

Composite lin/époxy : optimisation par plan d'expériences

Flax/epoxy composite: optimization by experimental design

V.Hancco ¹, C. Poilâne ¹⁻² et J. Chen ¹

1 : Université de Caen Basse-Normandie, EA 4257, F-14032 Caen
e-mail : christophe.poilane@unicaen.fr

2 : LAUM UMR CNRS 6613, Université du Maine, Av. O. Messiaen, 72085 LE MANS, France
e-mail : Christophe.Poilane@univ-lemans.fr

Résumé

Le taux de porosités, V_p , est un paramètre critique, à minimiser pour les composites à fibres végétales. On présente une étude statistique de l'influence des porosités dans un « primaire » lin/époxy élaboré avec du sergé 2/2. Nous optimisons un protocole de moulage au contact à l'aide d'un plan d'expériences. Les facteurs sont liés à l'élaboration. Les réponses sont d'ordre morphologique, mécanique et hygroscopique. Le plan d'expériences a permis d'élaborer 9 plaques avec un taux de porosités, indépendant du taux de fibres, variant de quelques pourcents à environ 20 pourcents. Le premier intérêt de la démarche est de permettre un criblage des facteurs qui influent sur l'élaboration. On dégage un protocole optimal pour lequel V_p est minimal, la saturation en eau vaut 7,5 % et la résistance en flexion vaut 152 MPa. Le second intérêt est que la grande variation des réponses permet d'effectuer une étude statistique. On démontre que la résistance en flexion, la masse volumique et la saturation sont directement corrélées à V_p , et que le module de flexion et la diffusion sont corrélés à la masse volumique. Ceci nous permet de proposer deux stratégies permettant de valider un composite à fibres végétales au sens de la minimisation de V_p .

Abstract

For vegetal fibres based composites, the porosity ratio, V_p , is a parameter to be minimise. We analyse the effect of porosities in a flax/époxy *primaire* made from twill 2/2. We used an experimental design to optimize a contact moulding process. The process gives us the factors. The answers are morphologic, mechanic and hygroscopic. The experimental design offers to make 9 samples where the porosity ratio is independant to the fibre ratio. It varies from zero to about twenty pourcents. The aim is firstly to detect the factors wich have an effect on the answers, and secondly to do one statistical study taking in account all the answers. We found an optimal process where V_p is minimal, the water saturation is 7,5 % and the bending strenght is 152 MPa. The bending strenght, the density and the water saturation are correlated to V_p . The bending modulus and the diffusion coefficient are correlated to the density. We gives finally two propositions to validate such a composites by doing the minimisation of the porosity ratio, V_p .

Mots Clés : fibres végétales, plan d'expériences, taux de porosités

Keywords : vegetal fibers, experiment design, porosity ratio

1. Introduction

L'utilisation des fibres végétales dans le secteur des matériaux composites est passée au stade industriel depuis bon nombre d'années. Après des applications non structurelles dans l'automobile, des applications structurelles, à faibles propriétés toutefois, ont vu le jour dans le secteur des sports et loisir. Les clients majeurs des matériaux composites, comme le secteur aéronautique, s'intéressent dorénavant aux matériaux composites bio-sourcés, pour des raisons écologiques et/ou marketing. Les contraintes de qualité impactent inévitablement de plus en plus le secteur des composites bio-sourcés.

Dans ce contexte, les points faibles de ces matériaux font et doivent faire l'objet d'analyses rigoureuses. Parmi ces points faibles, on peut citer la variabilité élevée des propriétés des fibres végétales [1], leur structure tubulaire/multicouche [2], leur grande affinité avec l'humidité associée à une diminution des propriétés mécaniques des composites proportionnelle au taux d'humidité [3] et la difficulté qu'ont les élaborateurs à compatibiliser les renforts et la matrice. Par delà ces points

faibles, la présence de porosités dans une structure composite à fibres végétales est révélatrice des difficultés que pose l'utilisation de ces fibres dans le secteur des composites. Les porosités, difficiles à réduire en deçà de 2 % dans les composites conventionnels, sont un véritable problème en industrie [4]. Dans le cas des composites à renfort bio-sourcés, comme le lin/époxy, leur réduction en nombre et en volume est certainement l'un des défis les plus difficiles à atteindre. Nous présentons une analyse de l'influence des facteurs d'élaboration sur diverses propriétés d'un composite lin/époxy. La technique choisie est celle des plans d'expériences. Les produits élaborés sont 9 plaques stratifiées identiquement.

Le premier chapitre vise à décrire le matériau et le protocole d'élaboration. Le second chapitre consiste à faire un bilan des paramètres d'entrée, des paramètres de sortie et des incertitudes qui leurs sont associées. Nous montrons que notre plan expérimental affecte en premier lieu le taux de porosités. Ceci se répercute ensuite sur la quasi-totalité des propriétés mesurées, qu'elles soient morphologiques, mécaniques ou hygrométriques. Le troisième chapitre porte sur l'analyse statistique des résultats et est décomposée en trois parties : une réflexion sur le taux de porosités, le dépouillement du plan expérimental et la recherche de corrélation entre les différentes propriétés.

2. Protocole expérimental

2.1 Le matériau

Les échantillons sont élaborés avec du « primaire » lin/époxy fourni par Lineo NV. Il s'agit d'un tissu imprégné d'environ 15 % de résine sans durcisseur auquel on ajoute la même résine et le durcisseur lors de l'élaboration. Le tissu est un sergé 2/2 équilibré dont la maille fait environ 1 mm de côté. Le grammage fait 200 g/m² pour des fils titrés à 104,2 g/km ou 300 g/m² pour des fils titrés à 138,9 g/km. La différence entre les deux produits se résume ainsi à la différence entre leur facteur de remplissage, c'est à dire à l'espace visible au centre de chaque maille. Les fibres constitutives proviennent de la filière textile et ne sont pas sélectionnées. Le tissu subit un pré-traitement avant imprégnation de la résine, on peut parler d'une étape d'ensimage. Le primaire est par la suite stocké à température ambiante et peut être utilisé en infusion ou en RTM. Pour des raisons matérielles, et pour agir facilement sur les facteurs d'élaboration, nous effectuons au laboratoire un moulage au contact. Les plaques élaborées font 110 mm x 200 mm et comportent 6 plis de même orientation.

2.2 Le plan d'expériences

Le plan d'expériences est une technique statistique qui permet d'identifier et de quantifier les effets de divers facteurs sur des réponses expérimentales. On organise une suite d'essais consistant à manipuler les facteurs afin de décrire la méthode permettant d'obtenir la réponse optimale. On peut alors établir une modélisation du phénomène étudié [5].

FACTEUR	NIVEAU 1	NIVEAU 2
1 fréquence de mise en œuvre	tous les 3 plis	tous les 6 plis
2 utilisation d'un rouleau débulleur	oui	non
3 évacuation de l'excès de résine à la raclette	oui	non
4 compactage avant cuisson durant 2 heures	pression (masse)	dépression (vide)
5 pression durant la cuisson	faible	élevée
6 utilisation d'un tissu de drainage	oui	non
7 grammage	200	300

Tab. 1. Facteurs et niveaux retenus pour l'élaboration.

La durée allouée à la mise au point du plan d'expériences et l'élaboration des plaques fut de un mois, ce qui limite l'étendue du plan. Notre étude est basée sur un plan fractionnaire factoriel tiré de

la table L8 de Taguchi. Ce plan permet d'étudier au maximum sept facteurs de deux niveaux en huit expériences. On effectue au mieux un criblage, c'est à dire la mise en évidence des facteurs influents et des facteurs négligeables. Pour cela, on émet l'hypothèse forte qu'il n'y a pas d'interaction entre les facteurs. Autrement dit, on considère que les effets d'un facteur ne peuvent pas être amplifiés ou neutralisés par un ou plusieurs autres facteurs.

Les facteurs adoptés, avec leurs deux niveaux respectifs, sont donnés dans le tableau 1 (Tab. 1). Ce sont des facteurs qualitatifs. Il faut noter que le septième facteur a été identifié en cours de projet et vient perturber l'orthogonalité du plan d'expériences. En ce sens, le travail expérimental proposé n'est pas optimal et doit être analysé avec prudence. L'élaboration en moulage au contact avec des primaires est nouvelle au laboratoire. Le protocole retenu a pour objectif de déterminer les facteurs pertinents et d'apporter ainsi une aide à l'optimisation de l'élaboration. Nous n'avons pas d'idée préconçue quant à l'effet des facteurs. Le septième facteur permet d'identifier l'influence du facteur de remplissage du tissu utilisé. Le plan adopté est décrit par le tableau suivant (Tab. 2).

PLAQUE	FRÉQ.	R. DÉB.	COMPAC.	RACLETTE	PRESSION	T. DRAIN.	GRAMMAGE
1	3 plis	avec	p_0	avec	faible	avec	300
2	3 plis	avec	p_0	sans	élevée	sans	200
3	3 plis	sans	p_{am}	avec	faible	sans	200
4	3 plis	sans	p_{am}	sans	élevée	avec	200
5	6 plis	avec	p_{am}	avec	élevée	sans	200
6	6 plis	avec	p_{am}	sans	faible	avec	300
7	6 plis	sans	p_0	avec	élevée	avec	300
8	6 plis	sans	p_0	sans	faible	sans	300
9	6 plis	avec	p_0	avec	faible	avec	200

Tab. 2. Organisation des expériences.

3. Les paramètres de l'étude

3.1 Paramètres d'entrée

Chaque plaque élaborée suivant le plan d'expériences est mesurée (Tab. 3).

GRANDEUR	NOM	UNITÉ	ORIGINE	VALEUR MINI	VALEUR MAXI
densité volumique fibre	ρ_f	kg/m ³	biblio + mesure	1540±100	
densité volumique résine	ρ_r	kg/m ³	donnée fabriquant	1150±50	
densité volumique catalyseur	ρ_y	kg/m ³	donnée fabriquant	945±5	
longueur	L	mm	mesure	110±0,5	110,6±0,5
largeur	l	mm	mesure	204,6±0,5	209,7±0,5
épaisseur	e	mm	mesure	2,01±0,1	3,73±0,1
masse primaire	m_p	g	mesure	32,5±0,1	48,5±0,1
masse plaque stratifiée	m_c	g	mesure	54,2±0,1	94,4±0,1

Tab. 3. Paramètres d'entrée.

Les masses sont mesurées après séchage des produits durant 24 h. La densité volumique du lin s'entend « lumen soustrait » et « fibre sèche ». Elle est issue de notre recherche bibliographique et est confirmée par des mesures au laboratoire. Les densités volumiques de la résine et du catalyseur sont fournies par le fabriquant. La longueur et la largeur des plaques sont évidemment indépendantes du protocole expérimental. Par contre, on peut noter que l'épaisseur et la masse

varient beaucoup d'une plaque à l'autre. Une part de ces variations provient de la différence de grammage entre les deux primaires utilisés, l'autre part provient des différences de proportion de fibres, de matrice et de porosités.

Ces données permettent d'estimer la masse des différents constituants pour chaque plaque (Fig. 1). On en déduit la densité de la matrice, ρ_m , et le grammage *in situ* des tissus de lin, D^S . La densité de la matrice varie de $1095 \pm 43 \text{ kg/m}^3$ à $1106 \pm 48 \text{ kg/m}^3$. Le grammage *in situ* des deux tissus est obtenu en recalant un calcul et une mesure. On trouve $208 \pm 20 \text{ kg/m}^2$ et $306 \pm 20 \text{ kg/m}^2$ respectivement.

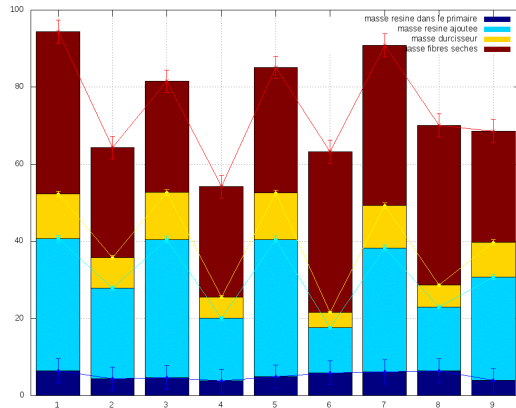


Fig. 1. Masse des différents constituants.

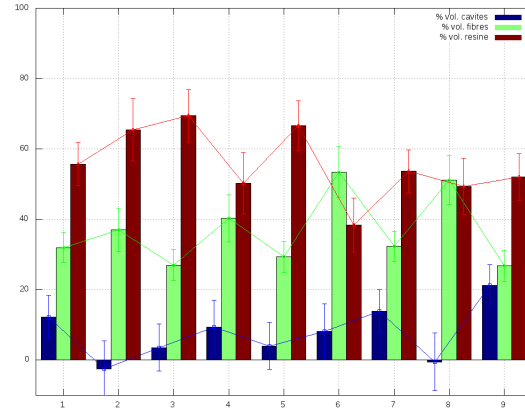


Fig. 2. Proportion de fibres, matrice et porosités.

3.2 Paramètres de sortie

Les paramètres de sortie sont les réponses du plan d'expériences. On distingue des grandeurs morphologiques, mécaniques et hygrométriques. Les trois tableaux ci-après synthétisent les résultats obtenus (Tab. 4, 5 et 6). Les taux de fibres, de matrice et de porosités sont tracés ci-dessus (Fig. 2). Ils sont déterminés via les mesures de dimension et de masse. On remarque que certaines mesures aboutissent à des taux de porosités négatifs ! On reviendra sur ce point dans le prochain chapitre.

GRANDEUR	NOM	UNITÉ	VALEUR MINI	VALEUR MAXI
densité plaques stratifiées	ρ_c	kg/m3	982±11	1332±17
Taux de fibres	V_f	%	27±3	53±5
Taux de matrice	V_m	%	38±8	69±7
Taux de porosités	V_p	%	-2±8	21±8

Tab. 4. Réponses morphologiques.

Les propriétés mécaniques sont obtenues par des essais de flexion 3 points conformes à la norme. Deux échantillons sont prélevés et testés par plaque. Les courbes contrainte/déformation sont reportées ci-après pour l'échantillon le plus rigide (Fig. 3). La contrainte à rupture est mesurée via un calcul de moyenne sur une dizaine de valeurs précédant la rupture. Le module de flexion est mesuré via un calcul de pente à l'origine.

GRANDEUR	NOM	UNITE	VALEUR MINI	VALEUR MAXI
Module de flexion	E^F	GPa	5,2	9,2
Contrainte à rupture	σ^F	MPa	92	154
Déformation à rupture	ε^F	%	2,6	3,8

Tab. 5. Réponses mécaniques.

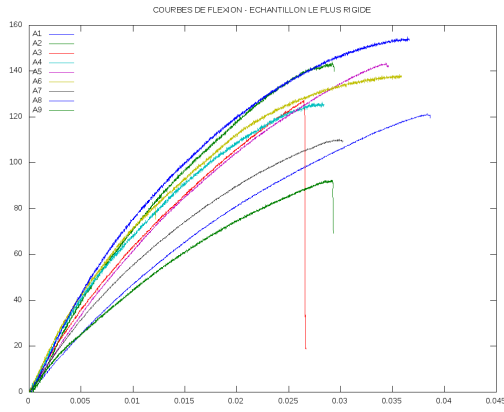


Fig. 3. Contrainte / déformation en flexion.

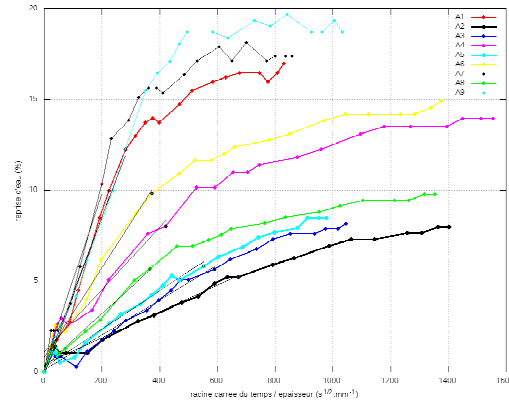


Fig. 4. Courbe de sorption.

Les propriétés hygrométriques sont mesurées par des essais de sorption (Fig. 4). Un échantillon de 100 mm x 100 mm est testé pour chaque plaque. La teneur en eau à saturation est mesurée via un calcul de moyenne sur une dizaine de valeurs en fin d'essai. Le coefficient de diffusion est mesuré via un calcul de pente dans la zone comprise entre 0 % et 70 % de reprise d'eau. Les artefacts visibles en début d'essai n'ont pas d'influence sur les résultats.

GRANDEUR	NOM	UNITÉ	VALEUR MINI	VALEUR MAXI
saturation	M°	%	8	19
coefficient de diffusion	D	mm ² /s	$1,6 \cdot 10^{-7}$	$14,9 \cdot 10^{-7}$

Tab. 6. Réponses hygrométriques.

4. Résultats et discussion

4.1 À propos du taux de porosités

L'estimation du taux de porosités est basée sur l'équivalence entre le volume d'une plaque et le volume cumulé de la matrice, des fibres et des porosités. On aboutit à la relation suivante :

$$V_p = 1 - \frac{m}{L \cdot l \cdot e \cdot \rho_m} + 6 \cdot D^S \cdot \left(\frac{1}{\rho_m} - \frac{1}{\rho_f} \right) \quad (\text{Éq. 1}).$$

On a vu que l'application de cette relation, moyennant les valeurs décrites précédemment, peut aboutir à des taux de porosités négatifs. Les valeurs élevées des incertitudes n'empêchent pas la présence d'un biais dans les résultats. De simples observations des plaques prouvent par ailleurs qu'elles sont toutes pourvues de porosités.

C'est sur les densités surfaciques ou volumiques que l'on rencontre les incertitudes relatives les plus importantes. Les niveaux d'incertitude de chaque paramètre qui intervient dans cette relation laissent ainsi place à trois possibilités : D^S sous évalué, ρ_m sous évalué, ρ_f sous évalué.

La sensibilité du taux de porosités à ces trois densités n'est pas identique (ρ_f et ρ_m sont dépendants de D^S). Pour que les taux de porosités soit tous positifs, il faudrait augmenter D^S de 20 %, ρ_f de 7%, ou ρ_m de 4 %. On peut aussi évidemment envisager toute autre combinaison...

Grammage des plis de lin

D^S est, d'une part, déterminé en recalant un calcul et une mesure et, d'autre part, donné par le tisseur avec une incertitude d'environ 10 %. Une sous estimation de ce paramètre de 20 % semble impossible.

Masse volumique de la matrice

La mesure de la densité de la matrice réelle est exclue, ne serait-ce que par son manque d'homogénéité. ρ_m est donc déduite de ρ_r et ρ_y et de leurs proportions. On aboutit à une incertitude de 5 %. Le changement de phase de la résine et toute autre transformation chimique ayant lieu pendant la cuisson des stratifiés ne sont pas, par ailleurs, caractérisés. On peut donc supposer que la relation entre la densité de la matrice et la densité de ses constituants n'est pas vraiment linéaire. Une sous estimation systématique de ρ_m d'au moins 4 % est envisageable.

Masse volumique des fibres de lin

La masse volumique du lin a été mesurée à l'ambiante au laboratoire. Deux échantillons de fibres élémentaires ont été prélevés dans un même lot. Le premier échantillon a fait l'objet d'une mesure de diamètre apparent moyen de chaque fibre par microscopie optique. Le second échantillon a été pesé et a fait l'objet d'une mesure longueur de chaque fibre. Nous pouvons ainsi donner une estimation du volume et de la masse d'un échantillon moyen. Ce volume doit être corrigé par un facteur d'humidité K^H (le lin écru, c'est à dire non traités, montre une reprise d'humidité, C^∞ , d'environ 8 % à l'ambiante), un facteur de forme K^F (la fibre est en moyenne de section hexagonale) et un facteur de remplissage K^R (le lumen occupe, selon notre recherche bibliographique, entre 1 % et 6 % du volume des fibres élémentaires). La relation finale est la suivante :

$$\rho_f = K^H \cdot K^F \cdot K^R \cdot \frac{m}{v} \quad (\text{Éq. 2}).$$

Nos mesures aboutissent à une masse volumique moyenne comprise entre 1490 kg/m^3 pour un lumen occupant 1 % des fibres et 1580 kg/m^3 pour un lumen occupant 6 % des fibres. La littérature mentionne par ailleurs une masse volumique de 1450 kg/m^3 à 1540 kg/m^3 . Les conditions opératoires n'étant pas toujours fournies par les auteurs, on peut supposer que les corrections ne sont pas toujours apportées. En guise d'exemple, notons qu'une mesure conventionnelle, que nous avons effectuée par la méthode du pycnomètre en milieu liquide, aboutit à une masse volumique de 1420 kg/m^3 . Mais le volume d'eau ayant pénétré dans les fibres durant l'essai n'est pas connu ! Nous retenons pour le lin $\rho_f = 1540 \pm 100 \text{ kg/m}^3$. Une sous estimation systématique de ρ_f d'au moins 7 % dans le composite nous semble plausible pour les raisons détaillées au prochain paragraphe.

Masse volumique *in situ* des fibres de lin

Nous avons identifié trois causes qui peuvent expliquer une augmentation de la masse volumique des fibres de lin présentes dans le composite. En premier lieu, malgré le pré-traitement des tissus, les primaires ne sont pas totalement hydrophobes. On mesure une reprise d'eau d'environ 2 % de ceux-ci à l'ambiante. Une partie de cette eau reste probablement piégée au sein des renforts sous forme d'eau liée. En second lieu, on peut supposer que le renfort subit localement des compressions transversales irréversibles lors de l'élaboration. Ceci est visible sur la figure 5, où les lumens sont fortement écrasés, et sur la figure 6, où l'on compare le module de traction de trois UD, un lin/époxy analysé au laboratoire, puis un kevlar/époxy et un verre/époxy tirés de la référence [6]. On note une similitude entre la faible rigidité à 90° du lin/époxy et du kevlar/époxy. Cette faiblesse de comportement concernant le kevlar est attribuée par l'auteur soit à un manque de rigidité transversale du renfort lui-même, soit à une mauvaise interface. Ce sont deux phénomènes que nous pouvons retrouver avec le lin. Enfin, il n'est pas exclu qu'une partie des produits utilisés lors de l'ensimage et de l'imprégnation pénètre dans les fibres augmentant ainsi la densité apparente du lin.

L'hypothèse la plus probable est une sous-estimation de la masse volumique du lin *in situ*. Pour la suite des analyses, nous augmentons donc artificiellement la densité du lin de 10%. Ceci n'affecte aucunement l'analyse mais permet de corriger le biais et d'obtenir des taux de porosités tous positifs.

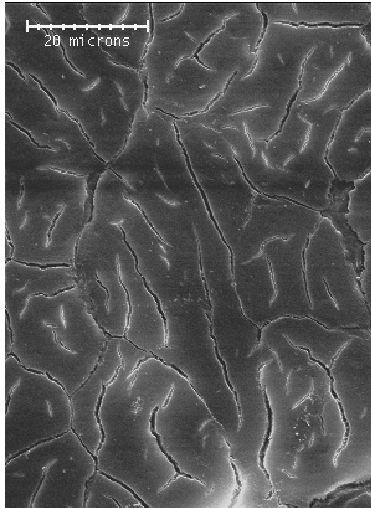


Fig. 5. Section d'un UD lin/époxy.

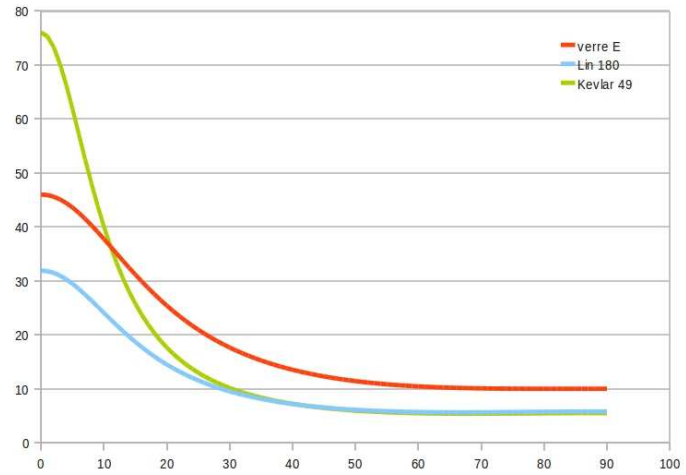


Fig. 6. Module de traction selon l'orientation.

4.2 Dépouillement du plan d'expériences

Rappelons que les facteurs optés pour élaborer les plaque stratifiées sont la *fréquence de mise en œuvre*, le *rouleau débulleur*, la *raclette*, le *compactage avant cuisson*, la *pression durant la cuisson*, le *tissu de drainage*, et le *grammage des tissus de lin* (Tab. 1).

Le dépouillement du plan d'expériences est avant tout une analyse de variance effectuée pour chaque réponse. Nous appliquons la méthode de régression descendante. Au premier pas, un modèle est établi en prenant en compte les sept facteurs. Pour chaque facteur, on calcule la probabilité que son effet ne soit pas nul par un test de Fisher. Si des facteurs sont statistiquement sans effet sur la réponse, le plus négligeable est supprimé du jeu de données, le modèle est alors recalculé avec les six facteurs restants. Ce test est réitéré jusqu'à ce qu'il ne reste que des facteurs ayant un effet sur la réponse. On fixe traditionnellement la barre de test à 95 %. Ceci revient à tracer une régression linéaire entre la réponse et chaque facteur et à éliminer les cas pour lesquels la nullité de la pente est sûre avec une probabilité supérieure à 95 %.

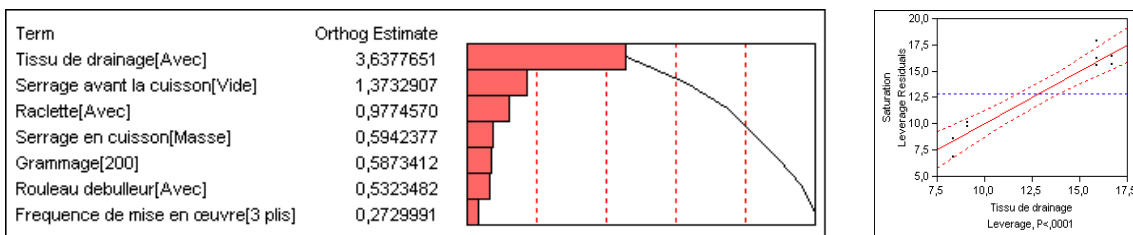


Fig. 7. Analyse de la saturation : test initial à gauche et effet du tissu de drainage à droite.

Le diagramme de Pareto ci-dessus permet de visualiser le test (Fig. 7). Il correspond au premier pas de calcul effectué sur la réponse saturation. Le facteur le moins influent est ici la fréquence de mise en œuvre. C'est un facteur sans effet sur la saturation en eau du composite. La régression descendante révélera finalement que deux facteurs sont « non négligeables » : le compactage avant cuisson, et l'utilisation d'un tissu de drainage. L'effet du tissu de drainage est visible Fig. 7. L'utilisation d'un tissu de drainage, dans les conditions opératoires que nous avons adoptées, augmente la saturation en eau du composite lors d'un test de sorption avec une probabilité supérieure à 99,999 %.

Les coefficients retenus, donnés ci-dessous (Tab. 7), permettent d'établir le modèle saturation :

$$M^\infty = 12,35 + 1,06 \cdot x_1 + 3,79 \cdot x_2 \quad (\text{Éq. 3})$$

avec $x_1 = -1$ si compactage à l'ambiante avant la cuisson, $x_1 = 1$ si compactage sous vide avant la cuisson, $x_2 = -1$ si le tissu de drainage n'est pas utilisé et $x_2 = 1$ si le tissu de drainage est utilisé.

TERM	ESTIMATE	STD ERROR	T RATIO	PROB> T
Intercept	12,35	0,41	29,96	<,0001
Compactage [Vide]	1,07	0,41	2,59	0,04
T. de drainage [Avec]	3,79	0,41	9,21	<,0001

Tab. 7. Coefficients finaux du modèle saturation.

On représente ci-dessous les effets de chaque facteur sur les réponses testées (Tab. 8). L'effet d'un facteur sur une réponse est noté « - » s'il est jugé négatif, « + » s'il est jugé positif, « ? » si on ne sait pas le qualifier. Par exemple, le taux volumique de fibres doit être maximisé, le taux volumique de porosités doit être minimisé, mais qu'en est-il du taux volumique de matrice ?

FACTEUR ET NIVEAU DE RÉFÉRENCE	e	ρ_c	V_p	V_f	V_m	E^F	σ^F	ϵ^F	M^∞	D
fréquence de mise en œuvre	tous les 3 plis			-	??					
rouleau débulleur	oui									
compactage avant cuisson	dépression								-	--
raclette	oui	---	--	-	---	??	---	-		---
pression durant la cuisson	faible				+	??				+
tissu de drainage	oui		--	---		???	-	-	---	---
grammage	200	??	?		-			+		++

Tab. 8. Table d'effets de tous les facteurs sur toutes les réponses.

Les principaux résultats sont les suivants :

- Le raclage du surplus de résine augmente e , V_p et D et diminue ρ_c , V_f , E^F et σ^F . On pense que la dépression générée en aval du raclage favorise la création de porosités. On s'éloigne des conditions idéales de pression étudiées dans la littérature [7].
- Le Tissu de drainage augmente V_p , M^∞ et D et diminue ρ_c , E^F et σ^F . Il a un effet éponge qui provoque un essorage des primaires et augmente le taux de porosités.
- Le compactage sous vide facilite l'absorption d'eau mais n'a pas d'effet sur V_p . On émet l'hypothèse que le vide facilite la diffusion des matières volatiles et la formation de macrocavités sans modifier V_p .
- La diffusion est plus faible avec les primaires de 200 g/m² qu'avec ceux de 300 g/m². La résine n'accède pas au cœur des gros fils, ceci facilite la pénétration de l'eau par capillarité. Ceci peut expliquer en partie pourquoi les plaques élaborées avec les fils les plus fins montrent généralement des propriétés mécaniques meilleures [8].

Le plan d'expériences permet de dégager par ailleurs un protocole favorable, c'est à dire de prévoir le niveau de réglage des facteurs qui ont un effet sur les réponses. On cherche naturellement une solution qui minimise le taux de porosités, qui maximise les propriétés mécaniques et qui minimise l'absorption d'eau. Le protocole optimal sera obtenu avec les conditions suivantes : pas de tissu de drainage, pas de raclage du surplus de résine, mise en œuvre tous les 6 plis, compactage en pression ambiante, serrage faible du moule. Le modèle prévoit les résultats numériques ci-après (Tab. 9).

Ces résultats sont plus significatifs que les précédents (Tab. 4 à Tab. 6) car ils proviennent d'analyses de variances. On note que les écarts entre le protocole optimal et le protocole défavorable

peuvent être très importants. La saturation du composite, variant de 7,5 % à 17,2 %, en offre un bon exemple. On note aussi que le coefficient de diffusion prévu pour le protocole optimal est négatif ! Ceci laisse entendre que ce paramètre doit être mesuré avec plus de soin. Les calculs de corrélation entre les différentes réponses, développés au chapitre suivant, vont permettre de compléter l'analyse du plan d'expériences.

PROPRIÉTÉ	GRAMMAGE	e	ρ_c	V_p	V_f	V_m	E^F	σ^F	ϵ^F	M^{∞}	D
unité	g/m ²	mm	kg/dm ³	%	%	%	GPa	MPa	s.u	%	mm ² /s
protocole optimal	200	2	1,3	2	44	51	9,1	152	2,9	7,5	-2,4
	300	2,4	1,4		48				3,5		1,4
protocole défavorable	200	3,2	1	18	21	61	5,9	107	2,9	17,2	10,7
	300	3,6	1,1		25			107	3,5	17,2	14,6

Tab. 9. Valeurs prévues par le modèle pour chaque réponse.

4.3 Corrélation entre les réponses

Le nombre de plaques élaborées et la grande variabilité des résultats obtenus permet d'effectuer une analyse statistique pour comprendre les relations entre les réponses. On peut par exemple chercher à exprimer l'influence du taux de porosités sur les autres propriétés. Nous calculons pour cela des tables de corrélation en régression linéaire. La figure suivante représente, convertie en statistique de Fisher, une table de corrélation calculée par la méthode de Pearson (Fig. 8). On peut alors appliquer le même critère de discrimination que pour l'analyse du plan d'expériences. Les probabilités surlignées sont fortes. Elles dépassent le seuil de probabilité de 95 %. Celles soulignées sont proches du critère, c'est à dire légèrement supérieure à 0,05. Sur cette table, on lit par exemple que la saturation en eau du composite, *sat*, est statistiquement corrélée au taux volumique de porosités, *pvCAVcorr*. Nous retenons de cette manière toutes les corrélations révélées soit par la méthode de Pearson soit par la méthode de Spearman.

Adjusted p-values (Holm's method)									
	contFmax	diff	EFmax	ep	mvCOMP	pmRES	pvCAVcorr	pvFIBcorr	sat
contFmax		0.9641	0.5180	1.0000	0.0036	1.0000	0.0456	1.0000	0.2808
diff	0.9641		0.4197	0.5040	0.9641	1.0000	0.5180	1.0000	0.1661
EFmax	0.5180	0.4197		0.0392	0.0582	1.0000	0.9641	0.5180	1.0000
ep	1.0000	0.5040	0.0392		0.9641	1.0000	1.0000	0.9641	1.0000
mvCOMP	0.0036	0.9641	0.0582	0.9641		1.0000	0.0702	0.6905	0.5180
pmRES	1.0000	1.0000	1.0000	1.0000	1.0000		1.0000	0.0016	1.0000
pvCAVcorr	0.0456	0.5180	0.9641	1.0000	0.0702	1.0000		1.0000	0.0026
pvFIBcorr	1.0000	1.0000	0.5180	0.9641	0.6905	0.0016	1.0000		1.0000
sat	0.2808	0.1661	1.0000	1.0000	0.5180	1.0000	0.0026	1.0000	

Fig. 8. Table de corrélation entre les réponses, représentée en statistique de Fisher.

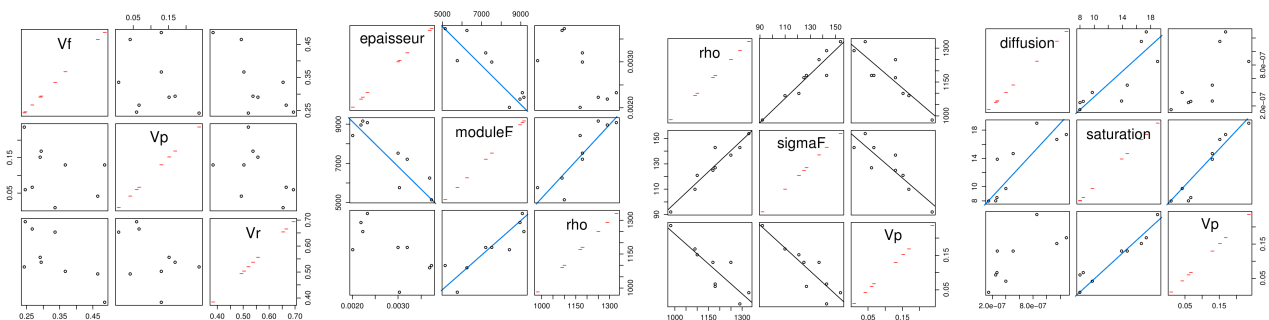


Fig. 9. Corrélation entre les réponses, représentée sous forme graphique.

On vérifie en premier lieu que le taux de matrice, le taux de fibres et le taux de porosités ne sont pas corrélés entre eux. Ceci est lisible dans la première illustration de la figure 9 où chaque diagramme hors diagonale représente les paramètres deux à deux. Les 9 points tracés sont les résultats obtenus pour les 9 plaques composites. Cette indépendance est intéressante car elle nous permet d'identifier l'influence du taux de porosités indépendamment des taux de fibres et de matrice.

Les corrélations linéaires, que nous avons identifiées, sont mises en évidence par une droite de régression lorsqu'elles sont statistiquement prouvées (Fig. 9). On montre que :

- la résistance σ^F , le taux de porosités V_p et la masse volumique ρ_c sont corrélés,
- le module de flexion E^F dépend de la masse volumique et de l'épaisseur e !
- la diffusion et la saturation sont corrélées et cette dernière dépend du taux de porosités.

5. Conclusion

Le taux de porosités est un paramètre critique dans les composites à renfort végétal. Il doit être minimisé. Nous avons établi un plan d'expériences pour élaborer des plaques composites à partir d'un nouveau produit. Il s'agit d'un sergé 2/2 de lin pré-imprégné de matrice époxy nommé « primaire ». Les réponses étudiées sont d'ordre morphologique, mécanique et hygroscopique. Le premier intérêt du plan d'expériences est de permettre un criblage des facteurs qui influent sur l'élaboration. On dégage un protocole optimal pour lequel le taux de porosités est minimal, la saturation en eau est de 7,5 % et la résistance en flexion est de 152 MPa. Le second intérêt du plan d'expériences est qu'il a permis d'élaborer des plaques avec 9 taux de porosités différents indépendants du taux de fibres. On montre par une étude statistique que la résistance en flexion, la masse volumique et la saturation sont directement corrélées au taux de porosités. Le module de flexion et la diffusion sont par ailleurs corrélés à la masse volumique. Deux stratégies se dégagent alors qui permettent de valider un composite à fibres végétales au sens de la minimisation du taux de porosités. Une mesure de masse volumique et une mesure de coefficient de diffusion. Cette approche, qui paraît triviale, s'appuie sur une étude statistique. Son intérêt est qu'elle est applicable à une structure. Une détermination de la masse volumique globale est assez simple à conduire avec les moyens de mesure de forme modernes. Une semaine de test de sorption suffit à établir une tendance concernant la valeur du coefficient de diffusion. L'ingénieur doit bien entendu se constituer une base de données pour avoir des références en matière de masse volumique et de coefficient de diffusion de son produit.

Remerciement

Nous tenons à remercier la société Lineo NV pour la fourniture des primaires.

Références

- [1] J. Summerscales, N. P. J. Dissanayake, A. S. Virk, W. Hall, "A review of bast fibres and their composites. Part 1 – Fibres as reinforcements". *Compos Part A*, Vol 41, pp.1329–1335, 2010.
- [2] C. Baley, "Analysis of the flax fibres tensile behaviour and analysis of the tensile stiffness increase". *Compos Part A*, 33, pp. 939–948, 2002.
- [3] M. Assarar, D. Scida, A. El Mahi, C. Poilâne, R. Ayad, "Influence of water ageing on mechanical properties and damage events of two reinforced composite materials: Flax–fibres and glass–fibres". *Materials and Design*, Vol. 32, pp. 788–795, 2011.
- [4] F. Bouillon, "Development of composite structural aeronautic pieces based on the RTM process". *TEXCOMP*, Lille, 2010.
- [5] J. Goupy, L. Creighton, « Introduction aux plans d'expériences », Ed. Dunod, 2006.
- [6] J. M. Berthelot, « Matériaux Composites », Lavoisier, 2005.
- [7] Y. Ledru, « Étude de la porosité dans les matériaux composites stratifiés aéronautiques », thèse Université de Toulouse, 2009.
- [8] C. Poilâne, A. Vivet, L. Momayez, B. Ben Doudou, M. Ayachi, J. Chen, « Propriétés mécaniques de préimprégnés lin/époxyde ». *JNC16*, Toulouse, 2009.