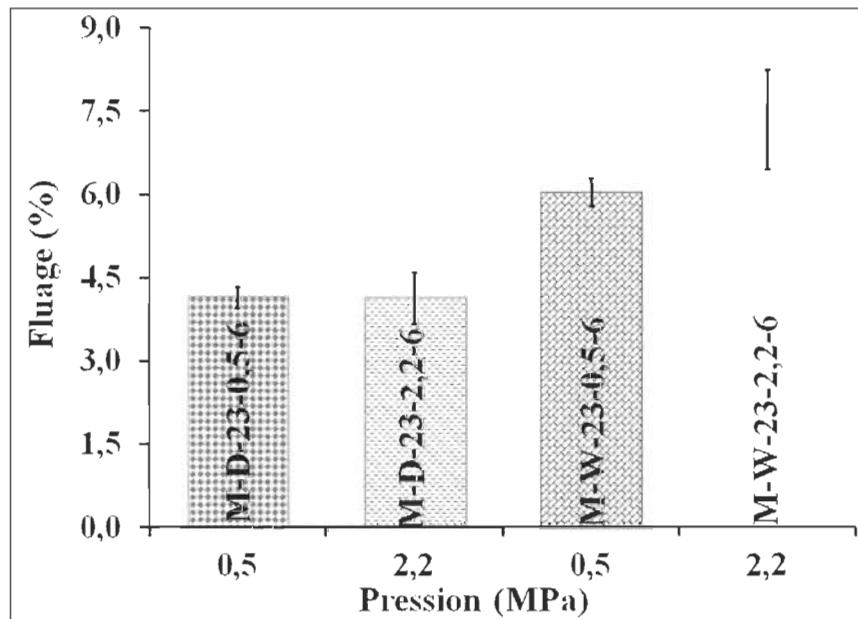


Figure 4.14: Effet de la pression de compaction des renforts UD/mat (6 couches,  $T = 23 \text{ }^{\circ}\text{C}$ ): sur le pourcentage de fluage.

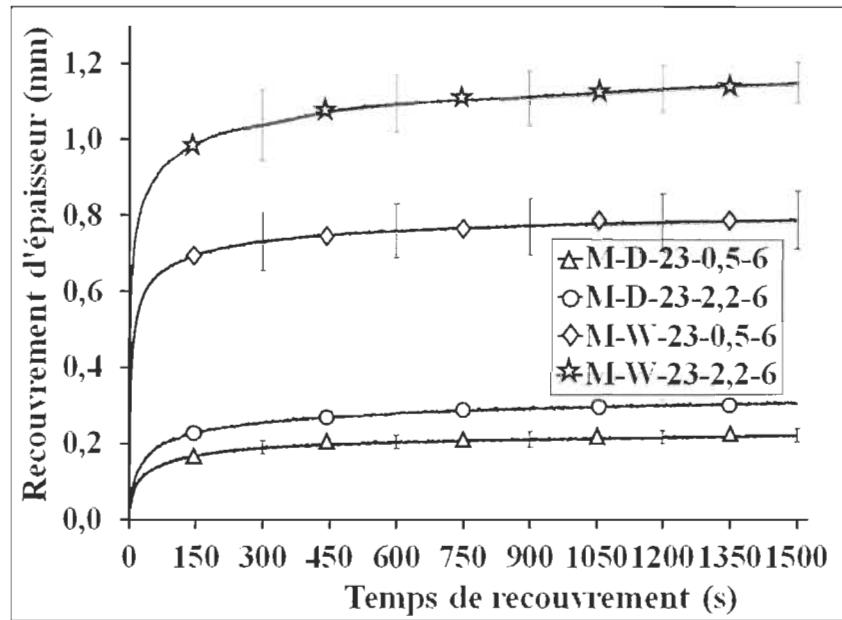


Figure 4.15: Effet de la pression de compaction des renforts UD/mat (6 couches,  $T = 23^{\circ}\text{C}$ ): sur le recouvrement d'épaisseur.

Ces derniers pourraient donc souffrir davantage des déformations irréversibles telles que la déformation de la section transversale du fil, l'effondrement du lumen et la rupture de fibres, ce qui se traduit finalement par un recouvrement d'épaisseur moindre. Cependant, lorsqu'on regarde le pourcentage de déformation permanente à la Figure 4.16 (calculé à partir de l'Équation 4.2), les déformations irréversibles semblent cependant plus importantes dans les conditions humides (voir aussi la Figure 4.12). Sous ces conditions cependant, l'épaisseur initiale  $T_0$  est plus importante en raison du gonflement des fibres par absorption d'eau mais à la fin du processus de recouvrement,  $T_3$  est inférieure en raison des effets de lubrification et de ramollissement (comparez les essais 1 à 9 et 3 à 11 dans le Tableau 4.3). Le pourcentage de déformation permanente observé est donc, dans les cas humides, plus relié au gonflement des fibres et à la facilité d'amincissement (tassement du renfort) par lubrification (d'où une différence  $T_0 - T_3$  artificiellement élevée) qu'à l'endommagement des fibres, lesquelles sont probablement moins endommagées qu'à l'état sec du fait de la lubrification offerte par l'eau.

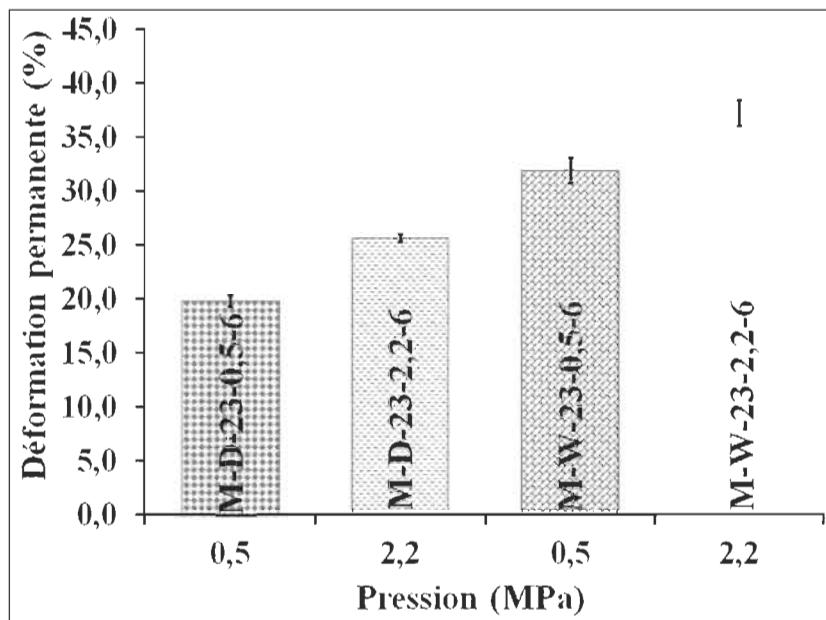


Figure 4.16: Effet de la pression de compaction des renforts UD/mat (6 couches,  $T = 23^\circ\text{C}$ ): sur le pourcentage de déformation permanente.

Finalement, le pourcentage de déformation permanente augmente avec la pression, comme le montre la Figure 4.16. À mesure que la pression augmente, la déformation de la section transversale du fil, l'aplatissement de ceux-ci et l'imbrication intra-fil contribuent tous à l'augmentation de la déformation permanente, tel qu'observé par Francucci et coll. [3]. Il a été montré que la pression nécessaire pour forcer le fluide à circuler à travers le renfort est non négligeable lors du compactage de tissus de jute à l'état humide [3]. Cette pression (la pression reprise par l'eau) dépend de la perméabilité du réseau de fibres et, dans le cas présent, avec des fibres UD fortement alignées et compactées, la perméabilité est réduite et la pression de l'eau pourrait devenir importante. En fait, parce qu'une partie de la pression imposée est reprise par l'eau, l'influence de la pression sur l'endommagement des fibres devrait être réduite comparativement au cas des renforts secs, à moins que l'eau elle-même endommage les fibres.

#### 4.4 Résultats de l'analyse de variance

Dans cette section, une analyse de variance est réalisée pour quantifier l'influence des paramètres de compaction sur le pourcentage de déformation permanente (Tableau 4.4) et de fluage (Tableau 4.5).

Tableau 4.4: Résultat de l'ANOVA pour le pourcentage de déformation permanente.

Paramètres d'étude	Df	Carré moyen	Pr (>F)	Importance
H	1	1509,6	2E-16	Oui
T	1	2548,7	2E-16	Oui
L	1	70,2	0,0000327	Oui
P	1	714,8	2,36E-16	Oui
HxT	1	17,7	0,021249	Oui
HxL	1	0,3	0,757488	Non
TxL	1	0,5	0,675493	Non
HxP	1	10,3	0,073611	Non
TxP	1	58	0,000116	Oui
LxP	1	2	0,41983	Non
HxTxL	1	35,8	0,001615	Oui
HxTxP	1	7,9	0,115433	Non
HxLxP	1	10,1	0,075778	Non
TxLxP	1	2,3	0,389567	Non
HxTxLxP	1	13,7	0,040902	Oui
Résidus	32	3	-	-

Dans ces tableaux, H représente l'humidité, T la température, L le nombre de couches et P la pression. Le critère d'importance, déterminé en comparant les valeurs  $F_{exp}$ , lesquelles sont calculées dans la table ANOVA à  $F(1, 0.05, 32)$  tirées des tables de Fisher-Snedecor, est basé sur une valeur de risque alpha de 5 % [170, 180].

Tableau 4.5: Résultat de l'analyse ANOVA pour le pourcentage de fluage.

Paramètres d'étude	Df	Carré moyen	Pr(>F)	Importance
H	1	12,332	9,83E-08	Oui
T	1	0,54	0,162	Non
L	1	18,978	1,08E-09	Oui
P	1	0,259	0,3289	Non
HxT	1	16,239	5,95E-09	Oui
HxL	1	6,543	0,000021	Oui
TxL	1	1,275	0,0353	Oui
HxP	1	0,976	0,0633	Non
TxP	1	0,267	0,3215	Non
LxP	1	0,135	0,4799	Non
HxTxL	1	1,057	0,0539	Non
HxTxP	1	1,092	0,0503	Non
HxLxP	1	0	0,9903	Non
TxLxP	1	0,163	0,4371	Non
HxTxLxP	1	0	0,9672	Non
Résidus	32	0,264	-	-

Le Tableau 4.4 montre que la déformation permanente est significativement influencée par l'action individuelle de tous les paramètres étudiés et, dans une moindre mesure, par certaines interactions. La température est le facteur le plus important contribuant à la déformation permanente suivie par l'humidité et la pression. La déformation permanente est également influencée par l'interaction température-pression (TxP) et température-humidité-nombre de couches (HxTxL). Gu et al. [108] ont également obtenu, pour leur étude sur la compaction à sec de tissus de ramie, une forte augmentation de la déformation permanente à haute température et pression de compactage. Ils ont attribué cela à la déformation de la fibre, à la nidification des fibres

et aux mouvements relatifs entre les couches adjacentes de tissu contribuant à la déformation permanente. Dans le cas présent, ces phénomènes pourraient être présents, mais ils se combinent à la formation de liaisons hydrogènes entre les liants mats ou papier et les fibres UD de lin ainsi qu'au retrait de l'échantillon dû au séchage.

Le Tableau 4.5 montre que le pourcentage de fluage est significativement influencé par le nombre de couches (L), l'interaction entre l'humidité et la température (HxT), l'humidité (H), l'interaction entre l'humidité et le nombre de couches (HxL) et l'interaction entre température et nombre de couches (TxL). Globalement, cette ANOVA souligne la forte influence de l'interaction entre l'humidité et la température.

#### 4.5 Conclusion partielle

L'objectif de ce chapitre était de répondre à la question de savoir s'il est possible de former des préformes 3D à partir des renforts UD/mat ou UD/papier en utilisant l'action de l'humidité, de la pression, de la température et du nombre des couches de renforts à l'image de ce qui se fait pour la fabrication des contenants 3D en papier-carton. La réponse à cette question étant affirmative, on s'est intéressé à évaluer l'effet des paramètres ci-dessus sur la compaction des renforts étant donné l'importance de ce mode de déformation sur la teneur en fibre et donc les performances mécaniques des composites moulés à partir de nos préformes UD/mat ou UD/papier. En particulier, on a évalué la compaction par fluage, le recouvrement d'épaisseur et la déformation permanente. Il ressort des analyses que :

- L'effet lubrifiant de l'eau facilite le mouvement entre les fibres d'une même couche, ou entre les couches adjacentes de l'empilement de renforts, et facilite ainsi la réorganisation du réseau de fibres.
- Le fluage est plus affecté par la température dans le cas des renforts secs que dans celui des renforts humides. En présence d'humidité (lubrifiant), les phénomènes tels que les déplacements relatifs entre des couches adjacentes et la déformation des fils et des fibres, la condensation des vides et des espaces entre les fibres sont facilitées.

Ces phénomènes sont limités dans le cas des préformes sèches; ce qui pourrait conduire à l'endommagement des fibres [3, 108]. Une des conséquences de cet endommagement est le faible recouvrement d'épaisseur observé à la fin du fluage. Le ramollissement des fibres sous l'effet de la chaleur facilite les phénomènes de déformation de la section des fils et des fibres et de déplacement relatif entre couches adjacentes.

- A température ambiante, une augmentation d'épaisseur beaucoup plus importante est obtenue dans les échantillons humides en raison du gonflement des fibres causé par l'absorption initiale (menant à  $T_0$ ) et la réabsorption de l'eau lors du recouvrement (menant à  $T_3$ ). Les essais effectués avec un moule à 100 °C montrent un comportement totalement opposé car le recouvrement d'épaisseur est en compétition avec la contraction induite par le séchage (retrait dû au séchage). L'augmentation initiale de l'épaisseur pendant le recouvrement est plus que compensée par la contraction du renfort par séchage de sorte que globalement, le recouvrement d'épaisseur observé est faible.
- La déformation permanente augmente avec la température et l'humidité. Les déformations de la section transversale des fibres et des fils semblent facilitées à la fois par la température et l'humidité. La contraction observée lors du séchage des renforts humides contribue à augmenter la déformation permanente due à une épaisseur  $T_3$  plus faible à la fin du recouvrement d'épaisseur.
- Augmenter le nombre de couches de 6 à 12 réduit le pourcentage de fluage pour les échantillons humides et secs. L'épaisseur au début du fluage ( $T_1$ ) augmente plus que le changement d'épaisseur dû au fluage ( $T_2-T_1$ ) lorsque le nombre de couches est doublé, et cet effet est plus important sous conditions humides.
- Le recouvrement d'épaisseur augmente avec le nombre de couches dans les échantillons. Le nombre de couches n'a pratiquement aucun effet sur la déformation permanente des renforts secs.

- Une pression de compaction plus élevée réduit la variation d'épaisseur pendant le fluage. Comme la plupart des déformations se produisent dans la phase de fermeture du moule, atteindre l'épaisseur  $T_1$  à une pression plus élevée contribue à "verrouiller" les renforts constitués de fibres UD bien alignées, ce qui rend le fluage plus difficile par la suite conduisant à une variation d'épaisseur ( $T_2 - T_1$ ) plus faible.
- La déformation permanente augmente avec la pression de compaction à la fois pour les renforts secs et humides.
- Les résultats ANOVA montrent que la déformation permanente est principalement influencée par l'humidité, la température et la pression, tandis que le pourcentage de fluage est influencé principalement du nombre de couches dans l'échantillon (L), de l'humidité (H) et des interactions humidité-température (HxT) et humidité-nombre de couches (HxL).
- Des essais de préformage ont montré que les préformes fabriquées à partir d'échantillons humides avec une température de moule élevée préservent mieux la géométrie du moule de préformage que celles fabriquées à partir d'échantillons secs à température ambiante. De plus, très peu de défauts ont été observés dans les préformes fabriquées à partir des renforts UD/mat ou UD/papier sous conditions humides. Ceci montre qu'il est possible de fabriquer de bonnes préformes à partir de fibres de lin UD maintenues en place par une fine couche de papier ou de mat, en ajustant le niveau d'humidité et de température. Cela pourrait être un atout économique pour le procédé RTM, car dans ce cas il n'est plus nécessaire d'utiliser des liants à base de résine pour fixer la géométrie de la préforme après l'avoir retirée du moule de préformage, avec en prime la présence d'un liant mat produisant des propriétés mécaniques somme toute intéressantes dans le sens travers aux fibres, ce qui n'est pas le cas des renforts UD traditionnels.

Les préformes 3D fabriquées doivent avoir une bonne perméabilité pour faciliter le moulage des pièces. Ce qui soulève deux questions pour la suite des travaux : la première est de savoir dans quelle mesure les conditions de préformage ou de

compaction étudiées dans le présent chapitre ont affecté la perméabilité des renforts (et donc des préformes). La deuxième est de déterminer comment ces paramètres de préformage affectent les performances mécaniques des composites, car après tous les effets subis par les fibres (compression, humidification, séchage, température), il n'est pas certain que les propriétés des composites finaux soient faiblement affectées. C'est à ces deux questions que nous allons nous attarder au prochain chapitre.

## Chapitre 5 - EFFET DES PARAMÈTRES DE COMPACTION SUR LES PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES DE COMPOSITES À FIBRES UNIDIRECTIONNELLES DE LIN

### 5.1 Introduction

Au chapitre précédent, nous avons montré qu'il est possible de former de bonnes préformes 3D à partir des renforts UD/mat et UD/papier en ajustant la teneur en humidité des renforts et la température du moule, à l'image de ce qui se fait pour la fabrication des contenants d'emballage 3D en papier-carton, étant donné que nous avons dans le cas des renforts UD/mat ou UD/papier une couche mat ou papier qui agit comme liant continu pour le maintien des fils unidirectionnels. En particulier, il a été montré que la température et l'humidité peuvent fortement améliorer la capacité des renforts UD/mat et UD/papier à se conformer sur un moule à double courbure. L'action de ces deux paramètres contribue à limiter la formation de défauts de préformage (replis, déchirure, désalignement des fils) et aide à maintenir la précision de la géométrie et des dimensions de préformes proches de celles du moule de préformage. Nous avons aussi examiné les effets de ces paramètres en plus de ceux de la pression de compaction et du nombre de couches de renfort sur la réponse en compaction des renforts UD/mat. Cependant et avant d'approfondir l'analyse du préformage, il faut déterminer quelle influence la pré-compaction chaude et humide peut avoir sur la perméabilité à la résine des préformes (lors du moulage) et sur la qualité des pièces composites finales en termes de porosité et de propriétés mécaniques. De plus, le préformage à chaud de renforts humides comprend au moins un cycle de désorption/absorption d'humidité. Baley et al. [48] ont montré que le séchage des fibres de lin peut grandement influencer la résistance en tension des fibres et que cette propriété n'est pas recouvrée après un cycle de

désorption/absorption. Par conséquent, il est essentiel de quantifier l'influence de l'humidité et de la température au préformage sur les propriétés mécaniques des composites UD/mat lin-époxy après compaction des renforts. Ainsi, dans le présent chapitre, on répondra à la question à savoir comment ces paramètres de préformage (notamment la température et l'humidité) affectent la perméabilité des renforts, l'imprégnation et les propriétés mécaniques des composites UD/mat-époxy. Dans le cadre de cette étude, on se limitera au renfort UD/mat en raison principalement des difficultés rencontrées pour imprégner les renforts UD/papier du fait de la couche papier qui a une très faible perméabilité [141]. Dans la première partie du chapitre, on présente les conditions de pré-compaction dont les effets seront analysés. La deuxième partie du chapitre présente les résultats des essais de perméabilité planaire réalisés sur des renforts UD/mat (secs ou humides) ayant été pré-compactés à chaud ou à température ambiante. Dans la troisième partie, les résultats des essais mécaniques (traction et flexion) réalisés sur des composites UD/mat époxy fabriqués par RTM à partir des renforts pré-compactés et non compactés sont présentés et l'influence des conditions de pré-compaction (ambiante, chaude, humide, sèche) sont analysées.

## **5.2 Précompaction des renforts en vue des tests de perméabilité des préformes et la fabrication des composites**

Pour évaluer l'effet de la compaction planaire, effectuée à haute température et haut taux d'humidité, sur les renforts, un empilement [0]<sub>6</sub> de renforts UD/mat non phosphorylés a été compacté à température ambiante (23 °C) et élevée (100 °C) de même qu'aux taux d'humidité faible ou sec (D) et élevé ou humide (W) tels que définis à la section 4.3.1 à une pression de compaction de 0,5 MPa. Une fois atteinte, cette pression a été maintenue pendant 5 minutes, après quoi la préforme est retirée des plateaux. Le montage utilisé est décrit à la section 3.2.5. Le Tableau 5.1 présente les conditions de compaction dont les effets sont évalués, où NC réfère à la condition des renforts non-compactés et M au liant mat.

Tableau 5.1: Effets des paramètres de compaction et de préformage sur la perméabilité et les propriétés mécaniques : paramètres d'études.

# Essai	Désignation du Renfort et du composite	Niveau d'humidité	Température des plateaux de compaction (°C)
1	NC	D	23
2	MD2323	D	23
3	MD23100	D	100
4	MW2323	W	23
5	MW23100	W	100

Une fois compactées et séchées (tel que décrit à la section 3.2.5), les préformes seront utilisées pour évaluer l'effet de ces paramètres de compaction (et donc de préformage) sur la perméabilité à la résine des préformes et les propriétés mécaniques après moulage.

### 5.3 Résultats

#### 5.3.1 Essais de perméabilité

La Figure 5.1 (a et b) présente la perméabilité, mesurées selon la méthode décrite à la section 3.2.6, dans les directions longitudinale ( $K_x$ ) et transverse ( $K_y$ ) des renforts compactés selon le Tableau 5.1 et ces perméabilités sont comparées à celles des renforts non compactés (NC). Globalement et compte-tenu des écarts-types relativement élevés, il ressort de la Figure 5.1 (a et b) que les conditions de pré-compaction n'ont presque aucun effet quantifiable sur les perméabilités longitudinale  $K_x$  et transverse  $K_y$ . De plus, les valeurs de  $K_x$  sont proches de celles obtenues par Habibi [16] (pour des renforts UD et UD/mat de lin similaires) mais près d'un ordre de grandeur inférieure à celles obtenues pour des renforts en fibres de verre pour un taux volumique de fibres  $V_f$  similaire (Tableau 5.2) [116, 117].

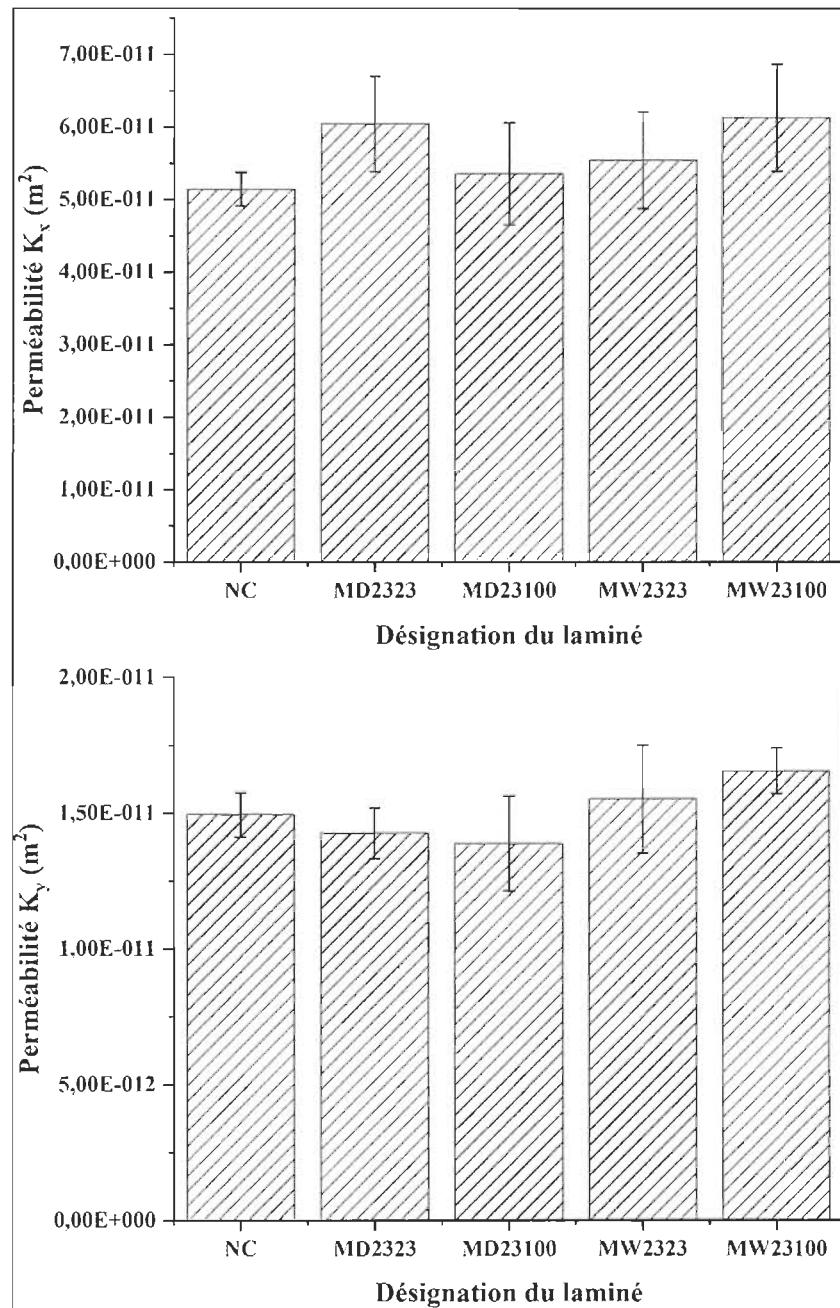


Figure 5.1: Permeabilités : (a)  $K_x$  et (b)  $K_y$ .

Tableau 5.2: Valeurs de perméabilités rapportées dans la littérature pour différents renforts et différentes architectures.

Renfort, matériau	V <sub>f</sub> (%)	K <sub>x</sub> ( $\times 10^{-11} \text{ m}^{-2}$ )	K <sub>y</sub> ( $\times 10^{-11} \text{ m}^{-2}$ )	Viscosité* (mPa.s)	Source
<b>UD, lin, UD/mat, lin</b>	40,0 ± 0,0	9,1 ± 0,0 6,6 ± 0,0	-	100	[16]
<b>Taffetas, verre (R420)</b>	43,4 ± 0,0	47,3 ± 8,4	45,9 ± 9,3	340-390	[116]
<b>Taffetas, fibre de verre</b>	44,0 ± 0,0	50 ± 0,0	-	105-125	[117]
<b>Sergé 2x2, verre (01113 1000 TF970)</b>	45,0 ± 0,0	41,7 ± 0,0	13,8 ± 0,0	107	[181]
<b>Taffetas, fibre de verre (R420)</b>	49,1 ± 0,0	20,6 ± 1,3	19,7 ± 1,1	340-390	[116]

\*Ces essais sont réalisés en milieu non saturé et en utilisant de l'huile de silicium.

Le fait que le pré-compactage à chaud avec renforts humides ne modifie pas la perméabilité axiale pourrait être avantageux pour le moulage dans la mesure où l'imprégnation est adéquate (sans défauts majeurs). Il a été démontré au chapitre 4 que le chauffage et l'humidification des renforts UD/papier ou UD/mat lin étaient clairement avantageux pour limiter la formation de défauts de préformage (replis, désalignement des fils, déchirures) lors du préformage sur des moules à géométries complexes [75]. La Figure 5.2 (a à e) présente les micrographies à grossissement 50X d'échantillons composites tels que moulés à partir de renforts prétraités selon les conditions 1 à 5 du Tableau 5.1 respectivement. Dans tous les cas, les six couches de renfort sont facilement identifiées. On observe la présence de larges zones riches en résine dans les couches de liant mat.

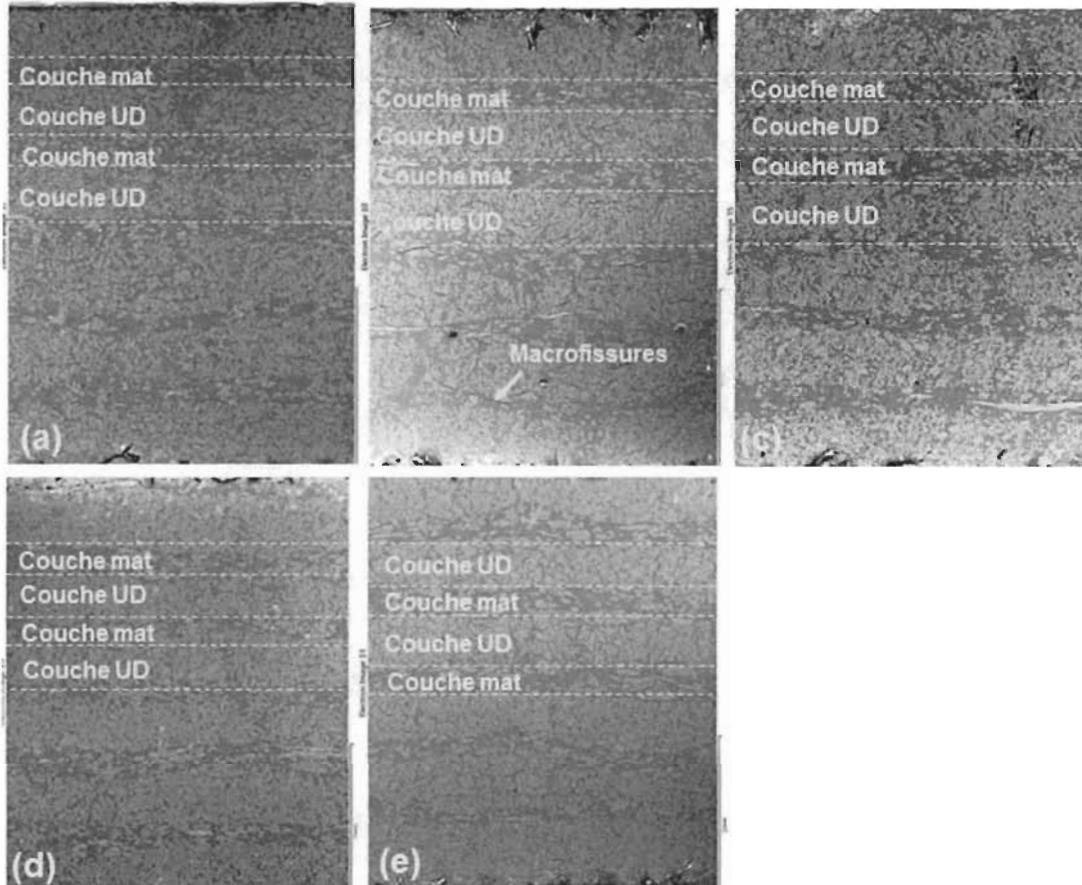


Figure 5.2: Microographies (50 X) composites sains (voir Tableau 5.1): (a) NC, (b) MD2323, (c) MD23100, (d) MW2323 et (e) MW23100.

Dans le cas des renforts pré-compactés (Figure 5.2 b-e), on note une densification de la couche UD comparativement aux composites fabriqués à partir des renforts NC (Figure 5.2a). Cette densification est particulièrement importante dans les composites MW2323 (Figure 5.2d) et MW23100 (Figure 5.2e). Ceci suggère que l'écoulement macroscopique de la résine est plus facile à l'intérieur des couches de mat que dans les couches UD; en particulier pour les composites faits de renforts pré-compactés.

La compaction modifie la structure, la géométrie et la taille des canaux au travers desquels s'écoule la résine lors de l'imprégnation du réseau de fibres [3, 106, 109, 125]. Dans le cas présent, la réorganisation par suite de la compaction est telle que la porosité

est plus importante dans le liant mat et plus faible dans les couches UD comparativement aux préformes NC même si globalement le taux de fibre est maintenu. Dans les renforts NC, les fibres sont mieux distribuées dans l'épaisseur que dans les échantillons de renforts compactés. Cette distribution peut partiellement obstruer les canaux d'écoulement et réduire la perméabilité.

Dans les échantillons de renforts compactés à l'état humide, l'effet de lubrification de l'eau facilite le mouvement entre les fibres et entre les plis; permettant ainsi un niveau de compaction plus important [3, 75]. Par conséquent et dans le cas présent, il se forme davantage de liaisons hydrogène (durant le séchage) entre les fils UD des renforts mouillés puisqu'il y a plus de fibres en contact rapproché. Ces liaisons se forment durant la période de séchage et auront tendance à maintenir les fibres et fils UD ensemble (côte à côte) durant la période de recouvrement après compaction; laissant donc plus de canaux ouverts dans la couche de liant mat, ce qui globalement induit des valeurs légèrement supérieures pour  $K_x$  et  $K_y$ . La forte déconsolidation observée dans les couches de mat est probablement due à l'orientation aléatoire des fibres dans cette couche. Les fibres se croisent aux points de contact de sorte qu'elles peuvent moins former de liaisons hydrogènes fibre-fibre et sont plus sujettes à fléchir durant la compaction. Pendant le recouvrement, ces déformations élastiques seront donc plus aisément recouvrables et par conséquent, des vides importants se développent à l'intérieur des mats. Dans les couches UD, les nombreuses liaisons hydrogènes créées entre les fibres limitent le retour élastique et la déconsolidation. Les laminés de la Figure 5.2 sont montrés à une résolution plus grande à la Figure 5.3 pour toutes les conditions du Tableau 5.1 (les Figures 5.3a à 5.3e correspondent aux conditions 1 à 5 respectivement). Le grossissement 100X correspond approximativement à trois couches de renfort. Globalement, on observe une bonne imprégnation tant dans les couches UD que dans les liants mat; avec cependant la présence de vides légèrement supérieure dans les composites faits de renforts compactés.

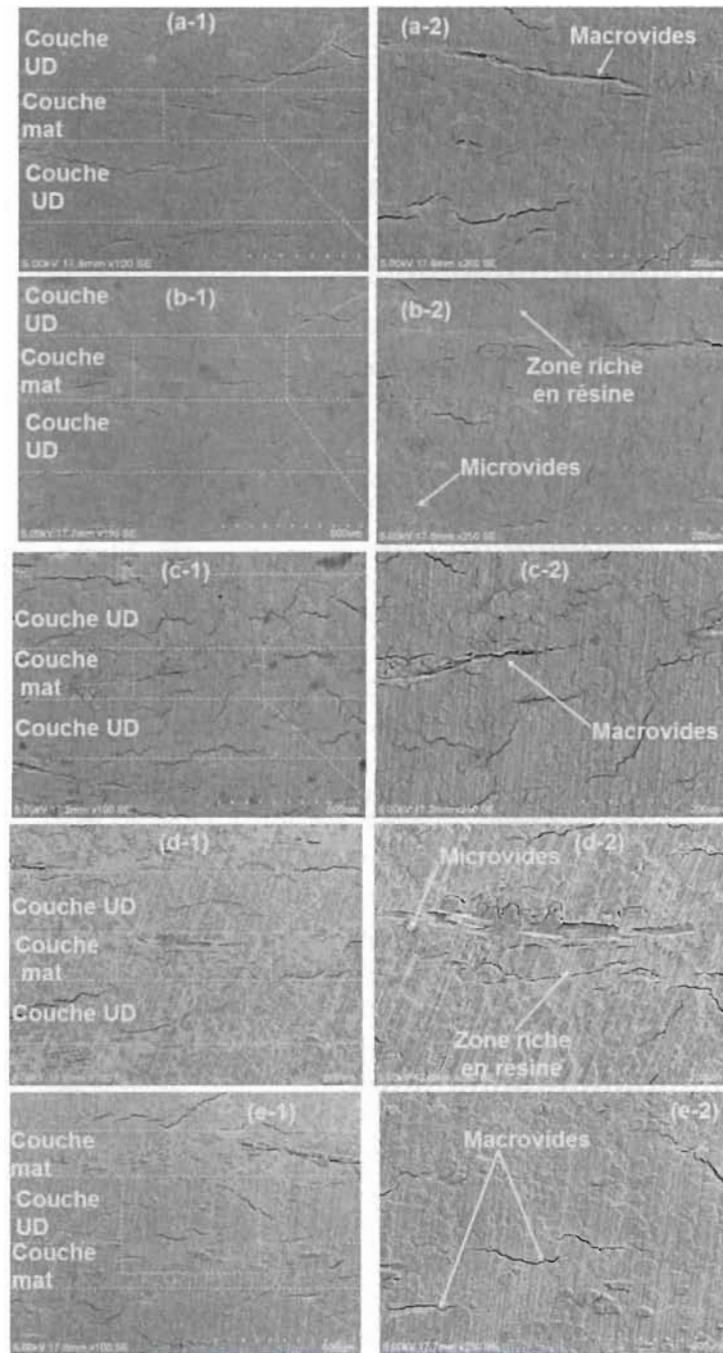


Figure 5.3: Microographies 100X des échantillons sains de composites renforcés par les renforts traités suivant le Tableau 5.1 : a(1-2) NC, b(1-2) MD2323, c(1-2) MD23100, d(1-2) MW2323 et e(1-2) MW23100.

Des macros et micro vides sont observés à la fois dans les couches mat et UD. Dans le mat (Figure 5.3 a(1-2) et c(1-2)), la plupart des porosités sont macroscopiques tandis que dans les couches UD, les microporosités sont majoritaires.

D'après la littérature [124, 182], l'écoulement de la résine à travers un renfort à double échelle d'écoulement est contrôlé par deux forces motrices: visqueuse et capillaire. Pour de hautes vitesses d'écoulement de résine, les forces visqueuses prévalent et le front d'écoulement est dominé par l'écoulement de la résine dans les larges espaces entre les fils (créant des microvides à l'intérieur des fils). Par ailleurs, à très faible vitesse d'avancement de la résine, la force capillaire devient dominante et au front d'écoulement, l'écoulement est localement plus rapide à l'intérieur des fils compacts créant ainsi des macrovides entre les fils. C'est probablement ce qui s'est passé ici en considérant les perméabilités des préformes (Figure 5.1) et la relative faiblesse des vitesses correspondantes. Dans les couches UD compactées, les forces capillaires sont probablement dominantes; créant ainsi des macrovides dans les couches mat. Un tel écoulement à double échelle a été observé entre les fils UD dans un renfort UD/papier lin [123]. Ceci suggère clairement que la qualité d'imprégnation des empilements de renforts UD/mat lin pourrait être améliorée en ajustant la vitesse de la résine au front d'écoulement en fonction des paramètres de compaction et de la structure (géométrie) du renfort qui elle est fonction de la taille des fils (le titre) de la couche UD, de leur nombre et de la longueur des fibres et la densité surfacique du mat. Des analyses supplémentaires seront nécessaires pour clarifier cet aspect dans les travaux futurs. La section suivante analyse les effets des conditions de compaction et de préformage sur les propriétés mécaniques des composites.

### 5.3.2 Essais de traction et analyse des échantillons fracturés

La Figure 5.4 présente les différentes fractions volumiques de fibres obtenues pour chacune des plaques fabriquées. Il était assez difficile d'obtenir exactement la même valeur pour toutes les plaques.

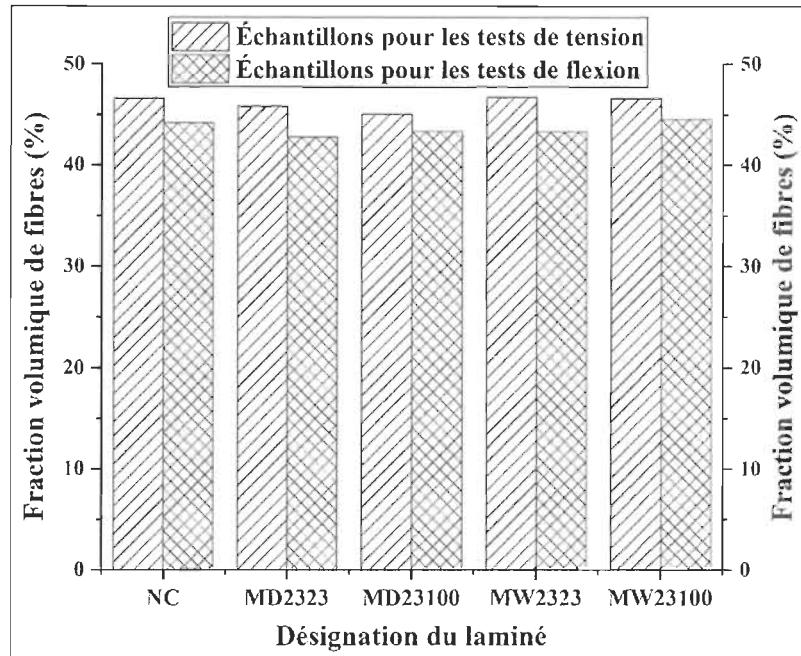


Figure 5.4: Fractions volumiques des fibres pour les composites fabriqués

La valeur moyenne pour les essais de traction et de flexion était respectivement de  $46,1 \pm 0,7$  et  $43,5 \pm 0,7$ . En conséquence, un taux volumique moyen de  $44,8 \pm 1,5$  % a été obtenue pour l'ensemble des plaques.

#### 5.3.2.1 *Essais de traction*

La Figure 5.5 présente les courbes typiques contrainte-déformation des composites UD/mat lin-époxy faits des renforts NC et pré-compactés tels que décrits au Tableau 5.1. Chaque courbe comprend deux segments linéaires qui sont caractéristiques de ce type de matériau [62]. La portion initiale de ces courbes (déformation  $< 0,2\%$ ) a été utilisée pour le calcul du module d'élasticité en traction. La Figure 5.6a présente la résistance en traction des composites tandis que le module d'élasticité est montré sur la Figure 5.6b. Les échantillons MD23100, MW2323 et MW23100 ont des résistances en traction significativement supérieures (335 à 348 MPa) à celles des échantillons NC et MD2323 (282 à 290 MPa).

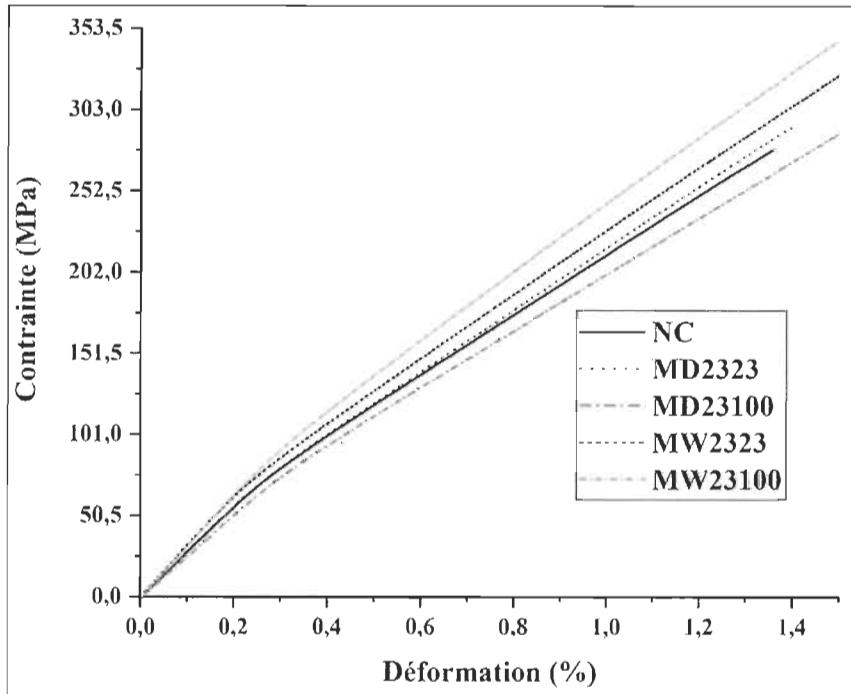


Figure 5.5: Courbes typiques contrainte-déformation des composites UD/mat renforcés par les renforts traités suivant le Tableau 5.1.

Cela représente une augmentation d'environ 23 % par rapport au composite NC. On note aussi que la température et l'humidité ont un effet similaire mais non cumulatif pour la résistance (comparer les trois dernières barres de la Figure 5.6a). Pour les composites faits de renforts pré-compactés sous condition humide, l'augmentation de la température semble n'avoir qu'un effet mineur sur la résistance en traction (339 MPa pour MW2323 et 348 MPa pour MW23100). Pour fins de comparaison, le Tableau 5.3 montre quelques valeurs du module de Young et de la résistance en traction de composites UD lin-Époxy publiés dans la littérature. Pour des taux volumiques de fibres similaires, les composites renforcés par des renforts compactés à chaud dans leur état humide (MW23100) ont un module de Young en traction du même ordre de grandeur et une résistance plus élevée que celles obtenues par d'autres études [44, 54, 183, 184]. Globalement, ces résultats montrent qu'à  $V_f$  constant, la compaction à chaud d'un renfort humide (UD/mat lin) n'altère pas ces propriétés mais au contraire les améliore.

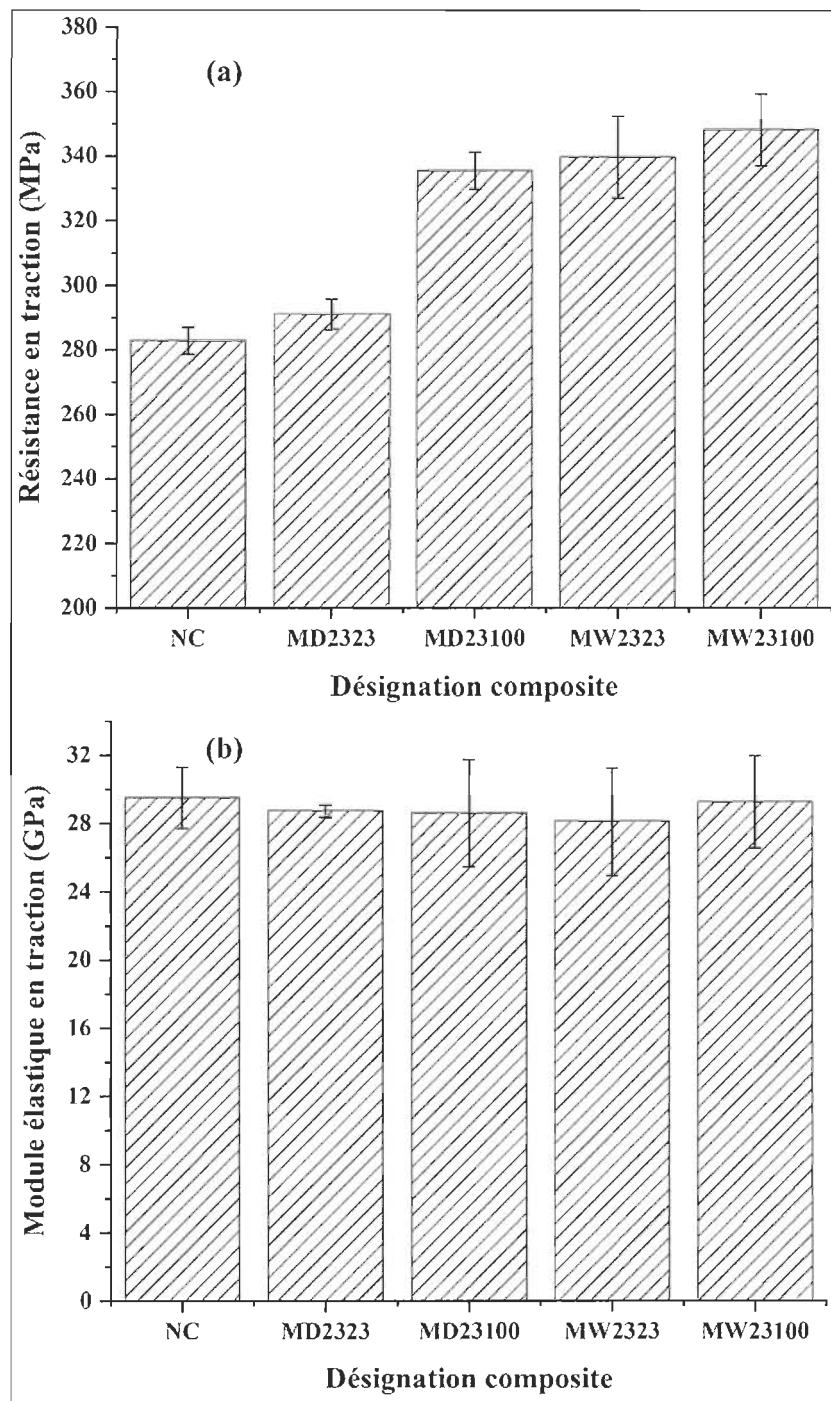


Figure 5.6: Propriétés mécaniques en traction des composites : (a) résistance et (b) module élastique (Voir Tableau 5.1 pour la désignation des composites).

Tableau 5.3: Quelques valeurs du module élastique en tension et de la résistance en tension publiées dans la littérature pour des composites UD lin-Époxy.

Matériaux	V <sub>f</sub> (%)	Module de Young (GPa) (Longitudinal)	Résistance (MPa) (Longitudinal)	Références
Époxy/lin (UD/mat)	40,0 ± 0,0	25,9 ± 1,0	292,4 ± 8,4	[54]
Époxy/lin (UD)	40,0 ± 0,0	28,0 ± 0,0	133,0 ± 0,0	[145]
Époxy/ArcticFlax, lin (UD)	42,0 ± 0,0	35,0 ± 3,0	280,0 ± 15,0	[44]
Époxy/lin (UD)	44,7 ± 6,5	27,8 ± 1,7	275,6 ± 5,5	[183]
Époxy/lin (UD)	46,5 ± 4,5	28,7 ± 1,2	312,0 ± 22,0	[183]
Époxy/Marylin lin, (UD)	48,0 ± 2,0	31,0 ± 1,5	348,0 ± 28,0	[146]
Époxy/lin (UD)	48,0 ± 4,3	25,4 ± 1,1	316,0 ± 41,0	[184]
Époxy/lin UD	48,0 ± 0,0	32,0 ± 1,0	268,0 ± 26,0	[185]

Ceci semble surprenant de prime abord en considérant les observations faites sur les Figure 5.2 et 5.3 où l'on a noté la présence de micro et de macroporosités. La Figure 5.6b montre qu'il n'y a presque pas d'effet de la compaction sur le module élastique en tension. L'augmentation de la résistance en traction sans effet négatif sur le module en tension pourrait constituer un avantage pour des procédés de préformage impliquant l'utilisation d'humidité et de chaleur pour des renforts à fibres de lin utilisés dans le procédé RTM; comme cela a été démontré dans des travaux précédents [75]. Gu et coll. [108] ont aussi observé qu'une augmentation de la température de compaction des tissus

de ramie jusqu'à un maximum de 120°C se traduit par une augmentation de la résistance en traction et du module de Young des composites renforcés par ces fibres. Ils ont principalement attribué ce comportement à la déformation des fils (et des fibres), à la nidification des fils et au déplacement relatif des couches adjacentes de renforts. Pour des tissus de jute compactés à température ambiante, Francucci et coll. [3] ont montré que des mécanismes tels que la déformation des sections de fils, l'aplanissement des fils et la nidification deviennent plus importants à mesure que le niveau de compaction du renfort ou de la préforme augmente; ces mécanismes peuvent être facilités par la lubrification des renforts. Par conséquent, si ces mécanismes sont limités ou empêchés, de sévères dommages tel que la rupture des fibres pourraient survenir [3]. Ceci pourrait expliquer pourquoi la résistance en traction des composites MD2323 est plus faible que celle des composites MD23100, MW23100 et MW2323. En l'absence de ramollissement (à haute température) ou d'effet de lubrification (du fait de l'humidité), l'augmentation de la résistance induite par la compaction serait largement compensée par les dommages causés aux fibres sèches durant le préformage. C'est probablement la raison pour laquelle on n'observe aucune augmentation significative de la résistance lorsqu'on compare les composites NC et MD2323 à la Figure 5.6a.

Pour essayer d'expliquer l'augmentation de résistance observée à la Figure 5.6a pour les composites NC, MD23100 et MW23100, des essais de traction ont été réalisés sur des préformes constituées de 6 plis de renforts UD/mat non imprégnés de résine et prétraitées suivant les conditions du Tableau 5.1. Les résultats de ces essais sont présentés à la Figure 5.7. Celle-ci présente la résistance en traction des préformes constituées de 6 couches (à gauche) et la même résistance normalisée par la fraction volumique respective de chaque préforme (à droite) afin de permettre une meilleure comparaison des résultats. Cette valeur normalisée est importante à considérer car l'épaisseur des préformes sèches (et la fraction volumique de fibres) change pour chaque paramètre du Tableau 5.1.

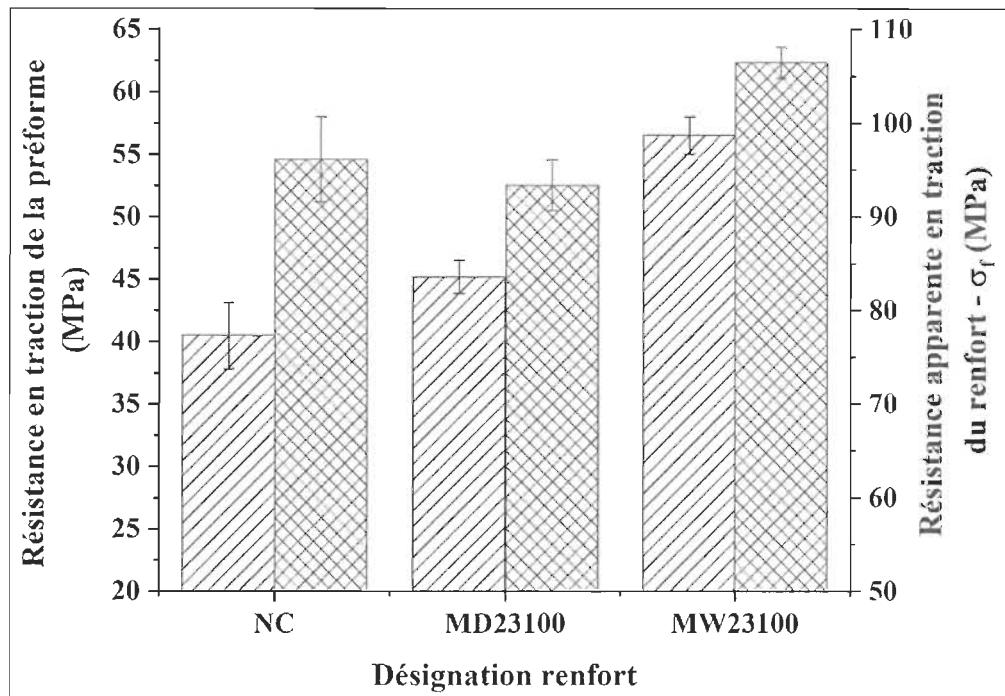


Figure 5.7: Effets de la pré-compaction sur la résistance en traction des préformes non imprégnées par la résine (voir Tableau 5.1 pour la désignation des renforts).

En considérant la loi des mélanges ( $\sigma_l = \sigma_f V_f + \sigma_m V_m$ ), ceci revient à mesurer la résistance apparente des renforts secs en considérant le fait qu'il n'y a pas de résine ( $V_m = 0$ ). Ainsi à la Figure 5.7, les barres rouges (à droite) correspondent à  $\sigma_f = \sigma_l / V_f$ .

À l'évidence,  $\sigma_f$  calculé ici n'a rien à voir avec la résistance des fibres tel qu'utilisée dans la loi des mélanges pour les composites. Il représente plutôt la résistance apparente de l'ensemble des fibres formant la préforme non-imprégnée. Rappelons aussi que pour la préforme NC, en l'absence de liaison entre les couches (du fait de l'absence de compaction), l'épaisseur mesurée était relativement élevée au centre de l'échantillon ; par conséquent  $V_f$  était faible et c'est ce qui explique pourquoi la résistance apparente à la Figure 5.7 est relativement élevée. La résistance apparente de NC est probablement surévaluée et doit par conséquent être considérée avec précaution. Globalement on observe les mêmes tendances que celles observées à la Figure 5.6a pour les composites, c'est-à-dire que la résistance en traction des renforts compactés à chaud dans leur état

sec (MD23100) et de ceux compactés à chaud dans leur état humide (MW23100) augmentent comparativement à celle des renforts NC. Pour la résistance apparente ( $\sigma_f$ ), cette tendance est maintenue. Tel que discuté précédemment au regard de la Figure 5.2, la tendance observée dans la résistance de la préforme et la résistance apparente des renforts secs est partiellement reliée à la création de liaisons hydrogènes pendant le séchage des fibres compactées, particulièrement les fibres UD pouvant entrer en contact sur toute leur longueur. Une partie de cette augmentation pourrait être transférée aux composites pour produire l'augmentation de la résistance observée à la Figure 5.6a pour MW2323 et MW23100. L'augmentation de résistance de la Figure 5.7 est toutefois faible comparativement à ce qui est observé dans les composites. Ceci suggère que d'autres mécanismes sont impliqués dans l'augmentation de la résistance des composites à renforts pré-compactés. Un meilleur transfert de contrainte entre la matrice et les fibres pourrait avoir lieu dans les composites renforcés par les renforts pré-compactés. Les micrographies des échantillons fracturés présentées à la prochaine section tendent à supporter cette hypothèse.

### 5.3.2.2 Analyses des échantillons fracturés

La Figure 5.8 présente les ruptures typiques des composites fabriqués à partir des conditions du Tableau 5.1. La rupture des échantillons NC semble légèrement plus régulière (plus confinée) que celle des autres composites (Figure 5.8 b-e). Tous les échantillons présentent des fissures se propageant le long des fils UD ainsi que des ruptures par cisaillement longitudinal. Toutefois, cette fissuration matricielle semble plus importante sur la face mat des échantillons que sur la face UD (chaque échantillon se terminant par une face mat d'un côté et UD de l'autre); en particulier sur la Figure 5.8b. Cette observation pourrait être liée à une proportion plus élevée de zones riches en résine dans les mats des composites faits des renforts compactés (Figure 5.2) et aux macrovides observés dans les couches de mat (Figure 5.3).

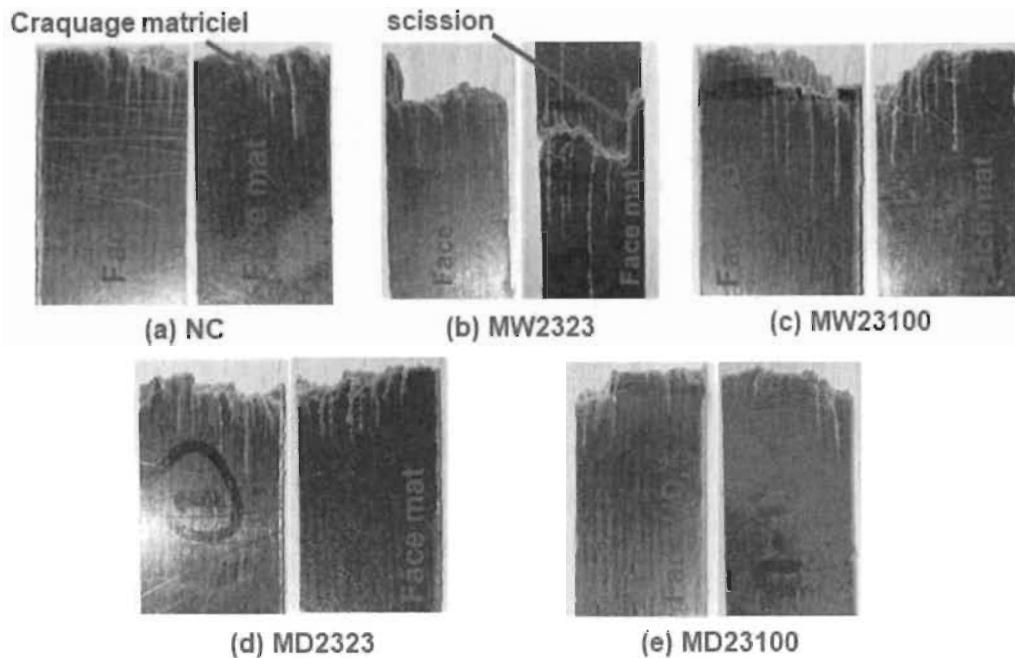


Figure 5.8: Effet de la pré-compaction sur la surface des échantillons fracturés pendant les essais de traction.

La Figure 5.9 présente, pour un grossissement de 100X, les surfaces de rupture des composites NC, MD23100 et MW23100 après rupture en traction. Pour tous les échantillons, le déchaussement des fibres et la fissuration matricielle sont fréquents dans la couche mat tandis que dans la couche UD, la rupture des fibres est le mode dominant. On peut voir dans les Figures 5.9b (MD23100) et Figures 5.9c (MW23100) que les plus grandes zones riches en résine se retrouvent dans les couches mat. Pour ces échantillons, les zones riches en résine, le déchaussement des fibres et les fissurations matricielles sont principalement localisés dans la couche mat. De plus, dans la couche UD, la proportion de zones riches en résine est plus faible que dans les composites NC (Figure 5.9a). Une fois de plus, ces micrographies suggèrent que la compaction humide et à chaud conduit à une densification de la couche UD se traduisant par une réduction importante des espaces entre les fils et fibres comparativement au composite NC.

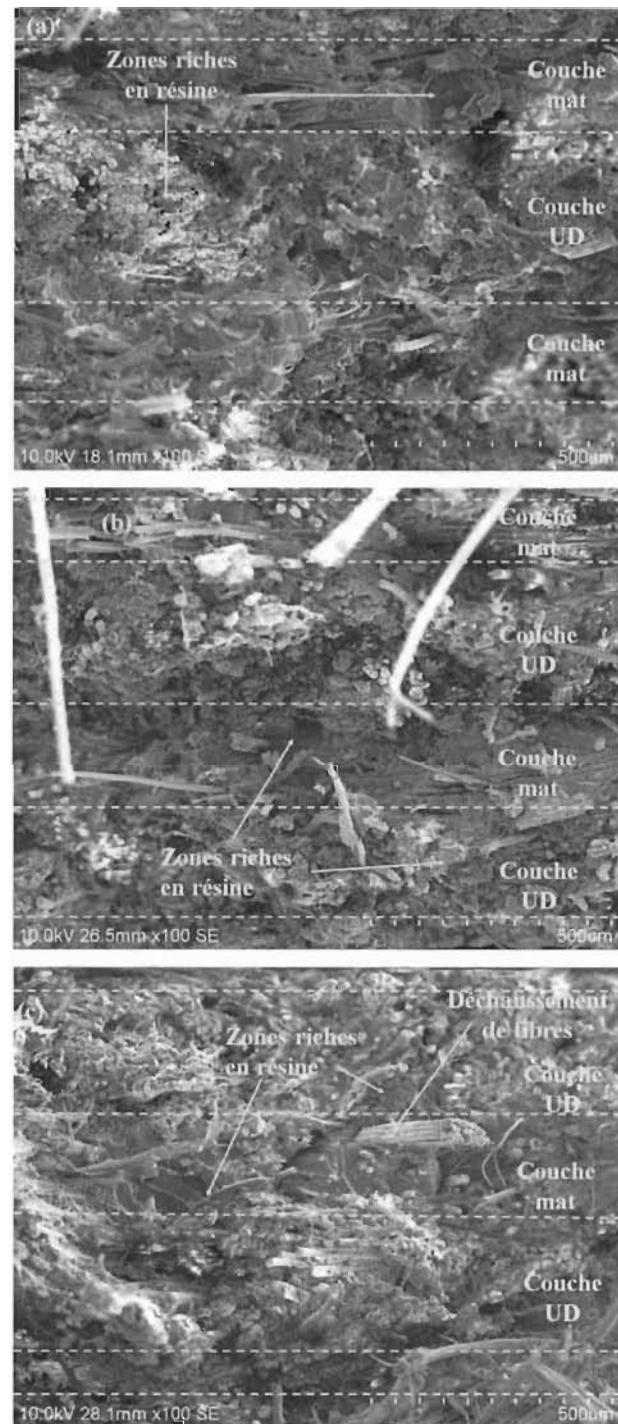


Figure 5.9: Microographies (100X) des faciès de rupture des échantillons de composites UD/mat testés en traction : (a) NC, (b) MD23100 et (c) MW23100.

Cette densification rend plus efficace le transfert de charge entre les fils et les fibres dans les couches UD et ceci pourrait contribuer à expliquer l'augmentation de la résistance observée à la Figure 5.7a. Shah et coll. [6] ont également observé que dans le cas d'un composite UD lin, une bonne homogénéité de la distribution des fibres pourrait permettre un meilleur transfert des contraintes lors du chargement.

### 5.3.2.3 *Essais de flexion*

La Figure 5.10 présente la résistance et le module en flexion des composites fabriqués à partir des renforts traités suivant les conditions du Tableau 5.1. La compaction conduit à une augmentation de la résistance et du module en flexion. Une fois de plus, cela signifie que les paramètres de compaction (pression, température, humidité) utilisés dans cette étude ne conduisent pas à une réduction des propriétés en flexion comparativement au composite NC. Cependant, après une augmentation de la résistance en flexion pour les essais à sec (MD2323 et MD23100), on observe une baisse graduelle de la résistance lorsqu'on compacte les renforts dans leur état humide (MW2323 et MW23100). Tel qu'observé dans les micrographies ci-dessus, il y a moins de larges zones riches en résine dans les couches UD à renforts compactés. Par conséquent, les fils et fibres UD sont plus proches les uns des autres. Combiné à la présence de zones riches en résine dans les couches mat, cette distribution fibre-matrice pourrait affecter la résistance en flexion considérant la distribution non uniforme des déformations et contraintes dans l'épaisseur des échantillons d'essai de flexion. Des analyses plus approfondies seront requises pour bien répondre à cette question. D'après la littérature [186, 187], la distribution fibres-matrice joue un rôle important dans la détermination du module de flexion du composite. La Figure 5.10b montre que l'augmentation de la température de compaction conduit à une augmentation du module de flexion à la fois pour les conditions de compaction humide et sèche. Un résultat similaire a été obtenu par Gu et coll. [108] et Xu et coll. [144] dans le cas des tissus de ramie compactés à chaud à l'état sec.

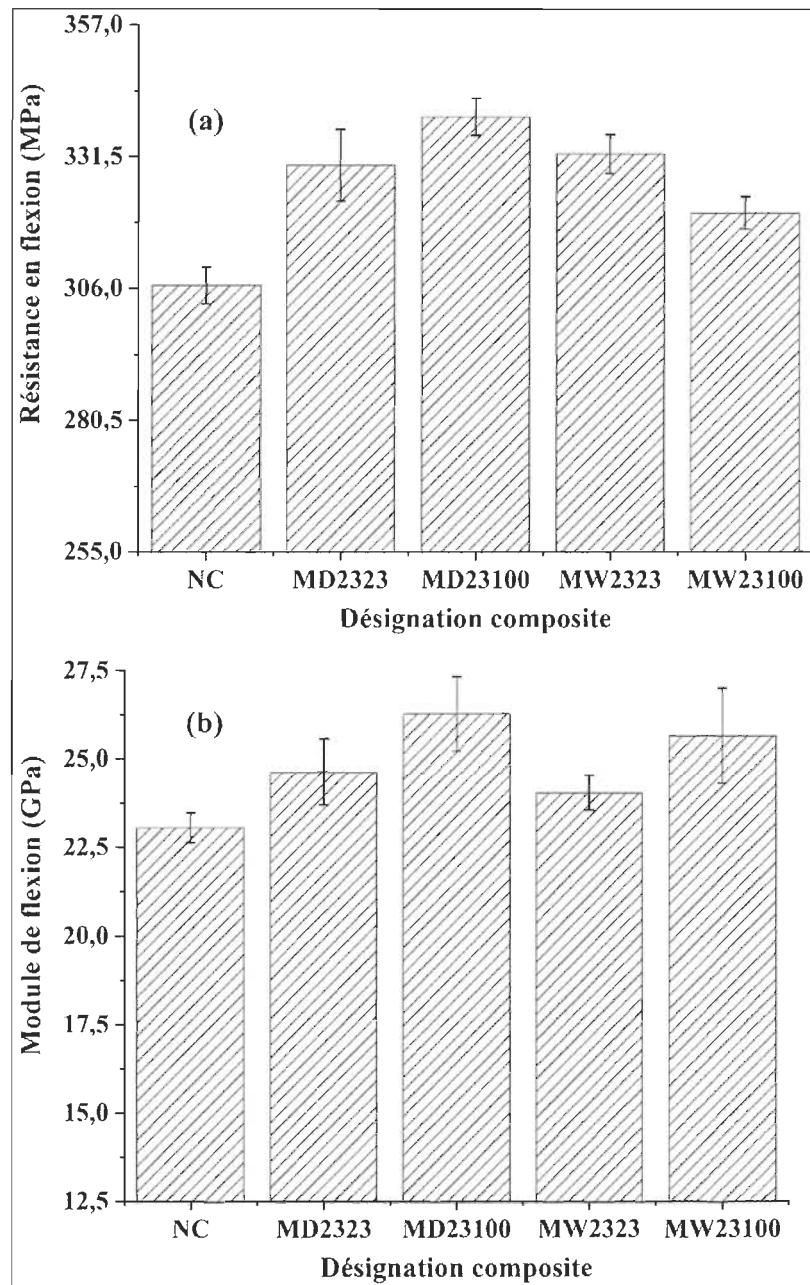


Figure 5.10: Effets des paramètres de préformage sur la résistance et le module en flexion.

Pour fins de comparaison, le Tableau 5.4 rapporte, pour des composites UD linépoxy, quelques valeurs du module et de la résistance en flexion publiées dans la littérature.

Tableau 5.4: Valeurs de la résistance et du module en flexion des composites UD lin-époxy publiées dans la littérature.

Matériaux	V <sub>f</sub> (%)	Résistance longitudinale en flexion (MPa)	Module longitudinal en flexion (GPa)	Références
Époxy/lin (UD/mat)	40,0	262,2 $\pm$ 4,4	18,6 $\pm$ 0,0	[16]
Époxy/lin (UD)	40,0	218,0 $\pm$ 0,0	17,7 $\pm$ 0,0	[145]
Époxy/lin (UD)	48,0	282,0 $\pm$ 11,0	23,0 $\pm$ 1,0	[185]

Pour des fractions volumiques de fibres proches de celles du Tableau 5.4, les composites à renforts compactés étudiés dans ce chapitre présentent des résistances plus élevées et des modules de flexion proches de ceux publiés dans la littérature [54, 185]. En considérant les résultats des essais de traction et de flexion obtenus, nous pouvons conclure que les paramètres de compaction présentés au chapitre 4 n'induisent aucun effet nuisible sur le moulage et les propriétés mécaniques des composites (les résultats sont en fait supérieurs). Ceci signifie que, bien que non-optimisés, ces paramètres sont appropriés pour la compaction des renforts UD/mat lin analysés dans cette étude dans la mesure où un ajustement du taux d'imprégnation (vitesse du front d'écoulement) permettra de minimiser la porosité dans la pièce composite fabriquée.

#### 5.4 Conclusion partielle

L'objectif initial de ce chapitre était de vérifier quel est l'impact des conditions de préformage (humidité et température) présentées au Chapitre 4 sur la perméabilité des renforts, l'imprégnation et les propriétés mécaniques (en tension et en flexion) des composites UD/mat-époxy. Pour y arriver, des empilements de renforts UD/mat lin secs

ou saturés en eau (condition humide) ont été compactés à température ambiante (23 °C) et à 100 °C. Par la suite, la perméabilité des renforts ainsi que les propriétés mécaniques en tension et en flexion des composites moulés à partir de ces empilements de renforts ont été déterminées. À titre de comparaison, les mêmes essais et moulage ont été effectués à partir des renforts non compactés (NC) n'ayant pas subi de saturation en eau. Pour les niveaux des paramètres de compaction utilisés dans ce chapitre, il ressort que :

- La compaction à chaud des renforts humides n'altère pas la perméabilité des renforts UD/mat lin. L'écoulement à double échelle favorisé par la compaction (par le réajustement de la porosité des couches mat et (UD) n'affecte pas la qualité d'imprégnation des renforts dans les composites.
- La compaction à chaud des renforts humides augmente la résistance en traction sans toutefois affecter le module de Young des composites. Cette compaction contribue aussi à augmenter la résistance et le module en flexion comparativement au composite NC. Une partie de cette augmentation pourrait être induite par les nombreuses liaisons hydrogènes créées à l'intérieur de la phase UD des renforts durant le séchage (à température élevée ou ambiante) après compaction des renforts saturés en eau (conditions humides). Cependant, un meilleur transfert de charge fibre à fibre dans les couches UD compactées, combiné à un  $V_f$  local plus élevé pourraient aussi être responsables d'une part importante de cette augmentation.
- Pour les renforts secs, la compaction à chaud résulte en une augmentation de la résistance en traction et des propriétés mécaniques en flexion (résistance et module) tandis qu'on ne note aucun effet majeur sur le module d'Young mesuré en tension.
- D'un point de vue pratique, ce travail montre que l'action combinée de la lubrification à l'eau et de la température élevée du moule de préformage facilite l'étape de préformage des renforts UD/mat lin dans un moule à géométrie complexe (double courbure) pour un moulage par les procédés d'injection sur renforts. Les préformes 3D (UD/mat ou UD/papier) ainsi obtenues présentent peu de défauts de préformage (l'alignement des fils UD est maintenu, pas de déconsolidation du

renfort, peu de replis). Ce type de préformage n'a de plus aucun effet quantifiable sur la perméabilité des préformes et n'altère pas les propriétés mécaniques en traction et en flexion des composites fabriqués à partir de ces préformes.

L'utilisation des fibres de lin dans certaines applications (aéronautique, construction et automobile) requiert d'augmenter leur résistance à la propagation des flammes. Une des approches pour y arriver est la phosphorylation des fibres. Ce traitement chimique des fibres, tout en augmentant la résistance au feu, a tendance à augmenter le caractère hydrophile des fibres, et donc leur gonflement à l'humidité. Nous pouvons donc poser la question à savoir comment ce traitement affecte la compaction des fibres de lin. En particulier, et en lien avec les conditions de préformage évaluées aux chapitres 4 et 5, comment la phosphorylation affecte le fluage et la déformation permanente des fibres ainsi que les propriétés mécaniques des composites renforcées par ces fibres. Ces questions seront abordées au Chapitre 6.

## **Chapitre 6 - EFFETS DE LA PHOSPHORYLATION SUR LA COMPACTION DES RENFORTS UD/MAT ET LES PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES DES COMPOSITES UD/MAT LIN-ÉPOXY**

### **6.1 Introduction**

Au Chapitre 4, nous avons d'abord confirmer qu'il est possible d'utiliser l'action combinée de la température (ou de la chaleur), de l'humidité et de la pression pour fabriquer de bonnes préformes 3D à partir des renforts à fibres unidirectionnelles de lin utilisant une couche mat ou papier comme liant. Nous avons ensuite évalué l'effet de ces paramètres sur la réponse en compaction. Ce mode de déformation intervient durant le préformage 3D et a une incidence directe sur la teneur en fibres et donc sur les performances mécaniques des composites. Au chapitre 5, nous avons répondu à la question concernant l'effet des paramètres de préformage (teneur en humidité du renfort et température du moule de compaction ou de préformage) sur la perméabilité des préformes et les performances mécaniques (en tension et en flexion) des composites UD/mat-époxy. Nous avons vu qu'à taux volumique de fibres constant, il n'y avait aucun effet quantifiable des conditions de préformage ou de compaction sur la perméabilité des préformes UD/mat. De même, à taux volumiques de fibres similaires, les propriétés mécaniques (en tension et en flexion) ne sont pas dégradées par les conditions de préformage mais peuvent même être améliorées dans certaines conditions. L'une des causes de cette amélioration tient à la création de liaisons hydrogènes entre les fibres de lin et entre les couches de renforts UD/mat. Ces liaisons résultent du caractère hydrophile des fibres de lin. Dans le présent chapitre, nous chercherons à savoir quel serait l'effet d'un traitement de phosphorylation des fibres, rendant celles-ci plus hydrophiles, sur la compaction des renforts à l'état humide (W) et à haute température (100 °C), et l'influence de telles préformes sur les propriétés mécaniques

en tension des composites. Obtiendrait-on les mêmes effets en termes de fluage, de déformation permanente ou de recouvrement d'épaisseur à la fin de la compaction? Ce qui pourrait, par exemple, permettre de limiter la quantité d'eau lors du préformage et donc de sécher les préformes plus rapidement. En plus d'augmenter l'hydrophilie des fibres, le traitement utilisé dans cette étude augmente la résistance aux flammes des fibres sans affecter leur morphologie [155, 156]. La première partie de ce chapitre présente les effets de la phosphorylation sur la compaction; en particulier la variation d'épaisseur, le fluage, le recouvrement d'épaisseur et la déformation permanente des renforts UD/mat de lin phosphorylé. Les résultats sont comparés à ceux de renforts UD/mat non phosphorylés et d'un tissu de lin commercial. La deuxième partie compare les propriétés mécaniques en tension des composites lin - époxy renforcés par des renforts UD/mat phosphorylés à celles de composites moulés à partir des renforts UD/mat non phosphorylés et des tissus de lin. La séquence d'empilement pour les études de compaction ou pour la fabrication de composites UD/mat est [0/90]<sub>3</sub> tandis que les tissus possèdent cinq couches de renforts.

## 6.2 Méthodologie des essais de compaction et résultats

### 6.2.1 Méthodologie des essais de compaction

Une matrice d'essais (Tableau 6.1) est mise en place pour évaluer les effets de la phosphorylation sur la réponse en compaction des renforts UD/mat et comparer cette dernière à celle des tissus de lin. Dans le Tableau 6.1, M se rapporte au renfort UD/mat non phosphorylé, MT au renfort UD/mat phosphorylé et TF au tissu. La signification des autres lettres et chiffres est identique à celle présentée dans la section 4.3.1, cependant, seuls les effets de la température et de la teneur en humidité du renfort sont évalués dans la présente section. La pression de compaction est fixée à 0,5 MPa et le nombre de couches à 6 pour l'ensemble des essais du Tableau 6.1. Le nombre de répétitions par essai est de deux. Le pourcentage de fluage (PF) et celui de déformation permanente (PDP) sont calculés à partir des équations 4.1 et 4.2 respectivement.

Tableau 6.1: Effets de la phosphorylation sur la compaction : matrice des tests de compaction.

# Test	Température des plateaux de compaction (°C)	Humidité	Renforts	Désignation
1	23	D	M	MD23
2	23	D	TF	TFD23
3	23	D	MT	MTD23
4	100	W	M	MW100
5	100	W	TF	TFW100
6	100	W	MT	MTW100
7	23	W	M	MW23
8	23	W	TF	TFW23
9	23	W	MT	MTW23
10	100	D	M	MD100
11	100	D	TF	TFD100
12	100	D	MT	MTD100

### 6.2.2 Résultats des tests de compaction

Le Tableau 6.2 présente les valeurs moyennes des épaisseurs mesurées à la fin des essais de compaction, de fluage et de recouvrement d'épaisseur. Chaque valeur ainsi que l'écart-type (SD pour “standard deviation”) associé sont calculés sur la base des épaisseurs issues de deux répétitions. Ce tableau montre que, pour un même renfort, les préformes humides ont une épaisseur  $T_0$  supérieure à celles des préformes sèches. Cela s'explique par l'absorption d'humidité par les fibres de lin; laquelle se traduit, entre autres, par le gonflement (et donc l'augmentation de  $T_0$ ) et un ramollissement des fibres [75, 106, 112].

Tableau 6.2: Valeurs moyennes des épaisseurs mesurées à la fin des essais de compaction, fluage et recouvrement.

Essai #	Désignation	T <sub>0</sub>	SD_T <sub>0</sub>	T <sub>1</sub>	SD_T <sub>1</sub>	T <sub>2</sub>	SD_T <sub>2</sub>	T <sub>3</sub>	SD_T <sub>3</sub>
1	MD23	4,49	0,07	2,48	0,04	2,41	0,04	3,67	0,08
2	MTD23	4,85	0,23	2,21	0,10	2,13	0,10	3,73	0,14
3	TFD23	7,16	0,04	2,56	0,03	2,46	0,03	5,44	0,06
4	MW23	5,64	0,18	1,99	0,02	1,86	0,01	3,93	0,05
5	MTW23	6,14	0,34	1,79	0,06	1,67	0,07	3,97	0,15
6	TFW23	7,64	0,16	1,75	0,03	1,61	0,02	4,24	0,02
7	MD100	4,40	0,05	2,5	0,04	2,39	0,03	3,25	0,05
8	MTD100	4,69	0,25	2,07	0,03	1,95	0,03	3,08	0,10
9	TFD100	6,92	0,17	2,39	0,02	2,25	0,017	3,96	0,05
10	MW100	5,58	0,18	1,77	0,07	1,66	0,07	2,99	0,07
11	MTW100	5,88	0,12	1,70	0,03	1,59	0,04	3,01	0,09
12	TFW100	7,07	0,17	1,51	0,10	1,39	0,09	2,83	0,06

Inversement, les épaisseurs T<sub>1</sub> et T<sub>2</sub> des préformes sèches sont supérieures à celles des préformes humides (à l'état humide, T<sub>0</sub> est plus élevé tandis que T<sub>1</sub> et T<sub>2</sub> sont plus faibles). Cela pourrait s'expliquer par la présence d'humidité qui facilite la déformation des fils/fibres, la réduction des vides et des espaces entre les fibres et entre les fils, le déplacement et/ou l'imbrication (cas des tissus) des couches des préformes humides [3, 75, 106]. À prime abord, ces comportements sont similaires à ceux observés au chapitre 4. Cependant, la différence T<sub>1</sub> - T<sub>2</sub> est plus importante pour les préformes TF que pour M ou MT. Ceci pourrait être causé par l'imbrication des couches (qui est un facteur dominant dans la compaction des tissus), la condensation des porosités et des vides entre les fibres au sein d'un fil et l'aplanissement des fils qui contribuent plus à la compaction des tissus et mat qu'à celle des renforts non-tissés [102, 188]. Les épaisseurs T<sub>3</sub> des préformes (sèches et humides) compactées à 100 °C sont inférieures à celles des

préformes compactées à 23 °C (voir respectivement les tests #1 à #3 versus les tests #7 à #9 d'une part et les tests #4 à #7 versus les tests #10 à #12 du Tableau 6.2). Tout comme au chapitre 4, cette observation pourrait s'expliquer par la contraction (ou le retrait) des renforts lors du séchage (évaporation de l'humidité) lors de la compaction à 100 °C, notamment pour les conditions humides [75, 189]. Dans les prochaines sections, nous ferons régulièrement référence au Tableau 6.2 pour expliquer les résultats obtenus.

#### 6.2.2.1 *Étude du fluage*

La Figure 6.1 présente les variations d'épaisseurs en fonction du temps observées durant le fluage pour différents niveaux d'humidité et de température de compaction. Les courbes de variation présentées ont la même tendance bien que l'amplitude des variations varie en fonction de la température ou de la teneur en humidité du renfort. La Figure 6.1a compare, dans le cas sec et à température ambiante, la variation d'épaisseur des renforts UD/mat non traités (M), UD/mat traité (MT, traitement de phosphorylation) et du tissu de lin (TF). Compte-tenu du chevauchement des barres d'erreur dans la Figure 6.1a, il est difficile d'identifier clairement l'effet de la phosphorylation (code MTD23) sur la variation d'épaisseur pendant la phase de fluage. C'est la raison pour laquelle le pourcentage de fluage fut calculé (voir équation 4.1). Toutefois, on remarque que les 3 courbes de variation d'épaisseur ont la même tendance même si la variation de la préforme TF est plus marquée (0,1 mm) que celles des préformes M (0,07 mm) et MT (0,08 mm). La Figure 6.1b présente les variations d'épaisseur à température ambiante des préformes saturées en eau. Le cas MD23 est ajouté à cette figure pour mieux faire apparaître l'effet d'humidité. Les variations d'épaisseur sont beaucoup plus importantes pour les préformes humides (Figure 6.1b) que pour les préformes sèches (Figure 6.1a). Par exemple, le Tableau 6.2 montre que la variation  $T_1 - T_2$  vaut 0,08 mm pour l'essai #2 (sec) tandis qu'elle est de 0,12 mm pour l'essai #5 (humide). Pour la préforme TF, cette variation vaut 0,1 mm pour l'essai #3 (sec) contre 0,14 mm pour l'essai #6 (humide).

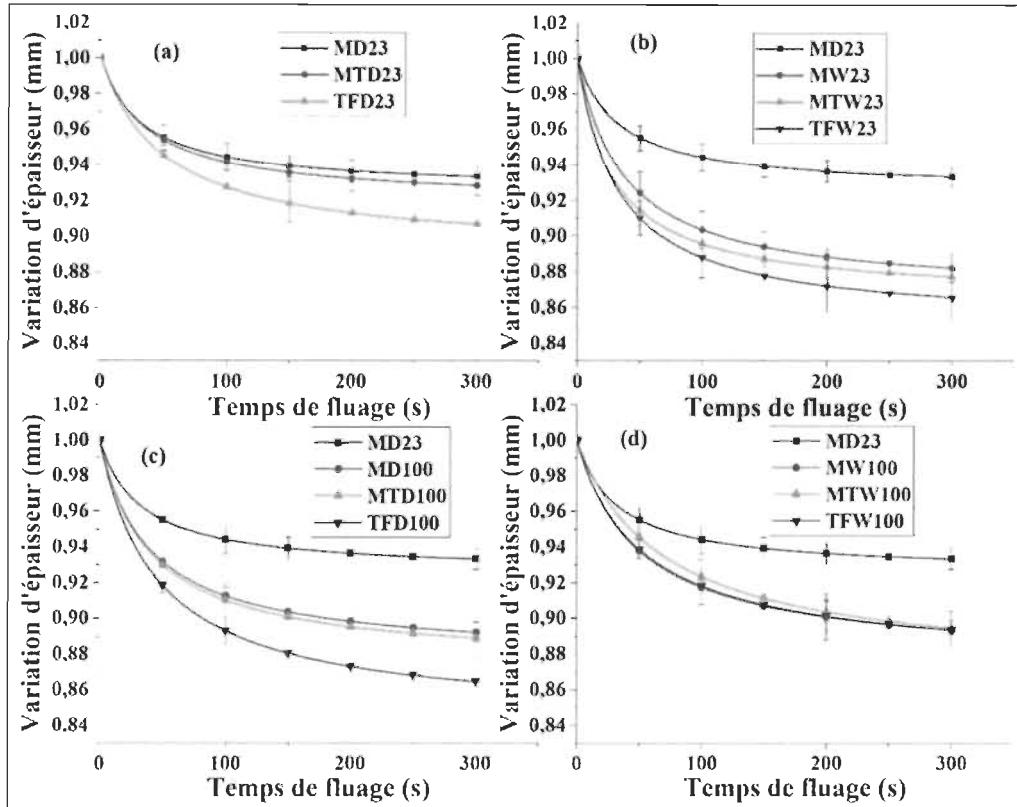


Figure 6.1: Variation d'épaisseur durant le fluage: renforts secs: (a) ambiant et (c) 100°C. Renforts saturés en eau: (b) ambiant et (d) 100 °C.

La présence d'humidité semble donc favoriser la variation d'épaisseur. Le même comportement fut observé au chapitre 4. À l'état humide, des phénomènes tels que la déformation de la section des fils, l'imbrication des couches (notamment pour les préformes TF), l'aplanissement des fils, la réduction de la porosité et des vides entre les fils et les fibres se produisant lors de la compaction sont facilités en présence d'eau, laquelle joue le rôle de lubrifiant. Dans les préformes sèches, ces phénomènes sont limités, ce qui explique pourquoi les variations d'épaisseur sont plus faibles pour les préformes sèches. Le traitement des fibres (cas MTW23) ne semble pas avoir affecté l'amplitude de ces phénomènes par rapport au cas non-traité (MW23). La Figure 6.1c présente les variations d'épaisseur pour les renforts secs compactés à 100 °C. Tout comme pour l'effet de l'humidité, on note que la variation d'épaisseur augmente avec

la température de compaction. Par exemple, la variation  $T_1 - T_2$  vaut 0,07 mm pour l'essai #1 (23 °C) contre 0,11 mm pour l'essai #7 (100 °C). De même, pour la préforme TF, l'essai #3 montre une variation d'épaisseur de 0,1 mm tandis qu'elle est de 0,14 mm pour l'essai #9. Encore ici, la variation d'épaisseur est plus importante pour la préforme TF (tissus) que pour les préformes M et MT (renfort UD/mat). Finalement, la combinaison température-humidité (Figure 6.1d) génère des changements d'épaisseur moins importants que lorsque l'humidité et la température sont appliqués individuellement (Figure 6.1b et c). Ce phénomène, lié au séchage des fibres à haute température et à la contraction du renfort qui s'ensuit, ont été abordé pour les renforts UD/mat au chapitre 4. Les renforts tissés (TFW100) ont été ajoutés à titre de comparaison et subissent le même phénomène de retrait au séchage avec une variation d'épaisseur équivalente à celle des renforts traités MTW100 et MW100.

La Figure 6.2 présente les effets de la température et de l'humidité sur le pourcentage de fluage (PF) des préformes M, MT et TF, tel que calculé à partir de l'équation 4.1. Chaque valeur représente la moyenne du fluage obtenu pour deux répétitions. La Figure 6.2a montre que, à température ambiante et pour les préformes sèches, les préformes MTD23 présentent un PF ( $3,7 \pm 0,2 \%$ ) plus élevé que celui des préformes MD23 ( $2,8 \pm 0,2 \%$ ), mais du même ordre de grandeur que celui des préformes TFW23 ( $3,82 \pm 0,02 \%$ ). Tout comme pour les variations d'épaisseur (Figure 6.1a), cette observation constitue un premier indicateur de la modification des fibres de lin par le traitement chimique. La même tendance est observée dans les Figure 6.2b et 6.2c mais à des amplitudes plus importantes. La Figure 6.2d, montre que pour des préformes humidifiées et compactées à chaud, les préformes MTW100 présentent un PF du même ordre de grandeur que celui de MW100 mais inférieur à celui des préformes TFW100. Intéressons-nous d'abord aux Figures 6.2a et 6.2c, pour observer l'effet de l'augmentation de la température de compaction.

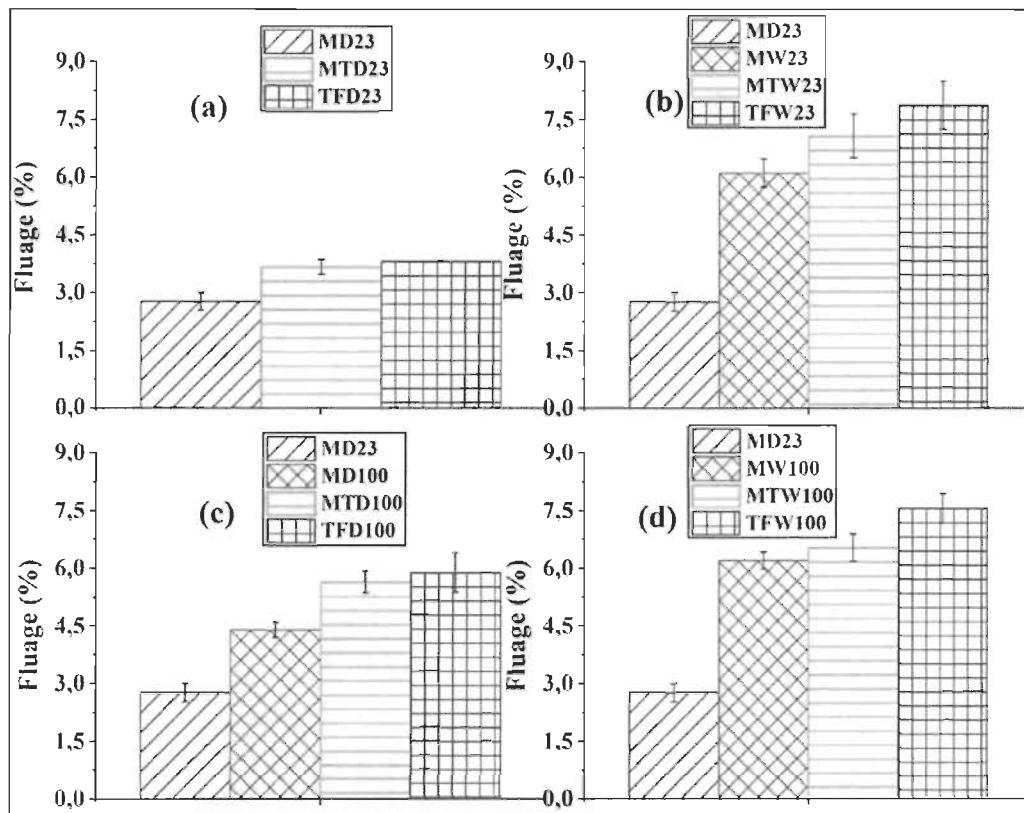


Figure 6.2: Effets de la température de compaction et de l'humidité sur le pourcentage de fluage.

Pour les préformes sèches, une température de compaction de 100 °C se traduit par une nette augmentation du PF pour toutes les préformes étudiées; laquelle est plus importante pour les préformes MT et TF que pour les préformes M. Par exemple, le PF augmente de  $2,78 \pm 0,04$  % pour MD23 à  $4,42 \pm 0,04$  % pour les préformes MD100 et de  $3,7 \pm 0,2$  % pour MTD23 à  $5,7 \pm 0,3$  % pour les préformes MTD100, et de  $3,82 \pm 0,02$  % TFD23 à  $5,9 \pm 0,5$  % pour les préformes TFD100. De plus, et à température égale, le pourcentage de fluage semble plus élevé pour les préformes MT et TF que pour la préforme M. Les augmentations observées pourraient s'expliquer par le ramollissement des fibres sous l'effet de la température; lequel pourrait faciliter la déformation de la section des fils et leur aplatissement (surtout dans le cas des tissus); ce qui contribue à augmenter la variation d'épaisseur. À ce titre, l'analyse du Tableau

6.2 montre que la différence  $T_1 - T_2$  est plus élevée pour TFD100 que pour TFD23, ce qui traduirait une déformation au fluage plus élevée à température élevée, signe d'un ramollissement des fibres ou encore d'un phénomène de nidification important. Une autre explication possible (à valider toutefois) serait liée à la charge électrostatique à la surface des fibres qui est de l'ordre  $10^3 \mu\text{eq/g}$  pour les fibres phosphorylées contre  $10 \mu\text{eq/g}$  pour les non phosphorylées [155]. Ainsi, les fibres phosphorylées auraient une plus forte tendance à se repousser les unes des autres; ce qui pourrait se manifester par une sorte de "glissement" entre les fibres avec pour conséquence une plus grande déformabilité des préformes MT par rapport aux préformes M. Pour les préformes saturées en eau (Figure 6.2d), une augmentation de la température de compaction influence très peu le PF par rapport aux mêmes préformes à  $23^\circ\text{C}$  (Figure 6.2b). Lorsqu'on compare les préformes sèches à celles saturées en eau toutes compactées à  $100^\circ\text{C}$  (Figures 6.2c et 6.2d), il apparaît que la présence d'eau induit un pourcentage de fluage plus important, notamment pour les tissus (TF) et les non-traités (M). Encore ici, le rôle de lubrifiant joué par l'humidité combiné au ramollissement des fibres facilite l'imbrication des couches (cas des préformes TF) et le déplacement des couches adjacentes. Tout ceci se traduit par une variation d'épaisseur plus importante durant la phase de fluage. Le traitement chimique semble cependant diminuer ce phénomène car le PF est moins affecté lorsqu'on passe de l'état sec à humide à  $100^\circ\text{C}$  (MTD100 versus MTW100). Pour les préformes M (MD23) et MT (MTD23) sèches, le Tableau 6.2 montre que même si initialement, l'épaisseur  $T_0$  des préformes MT est supérieure à celle des préformes M (voir essai #1 versus essai #2), les épaisseurs  $T_1$  et  $T_2$  sont toutefois inférieures. De plus, la variation d'épaisseur  $T_1 - T_2$  est plus importante pour les préformes MT que pour celles M. Ceci indique que, durant les phases de compaction (fermeture du moule) et de fluage (maintient à pression constante), les préformes (les renforts en fait) sèches MT se déforment plus aisément que les sèches M. Sachant que  $T_1$  est plus faible et considérant l'Équation 4.1 avec au dénominateur  $T_1$ ; ceci explique la différence de PF observée à température ambiante entre les préformes MD23 et

MTD23 (Figure 6.2a). Cette flexibilité ou déformabilité accrue des préformes MT est l'une des conséquences de la phosphorylation des fibres de lin qui accroît la répulsion entre les fibres tout en augmentant leur hydrophilicité. Les effets causés par l'humidité mentionnés ci-dessus peuvent donc partiellement se reproduire dans le cas des fibres MT par la présence accrue d'humidité à l'état sec par rapport aux fibres M. Les PF de la Figure 6.2 sont d'ailleurs toujours plus élevés pour les préformes traitées (MT) peu importe les conditions de compaction. Par ailleurs, la lignine présente dans les parois des fibres a une influence négative sur la flexibilité des fibres; de sorte qu'une fibre ayant une teneur élevée en lignine sera moins flexible et moins extensible [161]. Il est donc possible que du fait de la phosphorylation, la teneur en lignine des fibres ait diminué de sorte qu'elles soient rendues plus flexibles que les fibres non phosphorylées. Des analyses de la structure des fibres avant et après phosphorylation pourraient permettre de confirmer cette hypothèse.

#### 6.2.2.2 *Étude du recouvrement d'épaisseur*

La Figure 6.3 présente le recouvrement d'épaisseur à la fin du fluage pour les préformes testées. On note que le recouvrement de la préforme TF est beaucoup plus important que celui des préformes M et MT, sauf à sec et 100 °C (Figure 6.3c). L'une des raisons de ce comportement est la réondulation des fils dans le tissu (au niveau des croisements chaîne-trame) après le retrait de la charge de compaction. Cette réondulation, qui contribue pour une large part du recouvrement d'épaisseur des tissus, ne peut se produire dans les préformes M et MT puisque les fibres sont droites, parallèles et très compactes. À 23 °C et à sec (Figure 6.3a), le recouvrement d'épaisseur des préformes MT et M sont quasiment identiques. Pour les préformes saturées en eau à 23 °C, la Figure 6.3b montre que le recouvrement d'épaisseur des préformes TF (TFW23) est de loin supérieur à celui des préformes MT (MTW23) et M (MW23).

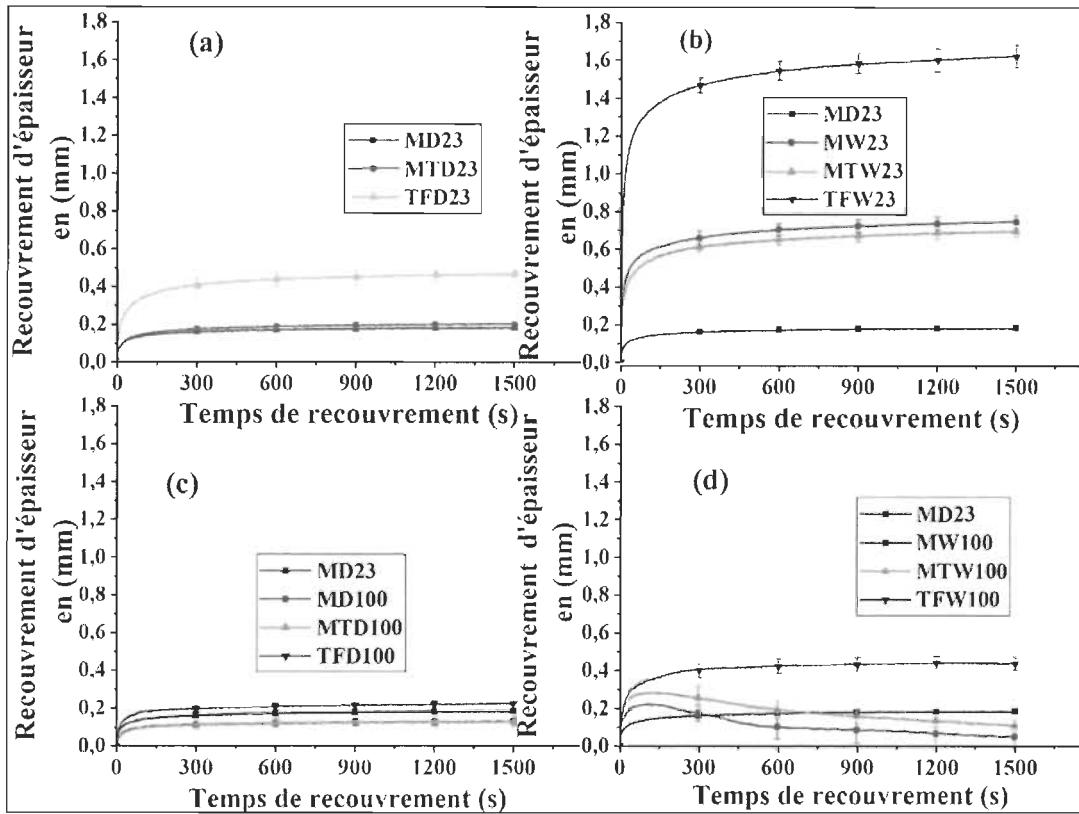


Figure 6.3: Recouvrement d'épaisseur après le fluage: renforts secs (a) ambiant et (c) 100 °C. Renforts saturés en eau (b) ambiant et (d) 100 °C.

De plus, en comparant les Figures 6.3a et 6.3b, il apparaît que, à préforme identique, le recouvrement des préformes humides est aussi très supérieur à celui des préformes sèches. Encore ici, le traitement chimique a très peu d'effet sur le recouvrement à l'état humide (comparer MW23 et MTW23). Tel que mentionné précédemment, à la fin du fluage, les préformes humides réabsorbent une partie de l'eau évacuée; ce qui se traduit par un gonflement des fibres [106] et donc une augmentation de leur épaisseur. Cependant, il faut ajouter à cette réabsorption la réondulation des fils dans le cas des préformes TF, laquelle peut être amplifiée par la reprise d'eau, c'est-à-dire que non seulement le diamètre des fibres augmente (phénomène de gonflement à l'humidité) mais aussi elles pourraient chercher à allonger ce qui pourrait aussi amplifier l'ondulation aux croisement chaîne-trame. De fait, la Figure 6.3 montre que la reprise

d'épaisseur passe d'environ 0,46 mm (TFD23) à 1,62 mm (TFW23). Si la réondulation du TF à l'état humide n'était influencée que par l'augmentation du diamètre des fibres, on pourrait s'attendre à ce que la différence  $1,62 - 0,46 = 1,16$  mm soit similaire à celle entre le MD23 et MW23 (lesquels sont sans réondulation et ne font que gonfler par reprise d'eau) mais l'écart entre ces derniers est beaucoup plus faible soit de  $0,74 - 0,18 = 0,56$  mm. Il est donc possible que la réondulation ait été amplifiée par l'augmentation de longueur des fibres lors de reprise d'humidité. Toutefois, cette hypothèse doit être prise avec précaution car les fils ne sont pas de même titre.

La Figure 6.3c présente le recouvrement d'épaisseur des préformes sèches compactées à 100 °C. À nouveau, les recouvrements d'épaisseur des préformes M (MD100) et MT (MTD100) sont du même ordre de grandeur et légèrement inférieurs à celui de la préforme TF (TFD100). Toutefois, en comparant les Figures 6.3a et 6.3c, on note que le recouvrement des préformes sèches à 23 °C (MD23, MTD23 et TFD23) est supérieur à celui des préformes respectives à 100 °C (MD100, MTD100 et TFD100). L'augmentation de la température de compaction se traduit donc par une réduction du recouvrement d'épaisseur pour les préformes sèches. Comme indiqué à la section 4.3.2.1, sous l'effet de la chaleur, les fibres pourraient ramollir; ce qui faciliterait la déformation de leur section transversale et l'occurrence de déformations permanentes (irréversibles) dans la préforme. La haute température pourrait aussi s'accompagner d'un certain retrait des fibres par élimination complète de l'humidité présente dans les fibres à température ambiante. La Figure 6.3d présente le recouvrement d'épaisseur des préformes humides compactés à 100 °C. Les préformes MT et M suivent la même tendance que celle observée à la Figure 4.7 ainsi qu'un important phénomène de retrait (le séchage des fibres) qui se manifeste par l'inversion de la courbe de reprise d'épaisseur aux alentours de  $t = 140$  s. Cette inversion n'est pas observée pour les préformes TF. Le retrait au séchage ne semble donc pas affecter significativement la préforme TFW100 (ou du moins est difficile à quantifier) puisque le recouvrement demeure supérieur à celui de la préforme TFD100 (voir Figure 6.3c), avec dans les deux

cas aucune inversion de la courbe. En plus du phénomène de retrait au séchage et comme évoqué au chapitre 4 et 5, les nombreux contacts fils-fils (fibres-fibres) des renforts UD/mat favorisent la formation de (nombreuses) liaisons hydrogènes entre les fils et les fibres au sein d'un pli et entre plis des préformes UD/mat lors du séchage à 100 °C à partir de l'état humide. Ces liaisons contribuent à la stabilité dimensionnelle et géométrique des préformes 3D (UD/mat et UD/papier) formées à 100 °C à partir des renforts humides (voir chapitre 4). Dans le cas des tissus, l'ondulation réduit les contacts fils-fils (ce qui signifie peu de liaisons hydrogènes); et l'impulsion créée par la réondulation des différents plis de tissus est probablement plus forte que les liaisons hydrogènes formées entre les couches de tissu. Finalement, le recouvrement d'épaisseur de TFW23 (Figure 6.3b) est beaucoup plus important que celui de TFW100 (Figure 6.3d), lequel dépasse celui de TFD100 (Figure 6.3c). Pour les tissus, le phénomène de retrait au séchage influence à la fois le changement de diamètre des fibres et la déondulation des fils puisqu'il sera accompagné d'une diminution de longueur des fibres (à l'inverse de l'augmentation de longueur induite par l'augmentation d'humidité mentionnée ci-dessus). Ce retrait viendrait donc s'opposer au retour élastique induit par la réondulation, lequel demeure cependant plus élevé pour TFW100 que pour les essais TFD100 (Figure 6.2c). La compaction à chaud augmente le niveau déformation des fibres naturelles [108]. Cette déformation accrue s'accompagne d'un recouvrement plus faible pour les mêmes raisons que celles évoquées en lien avec la Figure 4.7 pour les UD/mat, à savoir l'obtention d'une déformation permanente plus difficile à recouvrer à chaud.

#### 6.2.2.3 Étude de la déformation permanente

La Figure 6.4 présente le pourcentage de déformation permanente (PDP) des préformes M, MT et TF sèches ou humides, compactées à 23 °C ou à 100 °C et calculé à partir de l'équation 4.2.

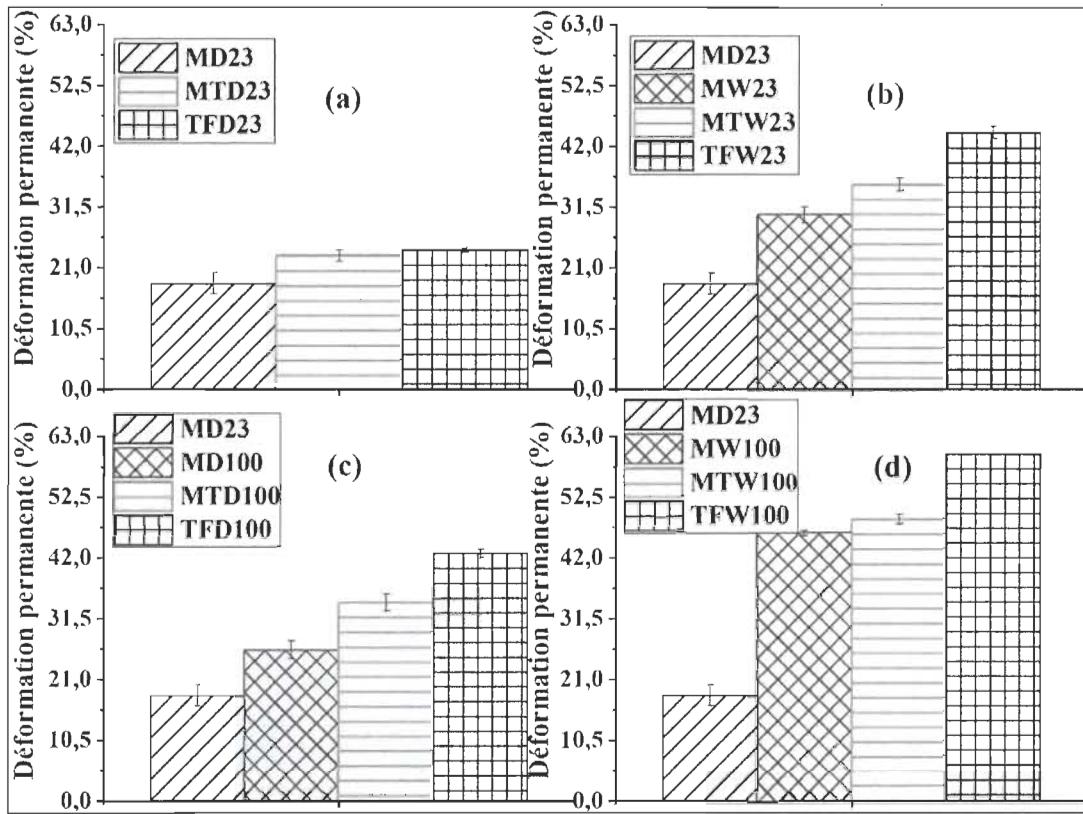


Figure 6.4: Effet de la phosphorylation sur la déformation permanente: renforts secs (a) ambiant et (c) 100 °C. Renforts saturés en eau (b) ambiant et (d) 100 °C.

Globalement, on observe que le PDP augmente avec la température de compaction à la fois pour les préformes sèches (en comparant les Figures 6.4a et 6.4c) et les préformes humides (Figure 6.4b versus 6.4d). De plus, l'effet combiné de ces deux paramètres (humidité plus température, Figure 6.4d) sur le PDP est plus important que l'effet de chacun de ces paramètres pris individuellement (voir Figure 6.4d versus 6.4b et 6.4c). Pour les préformes sèches compactées à température ambiante, la Figure 6.4a montre que le PDP des préformes MTD23 est supérieur à celui de MD23 et du même ordre de grandeur que celui de TFD23. La déformation permanente dans les préformes MD23 et TFD23 est probablement due à la déformation de la section des fils, la condensation irréversible des espaces et des vides entre les fibres (et entre les fils), à l'effondrement des parois des fibres, la fermeture du lumen et la rupture des fibres [106].

La différence de PDP entre MD23 et MTD23 semble indiquer que ces phénomènes sont plus importants dans MTD23. Il est possible que la phosphorylation ait fragilisé la structure (possiblement en raison du retrait d'une partie de la lignine) de la fibre de sorte qu'elle se déforme plus facilement et résiste moins à la compaction. De plus, l'effet électrostatique, évoqué à la section précédente pourrait contribuer à ce comportement. Pour ce qui est des préformes TFD23 (essai #3, Tableau 6.2), plusieurs mécanismes pourraient expliquer les résultats observés pour le PDP. On peut citer: la condensation des vides et des espaces entre les fils, l'aplanissement des fils et la rupture des fibres élémentaires, la nidification et la déformation irréversible de la section des fils [3, 190]. L'analyse des micrographies des composites fabriqués (voir section suivante) nous permettra de vérifier ces hypothèses. Pour les préformes humides compactées à température ambiante, la Figure 6.4b, montre de fortes valeurs du PDP par rapport à celles de la Figure 6.4a.

Tout comme pour les UD du chapitre 4, celles-ci s'expliquent en partie par le gonflement des fibres qui se traduit par l'augmentation de l'épaisseur initiale  $T_0$  des préformes. De plus, sous l'effet de l'absorption d'humidité, les fibres se ramollissent et peuvent être déformées de façon irréversible. L'effet de lubrification de l'eau facilite le réarrangement des fibres pendant la compaction, la condensation des vides et des espaces, les mouvements des couches et l'imbrication des couches adjacentes (cas des préformes TF) ; ce qui entraîne une épaisseur  $T_3$  plus faible pour les préformes humides. Ceci contribue aussi à augmenter le PDP de ces préformes par rapport à celles de la Figure 6.4a. On remarque aussi que le PDP des préformes MTW23 est supérieur à celui des préformes MW23 mais inférieur à celui des préformes TFW23. La différence de PDP entre MW23 et MTW23 pourrait s'expliquer à la lumière du Tableau 6.2. Ce dernier permet de constater que l'épaisseur  $T_0$  et la différence  $T_0 - T_3$  sont plus grandes pour la préforme MTW23 que pour MW23, ce qui indique que la préforme MTW23 absorbe plus d'humidité ( $T_0$  plus élevé) et a subi plus de déformation ou de réorganisation irréversible ( $T_0 - T_3$  plus élevé) que la préforme MW23. Finalement, le fait

que le PDP des préformes TFW23 soit plus important que celui de MW23 et MTW23 pourrait être causée par la rupture des fibres (les fibres ondulées se déforment plus lorsque compactées), mais surtout un déplacement des fils adjacents et l'imbrication des couches adjacentes (comme le montreront des micrographies dans la section 6.3) des tissus qui sont de loin plus importants dans les préformes TF que dans les UD.

La Figure 6.4c montre que pour des préformes sèches compactées à 100 °C (essais #7 à #9 du Tableau 6.2), le PDP de MD100 est inférieur à celui de MTD100, lequel est inférieur à celui de TFD100. De plus, en comparant les Figures 6.4a et 6.4c, il apparaît que l'augmentation de la température de compaction se traduit par une augmentation relativement importante du PDP: de 18,2 % pour MD23 à 26,2 % pour MD100, de 23,1 % pour MTD23 à 34,3 % pour MTD100 et de 24,0% pour TFD23 à 42,8 % pour TFD100. L'augmentation du PDP avec la température de compaction (Figure 6.4c) pourrait être en partie causé par le ramollissement des fibres sous l'effet de la température (100 °C), ce qui pourrait favoriser l'aplanissement des fils mais aussi la déformation de la section des fils (et des fibres) et les mouvements des couches adjacentes et leur imbrication (surtout dans le cas des préformes TF) comme suggéré par Gu et coll. [108] et Xu et coll. [144] pour l'étude de la compaction à chaud des tissus de ramie. Les micrographies présentées dans la section suivante permettront de vérifier ces hypothèses.

Les Figures 6.4a, b et c, permettent de constater que pour une préforme donnée, l'effet de l'augmentation du niveau d'humidité (MW23, MTW23 et TFW23 voir Figure 6.4b) sur le PDP est légèrement plus important que celui induit par l'augmentation de température (MD100, MTD100 et TFD100, voir Figure 6.4c). L'effet de gonflement et de lubrification de l'eau s'explique en remarquant au Tableau 6.2 que si l'épaisseur  $T_0$  est toujours plus importante pour les préformes humides à température ambiante (MW23, MTW23 et TFW23) comparativement au préformes sèches à 100 °C (MD100, MTD100 et TFD100), c'est la tendance inverse qui est observée pour les épaisseurs  $T_1$  et  $T_2$ . Ainsi, si on additionne la variation d'épaisseur durant la phase de fermeture du

moule ( $T_0$  à  $T_1$ ) à celle du fluage (de  $T_1$  à  $T_2$ ) on note une variation plus importante pour les préformes humides à température ambiante que pour les sèches à 100 °C ( $T_0-T_2$  est de 4,5 mm pour MTW23 contre 2,7 mm pour MTD100). Pour les préformes sèches à 100 °C, le ramollissement des fibres à haute température implique une déformation permanente plus prononcée à cause du ramollissement des fibres et de l'endommagement plus important en l'absence de lubrification par l'eau.

Finalement, la Figure 6.4d permet de constater que le PDP de MW100 est légèrement inférieur à celui de MTW100 tandis que le PDP de ce dernier est inférieur à celui de TFW100. Pour MTW100 et MW100 et selon l'équation 4.2 et le Tableau 6.2, le numérateur ( $T_0-T_3$ ) et le dénominateur ( $T_0$ ) sont plus importants pour MTW100 que pour MW100 (Tableau 6.2, essais 10 vs essais 11). De plus, les épaisseurs  $T_1$  et  $T_2$  de MW100 sont supérieures à celles de MTW100. Ce qui signifie que la préforme MTW100 subit plus de déformation lors de la fermeture de moule et de fluage que la préforme MW100, ce qui la rend donc susceptible de subir plus de déformations irréversibles. À la section suivante, des micrographies réalisées sur les composites permettront de confirmer ces hypothèses. L'amplitude du PDP des préformes TFW100 par rapport à celle de MTW100 et MW100, se comprend aussi en remarquant que l'épaisseur  $T_0$  et la différence  $T_0-T_3$  de TFW100 sont plus élevées que celles de MW100 et de MTW100 tandis que l'inverse est observé pour les épaisseurs  $T_1$  et  $T_2$ . Encore ici, cela indique que dans les phases de compaction et fluage, la préforme TFW100 se déforme le plus. Un niveau plus élevé du PDP dans les préformes TFW100 pourrait traduire l'occurrence de déformations irréversibles à une amplitude beaucoup plus importante que dans MTW100 et MW100. Certains phénomènes comme l'imbrication irréversible des couches adjacentes sont plus accentués dans les tissus en raison de l'ondulation des fils combiné à l'effet de lubrification de l'eau. Comparons les préformes de la Figure 6.4d (MW100, MTW100, et TFW100) à celles des Figure 6.4a, b et c. Tout comme au chapitre 4, dans l'ensemble la différence importante de PDP observée s'explique en partie par une épaisseur  $T_0$  importante (à cause du gonflement

par l'eau) mais surtout une épaisseur  $T_3$  plus faible à cause du retrait au séchage à 100 °C (voir Tableau 6.2, essais #1 vs #10, #2 vs #11 et #3 vs #12). Ce qui explique pourquoi les différences  $T_0-T_3$  des préformes MW100, MTW100 et TFW100 sont plus importantes. Cependant ici et contrairement au MTD23 et TFD23 de la Figure 6.4a, on remarque que sous l'effet de la température et de l'humidité (Figure 6.4d), le PDP de la préforme TFW100 est plus élevée que celui du MTW100. Ils sont aussi plus élevés que celui du MW100. Il semble donc que sous l'effet d'une combinaison humidité-température, l'effet de la phosphorylation et du tissage modifie le comportement au gonflement initial et pendant la compaction. Le Tableau 6.2 montre en effet que  $T_0$  de TFW100 est plus élevé que MW100 tandis que  $T_1$ ,  $T_2$  et  $T_3$  sont plus faibles. Le même comportement apparaît pour MTW100 mais avec une moindre intensité.

En conclusion, il apparaît qu'à température de compaction identique, les préformes humides présentent un PDP nettement supérieur à celui des préformes sèches. En-dehors du cas des préformes sèches compactées à 23 °C (Figure 6.4a), les préformes TF présentent le pourcentage de déformation permanente le plus important ; suivies par les préformes MT. La Figure 6.4 suggère que, l'amplitude des mécanismes contribuant à la déformation permanente (déformation irréversible de la section droite des fils, aplatissement des fils, effondrement des parois des fibres et la fermeture du lumen [3]) est plus importante dans les préformes MT que dans celles M. Il est possible que la phosphorylation ait fragilisé les parois ou la structure des fibres de sorte qu'elles soient plus susceptibles de se déformer de manière permanente que les fibres non traitées. Pour évaluer l'effet de la phosphorylation et du tissage et faire le lien avec d'éventuels endommagements introduits lors de la compaction, à la section suivante les résultats d'essais de traction réalisés sur des composites lin-époxy faits des renforts traités ou non et tissés sont analysés. Nous essaierons d'évaluer s'il existe un lien entre les différents paramètres de compaction de la préforme et les résultats obtenus.

### 6.3 Essais de traction et analyses micrographiques

#### 6.3.1 Compaction des renforts en vue du moulage des plaques

Une seconde matrice d'essais a par la suite été mise en place pour évaluer les effets de la phosphorylation sur la compaction et les propriétés mécaniques en tension des composites UD/mat-époxy. Ces propriétés sont par la suite comparées à celles des composites tissus de lin-résine époxy. Le Tableau 6.3 présente les valeurs des paramètres testés; ces dernières ainsi que les dénominations (N, M, D, W et TF) sont identiques à celles définies à la section 6.2.1. Dans le Tableau 6.3, MNC, MTNC et TFNC représentent respectivement les composites faits les renforts M, MT et TF non compactés (NC). MD100 représente les composites faits de renforts M compactés à 100 °C dans leur état sec. MW100, MTW100 et TFW100 désignent respectivement les composites faits de renforts M, MT et TF compactés à 100 °C dans leur état humide. Les empilements de tissus ont cinq couches tandis que ceux des renforts M ou MT en ont 6 avec pour séquence d'empilement [0/90]3.

Tableau 6.3: Effets de la phosphorylation et du tissage sur les propriétés mécaniques en tension: paramètres d'études.

# Essai	Renfort	Désignation du renfort ou du composite	Humidité	Température de compaction (°C)
1	M	MNC	D	23
		MD100	D	100
		MW100	W	100
2	MT	MTNC	D	23
		MTW100	W	100
3	TF	TFNC	D	23
		TFW100	W	100

### 6.3.2 Résultats des tests de traction

La Figure 6.5 présente les pourcentages volumiques de fibres dans les composites fabriqués (voir Tableau 6.3 et le paragraphe précédent pour la description des noms).

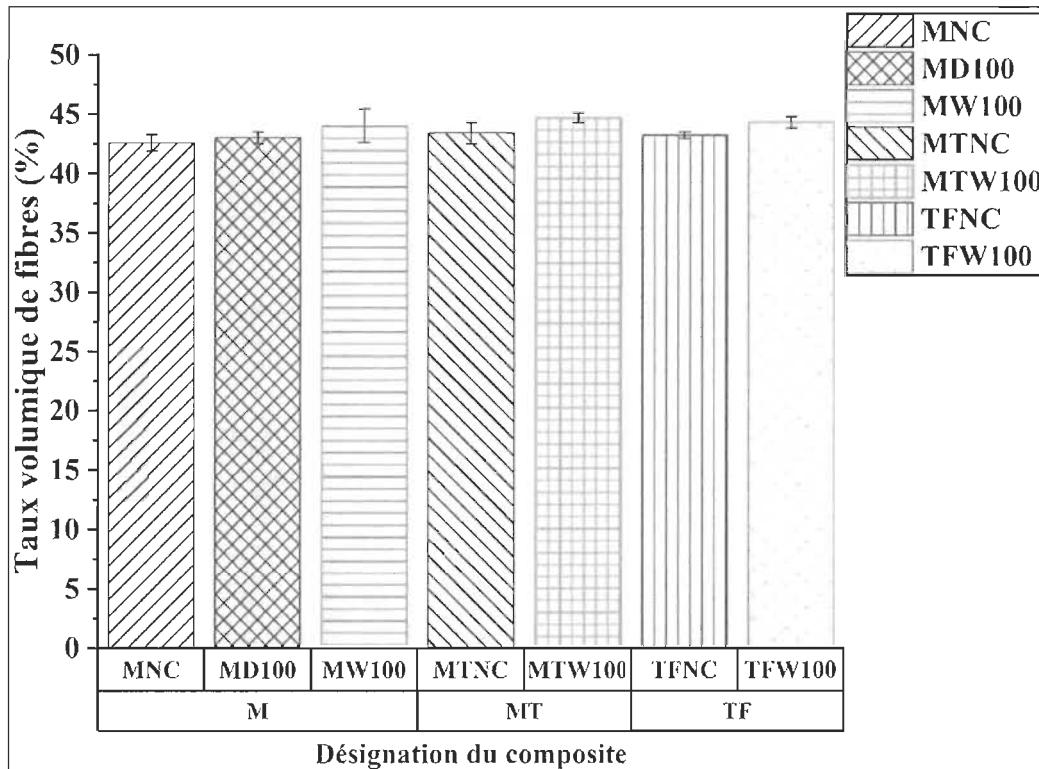


Figure 6.5: Taux volumiques de fibres des composites fabriqués.

On observe que, contre tenu des écart-types, les taux volumiques des fibres sont très proches. La moyenne se situe à  $V_f = 43,8 \pm 0,9 \%$ . La Figure 6.6 présente des courbes typiques contrainte-déformation des éprouvettes testées. Pour les composites faits de renforts UD/mat, chaque courbe comprend deux segments linéaires qui sont caractéristiques de ce type de matériau [61, 62] tandis que celles des composites faits de tissu sont non linéaires. Un point d'inflexion apparaît généralement pour une déformation de l'ordre de 0,18 % pour les composites renforcés par les renforts UD/mat (MNC, MD100, MW100, MTNC et MTW100).

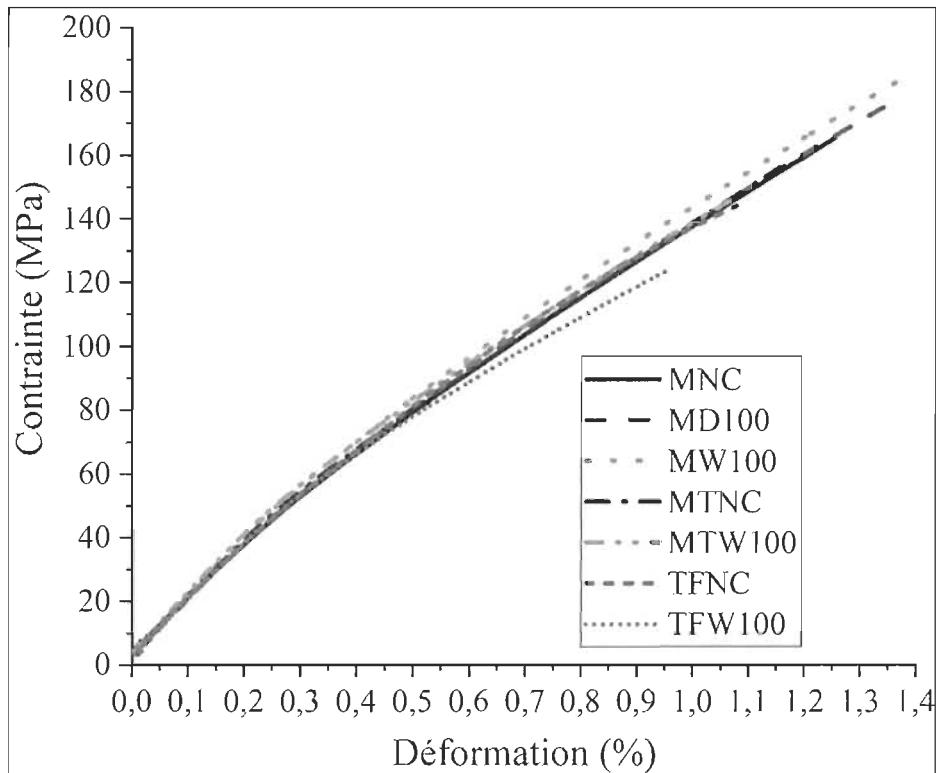


Figure 6.6 : Courbes typiques contrainte-déformation des essais de traction sur les éprouvettes (voir Tableau 6.3 pour description des désignations).

Ce point correspondrait au réalignement des microfibrilles des fibres (qui sont initialement orientées à 10° par rapport à l'axe de la fibre) ou encore à la ruine d'une des couches externes des fibres [42, 191]. Par conséquent, deux modules ont été calculés pour les composites faits de renforts UD/mat: le module de Young  $E_1$  dans la portion de déformation 0,025 - 0,1 % [192] et le module tangent  $E_2$  dans la zone 0,7 - 0,9 % située après le point d'infexion. Seul le module  $E_1$  est calculé pour les composites faits de tissus. Les Figures 6.7 et 6.8 présentent des micrographies des composites tels que fabriqués selon les conditions du Tableau 6.3. Les zones noires qui apparaissent dans les fils à 90° ou dans les fils de trame (pour les tissus) pourraient être des porosités liées à une mauvaise imprégnation des fils orientés à 90° par rapport à l'écoulement de la résine. En effet, la perméabilité est plus élevée dans le sens des fils (fils à 0° ou de chaîne) que dans le sens travers (fils de trame ou à 90°).

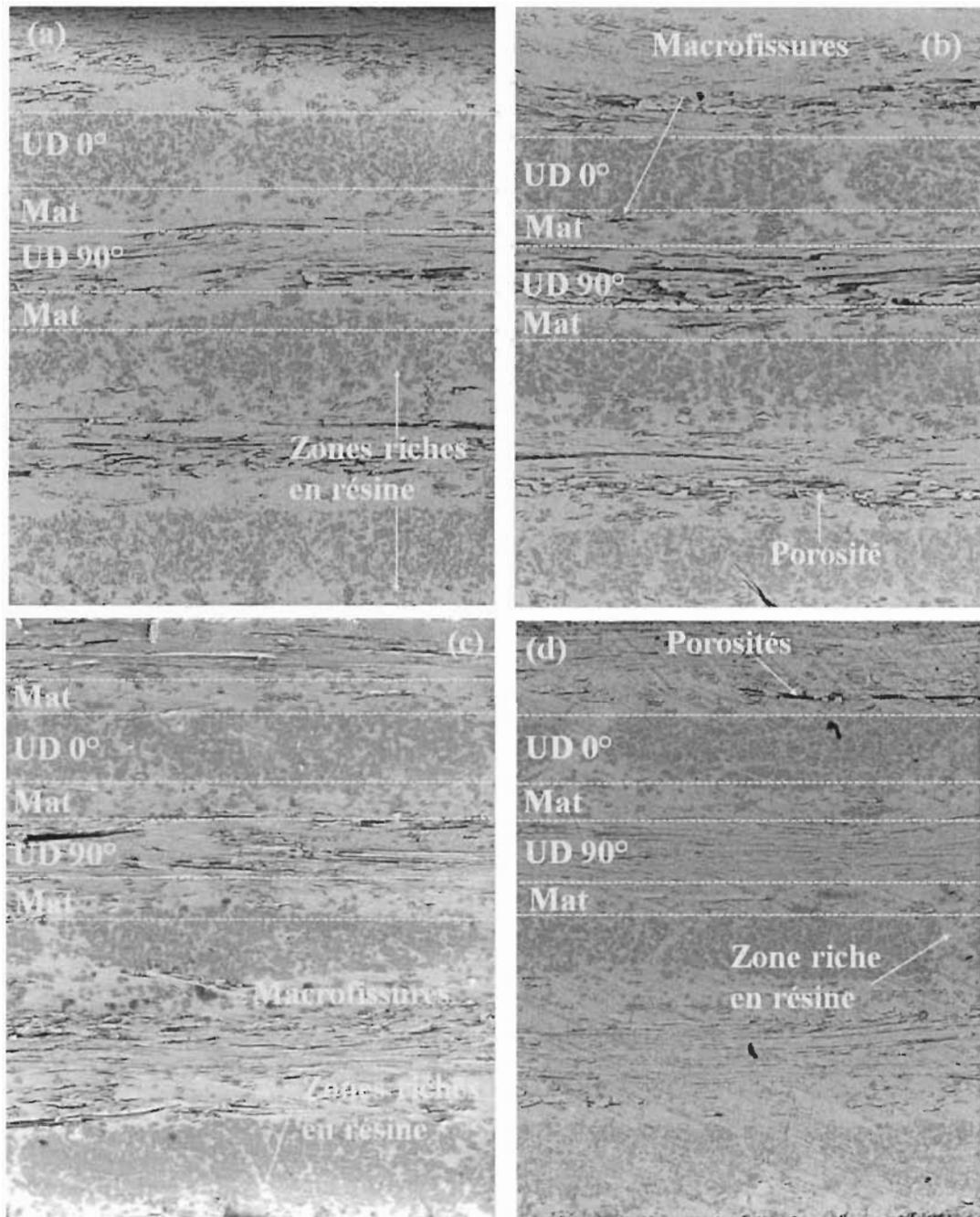


Figure 6.7: Microographies des échantillons composites sains (grossissement 42 X):

(a) MNC, (b) MW23100, (c) MTNC et (d) MTW100.

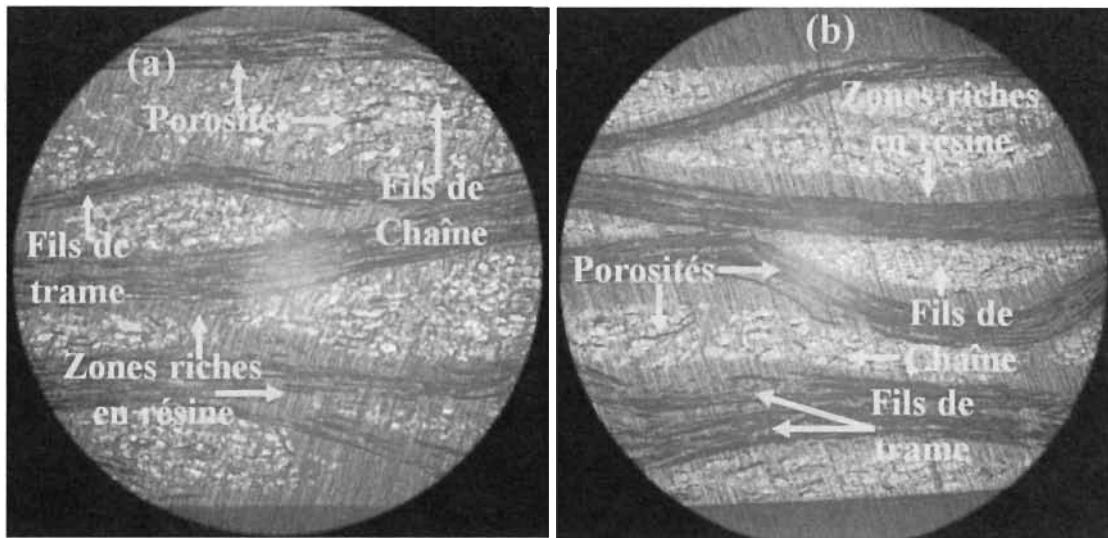


Figure 6.8: Microographies des échantillons composites (grossissement 50 X) :  
TFNC(a) et TFW100 (b).

Dans ce dernier cas, la résine pourrait avoir tendance à n'imprégnier que partiellement ces fils. Elles pourraient aussi correspondre au lumen des fibres n'ayant pas été remplis lors de l'imprégnation et qui apparaîtraient lors de la découpe des échantillons à analyser. Dans chacune des images de la Figure 6.7, on note aussi la présence de zones riches en résine ainsi que des macrofissures à la fois dans les couches UD (0 et 90) et dans les couches mat. Les zones riches en résine et les fissures sont majoritairement situées dans les couches mat. On observe aussi la présence de fibres de la couche UD dans les couches mat. Les zones riches en résine sont moins étendues (plus minces) dans les composites renforcés de renforts précompactés (Figure 6.7b et d) que de renforts non compactés (Figure 6.7a et c). Les Figures 6.8a et b présentent les microographies des composites à renforts tissés TFNC et TFW100 respectivement. Chaque figure représente 5 couches. On observe une déformation plus importante de la section droite des fils dans les composites TFW100 comparativement aux composites TFNC; ce qui supporte certaines hypothèses évoquées pour justifier le PDP des préformes TFW100 (Figure 6.4d).

De plus, la distribution des fibres ou des zones riches en résine semble plus homogène dans les composites TFNC (Figure 6.8a). En revanche, dans le composite TFW100, les fibres sont plus rapprochées (zones riches en résine plus petites dans les fils mais plus larges entre les couches). Visiblement, les phénomènes de déplacements des fils et des couches adjacentes, d'imbrication des couches, la condensation/réduction des espaces et des vides ainsi que la déformation de la section des fils, semblent plus importants dans le TFW100. Ceci semble confirmer l'influence de la lubrification induite par l'humidité, qui a facilité ces phénomènes lors de la compaction des préformes TF. Des observations similaires sur la distribution des fibres ont été faites par différents auteurs sur des composites renforcés de tissus de fibres ramie [108, 144]. Par exemple, Gu et coll. [108] et Xu et coll [144] ont observé une distribution après compaction des fils similaire dans des composites ramie-époxy renforcés par des tissus de ramie préalablement compactés sous différents niveaux de température et de pression. Ils ont attribué cette distribution à l'imbrication des fils, aux déplacements des couches de tissus adjacentes et à la déformation des fils. Il est possible qu'en raison du niveau de compaction appliqué, la perméabilité soit affectée (plus faible à l'intérieur des fils et plus élevée entre les fils et les couches), d'où la formation de larges zones riches en résine entre les fils. Une telle distribution de fibres et de zones riches en résine pourrait nuire au transfert de charge entre les fibres et fils du composite et donc à ses propriétés mécaniques [6]. À ce titre, la Figure 6.9 présente la résistance en traction des composites fabriqués à partir des préformes précompactées selon les paramètres du Tableau 6.3. Globalement, les composites à base de renforts UD/mat non phosphorylés ont de meilleures résistances en traction que ceux à base de renforts traités (MNC versus MTNC et MW100 versus MTW100) et ceux à base de tissus. Il faut garder à l'esprit ici que les composites (UD/mat) de la Figure 6.9 sont tous du type  $[0/90]_n$ , d'où l'écart plus faible des propriétés entre ceux à base de renforts compactés et ceux à base de renforts non-compactées comparativement à ce qui avait été observé au chapitre 5 pour les stratifiés  $[0_6]$ .

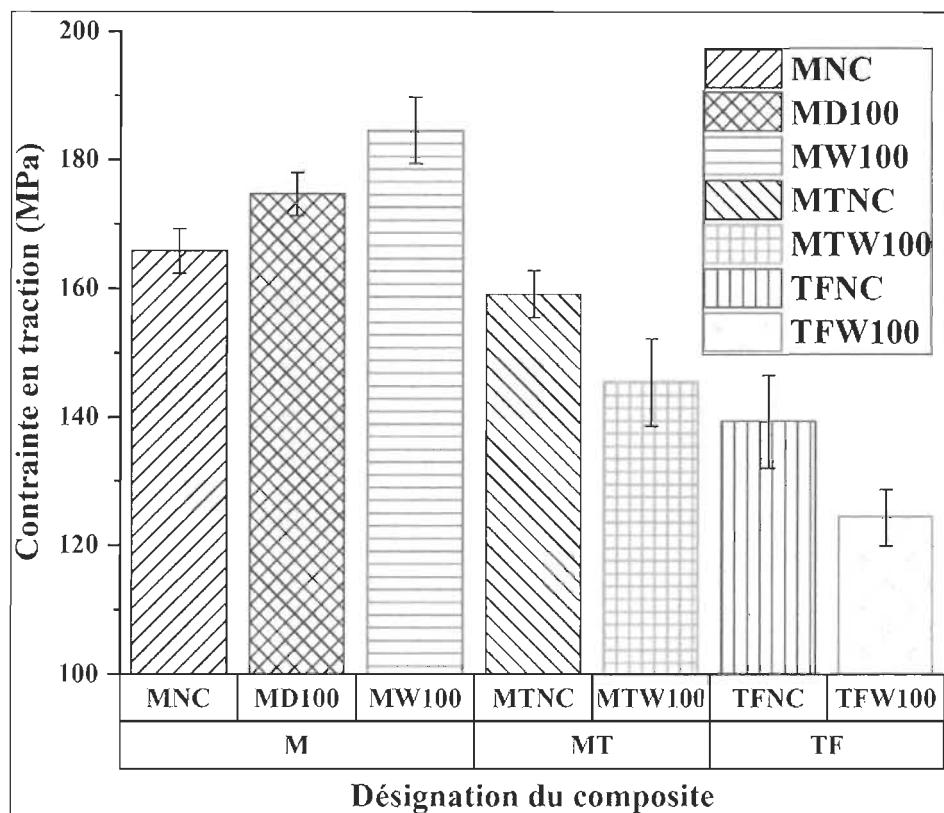


Figure 6.9: Effets de la phosphorylation sur la résistance en traction des composites.

Si l'on compare les composites MNC et MD100, la Figure 6.9 montre que l'augmentation de la température de compaction des préformes induit une légère augmentation de la résistance en traction (de  $165,8 \pm 3,4$  MPa pour MNC à  $174,6 \pm 3,3$  MPa pour MD100). Lorsque la préforme est compactée à  $100^\circ\text{C}$  dans son état saturé en eau (MW100), l'augmentation de résistance est plus importante ( $184,5 \pm 5,2$  MPa). Tel qu'observé à la Figure 6.7b et tout comme au chapitre 5 pour les stratifiés [0<sub>6</sub>], la précompaction à chaud des préformes réduit l'espace interfibres et les vides entre les fils et plis (et donc la formation de larges zones riches en résine) dans le composite. Cette distribution, dans le cas des préformes UD/mat semble favoriser un meilleur transfert des charges et donc une meilleure résistance de la pièce. Par ailleurs, comme indiqué au chapitre 5 dans le cas des préformes MW100, il se crée des liaisons

hydrogènes entre les fibres et entre les couches (du fait de la quantité importante de contacts fibre-fibre) lors du séchage des préformes MW100.

Ces forces sont susceptibles de contribuer à l'augmentation de la résistance des composites comparativement à MNC ou MD100. Si l'on compare maintenant MNC versus MTNC et MW100 versus MTW100, il apparaît que la phosphorylation induit une baisse de la résistance en traction, baisse plus importante pour les renforts MW100 ( $184,5 \pm 5,2$  MPa) versus MTW100 ( $145,3 \pm 6,8$  MPa). Le fait de compacter à chaud des préformes traitées et humides entraîne une baisse importante de résistance du composite, tendance contraire à ce qui est observé lorsqu'on compare les mêmes composites sans traitement (MNC versus MW100). La première cause de cette baisse est liée à la différence de polarité entre les fibres phosphorylées et la résine. En effet, la phosphorylation accroît l'hydrophilie des fibres cellulosiques; ce qui affecte leur compatibilité avec la résine époxy qui est hydrophobe et donc nuit à l'interface fibre-matrice et au transfert de charge [152, 155, 156]. Deuxièmement, la phosphorylation pourrait réduire la teneur en lignine, qui est un élément affectant la flexibilité des fibres [46, 193].

Il est intéressant de constater à la Figure 6.9 que contrairement aux stratifiés à renforts UD, la résistance des composites TFNC (non-compactés) est supérieure à celle des composites TFW100, tendance tout à fait contraire à celle observée lorsqu'on compare les composites MNC et MW100. Une des causes possibles de ce résultat est le niveau de déformation permanente dans les préformes TFW100 (voir Figure 6.4d) qui est de l'ordre de 59,9 % contre 24,0 % pour TFD23 par exemple. Un tel niveau de déformation permanente traduit inévitablement un niveau de déplacement des fils et d'imbrication des couches adjacentes très important de même que l'occurrence de dommages irréversibles comme l'effondrement de la paroi des fibres et la fermeture du lumen des fibres [3, 108, 144]. Ces hypothèses semblent confirmées par la Figure 6.8b. Premièrement, on y voit que du fait de la compaction, la réorganisation des fils dans les tissus (à travers la nidification et le déplacement des fils) se traduit par une

désorientation plus ou moins marquée des fils par rapport à la direction de chargement en fonction du niveau de compaction; ce qui aura un effet important sur la résistance en traction. Deuxièmement, on y voit que la section transversale des fils dans le composite TFW100 (Figure 6.8b) est beaucoup plus déformée que dans les composites TFNC (Figure 6.8a). De plus, un déplacement important des fils dans le composite TFW100 et de larges zones riches en résine sont constatées comparativement au composite TFNC. Finalement et en raison du niveau de compaction et de l'ondulation des fils dans le composite TFW100, il est possible qu'aux points de croisement trame-chaîne des fils, l'imprégnation en résine soit moins bonne (laissant certaines zones pauvres en résine) ce qui pourraient contribuer à réduire les propriétés mécaniques du composite TFW100.

La Figure 6.10 présente les modules de Young des composites fabriqués à partir des préformes préparées tel que décrit dans le Tableau 6.3. Le module de Young des composites à base de renforts UD/mat (traités ou non) sont légèrement supérieurs à ceux des composites renforcés par les tissus. Le module de Young des composites à renforts tissés ne semble pas affecté par les conditions de compaction (comparer TFNC et TFW100). La précompaction à chaud des préformes (sèches ou humides) n'a pas d'effet quantifiable sur le module de Young des composites à fibres UD, peu importe les conditions de compaction. Les modules de Young sont tous très proches. Contrairement à la résistance, ceci montre que la phosphorylation n'a pas affecté le module de Young des fibres et des composites résultants. Cependant, lorsqu'on considère la variation de rigidité des composites après le point d'infexion, en prenant le module tangent pour les composites à renfort UD/mat, certaines divergences apparaissent. Le Tableau 6.4 présente les valeurs du module de Young ( $E_1$ ), du module tangent ( $E_2$ ) et la différence entre ces deux modules pour les composites fabriqués, une approche analytique utilisée par d'autres auteurs [194]. On remarque que la réduction de rigidité est moins importante dans les composites à fibres non traitées que dans ceux à fibres traitées; ce qui pourrait traduire un changement dans le comportement micromécanique de ces derniers [194].

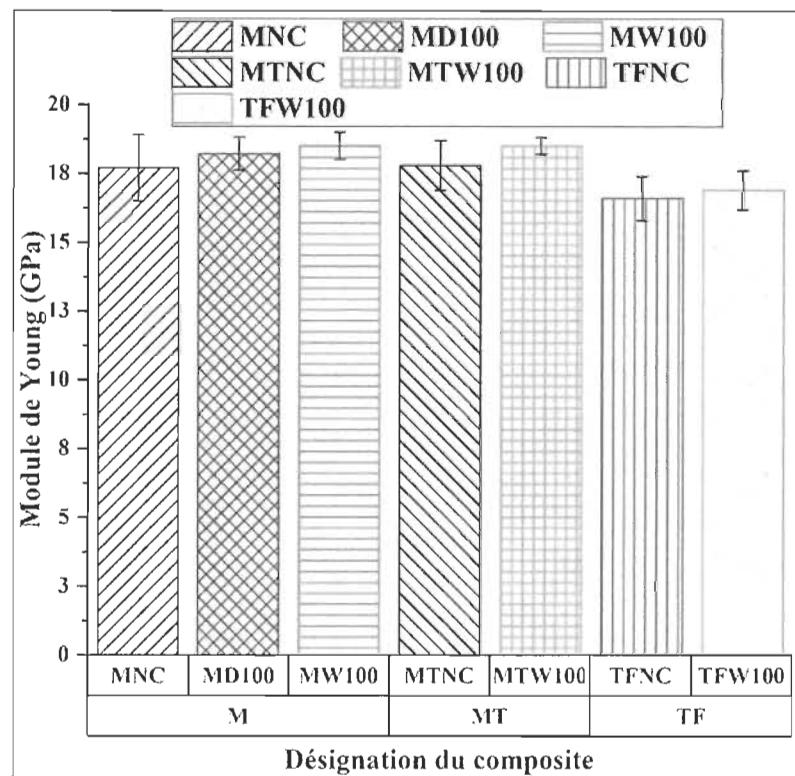


Figure 6.10: Module de Young des composites fabriqués.

Tableau 6.4: Effets des conditions de préformage et de la phosphorylation sur les différents modules des composites.

Composites	Module de Young, E <sub>1</sub> (GPa)	Module tangent, E <sub>2</sub> (GPa)	(E <sub>1</sub> -E <sub>2</sub> )/E <sub>1</sub> (%)
MNC	18,0 ± 1,3	11,6 ± 0,5	35,5
MD100	18,0 ± 0,5	11,6 ± 0,4	35,5
MW100	18,6 ± 0,8	11,6 ± 0,4	37,6
MTNC	18,4 ± 0,9	11,0 ± 0,4	40,2
MTW100	18,7 ± 0,8	11,5 ± 0,5	38,5
TFNC	17,2 ± 0,9	-	-
TFW100	17,0 ± 0,7	-	-

Par exemple, la variation de la rigidité est de 35,5 % pour le composite MNC (respectivement 37,6 % pour MW100) contre 40,2 % pour le composite MTNC (respectivement 38,5 % pour MTW100). Du fait de leur nature, les fibres de lin ont certains défauts tels que les genoux (“knee”) se répartissant le long de la fibre de sorte que la distance moyenne entre deux défauts est d’environ  $100 \mu\text{m} \pm 40 \mu\text{m}$  et ce indépendamment de toute corrélation avec le diamètre de la fibre [42]. La répartition de ces défauts est telle que les fibres peuvent être assimilées à des ressorts (fibres courtes et rigides) en série reliés par ces défauts [195]. On sait par ailleurs que le module élastique du papier est amoindri par la présence des défauts de type genoux ou replis dans les fibres de bois [195, 196]. Ces derniers constituent des points de concentration de contrainte. Une fois que ces fibres intégrées dans les composites, leurs défauts constituent dès lors des points de concentration de contrainte. Ces derniers favorisent la formation de fissures qui en retour pourraient conduire au décollement fibre-matrice et à la rupture de la matrice [195, 197]. Il est possible que la phosphorylation ait fragilisé davantage les fibres en accentuant ces défauts ou en en créant d’autres. Des analyses de l’effet de ce traitement sur la fibre seront nécessaires pour confirmer cette hypothèse. Cette baisse pourrait aussi être reliée au problème d’interface entre les fibres de lin qui sont hydrophiles (hydrophilie accentuée pour les fibres phosphorylées) et la matrice hydrophobe; lequel se traduit par une mauvaise imprégnation des fibres, ce qui conduirait à un décollement relativement aisé entre les fibres et la résine et affecterait la rigidité des composites après le passage du genou de la courbe.

La Figure 6.11 présente les déformations maximales atteintes par les différents composites. Globalement, les composites faits de renforts traités (MTNC et MTW100) ont une déformation maximum similaire à celle des composites à préforme non compactée (MNC) et inférieure à celle des composites à préformes compactées (MD100 et MW100). Par ailleurs, les composites MTNC ont une déformation à la rupture qui est plus grande que celle de MTW100. En ne considérant pas les écarts-types, la tendance semble similaire à celle observée pour les contraintes à la Figure 6.9.

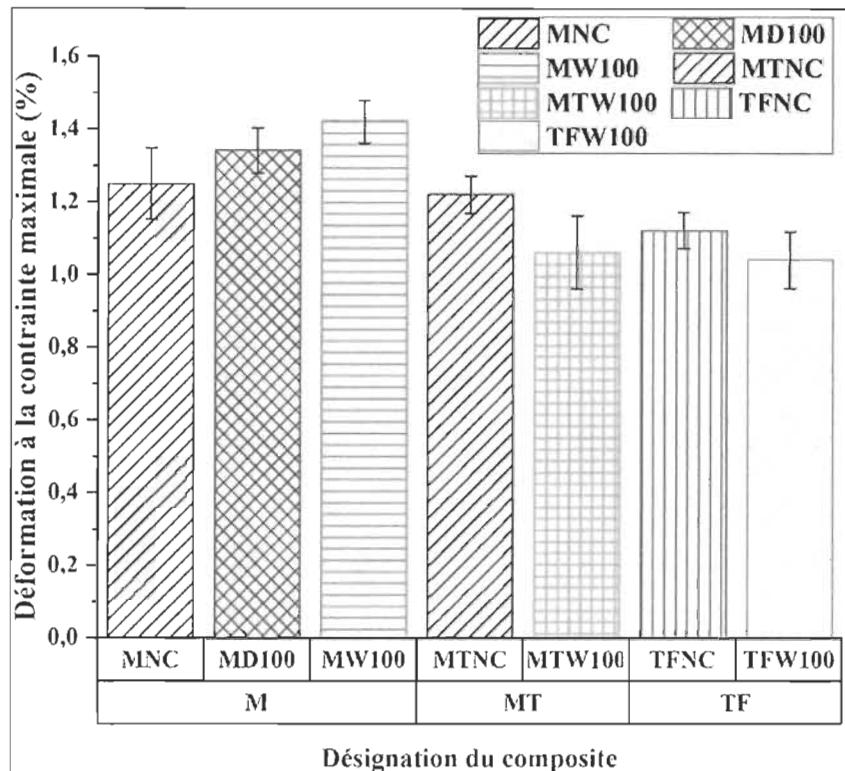


Figure 6.11: Déformation à la contrainte maximale des éprouvettes testées.

Les défauts créés en raison du niveau de déformation permanente élevé atteint dans les préformes MTW100 pourraient expliquer ce comportement. La Figure 6.11 montre également que la déformation pour le composite TFW100 est relativement proche de celle de TFNC mais suit ici aussi la tendance de la Figure 6.9.

### 6.3.3 Analyses des faciès de rupture

La Figure 6.12, présente les éprouvettes après rupture par traction. Globalement, les surfaces de rupture sont relativement planes et confinées. Le mode de rupture observé sur les différentes éprouvettes est donc principalement fragile.

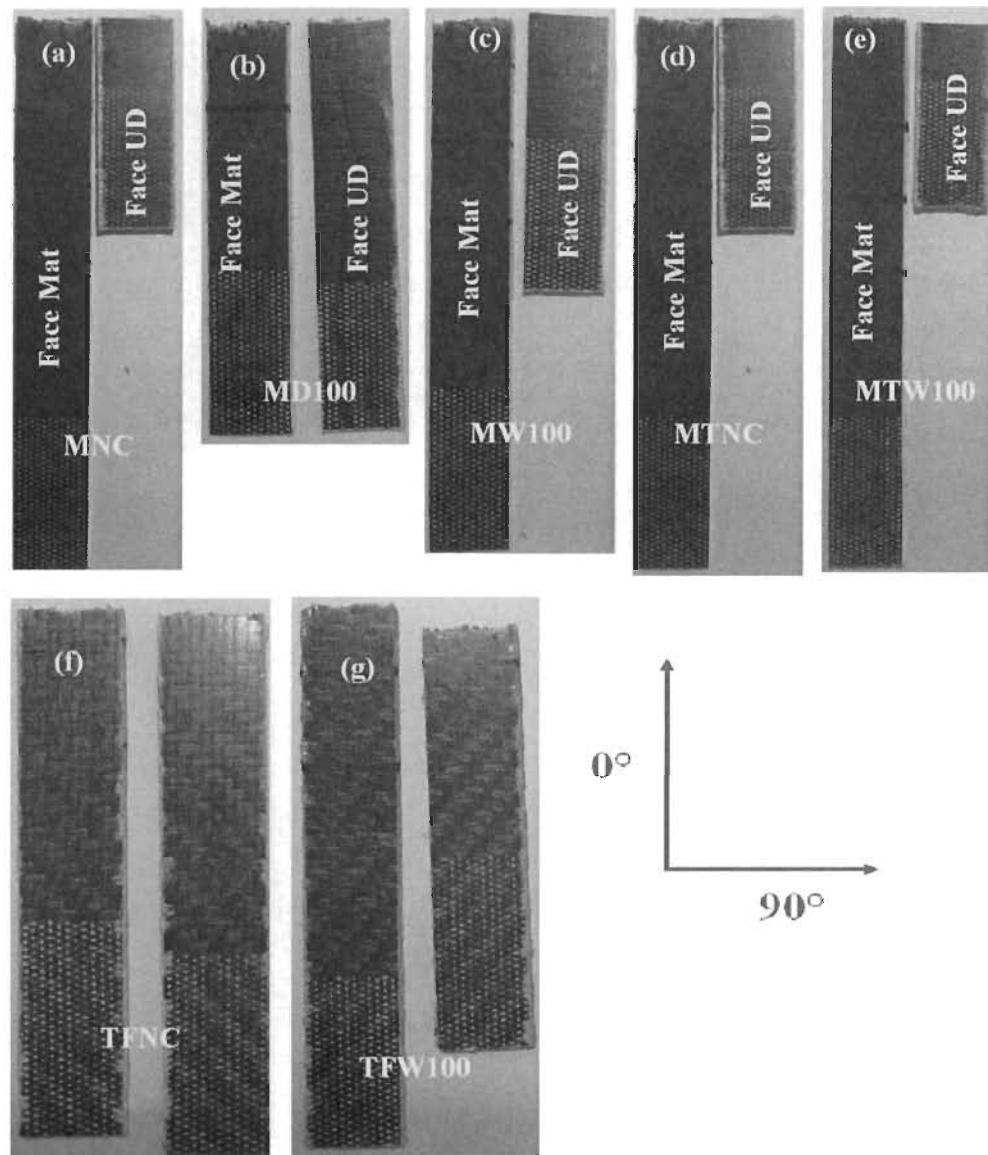


Figure 6.12: Surface de rupture des éprouvettes de traction.

Dans le cas des composites à renforts UD/mat (Figure 6.12 a-e), la face mat présente des fissures (stries) principalement orientées dans la direction  $0^\circ$  tandis que celles sur la face UD sont orientées dans la direction  $90^\circ$  (perpendiculaire à la direction du chargement) ce qui serait normal au vu de la séquence d'empilement  $[0/90]_3$  avec la face se terminant par le pli à  $90^\circ$ . Pour les composites TFNC (Figure 6.12f) et TFW100 (Figure 6.12g), les stries sont principalement orientées dans le sens des fils chaîne ( $0^\circ$

sur la Figure 6.12). La Figure 6.13 présente les micrographies 35X des faciès de rupture des échantillons UD/mat testés en traction. On observe beaucoup d'arrachage de fibres, principalement dans les couches UD/mat orientées à 90°.

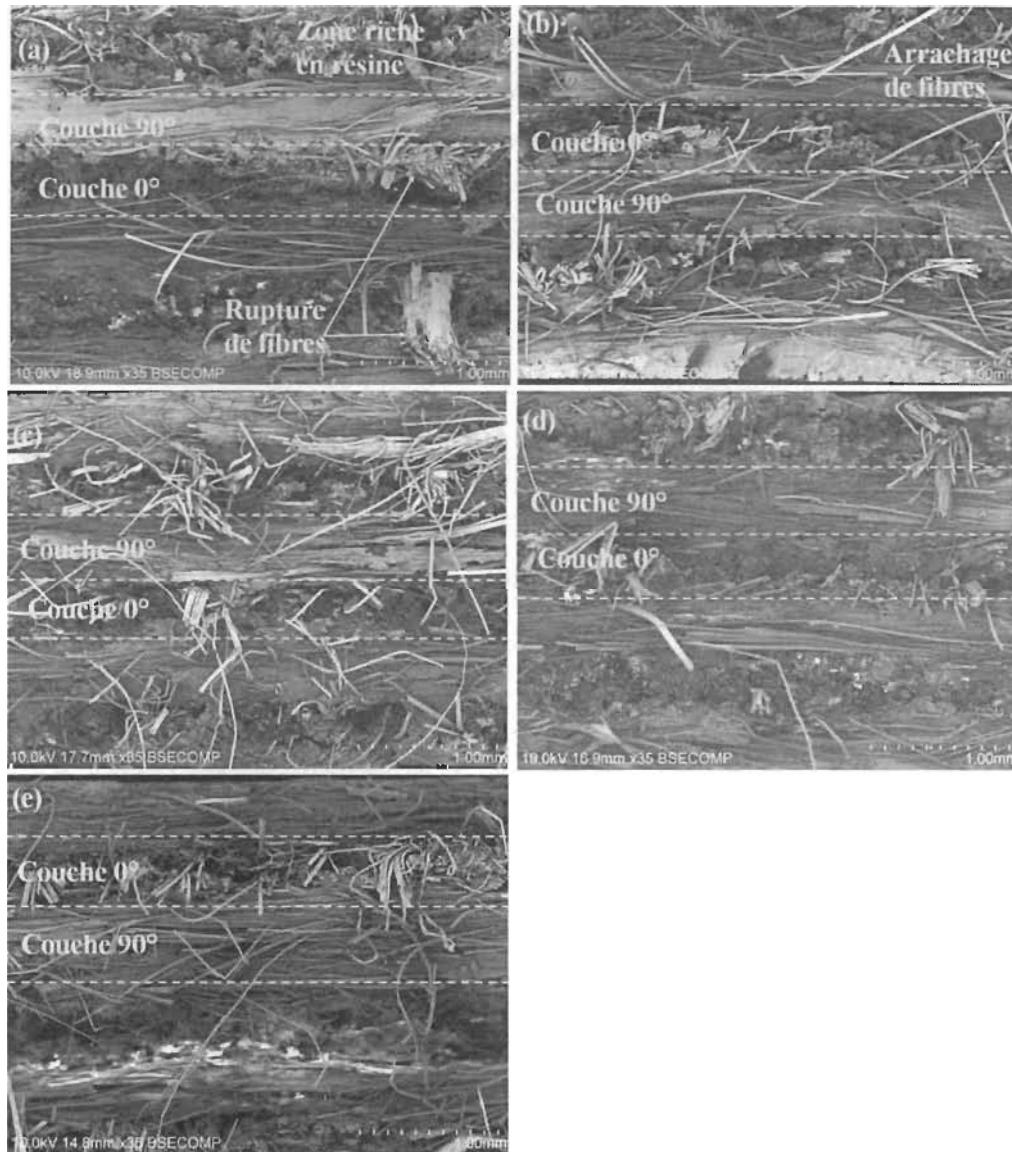


Figure 6.13: Micrographie (35 X) échantillons testés : MNC (a), MD100 (b), MW100 (c), MTNC (d), MTW100 (e).

Toutefois, les faciès des composites à renforts non précompactés (Figure 6.13a et d)

sont relativement plus lisses (moins d'arrachage de fibres) que ceux des composites dont les renforts ont été précompactés (Figure 6.13 b, c, e); c'est-à-dire que l'ampleur des arrachages de fibres semble augmenter lorsque la préforme a été précompactée. Ceci pourrait être le fait d'une capacité d'imprégnation réduite dans le sens travers (Figure 6.13b) avec pour conséquence possible la formation de défauts d'imprégnation tel que mentionné en lien avec les zones noires de la Figure 6.7.

Les Figures 6.14a et 6.14b présentent les micrographies 100X des échantillons MNC et MTNC respectivement. Le faciès du composite MNC est plus régulier avec moins d'arrachage de fibres et de déchaussement de fibres que celui de MTNC.

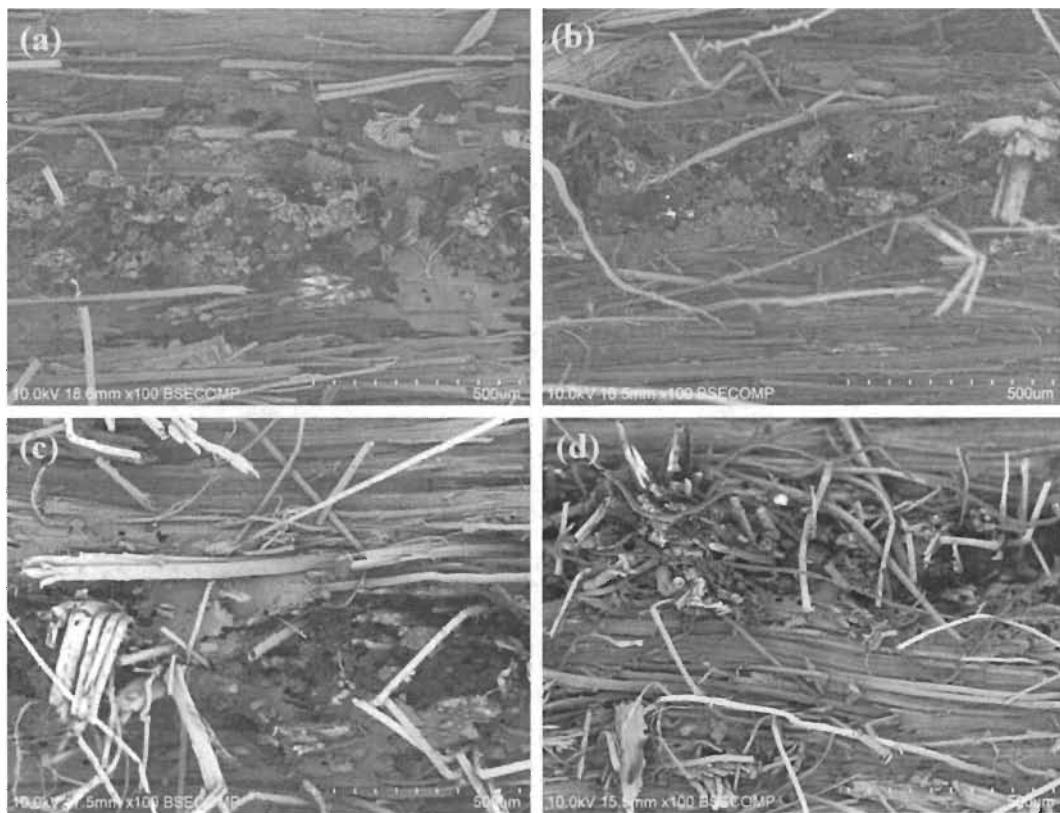


Figure 6.14: Micrographie (100 X) des échantillons testés : MNC (a), MTNC (b), MW100 (c) et MTW100 (d).

Ceci vient corroborer les observations de la Figure 6.9 qui montre que la résistance du composite MNC est supérieure à celle de MTNC. Les Figures 6.14c et 6.14d montrent

les micrographies 100X des échantillons MW100 et MTW100 respectivement. Le faciès du composite MTW100 est plus accidenté que celui de MW100 et présente plus d'arrachage de fibres. Ceci pourrait justifier pourquoi la résistance du composite MW100 est plus forte que celle du composite MTW100 (Figure 6.9). Comme indiqué précédemment, la phosphorylation augmente le caractère hydrophile des fibres de lin; ce qui réduit la compatibilité avec la résine époxy (qui est hydrophobe) et la résistance de l'interface fibre-matrice.

Les Figures 6.15a et 6.15b montrent les micrographies 35X des éprouvettes TFNC et TFW100 respectivement. La surface de TFW100 présente un relief plus accidenté que celui de TFNC. Dans le composite TFNC (Figure 6.15a), il semble y avoir une meilleure imprégnation des fibres à l'intérieur des mèches (distribution relativement homogène des zones riches en résine autour des fibres) comparativement au composite TFW100 (Figure 6.15b) où les zones riches en résine sont principalement situées autour des mèches. Dans ce dernier cas, la distribution des fibres est une conséquence du niveau de compaction (déplacement et désorientation des fils, imbrication des couches adjacentes, déformation de la section transversale des fils) imposé au préformes TFW100 (voir aussi Figure 6.8).

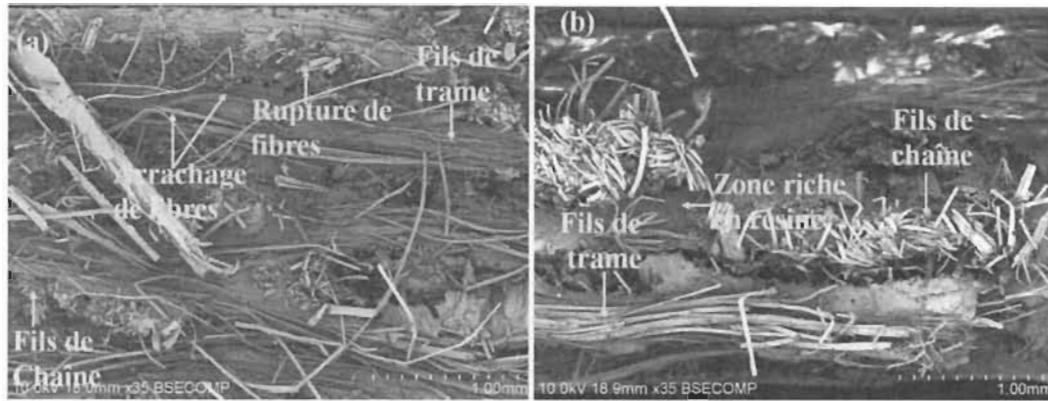


Figure 6.15: Micrographie (35 X) des échantillons testés: TFNC (a) et TFW100 (b).

#### 6.4 Conclusion partielle

L'objectif de ce chapitre était de vérifier dans quelle mesure les fibres de lin phosphorylées et les renforts tissés sont affectés par les conditions de préformage et de compaction (humidité et température), sachant que celles-ci ont montré leur efficacité pour l'obtention de bonnes préformes 3D et dans certains cas l'amélioration des propriétés mécaniques (en tension et en flexion) des composites UD/mat époxy. Pour cela des préformes [0/90]<sub>3</sub> faites de six couches de renforts phosphorylés ont été compactées afin de tester l'effet du traitement et des paramètres de préformage (humidité et température) sur la réponse en compaction (variation d'épaisseur, fluage, recouvrement d'épaisseur et déformation permanente). Cette réponse a été comparée à celle des préformes faites de renforts UD/mat et tissus non traités. Dans un deuxième temps, des préformes de renforts UD/mat (phosphorylés ou non) et de tissus ont été utilisées pour mouler des plaques composites. Ces dernières ont, par la suite, subi des essais de traction suivis d'analyses micrographiques sur les échantillons fracturés. Il en ressort les éléments suivants :

- Les variations d'épaisseur des préformes UD/mat durant le fluage ne semblent pas affectées par la phosphorylation et sont similaires à celles des renforts non traités. Cependant, l'augmentation du niveau d'humidité ou de température se traduit par une augmentation de cette variation. Ceci est en partie dû à l'effet

lubrifiant de l'eau qui facilite les mouvements entre les couches adjacentes de renfort, la réorganisation du réseau de fibres et la déformation des fibres.

- Les pourcentages de fluage et de déformation permanente augmentent avec la température de compaction et le niveau d'humidité. Ces augmentations sont toujours plus importantes dans les préformes UD/mat phosphorylées que non phosphorylées. Ceci indique que la phosphorylation a un effet net sur la capacité du renfort à se déformer. Cela est possiblement dû à une diminution de la teneur en lignine dans les fibres phosphorylées.
- À température ambiante et pour des préformes sèches, ces deux grandeurs sont quasiment du même ordre que celles observées dans les tissus pour lesquels l'ondulation des fibres augmente beaucoup le fluage et la déformation permanente.
- À conditions de compaction identiques, les composites à renforts phosphorylés présentent une résistance en traction plus faible que celle des composites à renforts non traités. Cette résistance est cependant plus élevée que celles des composites renforcés par des tissus.
- Pour les composites à renforts UD/mat phosphorylés, l'augmentation du niveau d'humidité et de température lors de la compaction entraîne une réduction de la résistance tandis que l'effet inverse est observé pour les composites à renforts UD/mat non phosphorylés. Cette baisse pourrait s'expliquer par un problème de compatibilité entre les fibres phosphorylées (plus hydrophiles) et la résine époxy qui est hydrophobe. Ce problème pourrait affecter la qualité de l'interface fibre-matrice et donc la résistance en traction du composite.
- Une baisse de la résistance est aussi observée dans les composites TFW100 renforcés par les tissus lorsqu'on compare au composite TFNC. Ceci est une conséquence du niveau de compaction dans TFW100, lequel se manifeste par une forte désorientation des fils, une mauvaise imprégnation des fils (de trame) et la formation de larges zones riches en résine entre les fils.

- Le module de Young des composites UD/mat semble peu affecté par la phosphorylation des renforts et est légèrement supérieur à celui des composites renforcés par des tissus.
- Pour tous les composites, l'analyse micrographique montre que l'arrachage de fibres est plus important dans les composites à préformes compactées. À conditions de compaction et renforts identiques, l'arrachage semble plus important dans les composites à renforts phosphorylés, ce qui confirme l'effet de la phosphorylation sur l'interface fibre-matrice.

## Chapitre 7 - CONCLUSIONS GÉNÉRALES

### 7.1 Résumé des résultats importants

Le but de ce travail était de répondre à la question : “Est-il possible de fabriquer de bonnes préformes 3D à partir de renforts à fibres unidirectionnelles de lin maintenues ensemble par un liant papier ou mat à l’image de ce qui se fait pour la fabrication des contenants 3D en papier-carton en ajustant les valeurs des paramètres tels que la teneur en humidité, la température du moule, la pression et le nombre de couches de renforts?”. Après avoir répondu affirmativement à cette question au Chapitre 4, celle-ci en entraînait d’autres. Premièrement comment ces paramètres affectent-ils la qualité des préformes 3D à base de renfort UD/mat ou UD/papier et leur réponse en compaction? Cette question a aussi fait l’objet du chapitre 4. Dans le cas des renforts UD/mat, quel est l’effet de ces paramètres sur la perméabilité des préformes et les propriétés mécaniques (en tension et en flexion) des composites UD/mat lin-époxy? Pour répondre à cette question et une fois les réponses obtenues au chapitre 4 pour le comportement en compaction et la capacité de conformation 3D, il fallait valider jusqu’où les mêmes paramètres de compaction affectent la perméabilité des préformes et les propriétés mécaniques des composites obtenues avec les préformes. Cet aspect fut abordé au chapitre 5. Finalement au chapitre 6, on s’est intéressé à la phosphorylation, qui est un traitement rendant les fibres résistantes au feu mais plus hydrophiles, et ce sans modification de leur morphologie. Il fallait ainsi voir quel serait l’effet de la phosphorylation sur la réponse en compaction des fibres selon les mêmes paramètres de température et d’humidité et l’effet sur les propriétés mécaniques en tension des composites renforcées par ces renforts phosphorylés. Une comparaison avec des renforts tissés de lin fut aussi faite pour permettre de comparer avec des renforts commerciaux courants.

Dans le chapitre 4, les essais de préformage ont montré que les préformes fabriquées à partir d'échantillons humides avec une température de moule élevée (100 °C) préservent mieux la géométrie du moule de préformage et présentent très peu de défauts. Des liaisons hydrogènes, se formant entre les fibres et entre les couches de renfort durant l'évaporation de l'humidité sous l'effet de la chaleur dégagée par le moule, sont en partie responsable de la stabilité dimensionnelle et géométrique des préformes fabriquées. Il est donc possible de fabriquer de bonnes préformes à partir de fils UD maintenues en place par une fine couche de papier ou de mat, en ajustant le niveau d'humidité et de température. Par la suite, il fallait évaluer l'effet de ces deux paramètres, en plus de la pression et du nombre de couches de renfort, sur la réponse en compaction. Cette dernière est l'un des modes de déformation intervenant durant le préformage 3D et ayant une incidence directe sur la teneur en fibres et donc sur les performances mécaniques des composites. On a évalué ces effets sur la variation d'épaisseur, le fluage, le recouvrement d'épaisseur et la déformation permanente des préformes faites de renforts UD/mat. Le fluage est plus affecté par la température dans le cas des renforts secs que dans celui des renforts humides. À température ambiante, le recouvrement d'épaisseur est plus important pour les préformes humides à cause de la reprise d'humidité et le gonflement des fibres sous ces conditions. Pour ces mêmes préformes, les essais effectués à 100°C montrent un comportement différent car le recouvrement d'épaisseur par reprise d'humidité est en compétition avec la contraction (retrait) induite par le séchage des fibres. La déformation permanente augmente avec la température et l'humidité. Le ramollissement des fibres et, la déformation de la section transversale des fibres et des fils sont facilités à la fois par la température et l'humidité. La contraction observée lors du séchage des renforts humides contribue à augmenter la déformation permanente due à une épaisseur  $T_3$  plus faible à la fin du recouvrement d'épaisseur. Le pourcentage de fluage diminue avec le nombre de couches de renforts tandis que ce dernier semble n'avoir qu'un faible effet sur la déformation permanente. L'augmentation de la pression se traduit par une augmentation du pourcentage de

déformation permanente. Les résultats de l'analyse de variance montrent que l'humidité et le nombre de couches de renfort sont les paramètres les plus influents sur le fluage tandis que la température et l'humidité sont ceux qui affectent le plus la déformation permanente. Nous avons montré qu'il est possible de fabriquer de bonnes préformes 3D à partir des renforts UD/mat et UD/papier en ajustant certains paramètres de préformage et nous avons évalué les effets de ces paramètres sur la compaction des renforts UD/mat. Il s'est avéré nécessaire, avant de pousser plus loin l'investigation sur le préformage, de s'assurer des effets de ces conditions de préformage, notamment celles impliquant la température et ou l'humidité, sur la capacité d'imprégnation à la résine (pour le procédé RTM) et les propriétés mécaniques en tension et en flexion des composites après moulage.

Pour cela, dans le chapitre 5, nous avons réalisé des essais de perméabilité et des essais mécaniques sur des préformes non imprégnées et des composites UD/mat lin-époxy. Il s'avère que la compaction à chaud des préformes humides de renforts UD/mat n'altère pas leur perméabilité. Le module de Young ne semble pas influencé par les conditions de compaction évaluées dans cette étude. La compaction à chaud des renforts (secs et humides) augmente la résistance en traction ainsi que les propriétés mécaniques en flexion (résistance et module) comparativement aux composites faits de renforts non précompactés. D'un point de vue pratique, ce travail montre qu'une lubrification à l'eau et un préformage à chaud pourraient être utilisées pour fabriquer de bonnes préformes 3D à partir des renforts UD/mat de lin, et ce sans altérer significativement la perméabilité au moulage et les propriétés mécaniques (en tension et en flexion) du composite final. Il fut même montré que les propriétés mécaniques sont améliorées dans certaines conditions, notamment en raison de la formation de liaisons hydrogènes (entre les fibres et entre les couches) qui contribuent à une meilleure tenue mécanique. Les chapitres 4 et 5 ont mis en évidence le rôle joué par l'humidité et la température dans les phases de préformage et leur influence sur les propriétés mécaniques en tension et en flexion.

Dans le chapitre 6, on a voulu connaître quels seraient les effets d'un traitement chimique, la phosphorylation, sur la réponse en compaction de préformes faites de renforts UD/mat dont les fibres de lin ont été compactées selon les mêmes paramètres de température et d'humidité que ceux des chapitres 4 et 5. L'intérêt de ce traitement est que, non-seulement, il rend les fibres plus ignifugés mais en plus, il augmente leur hydrophilicité sans affecter significativement leur morphologie. Les propriétés mécaniques en tension d'un composite lin-époxy renforcé par ces préformes ont été mesurées. Les résultats de ces essais ont été comparés à ceux réalisés sur des préformes faites de tissus commerciaux de lin et des composites renforcés par ces dernières. Il apparaît que le pourcentage de fluage et de déformation permanente augmente avec la température de compaction et l'humidité. Ces accroissements sont toujours plus importants dans les préformes UD/mat phosphorylées que dans les non phosphorylées. À température ambiante et pour des préformes phosphorylées sèches, ces deux grandeurs sont quasiment du même ordre que celles observées dans les tissus, ce qui pourrait indiquer que la phosphorylation favorise la déformabilité des fibres. À conditions de compaction identiques, la phosphorylation des renforts entraîne une baisse de la résistance en traction des composites. Cette baisse pourrait être liée à un problème d'interface entre les fibres de lin phosphorylées (dont l'hydrophilie a augmenté) et la matrice époxy qui est hydrophobe. Cette résistance est cependant plus élevée que celles des composites renforcés par le tissu. L'augmentation du niveau d'humidité et de température lors de la compaction entraîne une réduction de la résistance en traction pour les composites à fibres traitées et les tissus tandis que l'effet inverse est observé pour les composites à fibres non traitées. Le module de Young des composites UD/mat semble peu affecté par la phosphorylation des renforts et reste supérieur celui des composites renforcés par le tissu.

## 7.2 Travaux futurs

Différentes avenues se présentent à la suite des travaux présentés dans cette thèse:

- Dans ce travail, les renforts ont été saturés en eau avant d'être compactés. Le séchage qui s'en suit pourrait prendre un peu plus de temps en fonction de la température de séchage. Il serait intéressant de voir si un niveau inférieur d'humidité (ou de pression de compaction) permettrait d'obtenir de meilleurs résultats. Une optimisation à cet effet est donc à envisager.
- Une fois l'optimisation faite en termes de température et d'humidité, la modélisation de l'évolution du taux volumique de fibres ( $V_f$ ) en fonction des paramètres de compaction serait intéressante car le  $V_f$  est le paramètre influençant le plus les propriétés mécaniques des composites.
- Il serait important d'évaluer la perméabilité des renforts UD/mat dans la direction de l'épaisseur des préformes et ce en fonction des conditions de préformage. Ceci permettrait d'avoir un meilleur aperçu de l'effet des paramètres de préformage sur la qualité des préformes 3D.
- Il serait intéressant de mouler des pièces 3D réelles à partir des préformes UD/mat compactées suivant les conditions évaluées dans ce travail. Ceci permettrait de voir comment la réorientation des fibres d'une pièce réelle compactée sous ces conditions affecte le moulage (la perméabilité) et les propriétés mécaniques.
- Il serait intéressant de voir comment les paramètres de préformage étudiés ici affectent la qualité des préformes 3D fabriquées à partir des renforts phosphorylés. Par la suite, nous pourrions combiner à la phosphorylation un traitement chimique qui permettrait d'améliorer l'interface fibre-matrice et donc d'augmenter les propriétés mécaniques des composites à fibres de lin phosphorylée.

## LISTE DES RÉFÉRENCES

- [1] M. B. Dr. Sanjay Mazumdar, Daniel Pichler, Dr. Elmar Witten, Jens Hinrichsen. "The 2018 State of the Composites Industry Report." *Composites Manufacturing Magazine*, <http://compositesmanufacturingmagazine.com>, (accessed January 27, 2018).
- [2] Kamelya. "Le 1<sup>er</sup> réacteur industriel de recyclage de matériaux composites." <https://www.consoglobe.com/reacteur-industriel-recyclage-materiaux-composites-cg/2> (accessed January 27, 2018).
- [3] G. Francucci, E. Rodríguez, and A. Vázquez, "Experimental study of the compaction response of jute fabrics in liquid composite molding processes," *Journal of Composite Materials*, p. 0021998311410484, 2011.
- [4] S. Mahmood and B. Madsen, "Properties and performance of flax yarn/thermoplastic polyester composites," *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, October 30, 2012 2012, doi: 10.1177/0731684412441686.
- [5] N. J. Arockiam, M. Jawaid, and N. Saba, "6 - Sustainable bio composites for aircraft components," in *Sustainable Composites for Aerospace Applications*, M. Jawaid and M. Thariq Eds.: Woodhead Publishing, 2018, pp. 109-123.
- [6] D. U. Shah, P. J. Schubel, M. J. Clifford, and P. Licence, "Mechanical property characterization of aligned plant yarn reinforced thermoset matrix composites manufactured via vacuum infusion," *Polymer-Plastics Technology and Engineering*, vol. 53, no. 3, pp. 239-253, 2014.
- [7] S. M. C. Alves, F. S. da Silva, M. V. Donadon, R. R. Garcia, and E. J. Corat, "Process and characterization of reclaimed carbon fiber composites by pyrolysis and oxidation, assisted by thermal plasma to avoid pollutants emissions," *Journal of Composite Materials*, vol. 52, no. 10, pp. 1379-1398, 2018, doi: 10.1177/0021998317724214.
- [8] P. A. dos Santos, J. C. Giriolli, J. Amarasekera, and G. Moraes, "Natural fibers plastic composites for automotive applications," in *8th Annual automotive composites conference and exhibition (ACCE 2008)*. Troy, MI: SPE Automotive & Composites Division, 2008, pp. 492-500.
- [9] M. Yuhazri, M. Amirhafizan, A. Abdullah, S. Yahaya, S. Lau, and A. Kamarul, "Kenaf fibre composites as promising green-composites for automotive car door map pocket application," *International Journal of Mechanical and Mechatronics Engineering*, vol. 18, no. 2, pp. 15-21, 2018.

- [10] J.-L. Wertz, "Les biocomposites et composites polymère-chanvre en particulier," ValBiom, 2014. [Online]. Available: [www.valbiom.be](http://www.valbiom.be)
- [11] S. V. Hoa, *Principles of the manufacturing of composite materials*. DEStech Publications, Inc, 2009.
- [12] M.-P. Bozec. U. d. Havre. (2013). Introduction aux matériaux composites.
- [13] C. Brecher, M. Dubrätz, J. Stimpfl, and M. Emonts, "Innovative manufacturing of 3D-lightweight components," *Laser Technik Journal*, vol. 8, no. 5, pp. 36-40, 2011, doi: 10.1002/latj.201190057.
- [14] S. M. R. Kazmi, K. Jayaraman, and R. Das, "Single-step manufacturing of curved polypropylene composites using a unique sheet consolidation method," *Journal of Materials Processing Technology*, vol. 237, pp. 96-112, 2016/11/01/2016, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jmatprotec.2016.05.028>.
- [15] S. C. Amico, "Permeability and capillary pressure in the infiltration of fibrous porous media in resin transfer moulding," PhD, University of Surrey, 2000.
- [16] M. Habibi, "Développement et caractérisation de nouveaux composites hybrides UD lin/paper et UD lin/mat lin.," PhD, Génie mécanique, Université du Québec à Trois-Rivières, Trois-Rivières, 2016.
- [17] "Composites Market Size, Share & Trends, Global Industry Report, 2024." <https://www.grandviewresearch.com/industry-analysis/composites-market> (accessed 2018-02-04, 2018).
- [18] D. D. Chung and D. Chung, *Carbon fiber composites*. Elsevier, 2012.
- [19] A. L. Leao, R. Rowell, and N. Tavares, "Applications of Natural Fibers in Automotive Industry in Brazil — Thermoforming Process," in *Science and Technology of Polymers and Advanced Materials: Emerging Technologies and Business Opportunities*, P. N. Prasad, J. E. Mark, S. H. Kandil, and Z. H. Kafafi Eds. Boston, MA: Springer US, 1998, pp. 755-761.
- [20] B. Dahlke, H. Larbig, H. D. Scherzer, and R. Poltrock, "Natural Fiber Reinforced Foams Based on Renewable Resources for Automotive Interior Applications," *Journal of Cellular Plastics*, vol. 34, no. 4, pp. 361-379, 1998/07/01 1998, doi: 10.1177/0021955X9803400406.
- [21] M. Miao and N. Finn, "Conversion of natural fibres into structural composites," *Journal of textile engineering*, vol. 54, no. 6, pp. 165-177, 2008.
- [22] D. U. Shah, P. J. Schubel, and M. J. Clifford, "Can flax replace E-glass in structural composites? A small wind turbine blade case study," *Composites Part B: Engineering*, vol. 52, pp. 172-181, 2013/09/01/2013, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2013.04.027>.

- [23] D. U. Shah, P. J. Schubel, P. Licence, and M. J. Clifford, "Hydroxyethylcellulose surface treatment of natural fibres: the new 'twist' in yarn preparation and optimization for composites applicability," *Journal of Materials Science*, journal article vol. 47, no. 6, pp. 2700-2711, March 01 2012, doi: 10.1007/s10853-011-6096-1.
- [24] M. El Boustani, F. Brouillette, G. Lebrun, and A. Belfkira, "Solvent-free acetylation of lignocellulosic fibers at room temperature: Effect on fiber structure and surface properties," *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 132, no. 29, 2015.
- [25] O. Faruk, A. K. Bledzki, H.-P. Fink, and M. Sain, "Biocomposites reinforced with natural fibers: 2000–2010," *Progress in Polymer Science*, vol. 37, no. 11, pp. 1552-1596, 2012/11/01/ 2012, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.progpolymsci.2012.04.003>.
- [26] M. S. Meon, M. F. Othman, H. Husain, M. F. Remeli, and M. S. M. Syawal, "Improving Tensile Properties of Kenaf Fibers Treated with Sodium Hydroxide," *Procedia Engineering*, vol. 41, pp. 1587-1592, 2012/01/01/ 2012, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.proeng.2012.07.354>.
- [27] R. Joffe, J. Andersons, and L. Wallström, "Strength and adhesion characteristics of elementary flax fibres with different surface treatments," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 34, no. 7, pp. 603-612, 2003/07/01/ 2003, doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S1359-835X\(03\)00099-X](http://dx.doi.org/10.1016/S1359-835X(03)00099-X).
- [28] S. Kotler. "Introducing Kestrel, The first Road-ready car built Out of Hemp." <https://www.popsci.com/cars/article/2011-02/introducing-first-road-ready-hemp-mobile> (accessed September 19, 2018, 2018).
- [29] G. I. Williams and R. Wool, *Composites from Natural Fibers and Soy Oil Resins*. 2000, pp. 421-432.
- [30] A. M. O'Donnell, M. A. Dweib, and R. Wool, *Natural fiber composites with plant oil-based resin*. 2004, pp. 1135-1145.
- [31] U. Riedel and J. Nickel, *Natural fibre-reinforced biopolymers as construction materials - New discoveries*. 1999, pp. 34-40.
- [32] P. Ouagne and D. Soulat, "Mechanical Properties and Deformability During the Preforming of a flax reinforcement," in *AIP Conference Proceedings*, 2011, vol. 1353, no. 1: American Institute of Physics, pp. 990-995.
- [33] E. Capelle, P. Ouagne, D. Soulat, and D. Duriatti, "Complex shape forming of flax woven fabrics: Design of specific blank-holder shapes to prevent defects," *Composites Part B: Engineering*, vol. 62, no. 0, pp. 29-36, 2014/06/01/ 2014, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.compositesb.2014.02.007>.

- [34] P. Ouagne, Damien Soulat, Gilles Hivet, Samir Allaoui, and D. Duriatti, "Analysis of defects during the preforming of a woven flax reinforcement," *Advanced Composites Letters*, Woodhead Publishing Limited, pp. 105-108, 2011.
- [35] S. Goutianos, T. Peijs, B. Nystrom, and M. Skrifvars, "Development of Flax Fibre based Textile Reinforcements for Composite Applications," (in English), *Appl Compos Mater*, vol. 13, no. 4, pp. 199-215, 2006/07/01 2006, doi: 10.1007/s10443-006-9010-2.
- [36] M. Ashby, "The CES EduPack database of natural and man-made materials," Cambridge, UK: Cambridge University and Granta Design, 2008.
- [37] "LE LIN & LE CHANVRE européens." <http://www.mastersoflinen.com/fre/celc/6-contacts> (accessed 14-01, 2015).
- [38] A. Bournaud, C. Morvan, and C. Baley, "Apport de la nanoindentation pour la caractérisation mécanique de fibres végétales," in *JNC 16*, 2009: AMAC, p. 8 p.
- [39] S. Chapple and R. Anandjiwala, "Flammability of Natural Fiber-reinforced Composites and Strategies for Fire Retardancy: A Review," *Journal of Thermoplastic Composite Materials*, vol. 23, no. 6, pp. 871-893, 2010/11/01 2010, doi: 10.1177/0892705709356338.
- [40] T. Nishino, I. Matsuda, and K. Hirao, "All-Cellulose Composite," *Macromolecules*, vol. 37, no. 20, pp. 7683-7687, 2004/10/01 2004, doi: 10.1021/ma049300h.
- [41] R. M. d. Pedro, "Etude de préformes en fibre de lin," Master, École Polytechnique de l'Université d'Orléans et Universidad Carlos III de Madrid, 2010.
- [42] K. Charlet, "Contribution à l'étude de composites unidirectionnels renforcés par des fibres de lin: relation entre la microstructure de la fibre et ses propriétés mécaniques," PhD, Université de Caen/Basse-Normandie, 2008.
- [43] P. Wambua, J. Ivens, and I. Verpoest, "Natural fibres: can they replace glass in fibre reinforced plastics?," *Composites Science and Technology*, vol. 63, no. 9, pp. 1259-1264, 2003/07/01 2003, doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S0266-3538\(03\)00096-4](http://dx.doi.org/10.1016/S0266-3538(03)00096-4).
- [44] K. Oksman, "High quality flax fibre composites manufactured by the resin transfer moulding process," *Journal of reinforced plastics and composites*, vol. 20, no. 7, pp. 621-627, 2001.
- [45] S. Garkhail, R. Heijenrath, and T. Peijs, "Mechanical properties of natural-fibre-mat-reinforced thermoplastics based on flax fibres and polypropylene," *Appl Compos Mater*, vol. 7, no. 5-6, pp. 351-372, 2000.

- [46] A. Vishtal, "Formability of paper and its improvement," PhD, VTT Technical Research Centre of Finland Ltd, Tampere University of Technology, Finland, 2015.
- [47] D. U. Shah, "Characterisation and optimisation of the mechanical performance of plant fibre composites for structural applications," PhD, University of Nottingham, 2013.
- [48] C. Baley, C. Morvan, and Y. Grohens, "Influence of the Absorbed Water on the Tensile Strength of Flax Fibers," *Macromolecular Symposia*, vol. 222, no. 1, pp. 195-202, 2005, doi: 10.1002/masy.200550425.
- [49] L. Salmen, *Temperature and water induced softening behaviour of wood fiber based materials*. Royal Institute of Technology Stockholm, 1982.
- [50] G. Sørensen and J. Hoffmann, "Moisture sorption in moulded fibre trays and effect on static compression strength," *Packaging Technology and science*, vol. 16, no. 4, pp. 159-169, 2003.
- [51] A. Mikko and N. Kaarlo, "The physics of paper," *Reports on Progress in Physics*, vol. 69, no. 3, p. 669, 2006. [Online]. Available: <http://stacks.iop.org/0034-4885/69/i=3/a=R03>.
- [52] L. Salmén, "On the Interaction Between Moisture and Wood Fibre Materials," in *MRS Online Proceedings Library Archive*, 1990, vol. 197, doi: doi:10.1557/PROC-197-193.
- [53] K. Van de Velde and E. Baetens, "Thermal and mechanical properties of flax fibres as potential composite reinforcement," *Macromolecular Materials and Engineering*, vol. 286, no. 6, pp. 342-349, 2001.
- [54] M. Habibi, L. Laperrière, G. Lebrun, and L. Toubal, "Combining short flax fiber mats and unidirectional flax yarns for composite applications: Effect of short flax fibers on biaxial mechanical properties and damage behaviour," *Composites Part B: Engineering*, vol. 123, no. Supplement C, pp. 165-178, 2017/08/15/ 2017, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2017.05.023>.
- [55] E. Ameri, G. Lebrun, and L. Laperrière, "A Novel Process for the Production of Unidirectional Hybrid Flax/Paper Reinforcement for Eco-composite Materials," *Procedia CIRP*, vol. 17, no. Supplement C, pp. 778-782, 2014/01/01/ 2014, doi: <https://doi.org/10.1016/j.procir.2014.01.108>.
- [56] J. MOOTHOO, "Analyse de la faisabilité d'éco-conception de pièces composites à base de ressources renouvelables pour applications médicales," PhD, Génie Mécanique, Université d'Orléans, 2013.

- [57] P. Ouagne, D. Soulat, C. Tephany, D. Duriatti, S. Allaoui, and G. Hivet, "Mechanical characterisation of flax-based woven fabrics and in situ measurements of tow tensile strain during the shape forming," *Journal of Composite Materials*, vol. 47, no. 28, pp. 3501-3515, 2013.
- [58] P. Ouagne, D. Soulat, J. Moothoo, E. Capelle, and S. Gueret, "Complex shape forming of a flax woven fabric; analysis of the tow buckling and misalignment defect," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 51, no. 0, pp. 1-10, 2013/08/01/ 2013, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.compositesa.2013.03.017>.
- [59] Q. T. Nguyen *et al.*, "Mesoscopic scale analyses of textile composite reinforcement compaction," *Composites Part B: Engineering*, vol. 44, no. 1, pp. 231-241, 2013/01/01/ 2013, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.compositesb.2012.05.028>.
- [60] Q. T. Nguyen, "Analyse expérimentale et numérique de la compaction des renforts fibreux: Application pour la perméabilité," PhD, Lyon, INSA, 2011.
- [61] G. Lebrun, A. Couture, and L. Laperrière, "Tensile and impregnation behavior of unidirectional hemp/paper/epoxy and flax/paper/epoxy composites," *Composite Structures*, vol. 103, pp. 151-160, 2013/09/01/ 2013, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2013.04.028>.
- [62] E. Ameri, L. Laperrière, and G. Lebrun, "Mechanical characterization and optimization of a new unidirectional flax/paper/epoxy composite," *Composites Part B: Engineering*, vol. 97, no. Supplement C, pp. 282-291, 2016/07/15/ 2016, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2016.04.056>.
- [63] R. Agogué, "Experimental and numerical study of the manufacturing of composite parts using the RTM process," PhD, Génie Mécanique, Université d'Orléans, 2011. [Online]. Available: <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00628046>
- [64] J. Moothoo, D. Soulat, P. Ouagne, and S. Allaoui, "Caractérisations mécaniques de renforts à base de fibres naturelles pour l'analyse de la déformabilité," in *17èmes Journées Nationales sur les Composites (JNC17)*, Poitiers-Futuroscope, France, Amac, Ed., 2011-06-15 2011, France, 2011, p. 55.
- [65] M. O. W. Richardson and Z. Y. Zhang, "Experimental investigation and flow visualisation of the resin transfer mould filling process for non-woven hemp reinforced phenolic composites," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 31, no. 12, pp. 1303-1310, 2000/12/01/ 2000, doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S1359-835X\(00\)00008-7](http://dx.doi.org/10.1016/S1359-835X(00)00008-7).

- [66] R. Umer, S. Bickerton, and A. Fernyhough, "The effect of yarn length and diameter on permeability and compaction response of flax fibre mats," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 42, no. 7, pp. 723-732, 2011/07/01/ 2011, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.compositesa.2011.02.010>.
- [67] L. Khoun, F. Busnel, and D. Maillard, "Compaction behaviour and permeability of cellulosic fibre for RTM applications," in *Proceedings of SPE Automotive Composites Conference & Exhibition*, 2013.
- [68] C. Tephany, "Analyse de la formabilité de renforts composites à base de fibres naturelles," PhD, Genie Mécanique, Université d'Orléans, 2014.
- [69] S. Allaoui *et al.*, "Experimental and numerical analyses of textile reinforcement forming of a tetrahedral shape," (in English), *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 42, no. 6, pp. 612-622, 2011, doi: <10.1016/j.compositesa.2011.02.001>.
- [70] S. Allaoui, C. Cellard, and G. Hivet, "Effect of inter-ply sliding on the quality of multilayer interlock dry fabric preforms," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 68, no. 0, pp. 336-345, 2015, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.compositesa.2014.10.017>.
- [71] P. Causse, E. Ruiz, and F. Trochu, "Influence of preforming on the quality of curved composite parts manufactured by flexible injection," (in English), *Int J Mater Form*, vol. 6, no. 3, pp. 341-362, 2013/09/01 2013, doi: <10.1007/s12289-012-1090-y>.
- [72] S. P. Haanappel and R. Akkerman, "Shear characterisation of uni-directional fibre reinforced thermoplastic melts by means of torsion," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 56, no. 0, pp. 8-26, 2014, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.compositesa.2013.09.007>.
- [73] S. Bel, P. Boisse, and F. Dumont, "Analyses of the Deformation Mechanisms of Non-Crimp Fabric Composite Reinforcements during Preforming," (in English), *Appl Compos Mater*, vol. 19, no. 3-4, pp. 513-528, 2012/06/01 2012, doi: <10.1007/s10443-011-9207-x>.
- [74] S. Bel, N. Hamila, P. Boisse, and F. Dumont, "Finite element model for NCF composite reinforcement preforming: Importance of inter-ply sliding," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 43, no. 12, pp. 2269-2277, 2012/12/01/ 2012, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2012.08.005>.

- [75] R. S. Mbakop, G. Lebrun, and F. Brouillette, "Experimental analysis of the planar compaction and preforming of unidirectional flax reinforcements using a thin paper or flax mat as binder for the UD fibers," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 109, pp. 604-614, 2018/06/01/2018, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2018.03.036>.
- [76] A. Vishtal, M. Hauptmann, R. Zelm, J.-P. Majschak, and E. Retulainen, "3D Forming of Paperboard: The Influence of Paperboard Properties on Formability," *Packaging Technology and Science*, vol. 27, no. 9, pp. 677-691, 2014, doi: 10.1002/pts.2056.
- [77] A. Vishtal and E. Retulainen, "Deep-drawing of paper and paperboard: The role of material properties," *BioResources*, vol. 7, no. 3, pp. 4424-4450, 2012.
- [78] M. Hauptmann and J.-P. Majschak, "New Quality Level of Packaging Components from Paperboard through Technology Improvement in 3D Forming," *Packaging Technology and Science*, vol. 24, no. 7, pp. 419-432, 2011, doi: 10.1002/pts.941.
- [79] P. Tanninen, H. Lindell, E. Saukkonen, and K. Backfolk, "Thermal and mechanical durability of starch-based dual polymer coatings in the press forming of paperboard," *Packaging Technology and Science*, vol. 27, no. 5, pp. 353-363, 2014, doi: 10.1002/pts.2036.
- [80] J.-W. Rhim, "Effect of moisture content on tensile properties of paper-based food packaging materials," (in English), *Food Sci Biotechnol*, vol. 19, no. 1, pp. 243-247, 2010/02/01 2010, doi: 10.1007/s10068-010-0034-x.
- [81] A. Vishtal and E. Retulainen, "Improving the extensibility, wet web and dry strength of paper by addition of agar," *Nordic Pulp and Paper Research Journal*, vol. 29, no. 3, pp. 434-444, 2014.
- [82] Kunnari Vesa, Jetsu Petri, and Retulainen Elias, "Formable paper for new packaging applications," presented at the 23rd Symp. International Assosiation of Packaging Research Institutes (IAPRI)., Windsor, UK, , 3-5 Sept. 2007, 2007.
- [83] S.-Z. Chow and K. Pickles, "Thermal softening and degradation of wood and bark," *Wood and Fiber Science*, vol. 3, no. 3, pp. 166-178, 2007.
- [84] U. Mohammed, C. Lekakou, and M. G. Bader, "Experimental studies and analysis of the draping of woven fabrics," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 31, no. 12, pp. 1409-1420, 2000/12/01/2000, doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S1359-835X\(00\)00080-4](http://dx.doi.org/10.1016/S1359-835X(00)00080-4).

- [85] O. Rozant, P. E. Bourban, and J. A. E. Månsen, "Drapability of dry textile fabrics for stampable thermoplastic preforms," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 31, no. 11, pp. 1167-1177, 2000, doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S1359-835X\(00\)00100-7](http://dx.doi.org/10.1016/S1359-835X(00)00100-7).
- [86] A. G. Prodromou and J. Chen, "On the relationship between shear angle and wrinkling of textile composite preforms," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 28, no. 5, pp. 491-503, 1997, doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S1359-835X\(96\)00150-9](http://dx.doi.org/10.1016/S1359-835X(96)00150-9).
- [87] I. Taha, Y. Abdin, and S. Ebeid, "Prediction of Draping Behaviour of Woven Fabrics over Double-Curvature Moulds Using Finite Element Techniques," *International Journal of Material and Mechanical Engineering*, vol. 1, no. 1, pp. 25-31, 2012.
- [88] H. Yin, X. Peng, T. Du, and Z. Guo, "Draping of plain woven carbon fabrics over a double-curvature mold," *Composites Science and Technology*, vol. 92, pp. 64-69, 2/24/ 2014, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.compscitech.2013.12.013>.
- [89] F. Nosrat Nezami, T. Gereke, and C. Cherif, "Analyses of interaction mechanisms during forming of multilayer carbon woven fabrics for composite applications," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 84, pp. 406-416, 2016/05/01/ 2016, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.compositesa.2016.02.023>.
- [90] S. V. Lomov *et al.*, "Full-field strain measurements in textile deformability studies," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 39, no. 8, pp. 1232-1244, 2008/08/01/ 2008, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2007.09.014>.
- [91] B. Vanleeuw, V. Carvelli, M. Barburski, S. V. Lomov, and A. W. van Vuure, "Quasi-unidirectional flax composite reinforcement: Deformability and complex shape forming," *Composites Science and Technology*, vol. 110, no. 0, pp. 76-86, 4/6/ 2015, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.compscitech.2015.01.024>.
- [92] F. Omrani, P. Wang, D. Soulard, M. Ferreira, and P. Ouagne, "Analysis of the deformability of flax-fibre nonwoven fabrics during manufacturing," *Composites Part B: Engineering*, vol. 116, pp. 471-485, 2017/05/01/ 2017, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2016.11.003>.
- [93] F. Robitaille and R. Gauvin, "Compaction of textile reinforcements for composites manufacturing. I: Review of experimental results," *Polym Compos*, vol. 19, no. 2, pp. 198-216, 1998, doi: [10.1002/pc.10091](https://doi.org/10.1002/pc.10091).
- [94] F. Robitaille and R. Gauvin, "Compaction of textile reinforcements for composites manufacturing. II: Compaction and relaxation of dry and H<sub>2</sub>O-saturated woven reinforcements," *Polym Compos*, vol. 19, no. 5, pp. 543-557, 1998, doi: [10.1002/pc.10128](https://doi.org/10.1002/pc.10128).

- [95] A. A. Somashekhar, S. Bickerton, and D. Bhattacharyya, "Exploring the non-elastic compression deformation of dry glass fibre reinforcements," *Composites Science and Technology*, vol. 67, no. 2, pp. 183-200, 2007/02/01/ 2007, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.compscitech.2006.07.032>.
- [96] A. Somashekhar, S. Bickerton, and D. Bhattacharyya, "Non-elastic effects during compression of fiber reinforcements," in *International Conference on Flow Processes in Composite Materials, FPCM*, 2004, vol. 7, pp. 413-418.
- [97] A. Somashekhar, S. Bickerton, and D. Bhattacharyya, "An experimental investigation of non-elastic deformation of fibrous reinforcements in composites manufacturing," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 37, no. 6, pp. 858-867, 2006.
- [98] W. Wu, B. Jiang, L. Xie, F. Klunker, S. Aranda, and G. Ziegmann, "Effect of Compaction and Preforming Parameters on the Compaction Behavior of Binderized Textile Preforms for Automated Composite Manufacturing," (in English), *Appl Compos Mater*, vol. 20, no. 5, pp. 907-926, 2013/10/01 2013, doi: 10.1007/s10443-012-9308-1.
- [99] J. Gutiérrez, E. Ruiz, and F. Trochu, "High-frequency vibrations on the compaction of dry fibrous reinforcements," *Advanced Composite Materials*, vol. 22, no. 1, pp. 13-27, 2013/02/01 2013, doi: 10.1080/09243046.2013.764778.
- [100] J. Renaud, N. Vernet, E. Ruiz, and L. L. Lebel, "Creep compaction behavior of 3D carbon interlock fabrics with lubrication and temperature," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 86, pp. 87-96, 2016/07/01/ 2016, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.compositesa.2016.04.017>.
- [101] Teresa Kruckenberg and Rowan Paton, "Compaction of dry and lubricated reinforcements," in *International conference on flow processes in composite materials, FPCM*, 2004, vol. 7, pp. 425-436.
- [102] B. Chen, E. J. Lang, and T.-W. Chou, "Experimental and theoretical studies of fabric compaction behavior in resin transfer molding1," *Materials Science and Engineering: A*, vol. 317, no. 1-2, pp. 188-196, 2001/10/31/ 2001, doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S0921-5093\(01\)01175-3](http://dx.doi.org/10.1016/S0921-5093(01)01175-3).
- [103] L. Li, Y. Zhao, J. Yang, J. Zhang, and Y. Duan, "An experimental investigation of compaction behavior of carbon non-crimp fabrics for liquid composite molding," (in English), *Journal of Materials Science*, vol. 50, no. 7, pp. 2960-2972, 2015/04/01 2015, doi: 10.1007/s10853-015-8860-0.
- [104] X. Yang, Y. Wang, F. Mo, K. Wei, and S. Duan, "Characterization of nesting effects on compression processes for plain woven fabrics in composites manufacturing," *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, vol. 36, no. 20, pp. 1503-1513, 2017, doi: 10.1177/0731684417711565.

- [105] K. Wei, D. Liang, M. Mei, D. Wang, X. Yang, and Z. Qu, "Preforming behaviors of carbon fiber fabrics with different contents of binder and under various process parameters," *Composites Part B: Engineering*, vol. 166, pp. 221-232, 2019/06/01/2019, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2018.11.143>.
- [106] G. Francucci, A. Vázquez, and E. S. Rodríguez, "Key differences on the compaction response of natural and glass fiber preforms in liquid composite molding," *Textile Research Journal*, p. 0040517511424533, 2012.
- [107] B. Madsen, "Properties of Plant Fiber Yarn Polymer Composites," PhD, An Experimental Study, Technical University of Denmark, Denmark, 2004.
- [108] Y. Gu, X. Tan, Z. Yang, M. li, and Z. Zhang, "Hot compaction and mechanical properties of ramie fabric/epoxy composite fabricated using vacuum assisted resin infusion molding," *Materials & Design*, vol. 56, pp. 852-861, 2014/04/01/2014, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.matdes.2013.11.077>.
- [109] D. U. Shah and M. J. Clifford, "Compaction, permeability and flow simulation for liquid composite moulding of natural fibre composites," in *Manufacturing of Natural Fibre Reinforced Polymer Composites*: Springer, 2015, pp. 65-99.
- [110] M. Habibi, É. Ruiz, G. Lebrun, and L. Laperrière, "Effect of surface density and fiber length on the porosity and permeability of nonwoven flax reinforcement," *Textile Research Journal*, vol. 88, no. 15, pp. 1776-1787, 2018/08/01/2017, doi: 10.1177/0040517517708542.
- [111] N. Vernet *et al.*, "Experimental determination of the permeability of engineering textiles: Benchmark II," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 61, no. 0, pp. 172-184, 2014/06/01/2014, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.compositesa.2014.02.010>.
- [112] G. Francucci, E. S. Rodríguez, and A. Vázquez, "Study of saturated and unsaturated permeability in natural fiber fabrics," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 41, no. 1, pp. 16-21, 2010/01/01/2010, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.compositesa.2009.07.012>.
- [113] A. W. Chan, D. E. Larive, and R. J. Morgan, "Anisotropic Permeability of Fiber Preforms: Constant Flow Rate Measurement," *Journal of Composite Materials*, vol. 27, no. 10, pp. 996-1008, 1993/10/01 1993, doi: 10.1177/002199839302701003.
- [114] Y. T. Chen, H. T. Davis, and C. W. Macosko, "Wetting of fiber mats for composites manufacturing: I. Visualization experiments," *AICHE Journal*, vol. 41, no. 10, pp. 2261-2273, 1995.

- [115] K. Hoes *et al.*, "New set-up for measurement of permeability properties of fibrous reinforcements for RTM," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 33, no. 7, pp. 959-969, 2002/07/01/ 2002, doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S1359-835X\(02\)00035-0](http://dx.doi.org/10.1016/S1359-835X(02)00035-0).
- [116] Y. Luo, I. Verpoest, K. Hoes, M. Vanheule, H. Sol, and A. Cardon, "Permeability measurement of textile reinforcements with several test fluids," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 32, no. 10, pp. 1497-1504, 2001/10/01/ 2001, doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S1359-835X\(01\)00049-5](http://dx.doi.org/10.1016/S1359-835X(01)00049-5).
- [117] N. K. Naik, M. Sirisha, and A. Inani, "Permeability characterization of polymer matrix composites by RTM/VARTM," *Progress in Aerospace Sciences*, vol. 65, pp. 22-40, 2014/02/01/ 2014, doi: <https://doi.org/10.1016/j.paerosci.2013.09.002>.
- [118] R. Pomeroy, S. Grove, J. Summerscales, Y. Wang, and A. Harper, "Measurement of permeability of continuous filament mat glass-fibre reinforcements by saturated radial airflow," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 38, no. 5, pp. 1439-1443, 2007/05/01/ 2007, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2006.11.011>.
- [119] J. R. Weitzenböck, R. A. Shenoi, and P. A. Wilson, "Radial flow permeability measurement. Part A: Theory," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 30, no. 6, pp. 781-796, 1999/06/01/ 1999, doi: [https://doi.org/10.1016/S1359-835X\(98\)00183-3](https://doi.org/10.1016/S1359-835X(98)00183-3).
- [120] P. Ouagne and J. Bréard, "Continuous transverse permeability of fibrous media," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 41, no. 1, pp. 22-28, 2010/01/01/ 2010, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.compositesa.2009.07.008>.
- [121] M. Ehresmann, A. Amiri, and C. Ulven, "The effect of different variables on in-plane radial permeability of natural fiber mats," *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, vol. 37, no. 19, pp. 1191-1201, 2018/10/01 2016, doi: [10.1177/0731684416646458](https://doi.org/10.1177/0731684416646458).
- [122] V. H. Nguyen, M. Lagardère, C. H. Park, and S. Panier, "Permeability of natural fiber reinforcement for liquid composite molding processes," *Journal of Materials Science*, vol. 49, no. 18, pp. 6449-6458, 2014/09/01 2014, doi: [10.1007/s10853-014-8374-1](https://doi.org/10.1007/s10853-014-8374-1).
- [123] E. Ameri, G. Lebrun, and L. Laperrière, "In-plane permeability characterization of a unidirectional flax/paper reinforcement for liquid composite molding processes," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 85, pp. 52-64, 2016/06/01/ 2016, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.compositesa.2016.03.002>.

- [124] J. S. Leclerc and E. Ruiz, "Porosity reduction using optimized flow velocity in Resin Transfer Molding," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 39, no. 12, pp. 1859-1868, 2008/12/01/ 2008, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2008.09.008>.
- [125] P. A. Kelly, R. Umer, and S. Bickerton, "Viscoelastic response of dry and wet fibrous materials during infusion processes," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 37, no. 6, pp. 868-873, 2006/06/01/ 2006, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.compositesa.2005.02.008>.
- [126] E. Rodriguez, F. Giacomelli, and A. Vazquez, "Permeability-porosity relationship in RTM for different fiberglass and natural reinforcements," *Journal of composite materials*, vol. 38, no. 3, pp. 259-268, 2004.
- [127] H.-y. Cheung, M.-p. Ho, K.-t. Lau, F. Cardona, and D. Hui, "Natural fibre-reinforced composites for bioengineering and environmental engineering applications," *Composites Part B: Engineering*, vol. 40, no. 7, pp. 655-663, 2009/10/01/ 2009, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2009.04.014>.
- [128] N. Doroudgarian, "High performance bio-based composites: mechanical and environmental durability," Departament de Ciència dels Materials i Enginyeria Metal·lúrgica, Universitat Politècnica de Catalunya, 2016.
- [129] O. Akampumuza, P. Wambua, A. Ahmed, I. Wei, and X.-H. Qin, "A review of the applications of bio composites in the automotive industry," 2015, doi: 10.1002/pc.23847.
- [130] M. John *et al.*, "Bio-based structural composite materials for aerospace applications," in *2nd SAIAS Symposium*, South Africa, 2008.
- [131] X. Wang, M. Petrů, and H. Yu, "The effect of surface treatment on the creep behavior of flax fiber reinforced composites under hygrothermal aging conditions," *Construction and Building Materials*, vol. 208, pp. 220-227, 2019/05/30/ 2019, doi: <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2019.03.001>.
- [132] C. Alves *et al.*, "Ecodesign of automotive components making use of natural jute fiber composites," *Journal of Cleaner Production*, vol. 18, no. 4, pp. 313-327, 2010/03/01/ 2010, doi: <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2009.10.022>.
- [133] G. Lebrun, M. N. Bureau, and J. Denault, "Thermoforming-stamping of continuous glass fiber/polypropylene composites: interlaminar and tool-laminate shear properties," *Journal of thermoplastic composite materials*, vol. 17, no. 2, pp. 137-165, 2004.

- [134] S. P. Haanappel, R. H. W. ten Thije, U. Sachs, B. Rietman, and R. Akkerman, "Formability analyses of uni-directional and textile reinforced thermoplastics," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 56, no. 0, pp. 80-92, 2014/01/01/ 2014, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.compositesa.2013.09.009>.
- [135] A. J. Comer *et al.*, "Mechanical characterisation of carbon fibre-PEEK manufactured by laser-assisted automated-tape-placement and autoclave," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 69, pp. 10-20, 2015/02/01/ 2015, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2014.10.003>.
- [136] B. Denkena, C. Schmidt, and P. Weber, "Automated Fiber Placement Head for Manufacturing of Innovative Aerospace Stiffening Structures," *Procedia Manufacturing*, vol. 6, pp. 96-104, 2016/01/01/ 2016, doi: <https://doi.org/10.1016/j.promfg.2016.11.013>.
- [137] J. P. H. Belnoue *et al.*, "Understanding and predicting defect formation in automated fibre placement pre-preg laminates," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 102, pp. 196-206, 2017/11/01/ 2017, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2017.08.008>.
- [138] G. Lebrun, J. Denault, and M. N. Bureau, "Influence of consolidation and forming parameters in the molding of continuous fibre reinforced thermoplastic composites," in *Proceedings of the Automotive Composites Conference and Exhibition (ACCE-2002)*, Troy, Michigan, USA.
- [139] A. Couture, G. Lebrun, and L. Laperrière, "Mechanical properties of polylactic acid (PLA) composites reinforced with unidirectional flax and flax-paper layers," *Composite Structures*, vol. 154, pp. 286-295, 2016/10/15/ 2016, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2016.07.069>.
- [140] M. Habibi, G. Lebrun, and L. Laperrière, "Experimental characterization of short flax fiber mat composites: tensile and flexural properties and damage analysis using acoustic emission," *Journal of Materials Science*, vol. 52, no. 11, pp. 6567-6580, 2017.
- [141] M. Habibi, L. Laperrière, G. Lebrun, and B. Chabot, "Experimental Investigation of the Effect of Short Flax Fibers on the Permeability Behavior of a New Unidirectional Flax/Paper Composite," *Fibers*, vol. 4, no. 3, p. 22, 2016.
- [142] H. Mohamed, L. Laperrière, and H. Mahi, "Replacing stitching and weaving in natural fiber reinforcement manufacturing, Part 2: mechanical behavior of flax fiber composite laminates," *Journal of Natural Fibers*, 2018, doi: [10.1080/15440478.2018.1494079](https://doi.org/10.1080/15440478.2018.1494079).

- [143] R. Umer, S. Bickerton, and A. Fernyhough, "Characterising wood fibre mats as reinforcements for liquid composite moulding processes," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 38, no. 2, pp. 434-448, 2007/02/01/2007, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.compositesa.2006.03.003>.
- [144] C. Xu, Y. Gu, Z. Yang, M. Li, Y. Li, and Z. Zhang, "Mechanical properties of surface-treated ramie fiber fabric/epoxy resin composite fabricated by vacuum-assisted resin infusion molding with hot compaction," *Journal of Composite Materials*, vol. 50, no. 9, pp. 1189-1198, 2016, doi: 10.1177/0021998315590259.
- [145] I. Van de Weyenberg, J. Ivens, A. De Coster, B. Kino, E. Baetens, and I. Verpoest, "Influence of processing and chemical treatment of flax fibres on their composites," *Composites Science and Technology*, vol. 63, no. 9, pp. 1241-1246, 2003/07/01/ 2003, doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S0266-3538\(03\)00093-9](http://dx.doi.org/10.1016/S0266-3538(03)00093-9).
- [146] G. Coroller et al., "Effect of flax fibres individualisation on tensile failure of flax/epoxy unidirectional composite," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 51, pp. 62-70, 2013/08/01/2013, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2013.03.018>.
- [147] S. Phillips, "Characterization of Flax Fibres for Application in the Resin Infusion Process," PhD, Department of Mechanical Engineering, McGill University, Montreal, Canada, 2013.
- [148] R. Latif, S. Wakeel, N. Zaman Khan, A. Noor Siddiquee, S. Lal Verma, and Z. Akhtar Khan, "Surface treatments of plant fibers and their effects on mechanical properties of fiber-reinforced composites: A review," *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, vol. 38, no. 1, pp. 15-30, 2019/01/01 2018, doi: 10.1177/0731684418802022.
- [149] X. Flambard et al., "Progress in safety, flame retardant textiles and flexible fire barriers for seats in transportation," *Polymer Degradation and Stability*, vol. 88, no. 1, pp. 98-105, 2005/04/01/2005, doi: <https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2004.02.024>.
- [150] M. E. Mngomezulu, M. J. John, V. Jacobs, and A. S. Luyt, "Review on flammability of biofibres and biocomposites," *Carbohydrate Polymers*, vol. 111, pp. 149-182, 2014/10/13 2014, doi: <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2014.03.071>.
- [151] M. Sain, S. H. Park, F. Suhara, and S. Law, "Flame retardant and mechanical properties of natural fibre-PP composites containing magnesium hydroxide," *Polymer Degradation and Stability*, vol. 83, no. 2, pp. 363-367, 2004/02/01 2004, doi: [https://doi.org/10.1016/S0141-3910\(03\)00280-5](https://doi.org/10.1016/S0141-3910(03)00280-5).

- [152] D. K. Debeli, Z. Zhang, F. Jiao, and J. Guo, "Diammonium phosphate-modified ramie fiber reinforced polylactic acid composite and its performances on interfacial, thermal, and mechanical properties," *Journal of Natural Fibers*, vol. 16, no. 3, pp. 342-356, 2019/04/03 2019, doi: 10.1080/15440478.2017.1423255.
- [153] N. P. G. Suardana, M. S. Ku, and J. K. Lim, "Effects of diammonium phosphate on the flammability and mechanical properties of bio-composites," *Materials & Design*, vol. 32, no. 4, pp. 1990-1999, 2011/04/01/ 2011, doi: <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2010.11.069>.
- [154] L. Shumao, R. Jie, Y. Hua, Y. Tao, and Y. Weizhong, "Influence of ammonium polyphosphate on the flame retardancy and mechanical properties of ramie fiber-reinforced poly(lactic acid) biocomposites," *Polymer International*, Article vol. 59, no. 2, pp. 242-248, 2010, doi: 10.1002/pi.2715.
- [155] Y. Shi, D. Belosinschi, F. Brouillette, A. Belfkira, and B. Chabot, "Phosphorylation of Kraft fibers with phosphate esters," *Carbohydrate Polymers*, vol. 106, pp. 121-127, 2014/06/15/ 2014, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.carbpol.2014.01.070>.
- [156] Y. Shi, D. Belosinschi, F. Brouillette, A. Belfkira, and B. Chabot, "The properties of phosphorylated kraft fibers," *BioResources*, vol. 10, no. 3, pp. 4375-4390, 2015.
- [157] F. Shukor, A. Hassan, M. Saiful Islam, M. Mokhtar, and M. Hasan, "Effect of ammonium polyphosphate on flame retardancy, thermal stability and mechanical properties of alkali treated kenaf fiber filled PLA biocomposites," *Materials & Design (1980-2015)*, vol. 54, pp. 425-429, 2014/02/01/ 2014, doi: <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2013.07.095>.
- [158] B. F. Yousif, A. Shalwan, C. W. Chin, and K. C. Ming, "Flexural properties of treated and untreated kenaf/epoxy composites," *Materials & Design*, vol. 40, pp. 378-385, 2012/09/01/ 2012, doi: <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2012.04.017>.
- [159] M. Östlund, S. Borodulina, and S. Östlund, "Influence of Paperboard Structure and Processing Conditions on Forming of Complex Paperboard Structures," *Packaging Technology and Science*, vol. 24, no. 6, pp. 331-341, 2011, doi: 10.1002/pts.942.
- [160] V. Leminen, P. Tanninen, P. Mäkelä, and J. Varis, "Combined effect of paperboard thickness and mould clearance in the press forming process," *BioResources*, vol. 8, no. 4, pp. 5701-5714, 2013.
- [161] A. Vishtal and E. Retulainen, "Boosting the extensibility potential of fibre networks: A review," *BioResources*, vol. 9, no. 4, pp. 7951-8001, 2014.

- [162] M. Wallmeier, M. Hauptmann, and J. P. Majschak, "New Methods for Quality Analysis of Deep-Drawn Packaging Components from Paperboard," *Packaging Technology and Science*, vol. 28, no. 2, pp. 91-100, 2015.
- [163] M. Hauptmann, S. Ehrlert, and J.-P. Majschak, "The Effect of Concave Base Shape Elements on the Three Dimensional Forming Process of Advanced Paperboard Structures," *Packaging Technology and Science*, vol. 27, no. 12, pp. 975-986, 2014, doi: 10.1002/pts.2089.
- [164] V. asbl. "VALORLUX, Ensemble, en route vers un monde durable." <http://valorlux.lu/fr> (accessed consulté le 26 Février 2016, 2016).
- [165] E. Ameri, "Étude de robustesse dans la conception et fabrication d'éco-composites unidirectionnels de type lin-papier," PhD, Génie mécanique, Université du Québec à Trois-Rivières, Trois-Rivières, 2016.
- [166] A. COUTURE, "Étude comparative des propriétés mécaniques d'un éco-composite unidirectionnel à base de lin avec et sans fibres courtes" Master, Département de génie mécanique, Université du Québec à Trois-Rivières, Trois-Rivières, 2015.
- [167] D. U. Shah, D. Porter, and F. Vollrath, "Opportunities for silk textiles in reinforced biocomposites: Studying through-thickness compaction behaviour," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 62, pp. 1-10, 2014/07/01/ 2014, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.compositesa.2014.03.008>.
- [168] R. Gauvin, P. Clerk, Y. Lemenn, and F. Trochu, "Compaction and creep behavior of glass reinforcement for liquid composites molding," *Advanced Composites X*, pp. 357-367, 1994.
- [169] T. Kruckenberg, L. Ye, and R. Paton, "Static and vibration compaction and microstructure analysis on plain-woven textile fabrics," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 39, no. 3, pp. 488-502, 2008/03/01/ 2008, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.compositesa.2007.12.003>.
- [170] H. Lessard, G. Lebrun, A. Benkaddour, and X.-T. Pham, "Influence of process parameters on the thermostamping of a [0/90] 12 carbon/polyether ether ketone laminate," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 70, pp. 59-68, 2015.
- [171] H. LESSARD, "Évaluation expérimentale du procédé de thermoformage - estampage d'un composite peek/carbonne constitué de plis unidirectionnels," GENIE MECANIQUE, Université du Québec à Trois-Rivières, 2014.

- [172] H. Talvensaari, E. Ladstätter, and W. Billinger, "Permeability of stitched preform packages," *Composite Structures*, vol. 71, no. 3, pp. 371-377, 2005/12/01/ 2005, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2005.09.033>.
- [173] C. Lekakou, M. A. K. Johari, D. Norman, and M. G. Bader, "Measurement techniques and effects on in-plane permeability of woven cloths in resin transfer moulding," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 27, no. 5, pp. 401-408, 1996/01/01/ 1996, doi: [https://doi.org/10.1016/1359-835X\(95\)00028-Z](https://doi.org/10.1016/1359-835X(95)00028-Z).
- [174] S. Bickerton, E. M. Sozer, P. J. Graham, and S. G. Advani, "Fabric structure and mold curvature effects on preform permeability and mold filling in the RTM process. Part I. Experiments," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 31, no. 5, pp. 423-438, 2000/05/01/ 2000, doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S1359-835X\(99\)00087-1](http://dx.doi.org/10.1016/S1359-835X(99)00087-1).
- [175] S. Bickerton, E. M. Sozer, P. Šimácek, and S. G. Advani, "Fabric structure and mold curvature effects on preform permeability and mold filling in the RTM process. Part II. Predictions and comparisons with experiments," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 31, no. 5, pp. 439-458, 2000/05/01/ 2000, doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S1359-835X\(99\)00088-3](http://dx.doi.org/10.1016/S1359-835X(99)00088-3).
- [176] G. Morren *et al.*, "A reference specimen for permeability measurements of fibrous reinforcements for RTM," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 40, no. 3, pp. 244-250, 2009/03/01/ 2009, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2008.11.011>.
- [177] S. Debnath and M. Madhusoothanan, "Compression creep behaviour of polyester needle-punched nonwoven fabrics," *The Journal of The Textile Institute*, vol. 103, no. 12, pp. 1328-1334, 2012/12/01 2012, doi: 10.1080/00405000.2012.680696.
- [178] S. Debnath and M. Madhusoothanan, "Compression creep behaviour of jute-polypropylene blended needle-punched nonwoven," *Textile Research Journal*, p. 0040517512445336, 2012.
- [179] G. Francucci and E. S. Rodríguez, "Modeling of the compaction response of jute fabrics in liquid composite molding processes," *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 124, no. 6, pp. 4789-4798, 2012, doi: 10.1002/app.35543.
- [180] G. Baillargeon, Smg, Ed. *Méthode Taguchi: détermination des paramètres*. Trois-Rivières, Québec, 1993.
- [181] R. Arbter *et al.*, "Experimental determination of the permeability of textiles: A benchmark exercise," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 42, no. 9, pp. 1157-1168, 2011/09/01/ 2011, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.compositesa.2011.04.021>.

- [182] V. Rohatgi, N. Patel, and L. J. Lee, "Experimental investigation of flow-induced microvoids during impregnation of unidirectional stitched fiberglass mat," *Polym Compos*, vol. 17, no. 2, pp. 161-170, 1996, doi: 10.1002/pc.10601.
- [183] H. Yang, "Study of a unidirectional flax reinforcement for biobased composite," PhD, Normandie Université, 2017NORMC226, 2017. [Online]. Available: <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01663572>
- [184] N. Martin, P. Davies, and C. Baley, "Comparison of the properties of scutched flax and flax tow for composite material reinforcement," *Industrial Crops and Products*, vol. 61, pp. 284-292, 2014/11/01/2014, doi: <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2014.07.015>.
- [185] I. Van de Weyenberg, T. Chi Truong, B. Vangrimde, and I. Verpoest, "Improving the properties of UD flax fibre reinforced composites by applying an alkaline fibre treatment," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 37, no. 9, pp. 1368-1376, 2006/09/01/2006, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2005.08.016>.
- [186] M. Bar, R. Alagirusamy, and A. Das, "Properties of flax-polypropylene composites made through hybrid yarn and film stacking methods," *Composite Structures*, vol. 197, pp. 63-71, 2018/08/01/2018, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compstruct.2018.04.078>.
- [187] P. Wolszczak, T. Sadowski, and S. Samborski, "On quantitative expression in fibrous composites based on an exemplary distribution of roving glass-fibers," *Composites Part B: Engineering*, vol. 129, pp. 66-76, 2017/11/15/2017, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2017.07.013>.
- [188] B. Chen, A. H. D. Cheng, and T. W. Chou, "A nonlinear compaction model for fibrous preforms," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 32, no. 5, pp. 701-707, 2001/05/01/2001, doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S1359-835X\(00\)00148-2](http://dx.doi.org/10.1016/S1359-835X(00)00148-2).
- [189] R. H. Newman, "Auto-accelerative water damage in an epoxy composite reinforced with plain-weave flax fabric," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 40, no. 10, pp. 1615-1620, 2009/10/01/2009, doi: <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2009.07.010>.
- [190] F. Robitaille and R. Gauvin, "Compaction of textile reinforcements for composites manufacturing. III: Reorganization of the fiber network," *Polym Compos*, vol. 20, no. 1, pp. 48-61, 1999, doi: 10.1002/pc.10334.

- [191] K. Charlet, J.-P. Jernot, M. Gomina, L. Bizet, and J. Bréard, "Mechanical Properties of Flax Fibers and of the Derived Unidirectional Composites," *Journal of Composite Materials*, vol. 44, no. 24, pp. 2887-2896, 2010/11/01 2010, doi: 10.1177/0021998310369579.
- [192] D. U. Shah, P. J. Schubel, P. Licence, and M. J. Clifford, "Determining the minimum, critical and maximum fibre content for twisted yarn reinforced plant fibre composites," *Composites Science and Technology*, vol. 72, no. 15, pp. 1909-1917, 10/12/ 2012, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.compscitech.2012.08.005>.
- [193] G. Francucci and E. Rodriguez, "Processing of plant fiber composites by liquid molding techniques: An overview," *Polym Compos*, vol. 37, no. 3, pp. 718-733, 2016, doi: 10.1002/pc.23229.
- [194] M. Hughes, J. Carpenter, and C. Hill, "Deformation and fracture behaviour of flax fibre reinforced thermosetting polymer matrix composites," (in English), *Journal of Materials Science*, vol. 42, no. 7, pp. 2499-2511, 2007/04/01 2007, doi: 10.1007/s10853-006-1027-2.
- [195] M. Hughes, "Defects in natural fibres: their origin, characteristics and implications for natural fibre-reinforced composites," *Journal of materials science*, vol. 47, no. 2, pp. 599-609, 2012.
- [196] D. H. Page and R. S. Seth, "The elastic modulus of paper 3: The effect of dislocation , microcompression, crul, crimp, and kink," *Tappi*, vol. 63, no. 10, pp. 99-102, 1980 1980.
- [197] R. Rayyaan, W. R. Kennon, P. Potluri, and M. Akonda, "Morphological modification of the technical flax fibre bundles to improve the longitudinal tensile properties of flax fibre reinforced epoxy composites," *arXiv preprint arXiv:1803.03366*, 2018.

## Annexe A - CARACTERISTIQUES DE LA PÂTE KRAFT

Les feuilles de pâtes kraft blanchie, issues de bois résineux, sont obtenues des Produits Forestiers Résolu (St-Félicien, Québec) tandis que la pâte finale est fabriquée par Innofibre du Cégep de Trois-Rivières. Une masse de 2 kg de ces feuilles est mise en suspension dans 18 litres d'eau. Cette suspension est introduite dans un triturateur d'ADIRONDACK Machine Corporation (New York, États-Unis). La trituration se fait sous une fréquence de 30 Hz pendant 30 minutes. La pâte obtenue a une consistance de 10% environ. La Figure A.1 présente le résultat de l'analyse de la pâte fabriquée tandis que la Figure A.2 présente la distribution des longueurs des fibres. Ces résultats ont été obtenus avec l'analyseur de fibres Fiber Quality Analyser (FQA) d'Optest Equipment Inc. (Hawksbury, Canada)

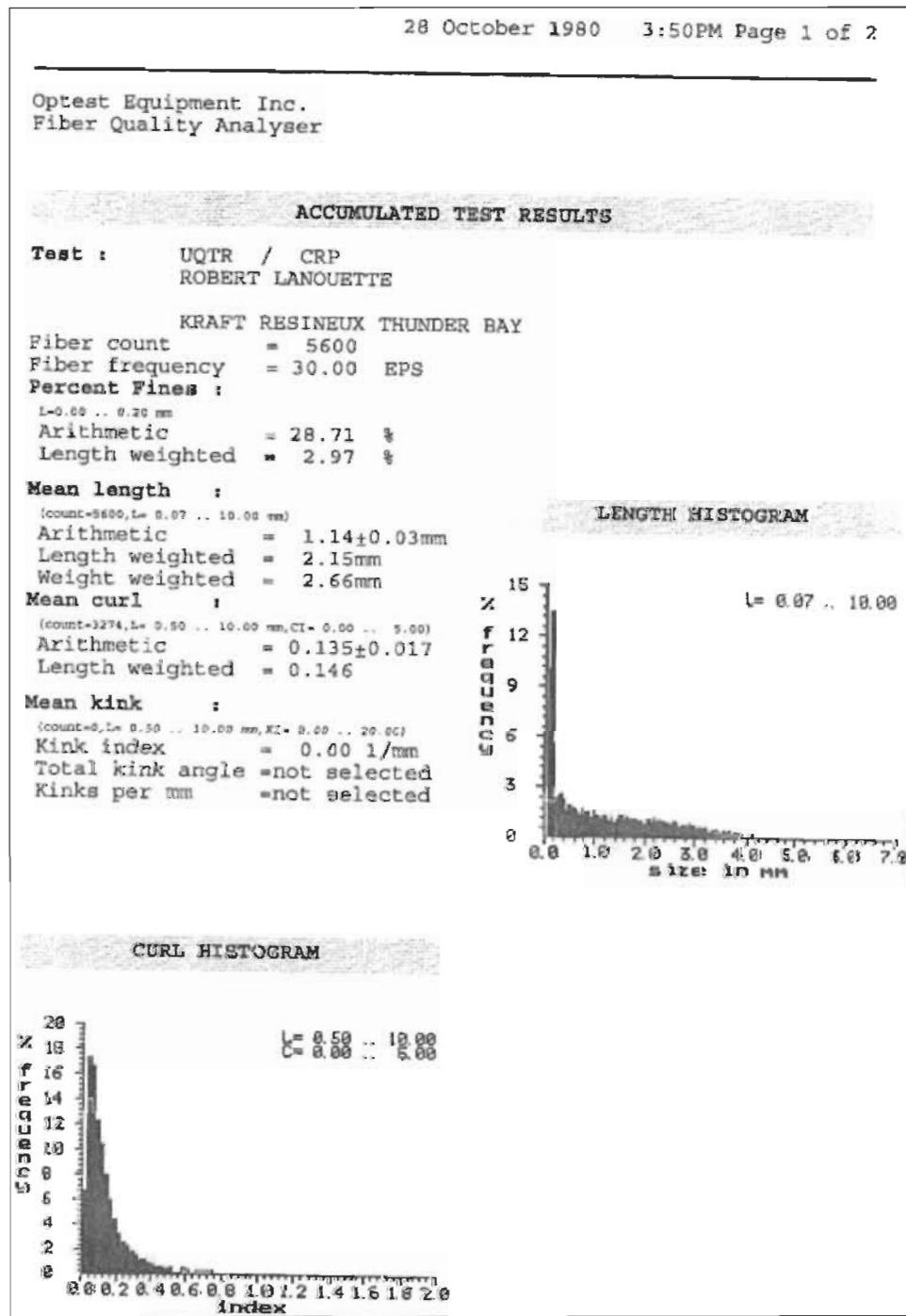


Figure A.1: Résultats de l'analyse de la pâte kraft.

28 October 1980 3:50PM Page 2 of 2							
Optest Equipment Inc. Fiber Quality Analyser							
FIBER LENGTH DISTRIBUTION TABLE							
Test :	UQTR / CRP ROBERT LANOUETTE						
KRAFT RESINEUX THUNDER BAY							
Size in mm	fiber count	Size in mm	fiber count	Size in mm	fiber count	Size in mm	fiber count
0.000..0.049	0	2.500..2.549	41	5.000..5.049	0	7.500..7.549	0
0.050..0.099	556	2.550..2.599	50	5.050..5.099	0	7.550..7.599	0
0.100..0.149	746	2.600..2.649	46	5.100..5.149	0	7.600..7.649	0
0.150..0.199	306	2.650..2.699	30	5.150..5.199	0	7.650..7.699	0
0.200..0.249	127	2.700..2.749	39	5.200..5.249	1	7.700..7.749	0
0.250..0.299	133	2.750..2.799	38	5.250..5.299	0	7.750..7.799	0
0.300..0.349	142	2.800..2.849	30	5.300..5.349	0	7.800..7.849	0
0.350..0.399	124	2.850..2.899	46	5.350..5.399	0	7.850..7.899	0
0.400..0.449	87	2.900..2.949	34	5.400..5.449	0	7.900..7.949	0
0.450..0.499	105	2.950..2.999	33	5.450..5.499	0	7.950..7.999	0
0.500..0.549	96	3.000..3.049	25	5.500..5.549	0	8.000..8.049	0
0.550..0.599	91	3.050..3.099	33	5.550..5.599	0	8.050..8.099	0
0.600..0.649	89	3.100..3.149	29	5.600..5.649	0	8.100..8.149	0
0.650..0.699	75	3.150..3.199	30	5.650..5.699	0	8.150..8.199	0
0.700..0.749	95	3.200..3.249	28	5.700..5.749	0	8.200..8.249	0
0.750..0.799	71	3.250..3.299	17	5.750..5.799	0	8.250..8.299	0
0.800..0.849	81	3.300..3.349	20	5.800..5.849	0	8.300..8.349	0
0.850..0.899	78	3.350..3.399	29	5.850..5.899	0	8.350..8.399	0
0.900..0.949	65	3.400..3.449	20	5.900..5.949	0	8.400..8.449	0
0.950..0.999	84	3.450..3.499	17	5.950..5.999	0	8.450..8.499	0
1.000..1.049	68	3.500..3.549	16	6.000..6.049	0	8.500..8.549	0
1.050..1.099	64	3.550..3.599	19	6.050..6.099	0	8.550..8.599	0
1.100..1.149	54	3.600..3.649	14	6.100..6.149	0	8.600..8.649	0
1.150..1.199	68	3.650..3.699	18	6.150..6.199	0	8.650..8.699	0
1.200..1.249	62	3.700..3.749	9	6.200..6.249	0	8.700..8.749	0
1.250..1.299	50	3.750..3.799	13	6.250..6.299	0	8.750..8.799	0
1.300..1.349	61	3.800..3.849	13	6.300..6.349	0	8.800..8.849	0
1.350..1.399	46	3.850..3.899	5	6.350..6.399	0	8.850..8.899	0
1.400..1.449	55	3.900..3.949	4	6.400..6.449	1	8.900..8.949	0
1.450..1.499	57	3.950..3.999	4	6.450..6.499	0	8.950..8.999	0
1.500..1.549	65	4.000..4.049	5	6.500..6.549	0	9.000..9.049	0
1.550..1.599	52	4.050..4.099	9	6.550..6.599	0	9.050..9.099	0
1.600..1.649	60	4.100..4.149	2	6.600..6.649	1	9.100..9.149	0
1.650..1.699	59	4.150..4.199	1	6.650..6.699	0	9.150..9.199	0
1.700..1.749	58	4.200..4.249	2	6.700..6.749	0	9.200..9.249	0
1.750..1.799	57	4.250..4.299	1	6.750..6.799	0	9.250..9.299	0
1.800..1.849	55	4.300..4.349	1	6.800..6.849	0	9.300..9.349	0
1.850..1.899	49	4.350..4.399	2	6.850..6.899	0	9.350..9.399	0
1.900..1.949	51	4.400..4.449	1	6.900..6.949	0	9.400..9.449	0
1.950..1.999	36	4.450..4.499	1	6.950..6.999	0	9.450..9.499	0
2.000..2.049	54	4.500..4.549	3	7.000..7.049	0	9.500..9.549	0
2.050..2.099	53	4.550..4.599	3	7.050..7.099	0	9.550..9.599	0
2.100..2.149	42	4.600..4.649	1	7.100..7.149	0	9.600..9.649	0
2.150..2.199	63	4.650..4.699	1	7.150..7.199	0	9.650..9.699	0
2.200..2.249	53	4.700..4.749	0	7.200..7.249	0	9.700..9.749	0
2.250..2.299	54	4.750..4.799	2	7.250..7.299	0	9.750..9.799	0
2.300..2.349	52	4.800..4.849	1	7.300..7.349	0	9.800..9.849	0
2.350..2.399	51	4.850..4.899	2	7.350..7.399	0	9.850..9.899	0
2.400..2.449	66	4.900..4.949	0	7.400..7.449	0	9.900..9.949	0
2.450..2.499	63	4.950..4.999	0	7.450..7.499	0	9.950..9.999	0

Figure A.2: Table de distribution de la longueur des fibres

## Annexe B - DOSAGE DU TAUX DE PHOSPHORE

### Étape 1: digestion des fibres

Dans un erlenmeyer de 200ml, peser 0,5g de fibres. Sous la hotte,

- Rajouter 10ml de  $\text{H}_2\text{SO}_4$  concentré et laisser l'acide digérer la fibre à température ambiante ( $T_a$ ) pendant 30min; puis chauffer à 60 °C pendant 15min.
- Verser goutte à goutte et constamment 10 ml de peroxyde d'hydrogène. Cette étape demande des précautions accrues car elle peut générer des projections de liquides.
- Rajouter 75ml d'eau déionisée et porter le mélange à ébullition pendant 10min.
- Laisser refroidir.
- Transvaser le mélange dans une fiole de 100ml puis compléter au trait de jauge par de l'eau déionisée.

### Étape 2: Préparation des échantillons à doser

- Mettez 0,125ml de la solution de fibre dans une fiole de 10ml.
- Rajouter successivement 0,5ml d'une solution d'heptamolybdate d'ammonium (0,005M) et 1ml de solution de sulfite de sodium (10% m/v).
- Compléter par de l'eau déionisée et laisser reposer pendant 24h avant de lire l'absorbance à 715nm.

Pour chaque échantillon, préparer 4 tubes et prendre la moyenne d'absorbance. La loi de Beer Lambert permet de déterminer la concentration des ions phosphate.

Après avoir déterminé la concentration d'ions phosphate en solution, il est possible de calculer le taux de phosphore en connaissant la masse de fibres et la masse de phosphore. La masse de fibre peut être calculée à partir de l'équation B.1:

$$m_{ff} = \frac{V_{fd} \times m_{fd}}{V_d} \quad (B.1)$$

Avec  $m_{ff}$  la masse (en mg) de fibres dans la fiole UV-visible,  $V_{fd}$  (0.125 mL) le volume de la solution de fibres digérées (0,125 ml),  $m_{fd}$  le masse de fibres digérées (500 mg) et  $V_d$  le volume de la fiole (100mL).

La masse  $m_p$  de phosphore se calcule à partir de l'équation B.2:

$$m_p = \frac{C \times V_c \times M_p}{M_{H_2P}} \quad (B.2)$$

Où  $m_p$  désigne la masse de phosphore dans la fiole (en mg),  $V_c$  le volume en litre (0,01 L) de la cuve,  $M_p$  la masse molaire du phosphore (30.97 g/mol),  $M_{H_2P}$  la masse molaire de l'ion dihydrogénophosphate (97 g/mol) et  $C$  la concentration (mg/L) en ions dihydrogénophosphate. Dès lors, on peut déterminer le taux de phosphore à partir de l'équation B.3:

$$P(\%) = \frac{m_p}{m_{ff}} \times 100 \quad (B.3)$$

Dans notre cas le taux de phosphore calculé est de 0,5% pour les fibres courtes et les fibres longues de lin.

## Annexe C - LISTE DE PUBLICATIONS

- **Articles de journaux publiés**

R. S. Mbakop, G. Lebrun, and F. Brouillette, "Experimental analysis of the planar compaction and preforming of unidirectional flax reinforcements using a thin paper or flax mat as binder for the UD fibers," *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, vol. 109, pp. 604-614, 2018/06/01/ 2018.

R. S. Mbakop, G. Lebrun, and F. Brouillette, "Effect of compaction parameters on preform permeability and mechanical properties of unidirectional flax fiber composites," *Composites Part B: Engineering*, p. 107083, 2019/07/02/ 2019.

- **Articles de journaux en préparation**

R. S. Mbakop, F. Brouillette, and G. Lebrun, "Effect of phosphorylation on the planar compaction of unidirectional flax reinforcements made using a thin flax mat as binder for the UD fibers and mechanical properties of their composites,"

R. S. Mbakop, G. Lebrun, and F. Brouillette, "Effect of flax fiber reinforcements architecture on the planar compaction and mechanical properties of their composites,"

- **Articles de conférence**

R. S. Mbakop, G. Lebrun, and F. Brouillette, Experimental study of the planar compaction and conformation of unidirectional flax reinforcements using thin paper or flax mats as binder for the UD fibers, CANCOM 2018.

R. S. Mbakop, G. Lebrun, and F. Brouillette, Experimental Study of the Compaction and Preforming of Unidirectional Flax-Mat Reinforcements, ACM4, 2019.