HAL
open science

Etude analytique et expérimentale de l'imprégnation de composites à matrice thermoplastique dans le procédé de pultrusion

Sana Koubaa, Christian Burtin, Steven Le Corre, Arnaud Poitou

To cite this version:

Sana Koubaa, Christian Burtin, Steven Le Corre, Arnaud Poitou. Etude analytique et expérimentale de l'imprégnation de composites à matrice thermoplastique dans le procédé de pultrusion. 17èmes Journées Nationales sur les Composites (JNC17), Jun 2011, Poitiers-Futuroscope, France. pp.29. hal-00597893

HAL Id: hal-00597893

https://hal.science/hal-00597893v1

Submitted on 2 Jun 2011

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Etude analytique et expérimentale de l'imprégnation de composites à matrice thermoplastique dans le procédé de pultrusion

Analytical and experimental investigation of impregnation in thermoplastic pultrusion process

Sana Koubaa, Christian Burtin, Steven Le corre et Arnaud Poitou

GeM - Institut de Recherche en Génie Civil et Mécanique UMR CNRS 6183
Ecole Centrale de Nantes, Université de Nantes
e-mail : sana.koubaa@ec-nantes.fr, christian.burtin@ec-nantes.fr

Résumé

L'une des préoccupations majeures dans la production de profilés composites à matrice thermoplastique par le procédé de pultrusion est de réussir l'imprégnation de la résine thermoplastique par le réseau de fibres de renfort, tout en réalisant une forme correcte et en conservant une excellente résistance aux chocs. En effet, l'imprégnation est un processus difficile en raison de la viscosité élevée des thermoplastiques à l'état fondu. Une étude analytique et expérimentale de l'état de l'imprégnation a été menée. Celle-ci permet de prévoir notamment la perméabilité et la pression capillaire mise en jeu lors de la progression capillaire. Les propriétés du renfort et la distribution des fibres sont mises en évidence notamment grâce à la microtomographie X.

Abstract

In this paper we focus on the pultrusion of composites with thermoplastic resins. One of the major concerns in producing the thermoplastic profiles is to succeed the infiltration of the resin within the network of the reinforcing fibers while achieving the correct shape and maintaining excellent impact resistance. Indeed, the impregnation process has become difficult due to the high viscosity of thermoplastics. An analytical and experimental study of the state of the impregnation is carried out. In our study, we provide the permeability and capillary pressure involved during the liquid progression. Besides, the properties of the reinforcement and the fiber distribution are described.

Mots Clés : pultusion, front d'imprégnation, matrice thermoplastique, microtomographie X.
Keywords : pultrusion, impregnation front, thermoplastic matrix, X-Ray microtomography.

1. Introduction

La pultrusion des composites à matrice thermoplastique est un procédé récent permettant de fabriquer en continu un matériau composite à haute valeur ajoutée en particulier pour le secteur aéronautique. Le procédé de pultrusion est réalisé à partir de fibres longues qui sont guidées vers une filière chaude où une résine thermoplastique est injectée. A la sortie de la filière et après refroidissement, on obtient un profilé qui peut présenter une géométrie complexe. Le problème principal dans ce procédé réside dans l'imprégnation du renfort par la matrice qui est freinée par la forte viscosité du polymère thermoplastique à l'état liquide ($\approx 10^3$ Pa.s). Diverses études ont été conduites sur ce problème [2,3] mais la majorité d'entre elles restent théoriques et le procédé de pultrusion thermoplastique n'a toujours pas aujourd'hui d'application industrielle.

De nombreuses études ont montré que le choix approprié des paramètres procédés est indispensable pour réaliser une imprégnation optimale [4]. Ainsi, une analyse théorique détaillée du procédé, basée sur les loi de Stokes et Darcy, a été réalisé par les auteurs afin de maîtriser les facteurs qui interviennent dans ce procédé [5]. En particulier, l'influence des propriétés matérielles et géométriques a été étudiée. Pour cela il a été introduit une analyse adimensionnelle permettant de réduire la complexité du problème et de fournir un critère d'optimisation de l'imprégnation de telle sorte qu'une valeur optimale de la vitesse de traction ainsi que de la géométrie de la filière puissent être définie pour un couple fibre/ résine [1].

Néanmoins, l'écoulement en milieu poreux reste encore un problème ouvert puisque aucune loi générale ne permet de décrire précisément de tels écoulements. En effet, même si la mécanique des fluides dispose d'équations permettant en théorie de décrire le comportement des fluides, la non-

linéarité de l'équation de Navier-Stokes fait que sa résolution est impossible formellement dans des milieux aussi complexes géométriquement que les milieux poreux. Le recours à l'expérience est donc le seul moyen pour formuler les lois gouvernant les écoulements dans de tels milieux. De plus, au cours de la mise en forme du procédé, des défauts peuvent apparaitre dans les pièces comme des vides, préjudiciables aux caractéristiques mécaniques de la pièce finale. D'où la nécessité de se pencher à une échelle plus fine, celle de la fibre, pour interpréter les phénomènes mis en jeu lors de la progression du flux de résine.

Dans cette étude, on s'intéresse à la progression du flux de la matrice à travers une mèche de fibres unidirectionnelles. L'imprégnation est le résultat de l'avancée de la matrice dans les interstices formés entre les filaments de la mèche. Ces interstices forment souvent des canaux qui définissent la porosité du milieu ou le degré de vide. Ainsi le milieu est caractérisé par une distribution de pores, une connectivité, et, globalement par une perméabilité. Un taux de porosité supérieur à 1% diminue les propriétés mécaniques et la durabilité du composite [9]. De plus, les bulles bloquées dans le réseau de pores peuvent obstruer des conduits et ainsi réduire la section utile d'écoulement, conduisant à une diminution artificielle de la perméabilité. La théorie est relativement simple, mais dans la pratique déterminer une valeur de perméabilité n'est pas facile. Cette étude a porté sur la détermination des paramètres fondamentaux régissant la mouillabilité de la mèche de fibres. Nous avons procédé en deux étapes : premièrement une caractérisation de la distribution des fibres du verre qui est un des facteurs gouvernant le mouillage, au moyen d'un microtomographe; deuxièmement l'étude de la progression capillaire du liquide au sein du réseau fibreux.

2. Etude à l'échelle microscopique du renfort fibreux

La progression d'un liquide dans un milieu poreux dépend essentiellement de la géométrie de ce dernier. Pour cela, il est indispensable de caractériser la dispersion des fibres de verre avant leur mouillage par la matrice. L'observation à l'échelle des fibres a été faite au moyen d'un microtomographe.

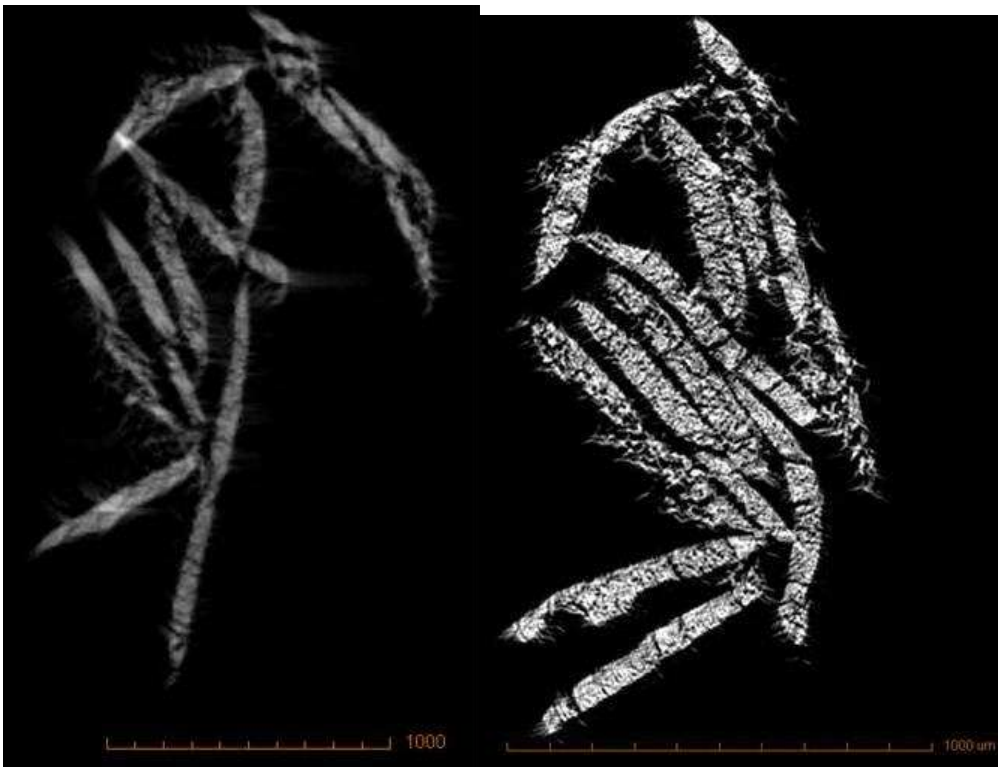
a. Microtomographie X

La microtomographie aux rayons X est expliquée en détail dans [6]. C'est une méthode non destructive permettant de fournir des informations tridimensionnelles sur le matériau étudié. La base de cette technique est la radiographie aux rayons X : une source de rayons X émet un rayonnement qui va traverser la matière en interagissant avec elle. On place un détecteur derrière la pièce analysée qui capte le rayonnement transmis pour le convertir en une image 2D. En répétant ce processus pour différents angles autour de l'objet analysé, on peut obtenir une image tridimensionnelle de l'objet après une reconstruction.
Le microtomographe utilisé est un Micro XCT-400 (X-radia). La tension appliquée est comprise entre *40* et *150* kV. Pour les essais effectués sur les composites ou les fibres seules, la tension appliquée a été de 40kV. Le détecteur utilisé est composé d'un objectif pour chaque grossissement, d'un scintillateur convertissant les rayons X en rayons visibles et d'un capteur CCD qui convertit la lumière visible en impulsions électriques enregistrées par le système. Dans cette étude, on n'a pas utilisé de filtres physiques. La taille d'un pixel se situe pour tous les essais à $\approx 3.1\ \mu m$. La définition du capteur pour ce travail a été de *2048 x 2048*.

b. Description de la distribution des fibres

Avant d'étudier l'écoulement d'un fluide au travers d'un renfort, il est important de connaître la structure du milieu poreux et de définir les différentes grandeurs qui la caractérisent. La connaissance de la taille du milieu poreux mise en jeu dans la progression capillaire et de l'inter-connectivité des pores est nécessaire pour la compréhension des phénomènes d'imprégnation. Pour prendre en compte l'effort de traction appliquée sur les fibres lors du procédé de pultrusion, un montage expérimental a

été réalisé afin de mettre sous traction et verticalement une mèche de fibres de verre « sèche ». La longueur de la mèche en traction est de 20cm et un système adéquat permet de fixer la mèche au dispositif d'un côté et d'appliquer un effort de traction quasi-statique de l'autre. L'étude à l'aide de la microtomographie fournit des informations sur la localisation des filaments qui composent la mèche, leur position relative ainsi que leur distribution spatiale. La Fig.1 montre une coupe normale à l'axe de la mèche dans deux cas : (a) la mèche est soumise à un effort de 0.1N simulant une fibre soumise à la seule force de la gravité. Le cas (b) correspond à une mise en traction avec un effort de 1N. La figure montre que la mèche ne présente pas une section circulaire. Son profil est beaucoup plus complexe et s'apparente plus à des paquets de filaments qui présentent chacun un profil à section elliptique. On note que ces paquets sont très distants les uns des autres. La mise sous traction de la mèche s'accompagne d'un resserrement des paquets mais les paquets conservent leur forme individuelle.



(a) *(b)*

Fig. 1.(a : mèche non soumise à un effort de traction de 0.1N. (b) : mèche soumise à un effort de traction de 2N.

3. Processus physique de l'imprégnation

On s'intéresse à l'imprégnation par capillarité des fibres de verre disposées verticalement. Les résultats expérimentaux seront corrélés avec le modèle analytique pour la détermination de la pression capillaire et de la perméabilité.

a. Modèle analytique

Nous supposons que le liquide est newtonien et incompressible. Le milieu fibreux est considéré continu, poreux et homogène. Nous prenons comme hypothèse que le mouvement de la matrice dans les renforts obéit à la loi de Darcy dont l'expression générale est :

$$\vec{v} = -\frac{k}{\eta}\vec{\nabla}p \qquad \text{(Eq.1)}$$

Avec $\vec{v}$: le champ de vitesse du fluide dans le milieu poreux, k et η respectivement la perméabilité et la viscosité. p désigne la pression dans la mèche de fibres. Pour prendre en compte l'effet de gravité, la loi de Stokes a été exploitée:

$$2\eta\vec{\Delta}v - \vec{\nabla}p - \frac{\eta}{k}\vec{v} + \rho\vec{g} = \vec{0} \qquad \text{(Eq.2)}$$

On néglige le terme de viscosité et on considère l'écoulement unidirectionnel. On déduit l'expression de la vitesse du flux qui est analogue à la loi de Darcy en ajoutant le terme de gravité :

$$v = -\frac{k}{\eta}(\rho g - \frac{P_c}{h}) \qquad \text{(Eq.3)}$$

Avec : $\nabla p = (p(h) - p(0))/h$ (Fig.2). ρ est la masse volumique du liquide, g est l'accélération de la pesanteur et h représente la hauteur de montée du liquide. On peut montrer que le champ de pression n'est que le rapport entre la pression capillaire et la hauteur du flux. On considère que la vitesse est : $v = \dot{h}$ [7]. L'équilibre est réalisé lorsque la hauteur maximale de progression est atteinte. Cela correspond à la condition dh/dt=0, soit $h_{eq} = P_c / \rho g$ (loi de Jurin). On obtient une équation différentielle reliant le front de montée du liquide, k, η et la hauteur à l'équilibre [8] :

$$\frac{1}{2}((\frac{\dot{h}}{h_{eq}}))^2 + \frac{k}{\eta}\frac{\rho g h}{h^2{}_{eq}} = \frac{k}{\eta}\frac{P_c}{h^2{}_{eq}} \qquad \text{(Eq.4)}$$

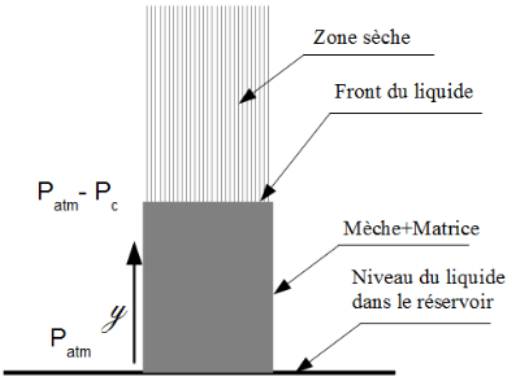


Fig. 2. Représentation schématique de la progression capillaire au sein de la mèche

b. Essais expérimentaux

Pour mesurer les propriétés capillaires d'une mèche imprégnée, différents essais expérimentaux ont été réalisés.

Le premier essai consiste à fixer six mèches verticalement sur un support permettant l'imprégnation simultanée avec un gel de bougie comme matrice modèle (Fig.3a). Le dispositif a été placé dans une enceinte régulée en température (T=120°). La viscosité de la matrice vaut 0.064 Pa.s à cette température. La progression capillaire a été suivie et enregistrée par une caméra. La différence de contraste induite par la progression du liquide dans la mèche permet de mesurer la hauteur parcourue par la matrice en fonction du temps.

Une deuxième série d'essais a été conduite avec une matrice de même viscosité mais à la température ambiante (huile d'olive, η=0.08Pa.s). On a suivi la progression capillaire de la matrice pour des mèches de verre de différente nature: comêlé, désensimé, ensimé (Fig.3b).

Enfin une troisième série d'essais permet d'estimer l'influence de l'effort de traction appliqué aux fibres lors de la pultrusion. Ainsi on applique une masse à l'extrémité de la mèche et l'on suit le degré d'imprégnation.

(a) *(b)*

Fig. 3 Montage permettant de suivre la progression capillaire verticale (a) du gel de bougie et (b) de l'huile d'olive.

Les résultats des ces séries d'essais sont discutés dans la partie suivante. L'idée est de chercher la position et le temps d'équilibre, c'est-à-dire l'instant où l'imprégnation est stable. La courbe traduisant la cinétique du fluide obtenu expérimentalement sera confrontée avec le modèle analytique afin de calculer la perméabilité du milieu ainsi que la pression capillaire.

4. Résultats et discussion

a. Imprégnation par capillarité

Pour le premier essai réalisé avec le gel de bougie, on trace l'évolution de la hauteur imprégnée en fonction du temps (Fig.4) et on cherche à superposer la courbe du modèle à la courbe expérimentale en estimant la perméabilité k du renfort. Les fibres utilisées sont des comêlés verre-polypropylène. On note l'existence d'une hauteur maximale du fluide ($h_{éq}$= *49mm)*. Etant donné que la masse volumique du fluide est ρ= *810 kg/m*^{3} et *g=9.81 m/s*^{2}, on peut donc déduire la pression capillaire qui est égale à *389 Pa*. D'après la figure 4, la perméabilité est de l'ordre de 6.10^{-10} m^2

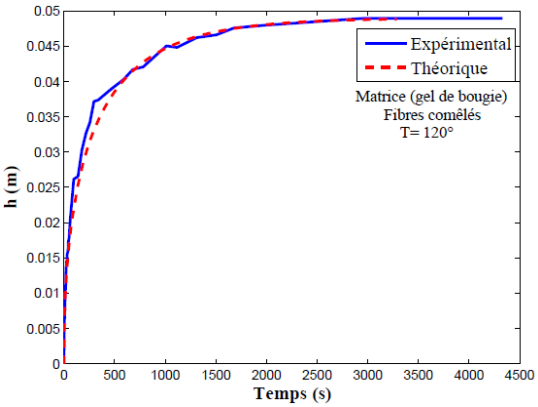


Fig. 4 Position du front en fonction du temps (matrice : gel de bougie).

On s'intéresse maintenant au deuxième matériau modèle : l'huile d'olive mais à température ambiante (Fig.5). On remarque qu'il n'apparait pas de hauteur d'équilibre. On peut alors considérer que l'effet de gravité est négligeable. De plus, les mesures montrent que la progression capillaire est beaucoup moins rapide pour des fibres désensimées, ce qui est évident puisque l'ensimage assure une bonne liaison entre fibre et matrice. L'avancement du flux est plus rapide dans le cas des fibres de verre ensimées et comêlées.

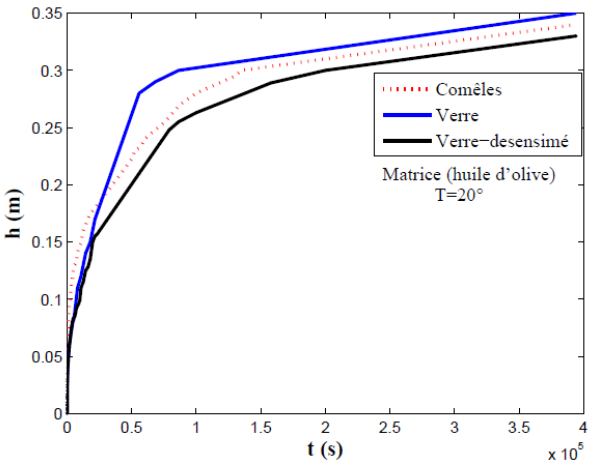


Fig. 5 : Position du front en fonction du temps (matrice : huile d'olive)

D'après la Fig. 6 et en appliquant la même démarche que précédemment, on déduit que $P_c=2.7\ 10^3$ *Pa* et $k=5.10^{-10}\ m^2$.

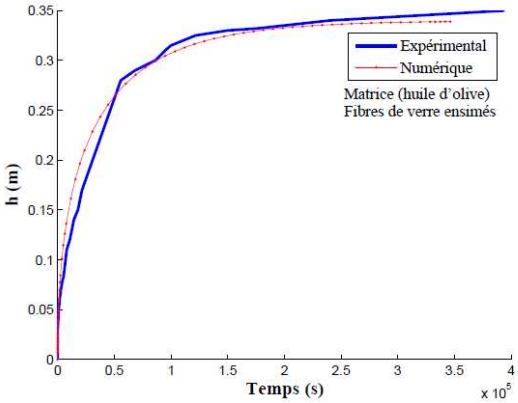
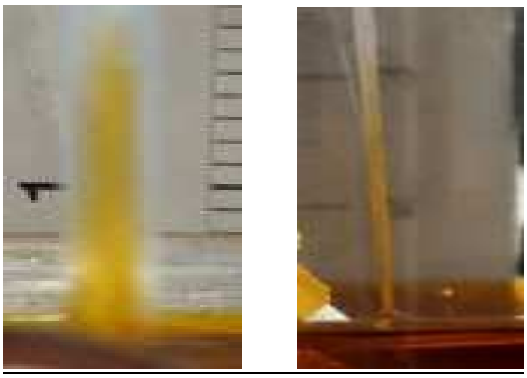


Fig. 6 Position du front en fonction du temps (matrice : huile d'olive).

La Figure 7a montre que la progression du front de montée n'est pas uniforme. Cette hétérogénéité du front de montée peut être expliquée à l'aide de la figure 1. En effet la morphologie de la mèche est complexe et l'on a mis en évidence l'existence de paquets de filaments. Un essai complémentaire sur un paquet de filaments a alors été réalisé dans les mêmes conditions que précédemment. La montée du flux est alors uniforme (Fig.7b). Un tel retard ou transfert peut donc s'expliquer par la présence de canaux mésoscopiques au sein de la mèche. Nous traçons dans la Fig. 8 la hauteur de progression capillaire dans les deux types de canaux. On montre que le liquide va beaucoup moins vite dans le paquet de filament mais il pourra monter plus haut. Donc expérimentalement, on peut s'attendre à observer, dans un premier temps, la progression capillaire entre les paquets, puis dans les paquets. Par conséquent, les interprétations des analyses de progression capillaire deviennent difficiles.



(a) (b)

Fig. 7 : Progression capillaire de l'huile d'olive dans (a) une mèche de fibres de verre et (b) un paquet de filaments, à t=50s

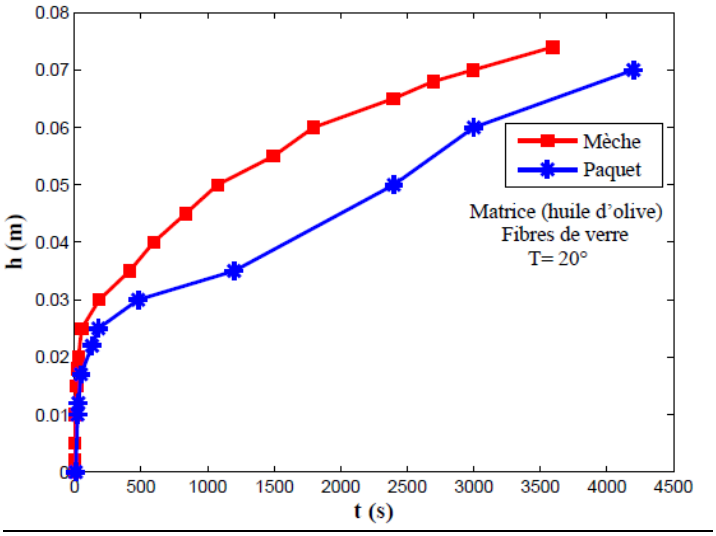


Fig. 8 : Progression capillaire de l'huile d'olive dans les deux types de canaux

Dans la Fig.9 on trace l'effort de traction appliqué aux fibres de verre imprégnées avec l'huile d'olive. On montre que les trois courbes ont la même pente aux temps d'imprégnation ce qui prouve les résultats précédents : la traction favorise l'imprégnation dans les paquets.

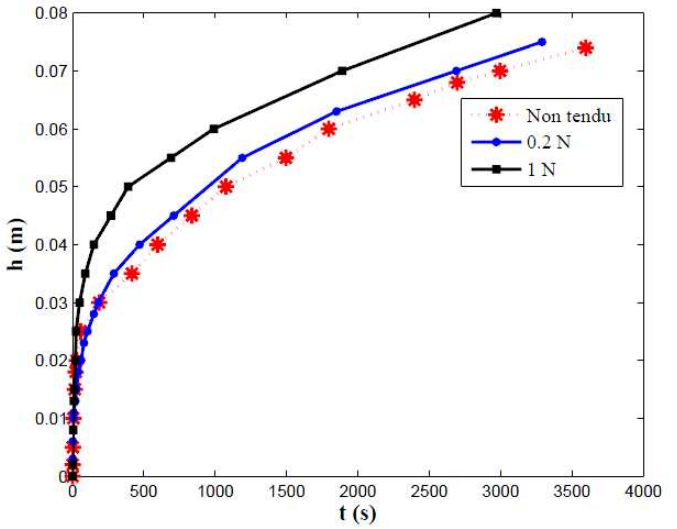


Fig. 9 : Effort du traction dans la progression capillaire

Des essais préliminaires pour visualiser le front de montée ont été entrepris au moyen d'un microtomographe (Fig. 10). Il s'agit d'observer le profil d'une mèche de fibres de verre imprégnée par du gel de bougie. On rappelle que l'imprégnation a est effectuée à T=120°C et que l'observation est réalisée à température ambiante. On constate que le front de montée et hétérogène et que la mèche est dissociée en paquets comme observé sur la figure 1 pour la fibre sèche.

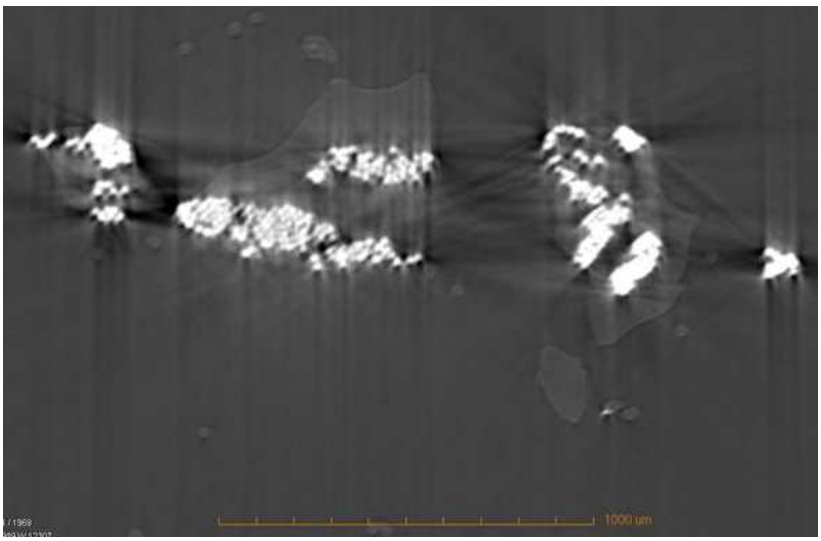


Fig. 10 Progression capillaire du gel de bougie. Microtomogrie X (voxel : 3.1μm)

Une filière expérimentale mise en place au CEMCAT et permettant de réaliser des profilés composites à section rectangulaire confirme lors de premiers essais la difficulté d'imprégner le renfort fibreux et la persistance malgré la filière des paquets de filaments observés précédemment (figure 11).

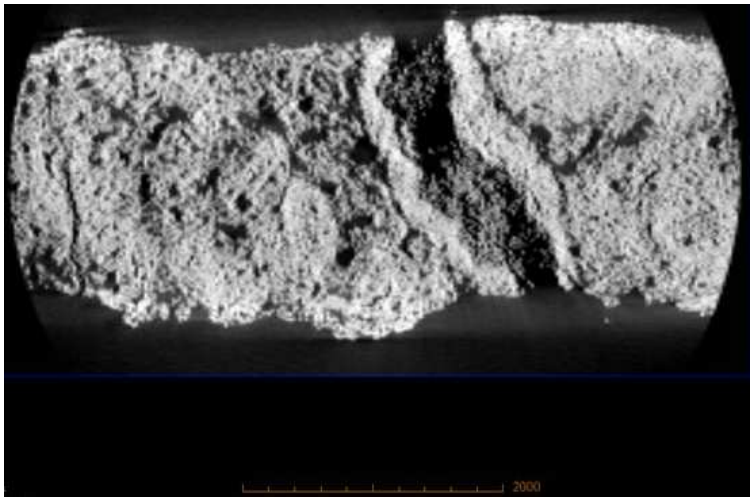


Fig. 11 Profilé composite verre/matrice thermoplastique. Microtomofgraphe X. Voxel 2.9μm)

5. Conclusion

L'imprégnation du renfort par une matrice thermoplastique reste un problème complexe. On a montré qu'une étude analytique et expérimentale conduite au niveau d'une mèche permettait d'estimer la pression capillaire et la perméabilité du milieu. La morphologie de la mèche joue un rôle essentiel et l'on a mis en évidence la présence de paquets de filaments qui modifie l'imprégnation de la mèche ainsi que l'influence de la traction exercée sur la mèche sur son imprégnation. Les résultats de cette étude vont permettre compléter un modèle numérique de la pultrusion déjà entrepris et proposer des paramètres pertinents pour une pultrusion optimale.

Remerciements

Cette étude s'inscrit dans le cadre du projet « Défi Composite » en partenariat avec AIRBUS France, CETIM et CEMCAT.

Références

[1] Koubaa S, Le Corre S, Burtin C, Poitou A « Simple modelling and optimization of Impregnation in thermoplastic pultrusion process ». *Advances in Materials and Processing Technologies conference,* Vol. 34A, pp. 583-595, 2003.

[2]Carisson A, Astrom BT.Experimental investigation of pultrusion of glass fibre reinforced polypropylene composites. *Composites*, 29A:585-593, 1997.

[3]Neacsu V, Abu Obaid A, Advani SG.Spontaneous radial capillary impreg-nation across a bank of aligned micro-cylinders Part I: Theory and model development. *International journal of multiphase* flow, 32:661676, 2006.

[4] Badel P, Vidal-Sallé E, Maire E, Boisse P. « Simulation and tomography analysis of textile composite reinforcement deformation at the mesoscopic scale ». *Composites Science and Technology*, Vol 68, pp. 2433-2440, 2008.

[5]Koubaa S, Le Corre S, Burtin C, Poitou A « Simple Modelling of Impregnation in Pultrusion Process of Thermoplastic Composites». *International Conference on Advances in Mechanical Engeneering and Mechanics,* Hammamet, Tunisie, 2010.

[6] Salvo L, Cloetens P, Maire E, Zabler S, Blandin JJ, Buffière JY, Ludwig W, Boller E, Bellet D, Josserond C. «X-ray micro-tomography an attractive characterization technique in materials science». *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research* , pp. 273-286, 2003.

[7] Li M, Wang S, Gu Y, Zhang Z, Li Y, Potter K. «Dynamic capillary impact on longitudinal micro-flow in vaccum assisted impregnation and the unsaturated permeability of inner fiber tows». *Composites Science and Technology*, pp. 1628-1636, 2010.

[8] Masoodi R, Pillai K. «Darcy's law based model for wicking in paper like swelling porous media». *AIChE Journal*, pp. 2257-2267, 2010.

[9] Sénécot JM. «Etude de l'imprégnation capillaire de tissues de verre». Thèse de l'université de Haute Alsace. 2002.