

Influence des propriétés de surface du couple liquide-solide sur la perméabilité du renfort fibreux à deux échelles : la mèche et la préforme fibreuse

Influence of the surface properties of the liquid-solid couple on the permeability of a reinforcement at two scales : the tow and the fibrous preform

Romain Ravel¹, Monica Francesca Pucci² et Pierre-Jacques Liotier¹

1 : Polymères Composites et Hybrides (PCH)
IMT Mines Alès

6 avenue de Clavières, 30100 Alès, France

e-mail : romain.ravel@mines-ales.fr et pierre-jacques.liotier@mines-ales.fr

2 : DMS, LMGC UMR 5508

Université de Montpellier, IMT Mines Alès, CNRS

6 avenue de Clavières, 30100 Alès, France

e-mail : monica.pucci@mines-ales.fr

Résumé

L'objectif de ce travail est d'évaluer l'influence des propriétés de surface du couple liquide-solide sur la perméabilité saturée et insaturée d'un renfort en fibre de basalte. Pour cela, quatre liquides et deux types de fibres (ensimée et désensimée) ont été étudiés. De plus, un nouveau montage expérimental pour estimer la perméabilité saturée et insaturée de mèches est présenté. Les principaux résultats montrent que la perméabilité de la préforme fibreuse varie en fonction de la nature du liquide. De plus, en fonction de l'état de surface des fibres, la perméabilité varie selon des tendances différentes entre les liquides. Pour finir, les résultats de perméabilité saturée et insaturée obtenus à l'échelle de la mèche sont cohérents avec l'ordre de grandeur de ceux trouvés à l'échelle de la préforme fibreuse.

Abstract

The objective of this study is to evaluate the influence of the surface properties of the liquid-solid couple on the saturated and unsaturated permeability of a basalt fiber reinforcement. To achieve this, different liquids and two fibers (with a silane-based sizing and thermal desizing) were studied. Furthermore, a novel experimental setup is presented to estimate both the saturated and unsaturated permeability of fiber tows. The main findings were that the permeability of the fibrous preform varies depending on the nature of the test liquid. Additionally, depending on the fiber surface, the permeability varies according to different trends between liquids. Finally, the saturated and unsaturated permeability results obtained at the tow scale are consistent with the order of magnitude of those found at the fibrous preform scale.

Mots Clés : Perméabilité dans le plan, Tissu de basalte, Mèche de basalte, Mouillage

Keywords : In-plane permeability, Basalt fabric, Basalt tow, Wettability

1. Introduction

L'imprégnation des milieux fibreux est un processus crucial dans la fabrication des matériaux composites, notamment pour les procédés composites par voie liquide comme l'infusion ou le RTM (Resin Transfert Moulding). Une mauvaise imprégnation du renfort fibreux peut mener à la formation de vides (macroscopiques ou microscopiques) à cœur et en surface des pièces [1]. Ces vides auront un impact sur la qualité des interfaces entre les fibres et la matrice et par conséquent sur les propriétés mécaniques des pièces finales [2]. De plus, la double échelle de pores présente dans les tissus et NCF (Non-Crimp Fabrics) complexifie le processus d'imprégnation [3]. La compréhension des phénomènes de mouillage des renforts fibreux par les résines au cours du procédé est donc un enjeu majeur. C'est pourquoi de nombreuses études de la littérature s'intéressent à la prise en compte des effets capillaires comme force motrice pour améliorer l'imprégnation du renfort fibreux et limiter la formation de vides

au cours de ces procédés [4, 5, 1, 6, 7]. Ce travail s'inscrit dans ce contexte de recherche et présente la suite d'une étude qui a porté sur l'influence de la modification de surface de fibres de basalte sur le mouillage spontané (montée capillaire) et forcé (perméabilité) du renfort fibreux [8]. L'objectif était de fixer la nature du fluide, l'eau, et de modifier les propriétés de surface des fibres grâce à un traitement thermique. Ce travail a montré que le traitement thermique des fibres améliorait la mouillabilité des fibres en imprégnation spontanée (montée capillaire), et tendait à augmenter la perméabilité insaturée (K_{insat}) de la préforme fibreuse. Cependant, il a été constaté que ce traitement modifiait la rugosité de surface des fibres et, par conséquent, également la perméabilité saturée (K_{sat}) de la préforme fibreuse. Il est donc complexe de conclure sur la principale cause de l'augmentation de la K_{insat} après traitement. Cette augmentation provient-elle de la présence des effets capillaires suite à l'amélioration de la mouillabilité à l'eau après traitement, ou provient-elle d'un changement morphologique du milieu poreux suite au traitement ?

Par conséquent, l'objectif de ce travail a été de fixer les propriétés de surface des fibres (tissu ensimé ou traité) pour limiter le risque de modifier la morphologie du milieu poreux en même temps que l'énergie de surface des fibres, et de varier la nature du liquide (tension de surface et viscosité). L'impact de cette combinaison liquide-solide a été évalué sur la valeur de perméabilité saturée et insaturée à l'échelle de la préforme fibreuse. De plus, dans l'objectif d'une approche multi-échelle, une méthode expérimentale de détermination de la perméabilité saturée et insaturée à l'échelle des mèches est présentée.

2. Matériels et méthodes

2.1. Fibre de basalte

La fibre de basalte utilisée pour l'étude provient du fournisseur BASALTEX (Belgique, Wevelgem). Pour les essais de perméabilité à l'échelle de la préforme fibreuse, un tissu quasi-unidirectionnel possédant une masse surfacique de 430 g/m^2 et composé d'un ensimage à base de silane a été choisi (BASUD400). Pour les essais à l'échelle de la mèche, un roving de 600 Tex (BDR600TEX17I-S10) possédant le même ensimage à base de silane a été choisi. Dans le cadre de l'étude, le tissu ou le roving vierge portent le nom de « as received » ou AR.

2.2. Traitement thermique des fibres de basalte

En s'appuyant sur des travaux antérieurs, il a été montré qu'un traitement thermique de 4h à 400°C augmentait l'énergie de surface des fibres basalte et en particulier la composante polaire (+22%) [8, 9]. Ce traitement a donc été utilisé pour modifier les propriétés de surface des fibres. Le tissu ou le roving traités thermiquement portent le nom de « thermally treated » ou TT.

2.3. Liquides de test

Quatre liquides ont été utilisés pour caractériser l'impact de l'affinité liquide-solide sur la perméabilité saturée et insaturée aux deux échelles : l'eau, un polyéthylène glycol (ACROS ORGANICS, PEG300), une huile silicone (DOW, Xiameter PMX200 - 100 cST) et une résine époxy (SICOMIN, SR Infugreen 810). Le tableau 1 présente pour chaque liquide : la viscosité (η), la masse volumique (ρ), les composantes polaire (γ_L^p), dispersive (γ_L^d) et totale (γ_L) de la tension de surface.

Liquides	η [mPa.s]	ρ [g/cm ³]	γ_L^p [mN/m]	γ_L^d [mN/m]	γ_L [mN/m]
Eau	1.0	0.99	47.4	25.0	72.4
PEG300	78.0	1.12	2.8	42.7	45.5
Huile silicone	101.0	0.97	1.2	19.5	20.7
Résine époxy	977.0	1.16	0	46.6	46.6

TAB. 1. – Propriétés des liquides de test à 20°C .

2.4. Échelle de la préforme fibreuse : perméabilité saturée et insaturée dans le plan

Le montage et la méthode pour la détermination de la perméabilité saturée et insaturée ont été détaillés dans des travaux antérieurs [8]. La préforme est composée de 10 plis du quasi-unidirectionnel, ce qui représente une fraction volumique de fibres de 54.8% (épaisseur du cadre : 2.94 mm). La pression d'injection utilisée est de 100 kPa. Pour la détermination de la position du front de fluide en fonction du temps, le traitement des photos a été réalisé avec le logiciel ImageJ. Comme présenté en figure 1, la position moyenne du front de fluide (x_{moy}) est calculée en réalisant la moyenne de trois points sur l'image : X_1 , X_2 et X_3 . La K_{insat} est déterminée grâce à la méthode « squared flow front method » en accord avec la norme ISO 4410 :2023 [10, 11].

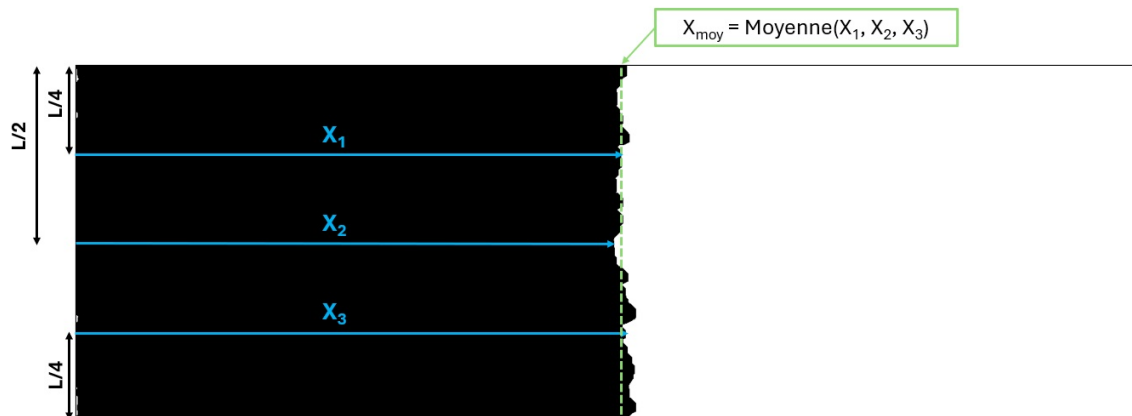


FIG. 1. – Détermination de la perméabilité insaturée : méthode de calcul du x_{moy} .

2.5. Échelle de la mèche : perméabilité saturée et insaturée dans le plan

A l'échelle de la mèche, le moule est une barre carrée en PMMA coulée (poly(méthacrylate de méthyle acrylique)). Il est composé d'une cavité cylindrique d'un diamètre intérieur de 4 mm dans laquelle les mèches sont insérées (Fig. 2). La longueur utile de mèche pour déterminer la K_{sat} est de 65 mm. Trente mèches du roving ont été insérées dans la cavité afin d'obtenir une fraction volumique de fibre de 53.6%. Le fluide est injecté dans le moule avec une pression de 20 kPa. Le montage est équipé d'une balance en sortie pour déterminer la K_{sat} . Une caméra haute vitesse est fixée face au montage afin d'enregistrer l'avancée du front de fluide en fonction du temps et ainsi déterminer la K_{insat} grâce à la méthode « squared flow front method » [10, 11]. Le traitement des images pour déterminer la position du front de fluide dans la cavité contenant les mèches est réalisé à l'aide du logiciel ImageJ.

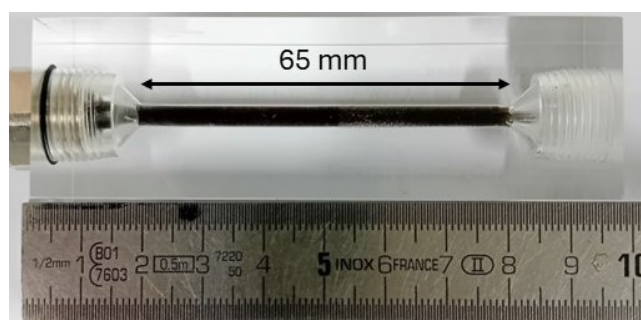


FIG. 2. – Montage pour la détermination de la perméabilité à l'échelle de la mèche.

3. Résultats et discussions

3.1. Échelle de la préforme fibreuse : perméabilité saturée et insaturée dans le plan

La Figure 3 présente les résultats de perméabilité saturée et insaturée avec les différents liquides, respectivement pour le tissu « as received » (a) et « thermally treated » (b).

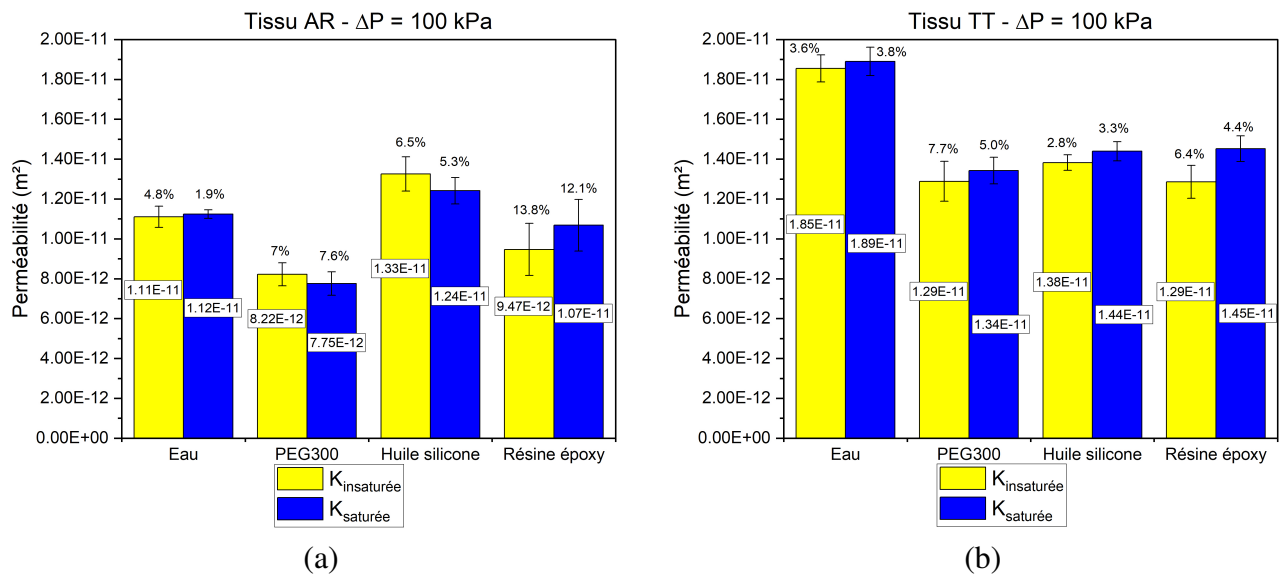


FIG. 3. – Résultats de perméabilité pour le tissu AR (a) et TT (b).

Tout d'abord, pour les deux références de tissu, une équivalence entre la K_{sat} et la K_{insat} est observée pour tous les liquides. Cela signifie, d'après la littérature, qu'il y aurait un équilibre entre les forces visqueuses et capillaires [5]. La pression d'injection de 100 kPa est probablement trop importante et par conséquent, les effets capillaires deviennent négligeables. Des travaux sont en cours pour réaliser ces essais avec une pression d'injection plus faible, de l'ordre de 20 kPa, pour observer une fenêtre process où les effets capillaires ne seraient pas négligeables.

Concernant l'influence du choix du liquide, d'après la littérature [12], la perméabilité du renfort ne dépend pas de la nature du liquide. Or, comme montré en figure 3 pour une même référence de tissu, la valeur de perméabilité varie en fonction du liquide. Pour le tissu AR, l'eau et la résine époxy ont des valeurs similaires ($\approx 1.1 \times 10^{-11} m^2$), en revanche, le PEG300 présente une valeur plus faible d'environ 20% et l'huile silicone une valeur plus importante d'environ 15%. Pour le tissu TT, la valeur de perméabilité est proche pour le PEG300, l'huile silicone et la résine époxy ($\approx 1.35 \times 10^{-11} m^2$). Par contre, avec l'eau, la perméabilité est plus importante de 35%. A l'heure actuelle, des travaux sont en cours pour améliorer la compréhension des phénomènes impliqués. Cependant, ces résultats montrent que dans les conditions expérimentales utilisées, le choix de la nature du liquide impacte la valeur de perméabilité d'un renfort défini, et avec des tendances différentes en fonction des propriétés de surface du couple liquide-solide.

3.2. Échelle de la mèche : perméabilité saturée et insaturée dans le plan

Le tableau 2 présente les résultats de K_{sat} et K_{insat} d'un essai de perméabilité sur des mèches AR avec l'eau. Ce premier résultat est encourageant car les deux valeurs de perméabilité (K_{sat} et K_{insat}) sont proches et sont cohérentes avec l'ordre de grandeur de celles trouvées à l'échelle de la préforme fibreuse. De plus, comme montré dans la figure 4, la droite de régressions linéaire de la courbe position du front de fluide au carré en fonction du temps donne un coefficient de corrélation de 0.998.

La méthode "squared flow front" pour déterminer la K_{insat} est donc bien applicable dans ce cas. D'autres essais sont en cours afin d'étudier la répétabilité de la méthode, de faire varier le différentiel de pression et de faire varier les propriétés physico-chimiques de surface du couple liquide-solide.

Réf. mèches	K_{sat} [m^2]	K_{insat} [m^2]
Mèche AR	8.25×10^{-12}	8.40×10^{-12}

TAB. 2. – Résultats de perméabilité des mèches AR

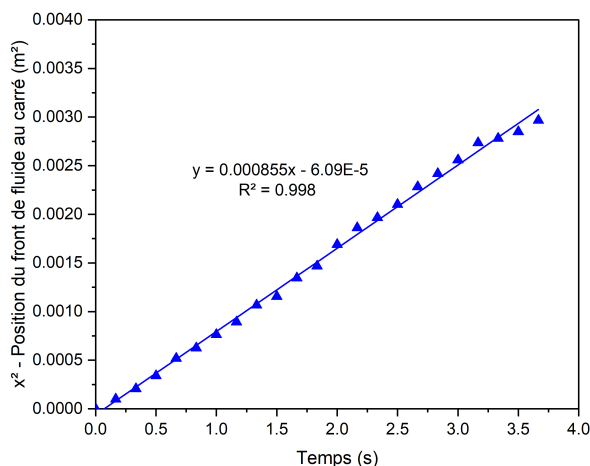


FIG. 4. – Graphique position du front de fluide au carré en fonction du temps - mèches AR

4. Conclusions

Les travaux présentés portent sur l'évaluation de l'influence des propriétés physico-chimiques de surface du couple liquide-solide sur la perméabilité du renfort fibreux à deux échelles : l'échelle de la préforme fibreuse et l'échelle de la mèche.

A l'échelle de la préforme fibreuse, les travaux ont montré que, dans les conditions de l'étude, les effets capillaires étaient négligeables face aux forces visqueuses. En revanche, il a été constaté une variation de la valeur de perméabilité du renfort en fonction du choix du liquide de test. De plus, en fonction de l'état de surface des tissus (AR ou TT), les variations de perméabilité entre les liquides sont différentes, ce qui met en évidence l'importance de prendre en considération le couple liquide-solide. A l'échelle des mèches, un nouveau montage expérimental pour déterminer la perméabilité saturée et insaturée à l'échelle de la mèche a été présenté. Des résultats similaires de K_{sat} et K_{insat} ont été obtenus. Cet essai devra être répété pour vérifier la robustesse des mesures. Enfin, l'influence du traitement thermique des fibres et le choix du liquide seront également étudiés à cette échelle.

Références

- [1] H. Teixidó, J. Staal, B. Caglar, V. Michaud « Capillary effects in fiber reinforced polymer composite processing : a review », *Frontiers in Materials* Vol. 9, pp. 809226, 2022.
- [2] M. Mehdikhani, L. Gorbatikh, I. Verpoest, S. V. Lomov « Voids in fiber-reinforced polymer composites : A review on their formation, characteristics, and effects on mechanical performance », *Journal of Composite Materials* Vol. 53 n° 12, pp. 1579–1669, 2019.
- [3] C. H. Park, A. Lebel, A. Saouab, J. Bréard, W. I. Lee « Modeling and simulation of voids and saturation in liquid composite molding processes », *Composites Part A : Applied science and manufacturing* Vol. 42 n° 6, pp. 658–668, 2011.

- [4] S. Amico, C. Lekakou « An experimental study of the permeability and capillary pressure in resin-transfer moulding », *Composites Science and Technology* Vol. 61 n° 13, pp. 1945–1959, 2001.
- [5] B. Caglar, C. Tekin, F. Karasu, V. Michaud « Assessment of capillary phenomena in liquid composite molding », *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing* Vol. 120, pp. 73–83, 2019.
- [6] H. Teixidó, B. Caglar, V. Michaud « Effect of wettability and textile architecture on fluid displacement and pore formation during infiltration of carbon fibrous preforms », *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing* Vol. 174, pp. 107733, 2023.
- [7] J. Verrey, V. Michaud, J.-A. Manson « Dynamic capillary effects in liquid composite moulding with non-crimp fabrics », *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing* Vol. 37 n° 1, pp. 92–102, 2006.
- [8] R. Ravel, M. F. Pucci, P.-J. Liotier « Influence of the surface energy of a basalt fiber on capillary wicking and in-plane permeability of reinforcements », *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing* Vol. 187, pp. 108496, 2024.
- [9] M. F. Pucci, M. C. Seghini, P.-J. Liotier, F. Sarasini, J. Tirilló, S. Drapier « Surface characterisation and wetting properties of single basalt fibres », *Composites Part B : Engineering* Vol. 109, pp. 72–81, 2017.
- [10] N. Vernet, E. Ruiz, S. Advani, J. B. Alms, M. Aubert, M. Barburski, B. Barari, J. M. Beraud, D. C. Berg, N. Correia, et al. « Experimental determination of the permeability of engineering textiles : Benchmark II », *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing* Vol. 61, pp. 172–184, 2014.
- [11] D. May, S. Advani, M. Duhovic, A. Endruweit, E. Fauster, A. George, P.-J. Liotier, C. Lira, S. Lomov, M. F. Pucci, et al. « A new ISO standard for the experimental characterization of in-plane permeability of fibrous reinforcements », *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing* , pp. 108592, 2024.
- [12] B. R. Gebart « Permeability of unidirectional reinforcements for RTM », *Journal of composite materials* Vol. 26 n° 8, pp. 1100–1133, 1992.