

Problématique de l'imprégnation d'une préforme, interaction fluide/solide

Saturation – Porosité – Défaut

Laboratoire Ondes et Milieux Complexes – Le Havre :
LOMC, UMR 6294

L. Bizet, J. Bréard, B. Duchemin, A. Saouab



Laboratoire de Cristallographie et Sciences des Matériaux – Caen :
CRISMAT, UMR 6508

M. Gomina, J-P. Jernot, P. Jouannot-Chesney



Mécanique des matériaux biosourcés
MECAMAT – Aussois 2014



Plan de l'exposé

- Mise en œuvre des composites et fibres végétales
- Couplages THM en milieux fibreux
- Saturation – Porosité – Défaut
- Perméabilité des préformes
- Analyse des vides > porosités
- Phénomènes aux interfaces et mouillabilité

Motivations

Milieux de fibres enchevêtrées > Variabilité (fibres végétales)

- Assemblage désordonné ou ordonné de fibres > renfort sur mesure
- Matrice fluide ou solide > Matrice thermoplastique (chargée ou non)
- Fibres végétales > Microcomposite

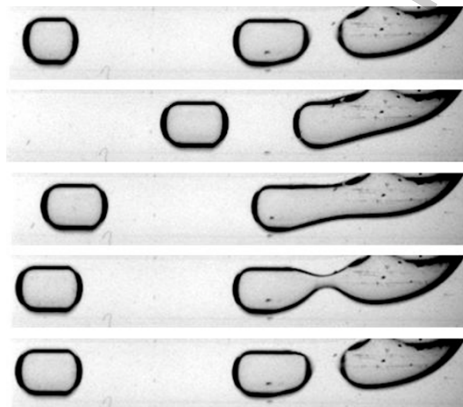
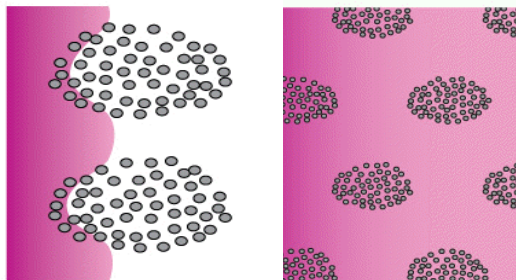
MISE
EN
ŒUVRE

Milieux auto-assemblés : dépôt couche par couche > Matériaux fonctionnels

> Prédire et optimiser les propriétés mécaniques et physiques de ces milieux complexes :

- **Écoulement / matrice fluide**
- Propriétés mécaniques et physiques / matrice solide

MILIEUX
COMPLEXES



Mise en œuvre des composites

Rappel:

En général, le renfort est déjà sous sa forme définitive lors de la mise en œuvre du composite. Lors de la mise en œuvre :

- > La matrice est transformée
- > L'interface est créée



La mise en œuvre doit :

- préserver l'**intégrité du renfort** : orientation, aspect thermique ...
- être effectuée avec une **matrice appropriée** : entrant en contact intime avec le renfort, développant les propriétés mécaniques désirées ...
- permettre d'éviter la formation de **défauts** (bulles, zones sèches ...)

GdR MIC 3371

GdR M3F 3542

Cas des fibres de lin : vers des fibres techniques !



**Paille
arrachée**
(andains)

Rouissage

**Paille
rouie**
(andains)

Teillage

**Lin
teillé**
Anas

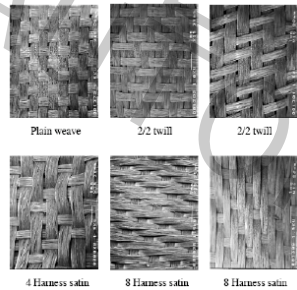
Peignage

Lin peigné
(rovings)

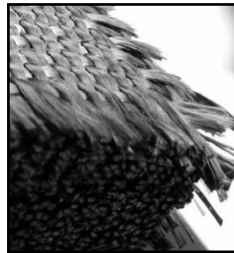
Influence DES procédés

Thèse A. Barbulée
CRISMAT

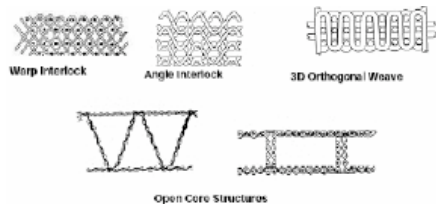
Paramètres : Choix de l'architecture des renforts



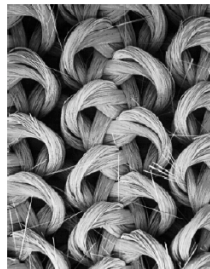
Tissés



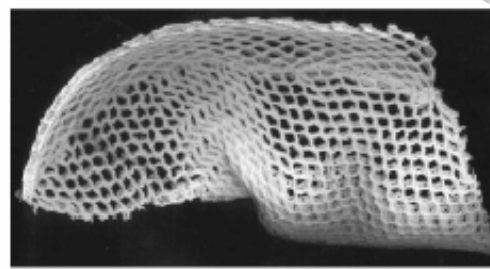
Tissés 3D



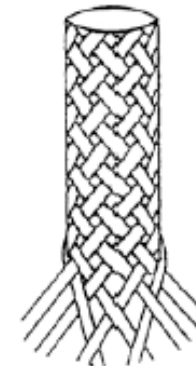
Tricotés



Tricotés 3D



plat



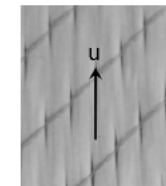
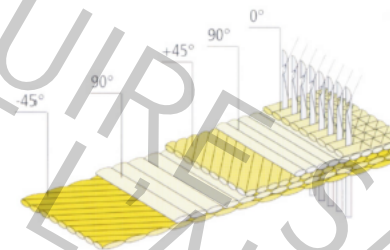
tubulaire



triaxiale

Tressés

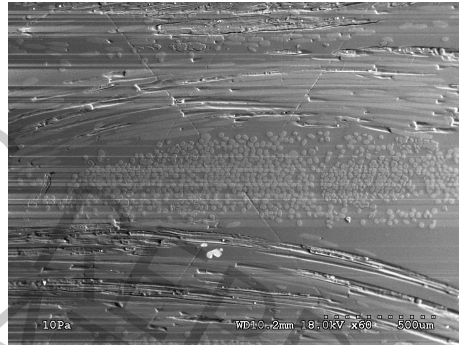
NCF



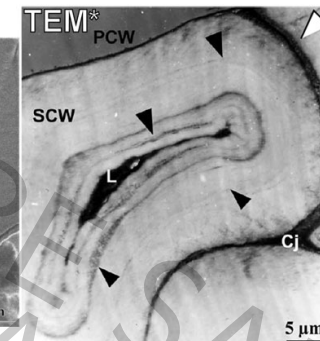
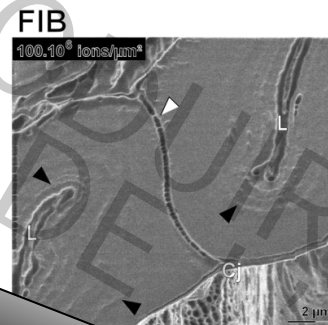
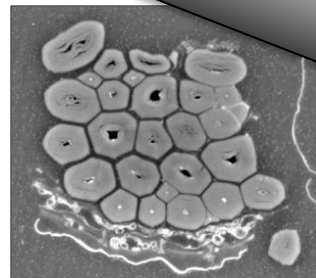
Suite

Procédés !

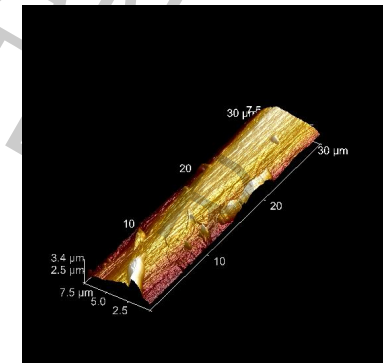
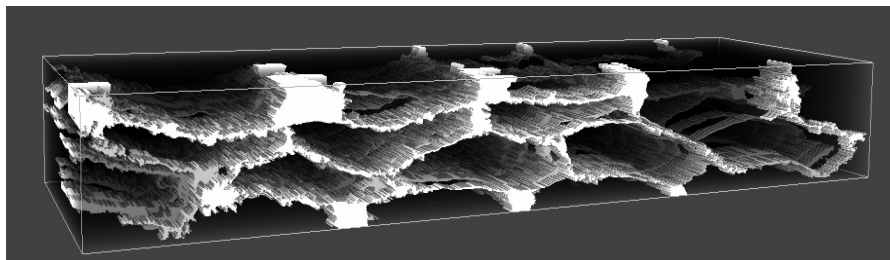
Analyse multi échelles > fibres de lin



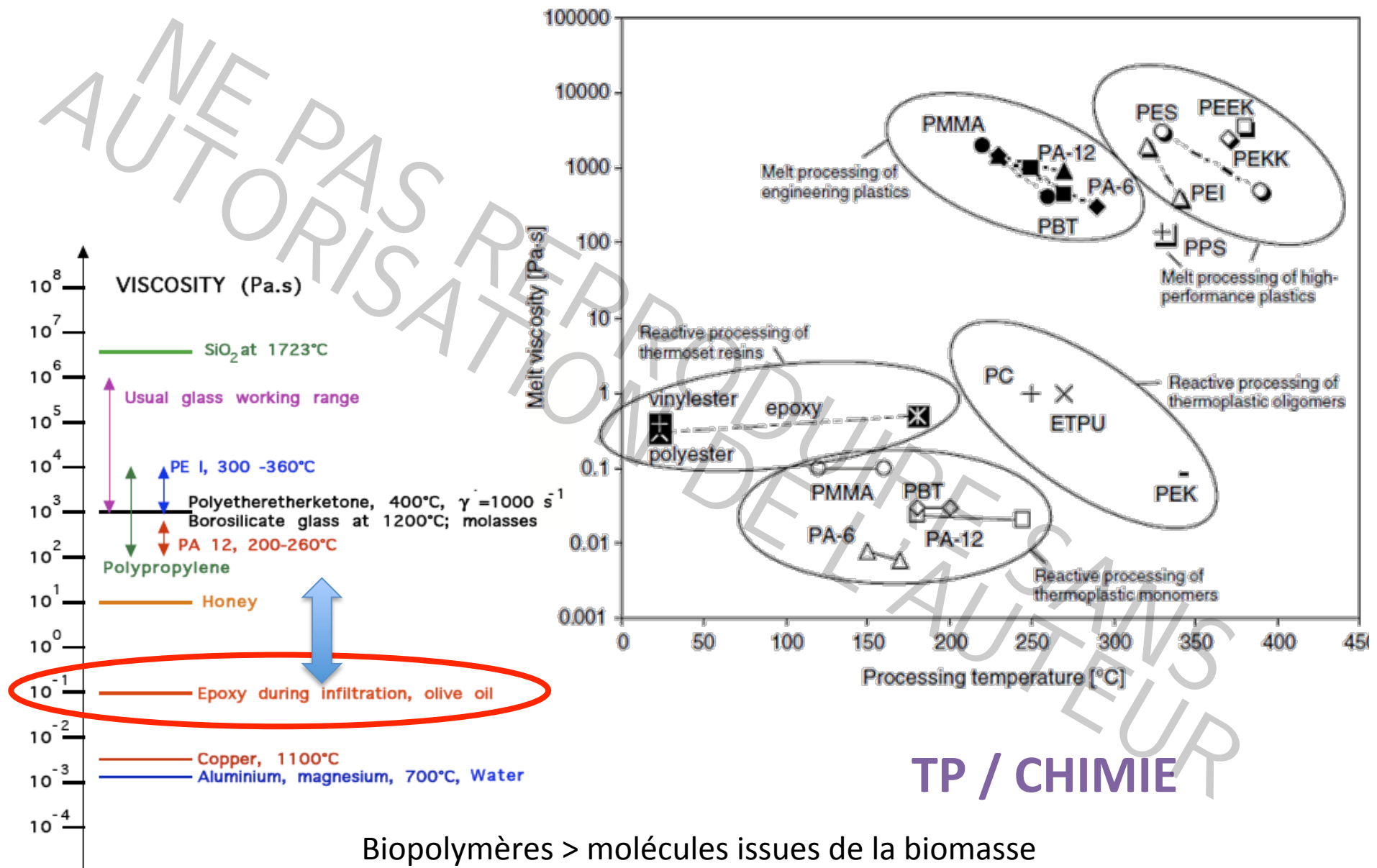
cm



nm



Paramètres : Choix de la matrice



TP / CHIMIE

Biopolymères > molécules issues de la biomasse

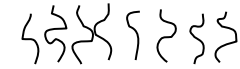
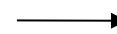
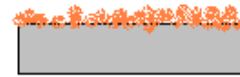
Pb : Intrant agricole dans l'intermédiaire chimique ! (ACV)

Paramètres : Choix du traitement des fibres ou matrice

- Comment améliorer l'interface fibre/matrice ?

- Chimie

- Nettoyage
- Ajout d'un agent compatibilisant
- Création de liaisons chimiques entre matrice et fibre



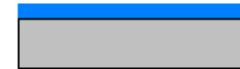
- Mécanique

Modification de la structure et des propriétés de surface des fibres et matrices



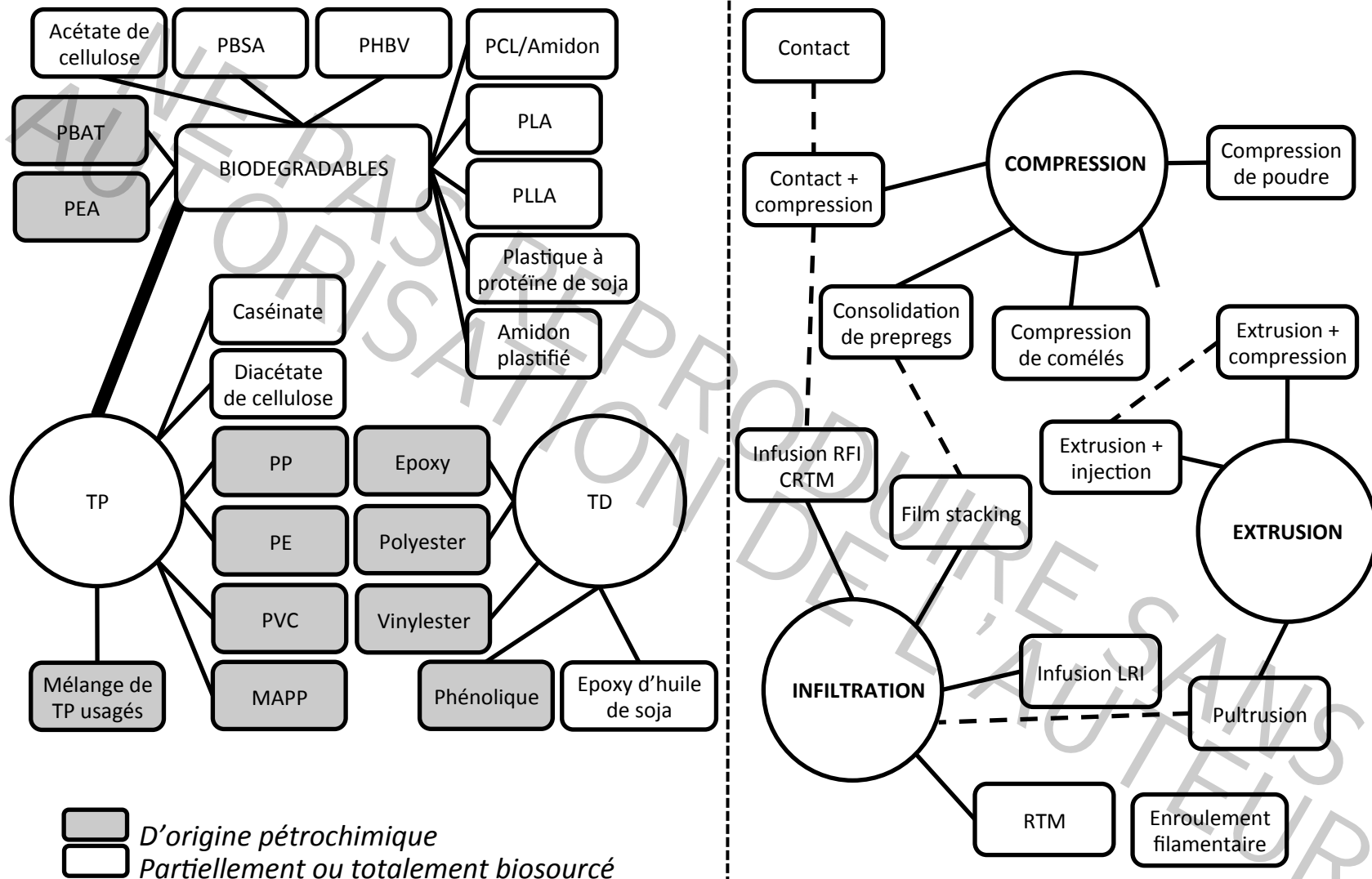
- Thermodynamique

Amélioration de la mouillabilité



- Intervention sur les fibres et/ou la matrice
 - Traitement chimique
 - Traitement physique
 - Traitement enzymatique
 - Autres traitements !

Procédés : vers un langage commun THM

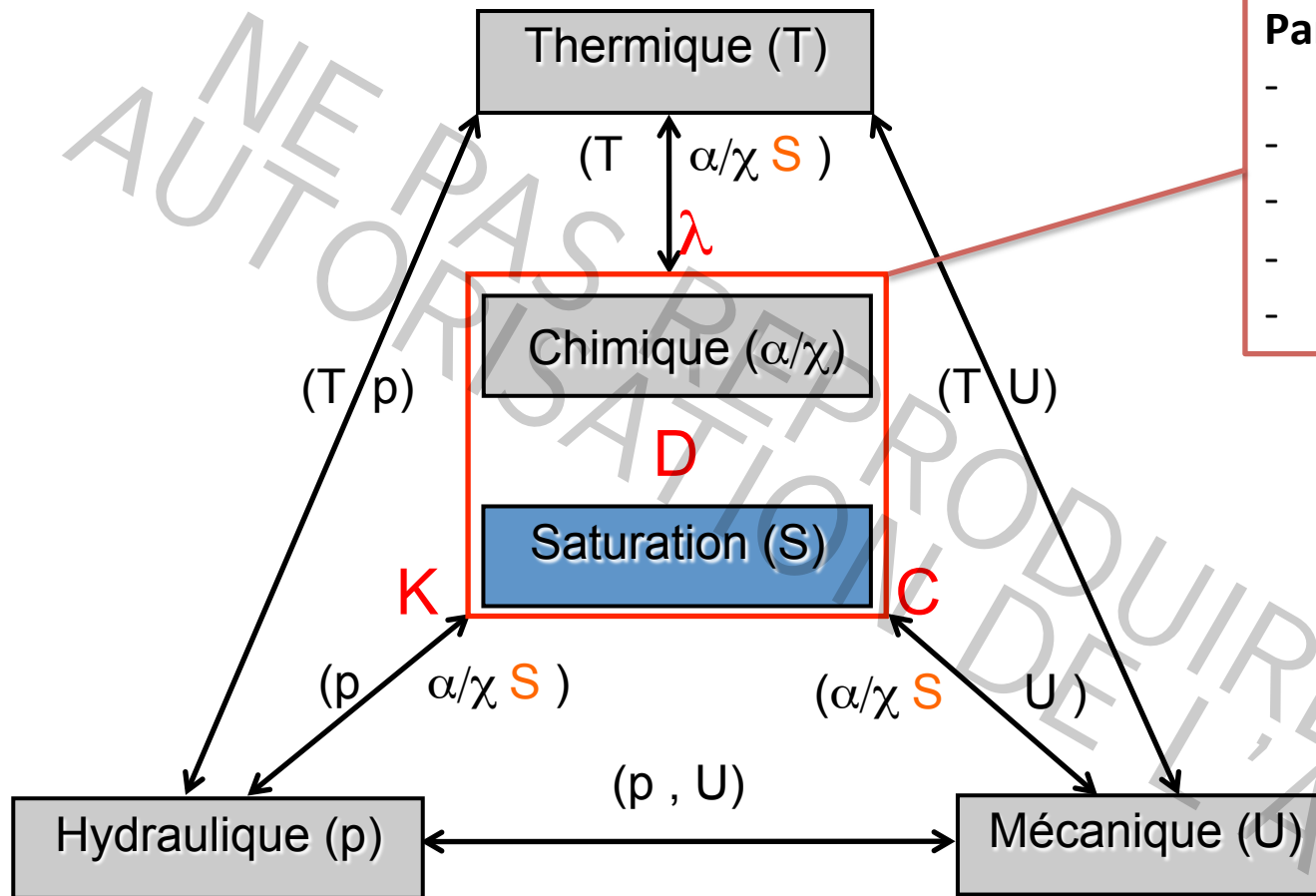


> Les matrices sont transformées !

> Les interfaces sont créées et modifiées !

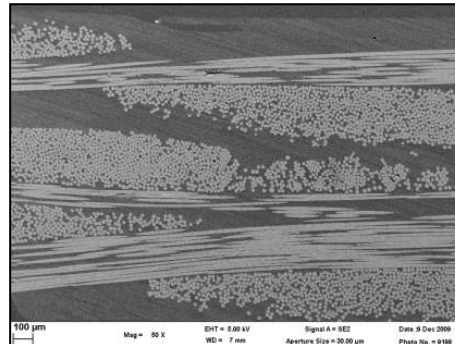
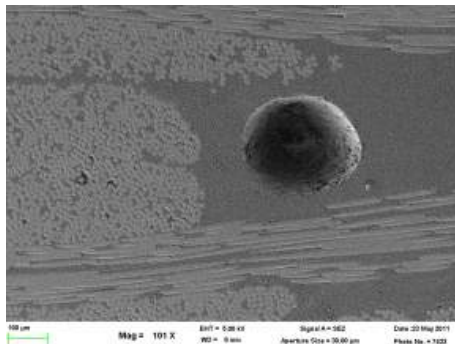
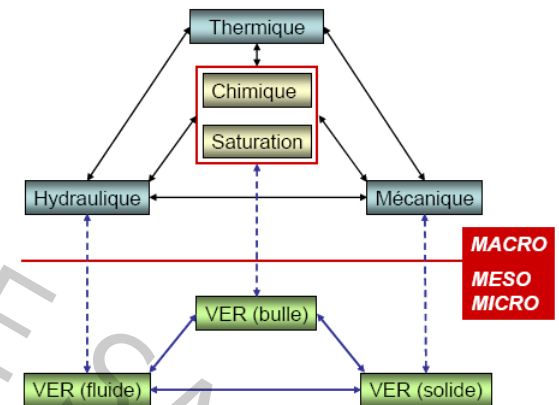
Thèse C. Ré, LOMC

Couplages multi physiques – multi échelles THM



Paramètres Santé matière :

- Matrice > chimie
- Porosité > saturation
- Fibre > intégrité
- Interface > hétéro chim/géo
- Autres composants ...



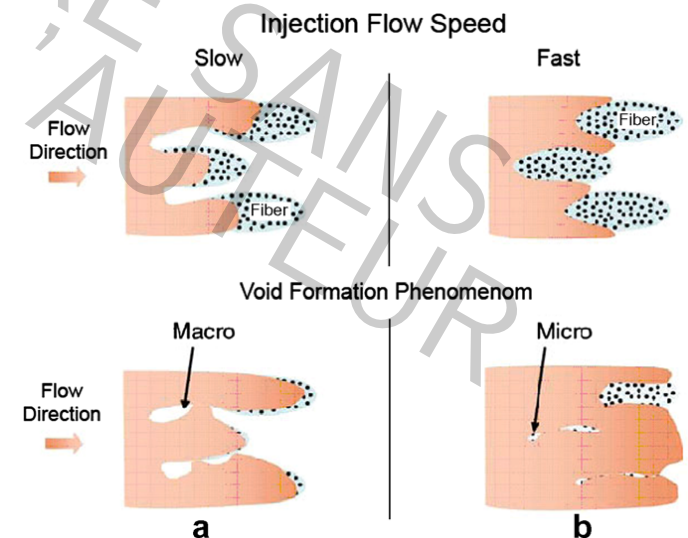
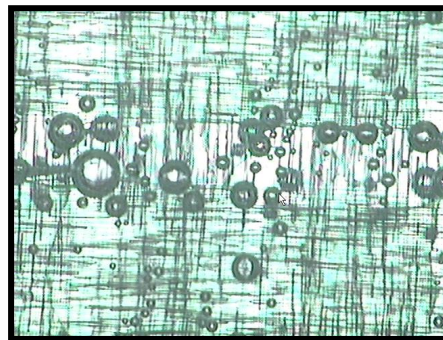
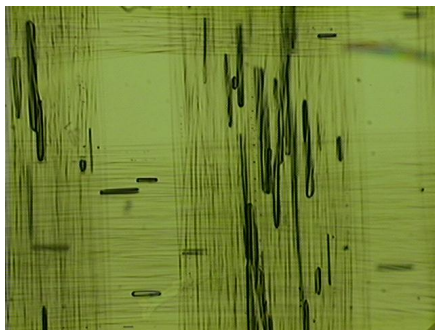
Motivations : Maîtrise de la santé matière

Saturation / Porosité / Défaut

Microcavité ouverte ou fermée, générée par l'emprisonnement de gaz (air, solvants, produits de réaction) dans un matériau :

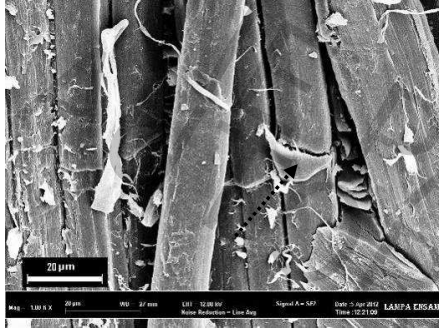
- les microporosités ont une taille de l'ordre du plus petit élément constitutif (dans notre cas, la fibre);
- les macroporosités ont une taille de l'ordre de l'élément constitutif du renfort (dans notre cas, le toron/le fil).

Ces défauts réduisent les propriétés mécaniques du matériau.

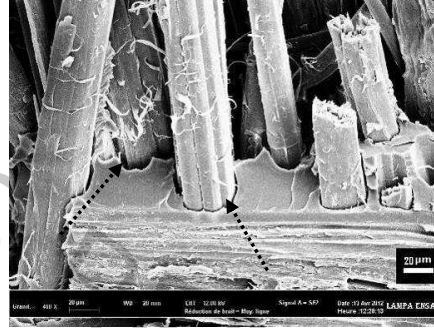


Maîtrise de la santé matière : lin

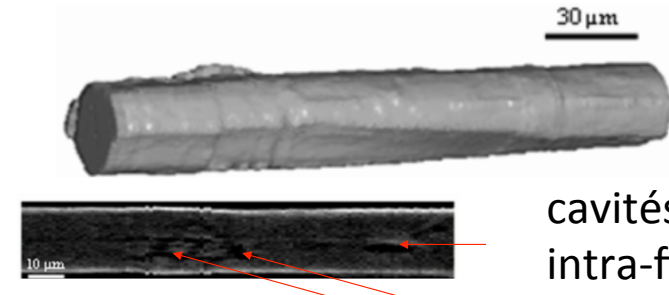
Thèse A. Thuault, CRISMAT



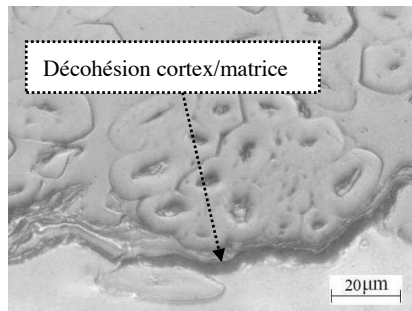
Rupture de fibres



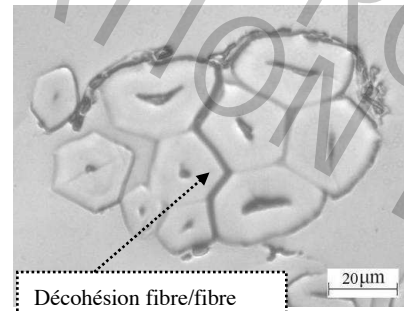
Décohésion fibre/matrice



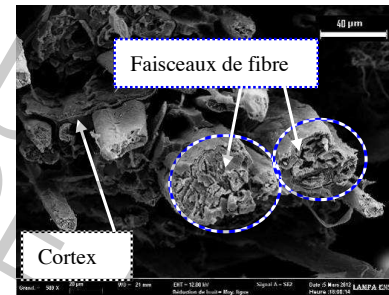
cavités
intra-fibre



Décohésion cortex/matrice

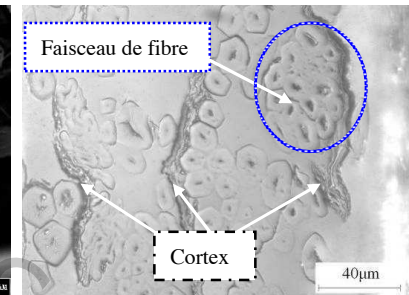


Décohésion fibre/fibre



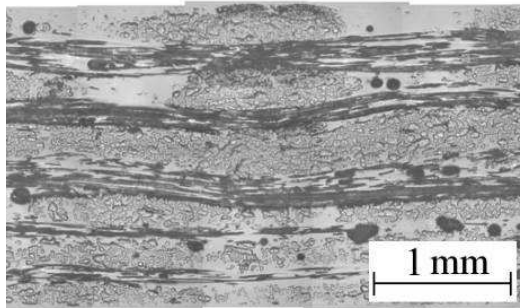
Faisceaux de fibre

Cortex

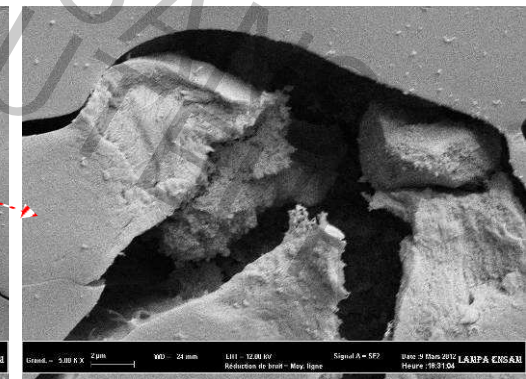
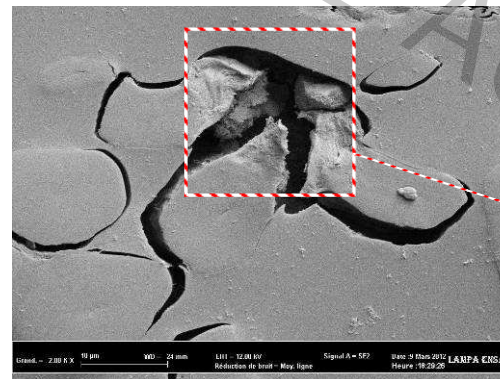


Faisceau de fibre

Cortex



Vides



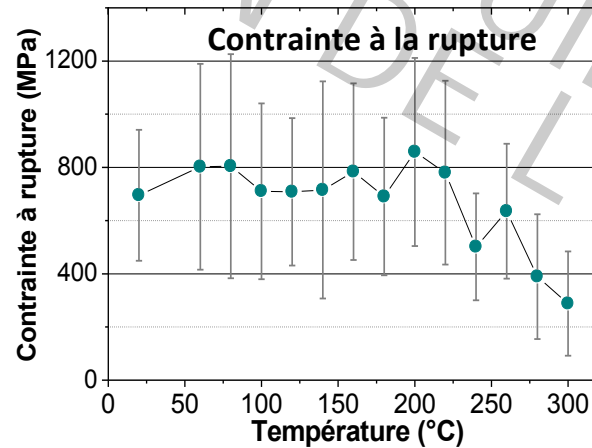
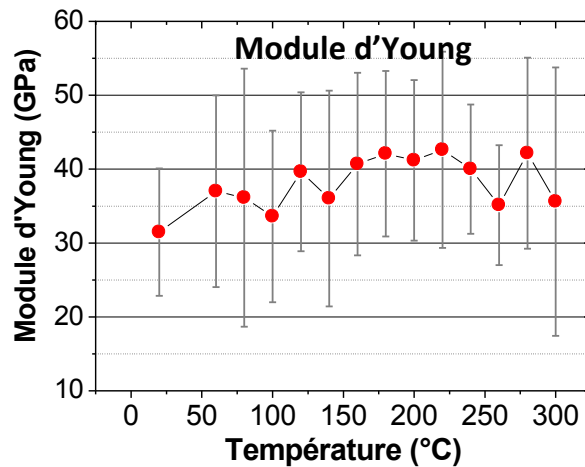
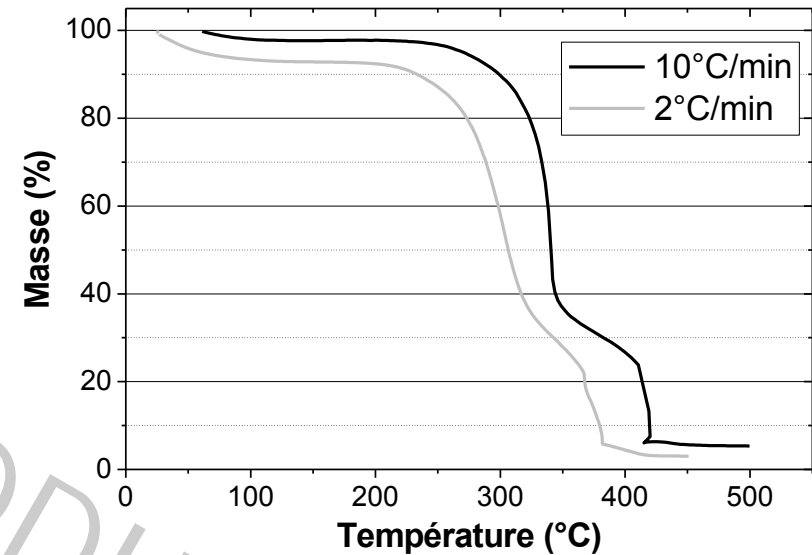
Fissuration autour d'un vide

Thèse S. Liang, ISAT

Fibres de lin : processus de dégradation

Comportement **hygrothermique**

> A contrôler / Choix de la matrice

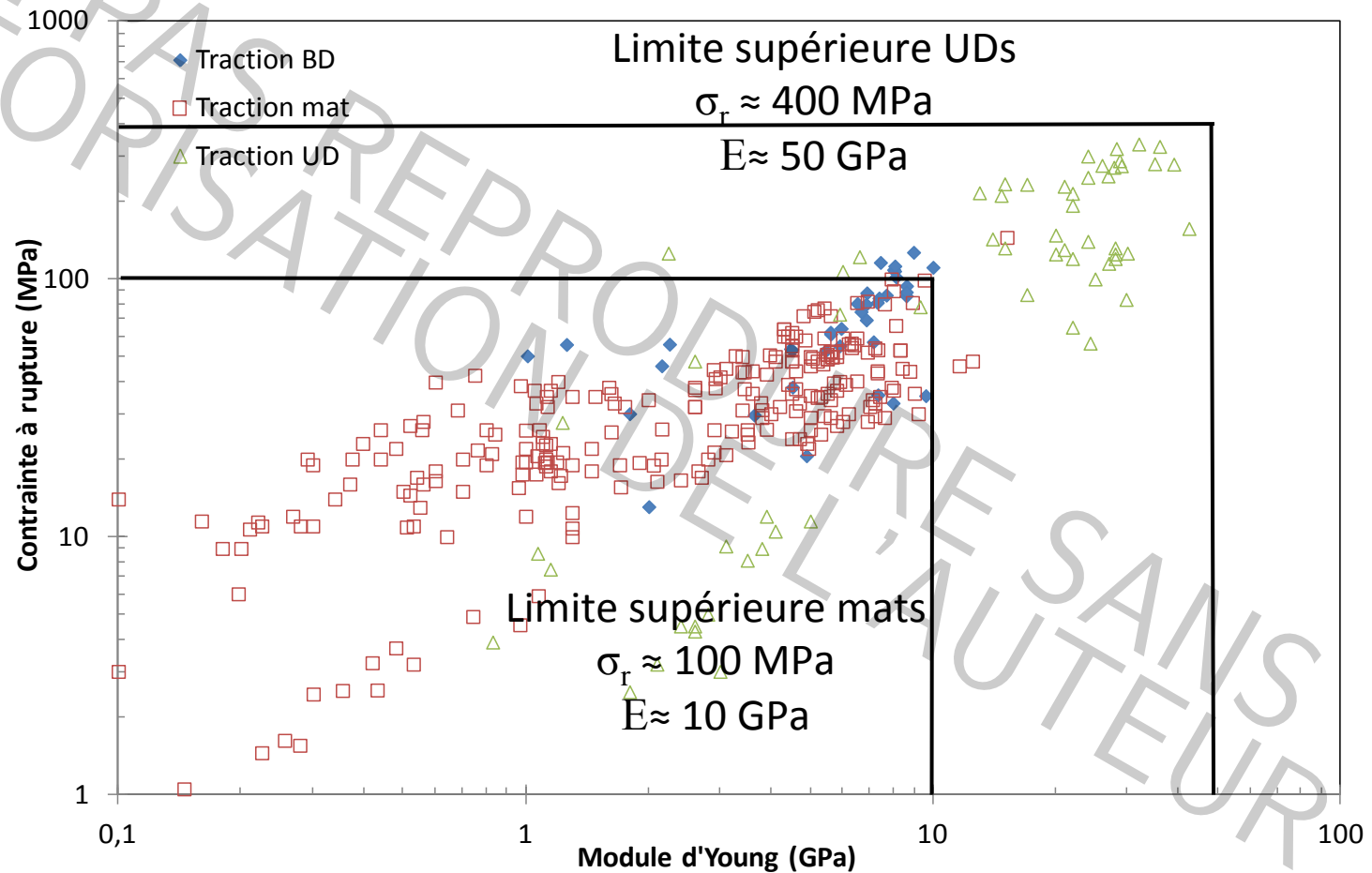


> Dégradation thermique
Influence Température/temps

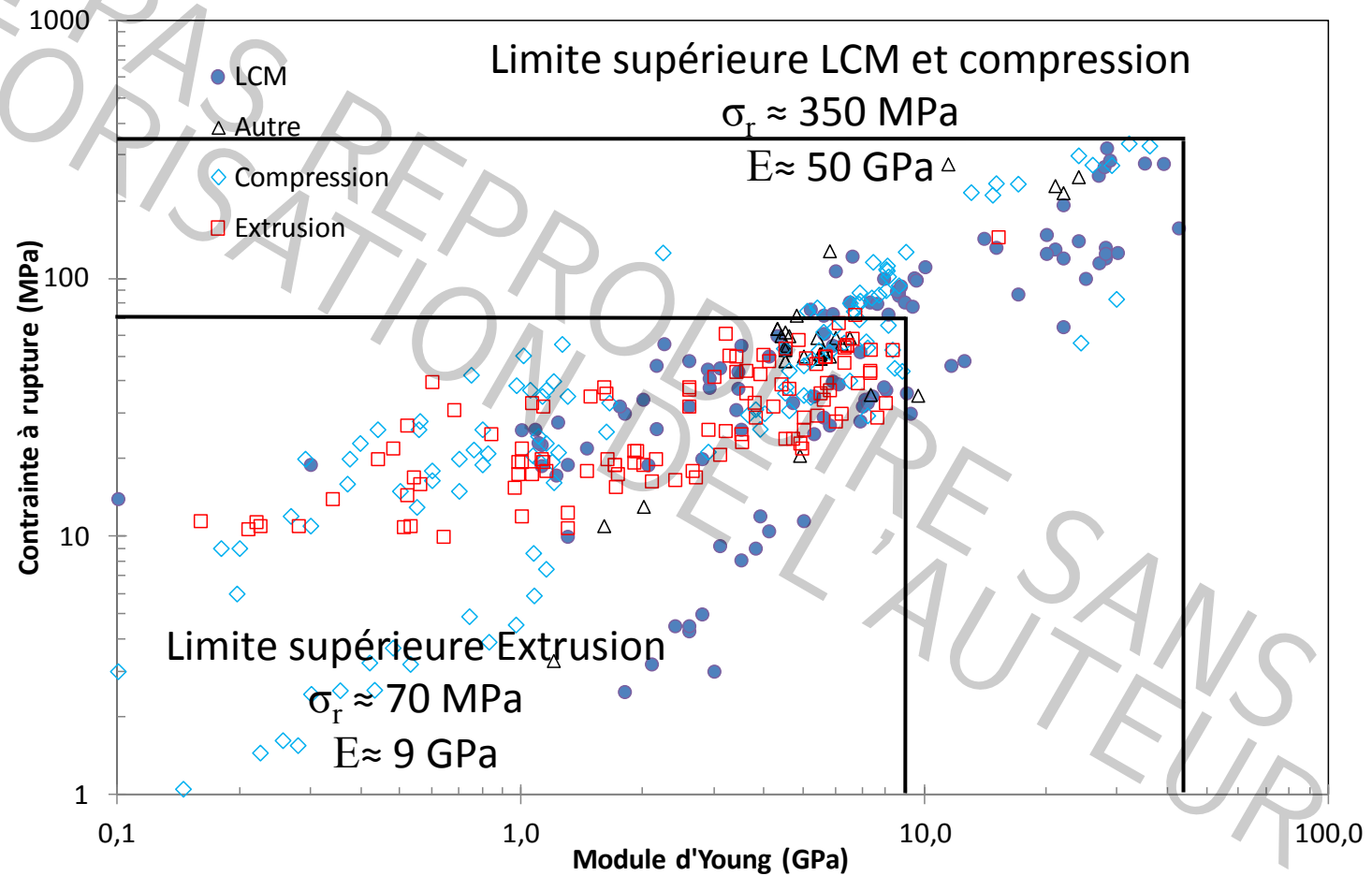
A. Thuault, CRISMAT (2011)

F. Destaing, CRISMAT (2012)

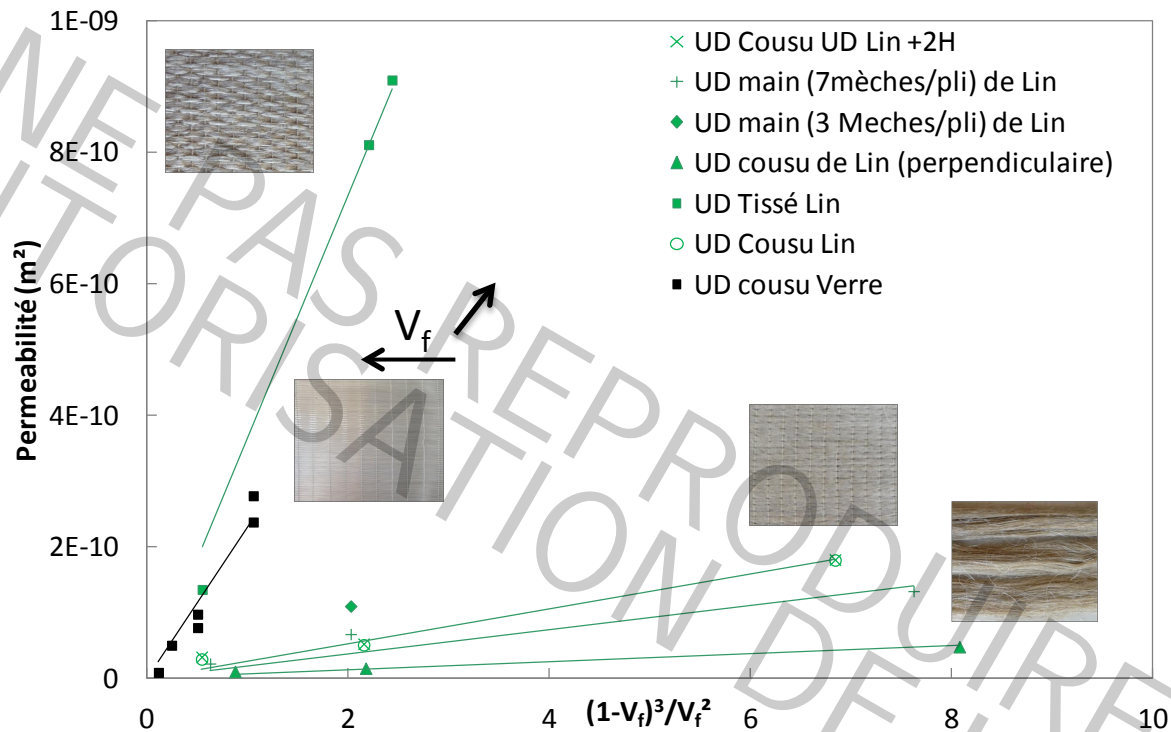
Comparaison Architecture du renfort



Comparaison Famille de procédés



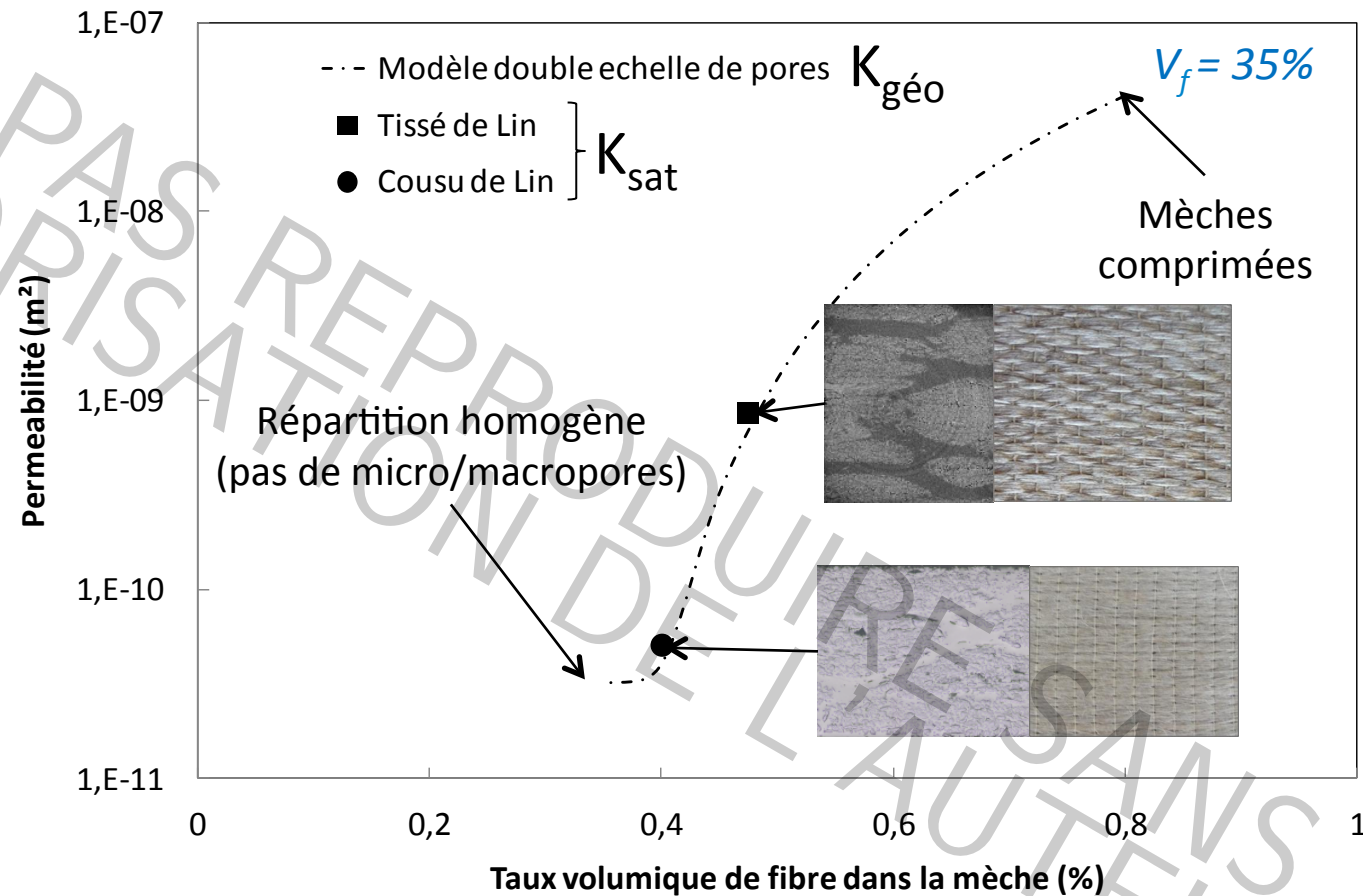
Perméabilité des préformes



Influence de la double échelle de pores ?

	Pente $10^{-11} m^2$	r_f μm	C_0	Ratio $C_0 Lin / C_0 Verre$
UD Cousu Verre	23,1	8,7	19,8	1
UD Tissé Lin	46,3	12	20,8	1,05
UD Cousu Lin	2,64	12	1,19	0,06
UD Main Lin	1,85	12	0,83	0,05

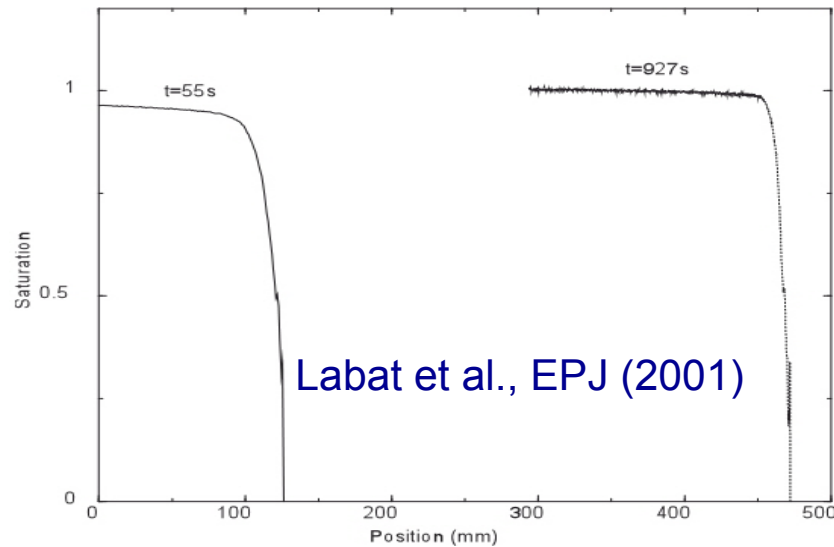
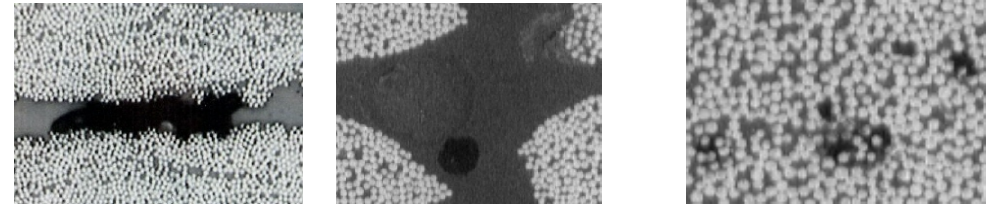
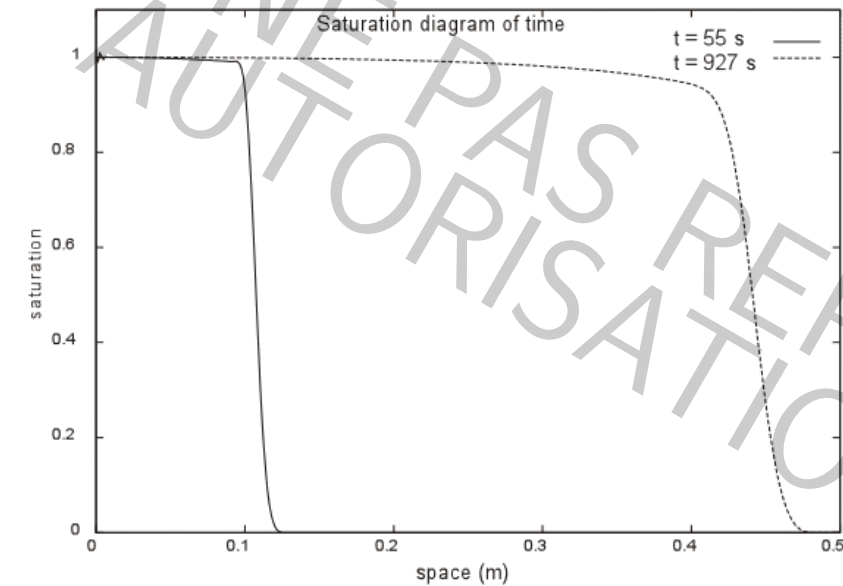
Perméabilité des préformes



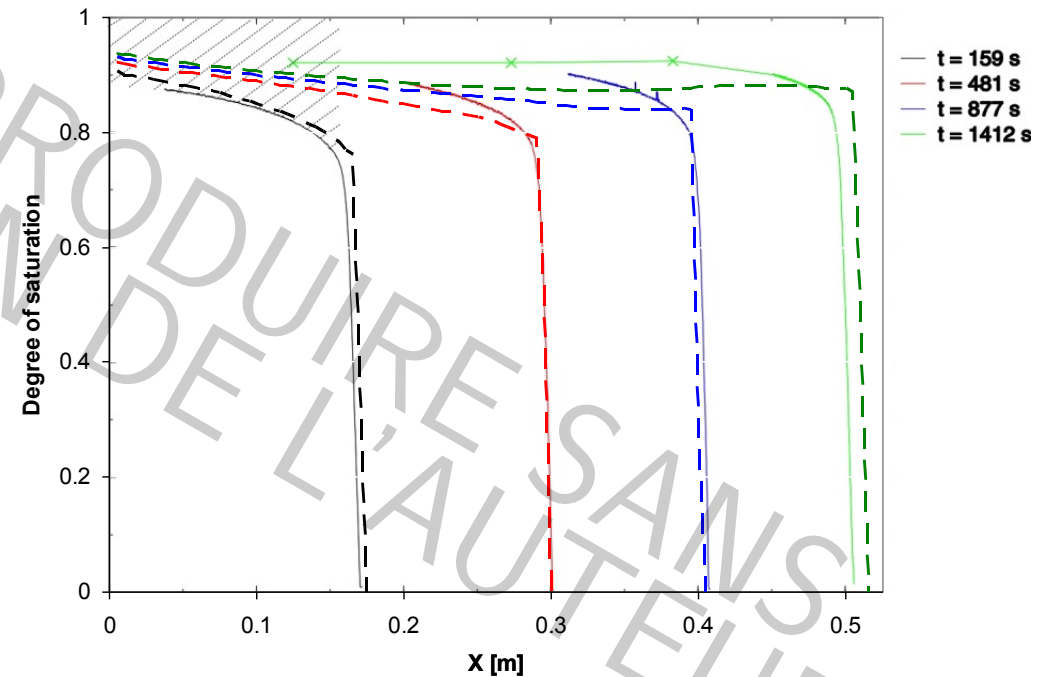
Influence des paramètres textiles
sur la répartition micro/macropores > perméabilité

Analyse de la saturation

Thèses L. Labat 2001, S. Guérout 2012

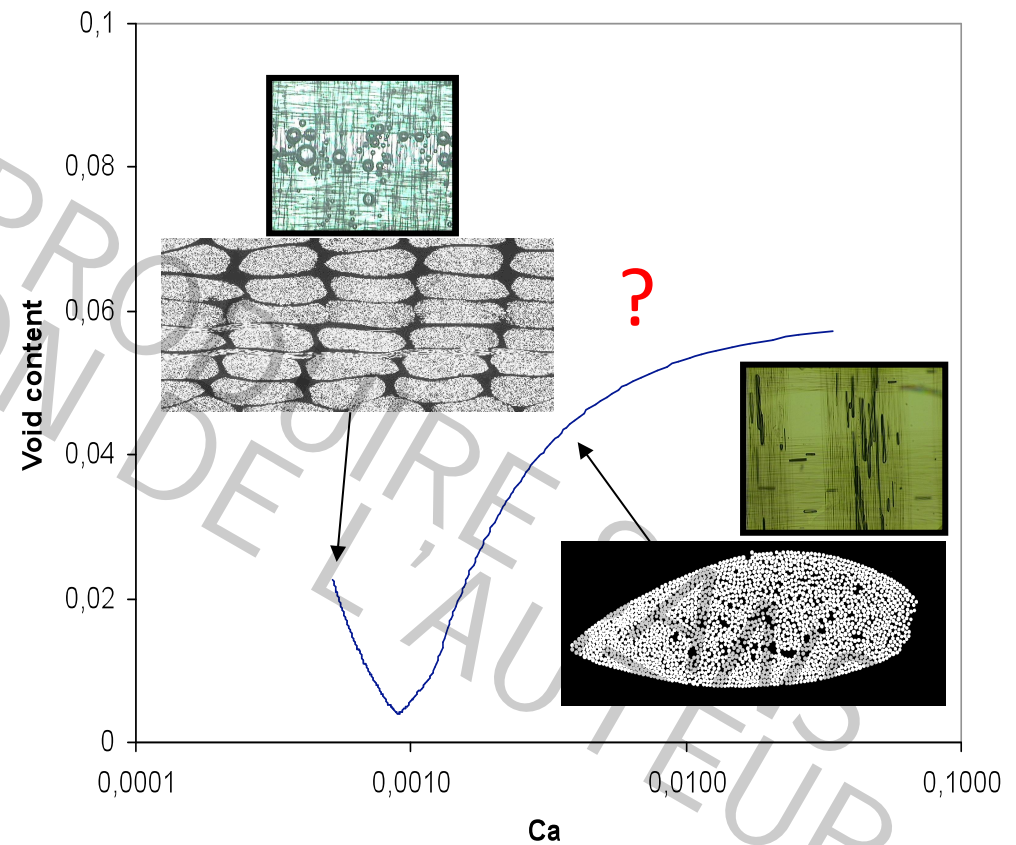
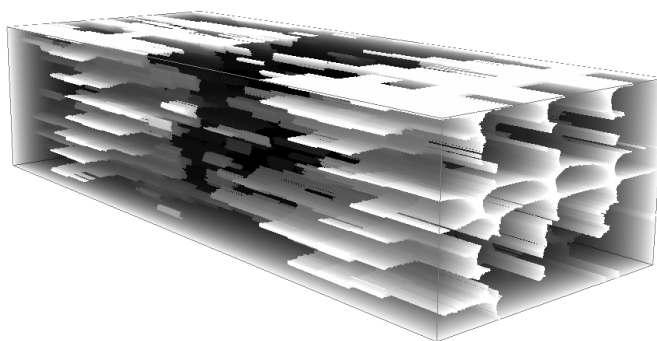
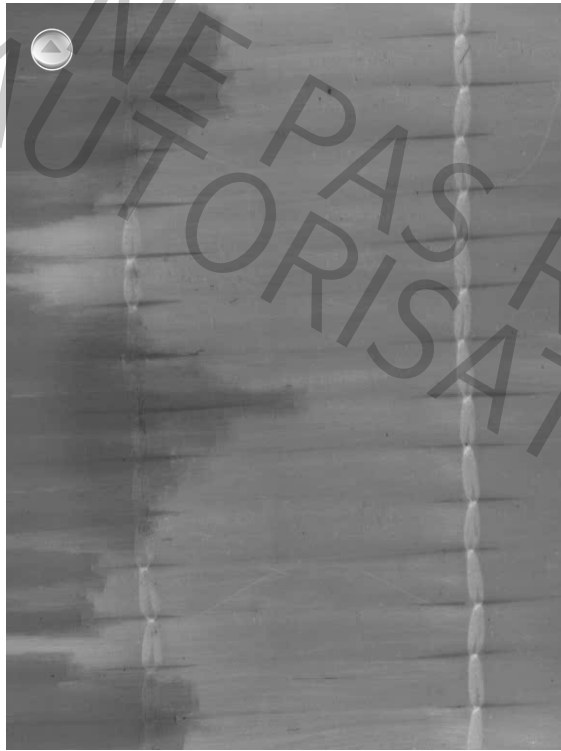


Labat et al., EPJ (2001)

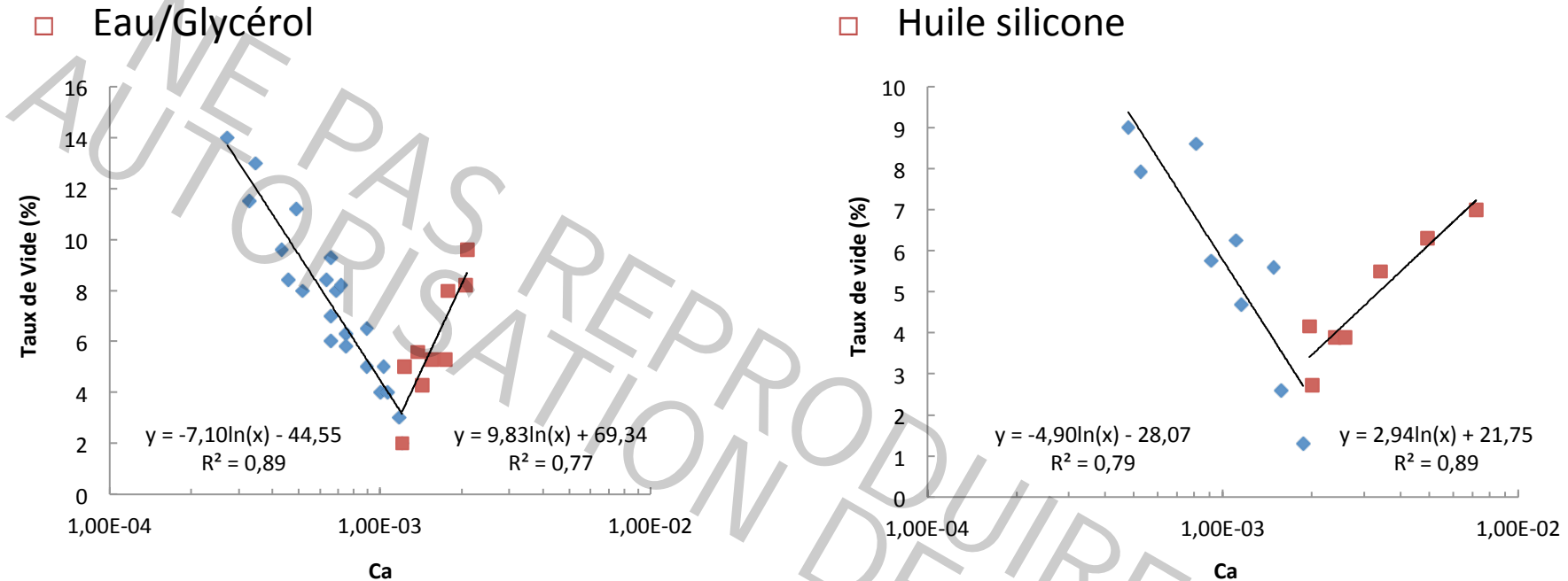


- Zones sèches
 - Formation des vides
 - Compression des vides
 - Transport des vides
- } saturation

Analyse Saturation / micro et macro vides



Analyse Saturation / micro et macro vides



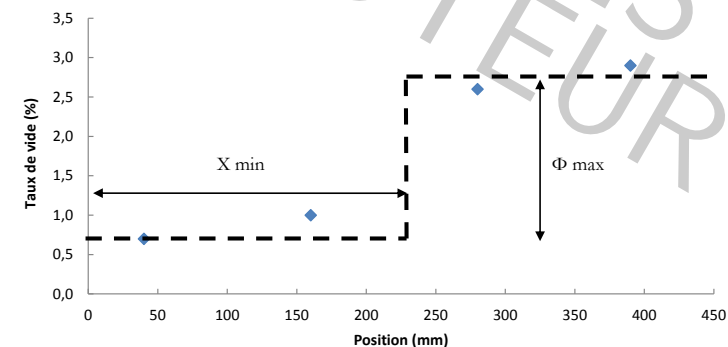
- Résultats à débit et pression imposé
- Présence d'un nombre capillaire optimal
- Conforme à la littérature et aux travaux de A.Lebel-Lavacry (A.lebel, 2012)

$$X_{\min}/L = 0.41 \ln Ca + 3.54$$

$$\phi_{\max} = -3136 \ln Ca + 6.63$$

$$X_{\min}/L = 0.30 \ln Ca + 1.23$$

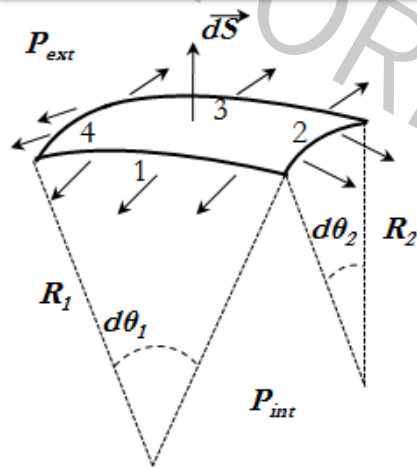
$$\phi_{\max} = -4402 \ln Ca + 8.82$$



Principes fondamentaux du mouillage

❑ **Le mouillage** est « l'étude de l'étalement d'un liquide déposé sur un substrat solide (ou liquide) »
(de Gennes, Brochard-Wyart et Quéré 2005)

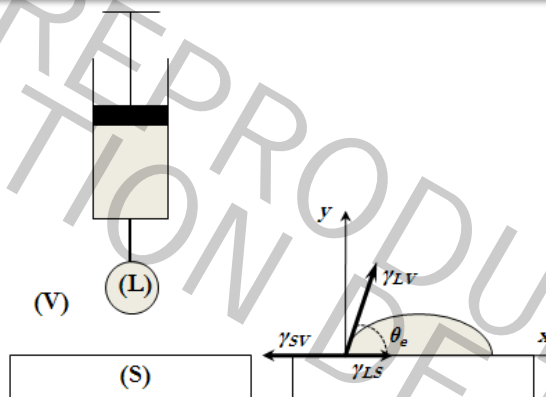
Courbure d'une interface



Laplace (1806)

$$P_{int} - P_{ext} = \gamma \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right)$$

Equilibre d'une gouttelette sur un substrat lisse horizontal



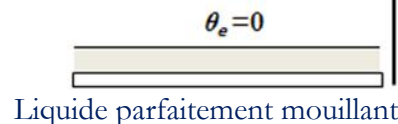
Energie d'adhésion/unité longueur (Young-Dupré, 1805)

$$E_{adh} = \gamma_L (1 + \cos \theta_e)$$

Energie d'étalement/unité longueur (Marangoni, 1871)

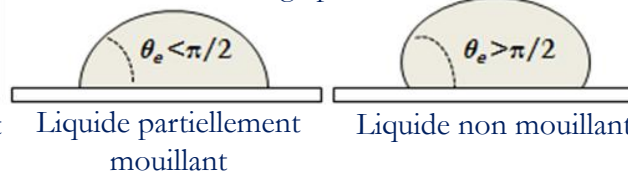
$$I = \gamma_L (\cos \theta_e - 1)$$

Mouillage parfait $I > 0$

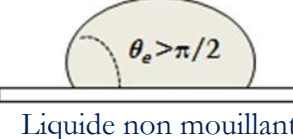


Liquide parfaitement mouillant

Mouillage partiel $I < 0$



Liquide partiellement mouillant

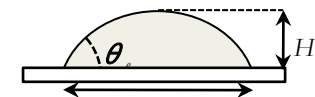


Liquide non mouillant

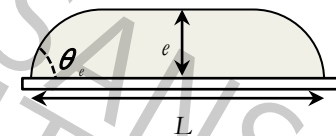
Goutte soumise à la gravité longueur capillaire

Longueur capillaire

$$\kappa^{-1} = \sqrt{\frac{\gamma_{LV}}{\rho \cdot g}}$$



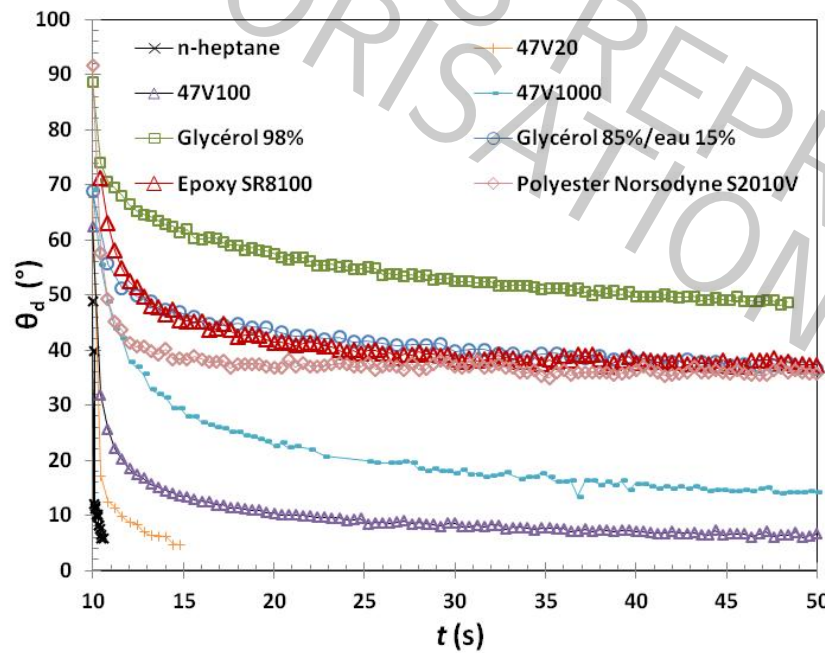
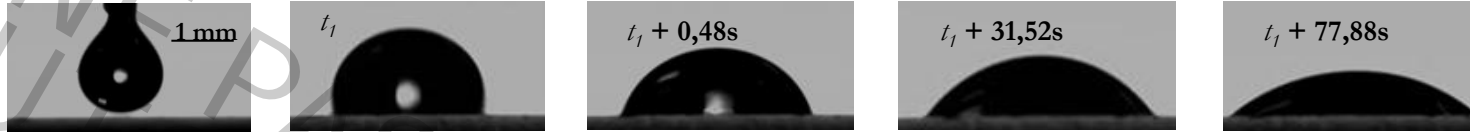
Calotte sphérique $R_g < \kappa^{-1}$



Flaque $R_g > \kappa^{-1}$

Résultats étalement de gouttes sur une surface lisse

Etalement spontané d'une goutte millimétrique (images glycérol 98%) sur une lame en verre lisse à $T = 24^\circ\text{C}$



Angle de contact dynamique (apparent) à l'avancée $\theta_d (\pm 5^\circ)$ en fonction du temps

○ Approches de la dynamique d'étalement

• Cinétique hydrodynamique (macroscopique)

Hoffman (1975), Voinov (1976), Tanner (1979), de Gennes (1985)

✓ Raccord ménisques dynamique /statique

✓ $\theta_d \text{ micro} \approx \theta_e$

✓ $\theta_d \text{ apparent} \sim t^{-3/10}$

• Cinétique moléculaire (microscopique)

Dodge (1988), Blake (1993), de Ruijter et al (1997)

✓ Collage/détachement particules liquide

✓ $\theta_d \text{ micro} \approx \theta_d$

✓ $\theta_d \sim t^{-1/2}$

• Approche combinatoire (micro/macro) [numérique]

de Ruijter et al (1999), $\theta_d \sim t^{-3/7}$

✓ Liquides mouillant le substrat

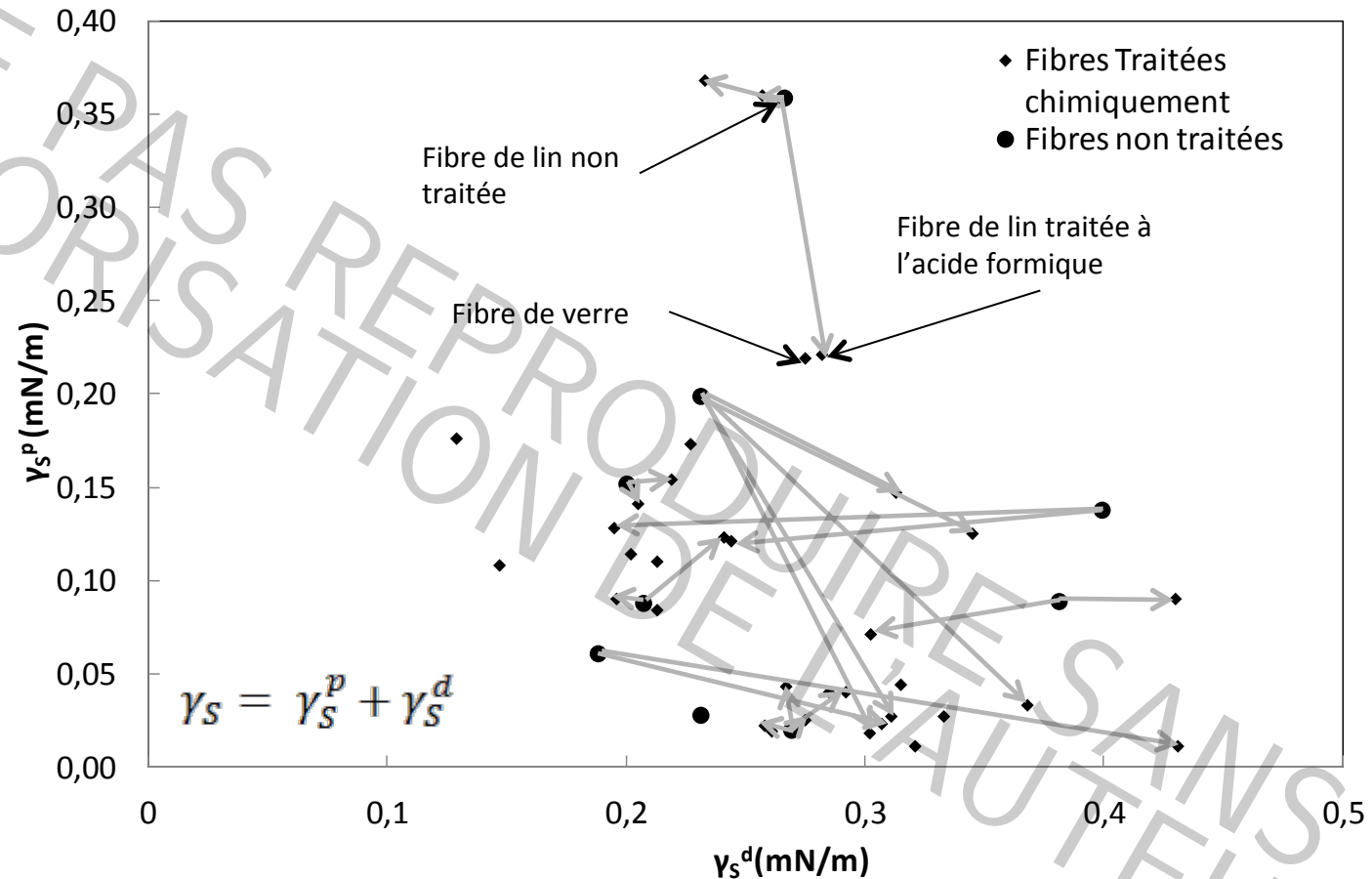
✗ Approche complète standard

Thèse

A. Ben Abdelwahed

LOMC

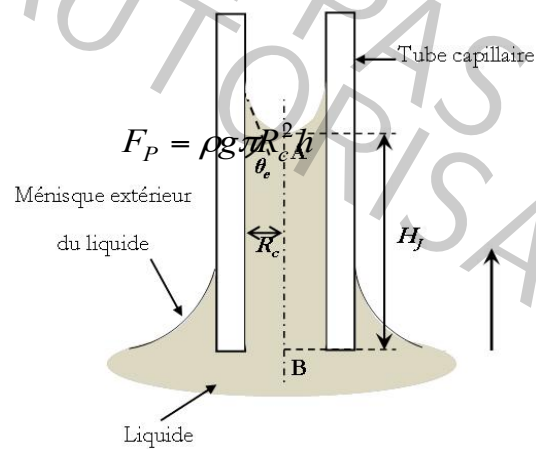
Mouillage / fibres de lin & verre



→ Grande dispersion des composantes polaires et dispersives pour les fibres traitées ou non-traitées
(Comparaison lin non-traité / lin traité à l'acide formique / verre)

Principes fondamentaux de l'imprégnation capillaire

❑ **L'imprégnation** est « la pénétration d'une substance (généralement à l'état fluide) dans la matière d'un corps à l'intérieur duquel elle se répand de façon diffuse »



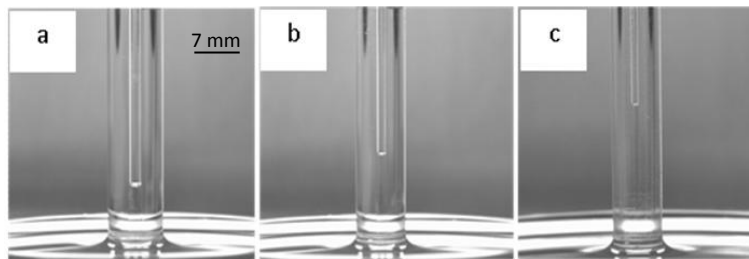
▪ Force capillaire $F_c = 2\pi R_c \gamma_L \cos \theta_e$

▪ Force visqueuse (Poiseuille) $F_\eta = 8\pi \mu h \frac{dh}{dt}$

▪ Poids liquide

▪ Equilibre des forces loi de **Washburn (1921)** $\frac{dh}{dt} = \frac{R_c^2}{8\mu h} \left(\frac{2\gamma_L \cos \theta_e}{R_c} - \rho g h \right)$

▪ Equilibre de la colonne liquide loi de **Jurin** $H_J = \frac{2\gamma_L \cos \theta_e}{\rho g R_c}$

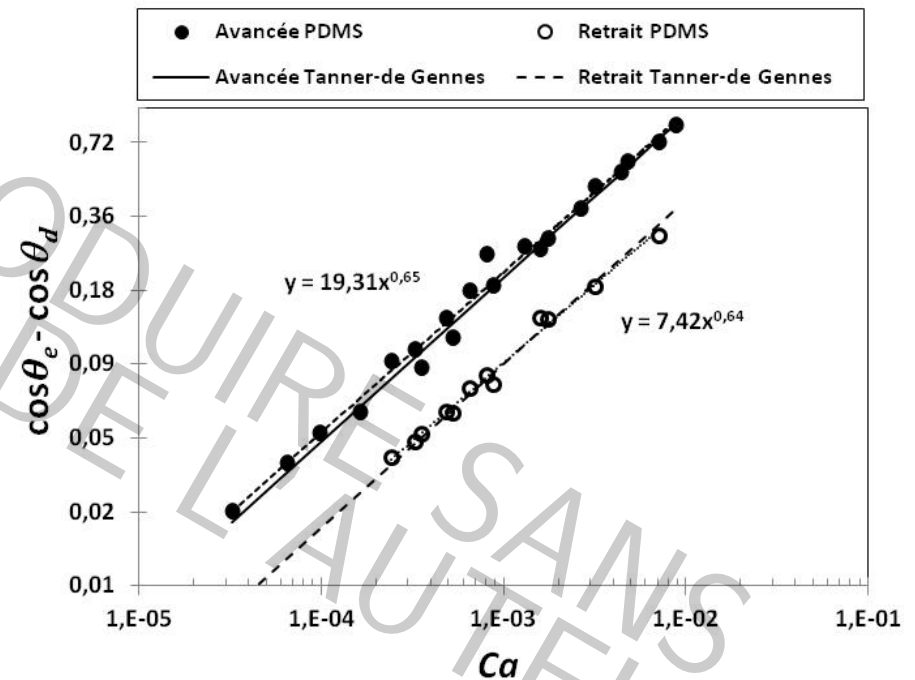
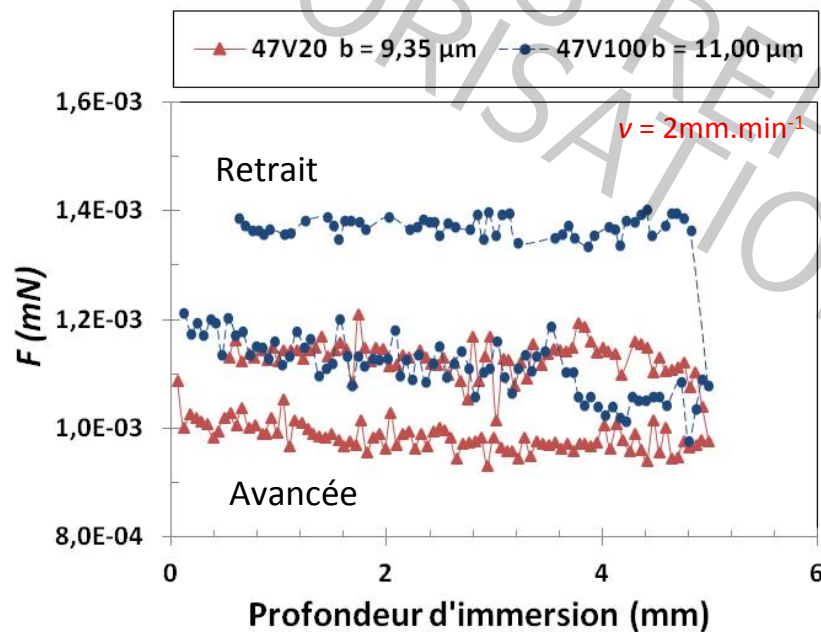


Images à l'équilibre de l'ascension de l'huile silicone à 0,02 Pa.s : a) $R_c = 0,6$ mm ; b) $R_c = 0,4$ mm et c) $R_c = 0,3$ mm

Huiles silicones	R_c (mm)	$H_J \pm 0,05$ (mm)	$\theta_c \pm 5$ (°)
47V20	2,5	1,75	5
	3,0	1,46	5
	3,5	1,25	5
47V100	2,5	1,74	10
	3,0	1,45	11
	3,5	1,25	9
47V1000	2,5	1,73	13
	3,0	1,44	13
	3,5	1,24	14

Avancée/retrait huiles silicones/fibres de verre

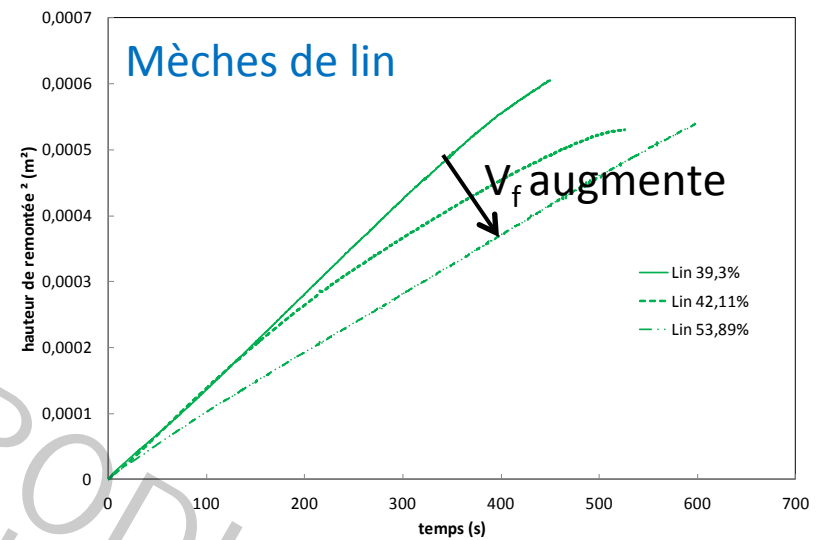
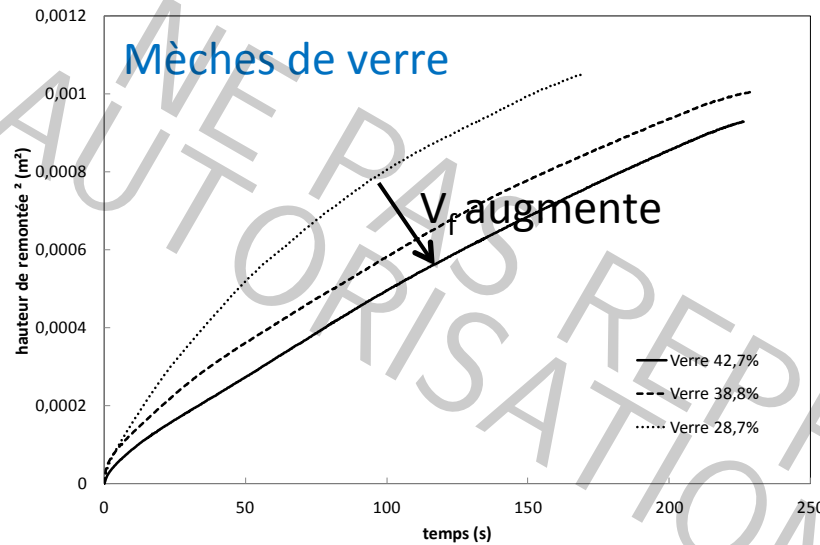
- Fibres de verre Roving de rayon b /huiles silicones 47V20, 47V100, 47V1000
- Tensiomètre K100SF, sensibilité $3.10^{-5}g$, $T \approx 25^\circ C$, $\neq v$ immersion $\rightarrow \neq Ca$
- Mouillage forcé θ_d avancée, θ_d retrait



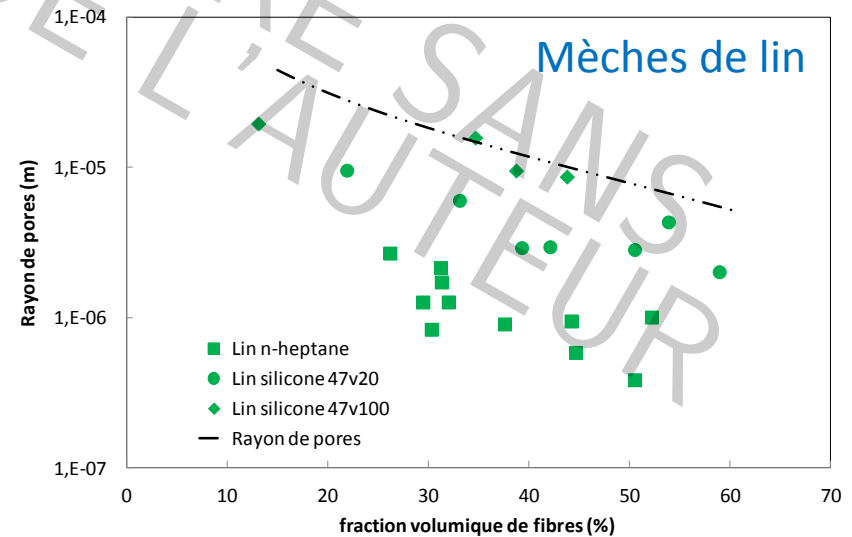
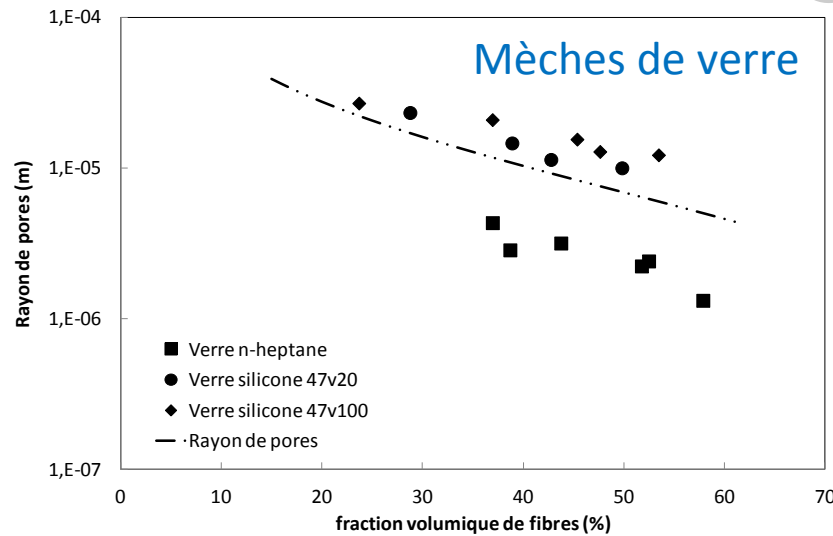
Blake-Haynes (1969), force capillaire + Landau-Levich (1942), film + Tanner (1979), $\theta_d = f(Ca)$ + de Gennes (1985), longueur de coupure micro/macro ($X_{max} \approx$ longueur capillaire)

$$\cos \theta_e - \cos \theta_d \approx (6\Gamma Ca)^{2/3} \begin{cases} \text{Avancée (fibre sèche)} \Gamma \approx 14,32 & \Gamma_{exp} \approx 14,14 \\ \text{Retrait (fibre pré-mouillée)} \Gamma \approx 4,5 & \Gamma_{exp} \approx 3,37 \end{cases}$$

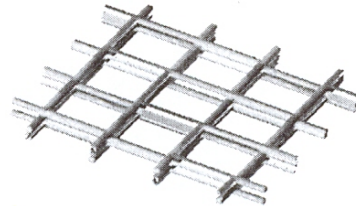
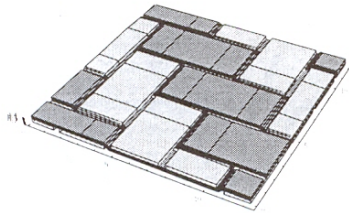
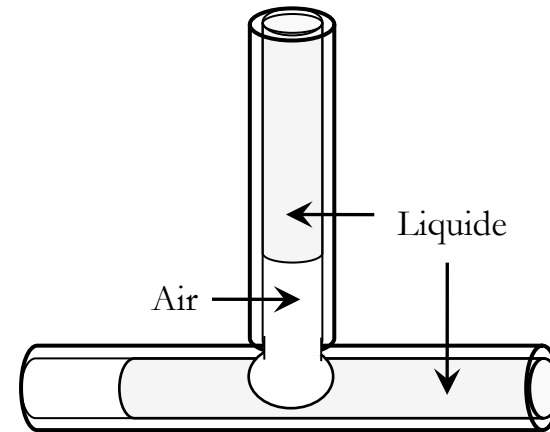
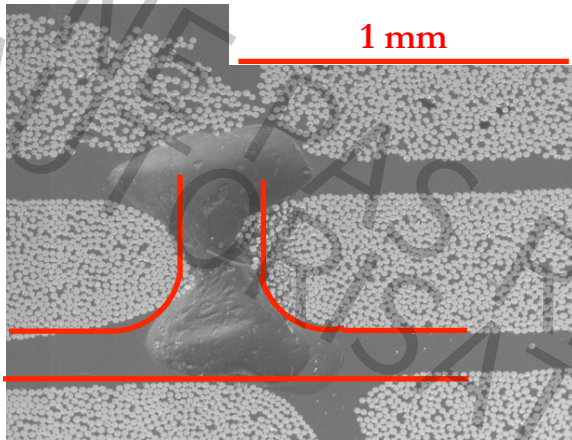
Ascension capillaire / Mèches verre et lin



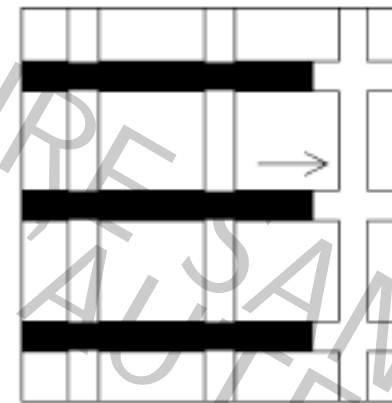
$$R_p = \frac{\overline{L(P)}}{2} \text{ avec } \overline{L(P)} = \frac{\pi r_f}{2} \frac{1 - V_f}{V_f}$$



Réseau T modélisant 2 pores convergents



Modélisation cellule élémentaire tissé de carbone d'armure sergé (Boust et al, 2002)



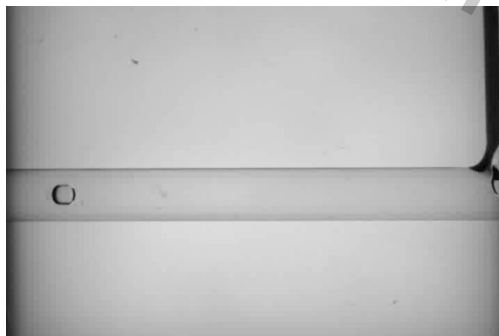
Réseaux capillaires carrés

- ✓ Mouillage (théorie de goutte) → approche hydrodynamique aux petites échelles
- ✓ Approche microfluidique - millifluidique (canal $\sim$ mm < longueur capillaire)

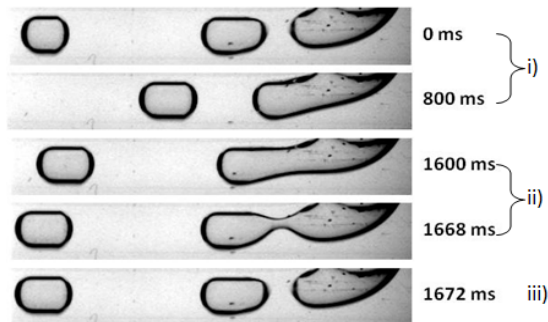
Résultats mécanisme de formation de bulles



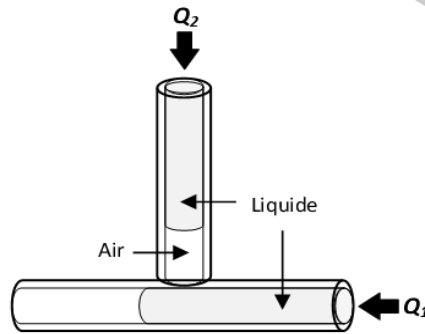
47V100, $R_c = 1\text{mm}$
 $Q_1 = 10\text{mL.h}^{-1}$
 $Q_2 = 0,5\text{mL.h}^{-1}$



47V100, $R_c = 1\text{mm}$
 $Q_1 = 10\text{mL.h}^{-1}$
 $Q_2 = 8\text{mL.h}^{-1}$

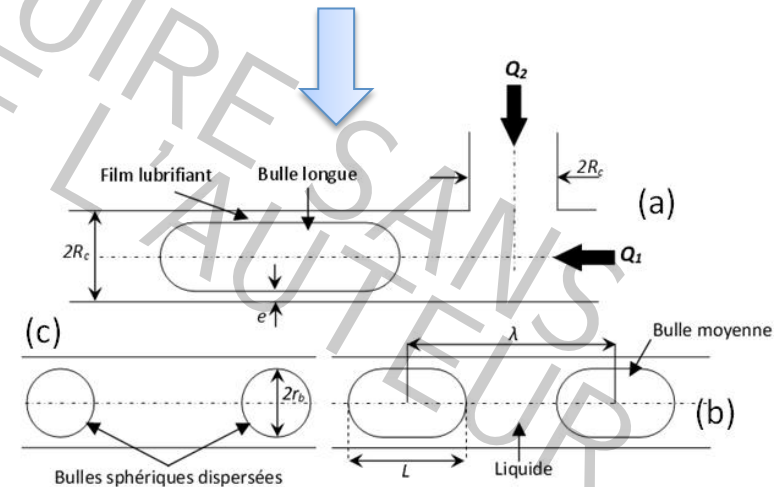


i) début de croissance, ii) formation du col de détachement et iii) détachement



Compétition force tension de surface/force de cisaillement

- **Régime forces de tension de surface** (de Menech *et al* 2008), (Xu *et al* 2008) longue bulle, $L/2R_c > 2,5$ (Fu *et al* 2010)
- **Régime force de traînée visqueuse** (Thorsen *et al* 2001), (de Menech *et al* 2008), (Xu *et al* 2008), $L/2R_c < 1$ (Fu *et al* 2010)
- **Régime intermédiaire** (Christopher *et al* 2008), (de Menech *et al* 2008), (Xu *et al* 2008), $1 \leq L/2R_c \leq 2,5$ (Fu *et al* 2010)



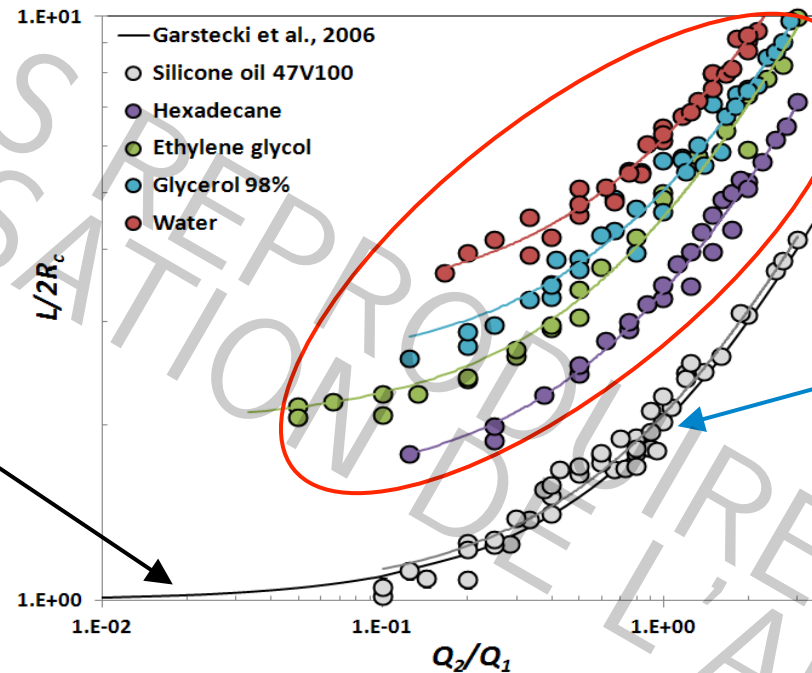
Longueur de bulle

✓ « Squeezing regime » (force de tension de surface)

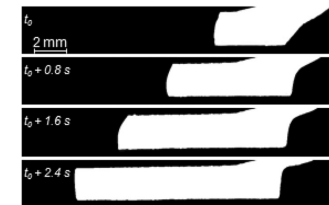
Garstecki *et al.* (2006):

$$\frac{L}{2R_c} = A \frac{Q_2}{Q_1} + B$$

avec $A = B = 1$



liquides
partiellement
mouillants



liquide mouillant



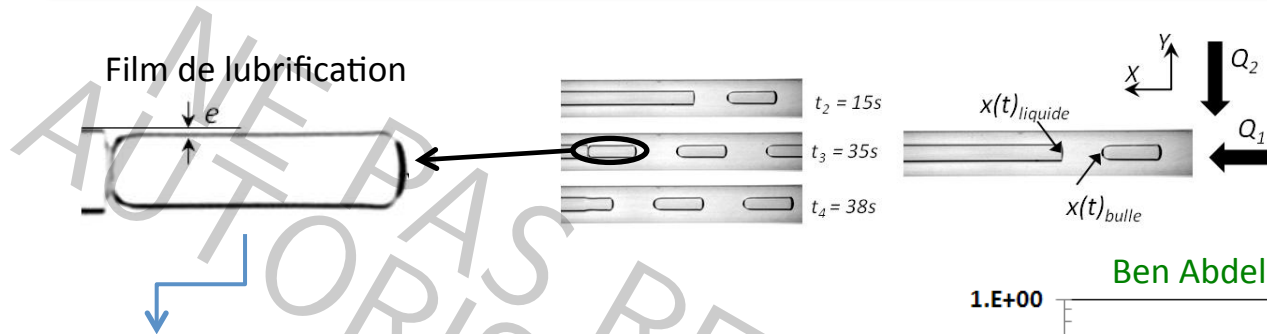
→ bon accord avec le modèle pour les liquides mouillants $\theta_s \leq 15-20^\circ$

→ décalage avec le modèle pour les liquides partiellement mouillants $\theta_s \geq 20^\circ$

Ben Abdelwahed *et al.* – CES [2012]

Wielhorski *et al.* – CES [2013]

Vitesse moyenne de bulle



- ✓ Théorie LLD (Landau et Levich, 1942; Derjaguin, 1943):
raccord des ménisques statique/dynamique + Bretherton (1961)

$$\frac{e}{R_c} = 1.34 \times (Ca^*)^{2/3} \text{ pour } Ca^* \in [10^{-5}; 10^{-2}]$$

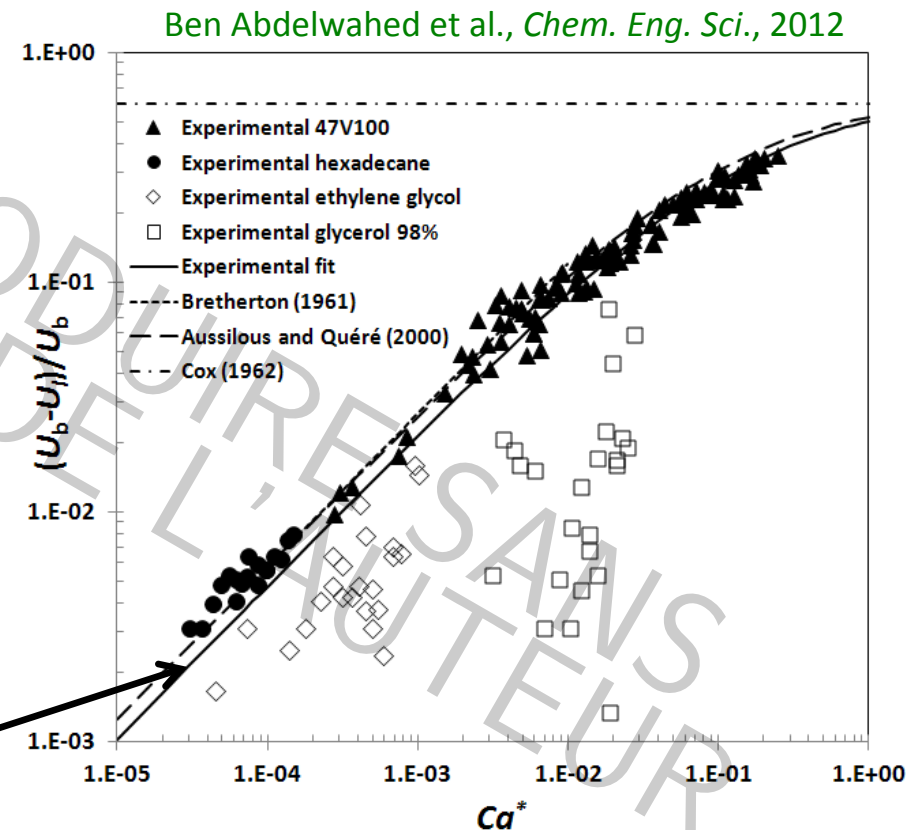
- ✓ Expérience de Taylor (1961) + Aussillous et Quéré (2000) :

$$\frac{e}{R_c} = \frac{1.34(Ca^*)^{2/3}}{1 + 1.34 \times 2.5(Ca^*)^{2/3}}$$

- ✓ Conservation du volume liquide :

$$\frac{U_b - U_l}{U_b} = \frac{2e}{R_c} - \left(\frac{e}{R_c}\right)^2$$

$$\frac{U_b - U_l}{U_b} = \frac{2.2(Ca^*)^{2/3}}{1 + 3.4(Ca^*)^{2/3}}$$



$U_b > U_l$ pour des liquides mouillants

Ben Abdelwahed et al. – JCM [2013]

Conclusions et perspectives

- Couplages THM en milieux fibreux : cycle de consolidation
- Fibres de lin : hétérogénéités chimique et géométrique
- Fonctionnalisation : mouillage statique et dynamique
- Microfluidique appliquée

Contributions / LOMC + CRISMAT

A. Lebel
S. Guérault

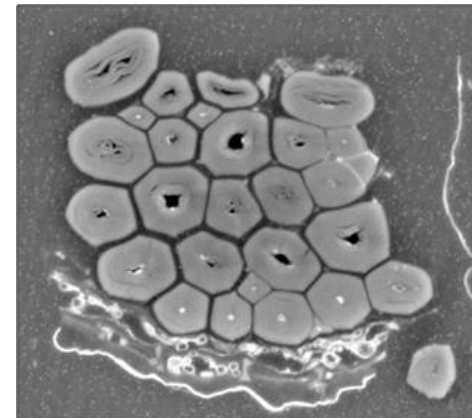
G. Cazaux

C. Ré

S. Teinturier

Y. Wielhorski

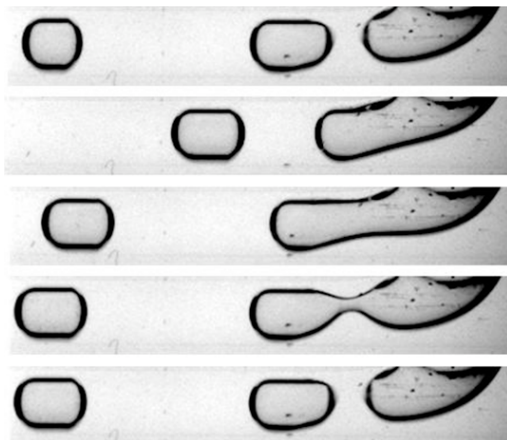
M-A. Ben Abdelwahed



Procédé

Structure

Propriétés



S. Arnaud

A. Thuault

F. Destaing

K. Charlet

A. Barbulée

Merci de votre attention