

INFLUENCE OF KAOLIN-BASED FILLERS ON MECHANICAL BEHAVIOUR OF AN EPOXY RESIN

BUNCIANU DOREL^{1,2}, TESSIER-DOYEN NICOLAS^{2,4},
COURREGES FABIEN^{2,5}, ABSI JOSEPH^{2,4}, SMITH AGNES⁴,
LAOUCHEDI DALILA³, BOUDJEMA BEZZAZI³

¹ UPT Timisoara - Département Génie Mécanique et Industrielle, Bd. Mihai Viteazu
300222, Timisoara, Romania

² IUT du Limousin – Département Génie Mécanique et Productique, allée André Maurois
87065 Limoges cedex, France

³ Unité de Recherche Matériaux, Procédés et Environnement, Université M'Hamed
Bougara, avenue de l'indépendance, 35000 Boumerdes, Algérie

⁴ Laboratoire SPCTS, Centre Européen de la Céramique - 12 Rue Atlantis
87068 Limoges cedex, France

⁵ Laboratoire XLIM, 123, avenue Albert Thomas 87060 Limoges cedex, France

Abstract: This work has consisted in studying the effect of the particle size distribution and the added quantity of a kaolin on the tensile mechanical behavior of an epoxy resin. The obtained results have allowed to highlight that a fine particle size distribution of kaolin incorporated in a small proportion (10%) is favorable both to a high stress to rupture and an improved Young's modulus. When the amount is 20%, the mechanical performance is affected because of the presence of interfacial decohesions (defects) between the larger agglomerates and the matrix.

Keywords: epoxy resin, kaolin, mechanical behaviour, strengthening

1. INTRODUCTION

L'introduction de charges minérales d'origine naturelle dans les matériaux polymères présente un regain d'intérêt depuis quelques années en raison des nouvelles directives européennes en vigueur (REACH) incitant les industriels du secteur de la chimie à employer des substances plus respectueuses de l'environnement. C'est pourquoi les matières premières minérales appartenant à la famille des phyllosilicates, abondantes et peu onéreuses, sont des candidats intéressants dans l'objectif de diminuer la quantité de polymères synthétiques et de renforcer d'un point de vue mécanique ces matériaux [1, 2]. Les pièces en résine époxy présentent de nombreux avantages fonctionnels : légèreté, résistances mécanique et chimique, liberté de forme. L'emploi de composites se substituant aux matériaux monolithiques traditionnels se justifie par l'obtention de meilleures propriétés d'usage. Un compromis entre les performances et le prix de production est généralement recherché. Les propriétés d'un matériau composite dépendent de la nature, de la quantité et de la morphologie du renfort ainsi que de la qualité de l'interface avec la matrice et enfin du procédé de mise en œuvre. L'intégration de charges dans ces matrices peut aussi avoir pour intérêt de leur conférer de nouvelles propriétés ou des fonctions spécifiques [3]. L'objectif principal de cette étude est d'élaborer des matériaux composites à base d'une résine époxy renforcée par une poudre de kaolin. L'effet de cet apport de charges en proportions variables (de 0 à 20% massiques) sur le comportement mécanique en traction a plus particulièrement été étudié.

2. METHODES EXPERIMENTALES

2.1. Caractérisation des différentes matières utilisées

2.1.1 Matrice

La matrice est composée de deux éléments : la résine et le durcisseur qui a pour rôle d'activer la formation un réseau tridimensionnel de chaînes polymériques réticulées. Au cours de ce travail, c'est la résine époxy dénommée MEDAPOXY 812INJ commercialisée par l'entreprise Granitex (Algérie) qui a été utilisée [4]. De masse volumique voisine de 1.1 g.cm^{-3} , ses caractéristiques principales sont une bonne tenue mécanique et une bonne résistance aux agents chimiques, une faible reprise d'humidité, une excellente adhérence, un faible retrait.

2.1.2 Kaolin

Dans cette étude, la charge utilisée est un kaolin originaire d'Algérie (gisement de Tamazert situé à proximité de MILA dans l'est algérien, à 200km à l'est de Constantine). Cette charge dont la composition chimique est indiquée dans le Tab. 1 est préalablement broyée sous forme de poudre en usine.

Tab. 1 Proportions massiques des oxydes contenus dans le kaolin de Tamazert (analyse ICP)

| Oxyde | SiO ₂ | Al ₂ O ₃ | K ₂ O | Fe ₂ O ₃ | MgO | TiO ₂ | Na ₂ O | CaO | Mn ₂ O | P ₂ O ₅ | P.F. |
|-------|------------------|--------------------------------|------------------|--------------------------------|-----|------------------|-------------------|-----|-------------------|-------------------------------|------|
| %m. | 56.0 | 25.4 | 3.5 | 1.8 | 0.5 | 0.4 | 0.2 | 0.1 | < 0.1 | < 0.1 | 11.9 |

La quantité d'oxyde de fer de l'ordre de 2% massiques lui confère une couleur rose pâle. La distribution granulométrique est également un paramètre important de la poudre initiale car elle est susceptible de modifier significativement les propriétés mécaniques et esthétiques des résines composites. La distribution granulométrique du kaolin a été mesurée par un granulomètre laser de type MASTERSIZER 2000 (Fig. 1.a) :

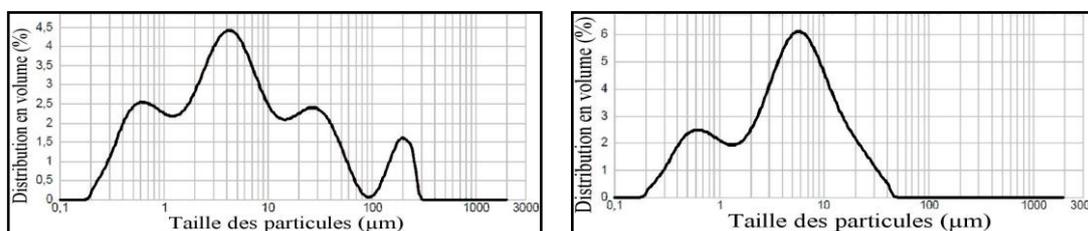


Fig. 1.a Courbe granulométrique brute du kaolin Fig. 1.b Courbe granulométrique du kaolin après tamisage

La courbe granulométrique brute montre une distribution quadrimodale très étendue des particules avec une valeur moyenne centrée sur $4.5 \mu\text{m}$ environ. Les particules fines sont de l'ordre de $0.6 \mu\text{m}$ et on constate la présence de deux tailles d'agglomérats (de l'ordre de 25 et $200 \mu\text{m}$). La Fig. 1.b présente la distribution de la fraction la plus fine obtenue après un tamisage à $60 \mu\text{m}$.

2.2. Préparation des échantillons

Des éprouvettes de traction plates à section rectangulaire ont été préparées à partir d'un mélange du monomère avec le durcisseur introduit à hauteur de 33% en masse par série de 1kg [4]. Au bout d'une minute de mélangeage manuel à l'aide d'un fouet, le récipient contenant le mélange est placé sur un dispositif à ultrasons destiné à (i) éliminer les bulles d'air emprisonnées dans le mélange, (ii) homogénéiser davantage la résine liquide et (iii) initier sa réticulation. La quantité contrôlée de poudre de kaolin est alors ajoutée progressivement au début de l'expérience tout en continuant l'agitation manuelle pendant toute la durée d'envoi des ultrasons, soient 15 minutes. La viscosité du mélange augmente légèrement avec la quantité de kaolin ajoutée. Un moule en aluminium comportant 5 empreintes ayant la forme des éprouvettes à élaborer est alors rempli avec le mélange encore fluide. Au bout de 24h, les éprouvettes durcies sont démoulées puisque la résine a significativement réticulée. Le retrait mesuré est systématiquement inférieur à 0.2%.

2.3. Protocole expérimental de mise en œuvre des essais de traction

La machine d'essai mécanique universelle utilisée est présentée sur la Fig. 2 suivante :

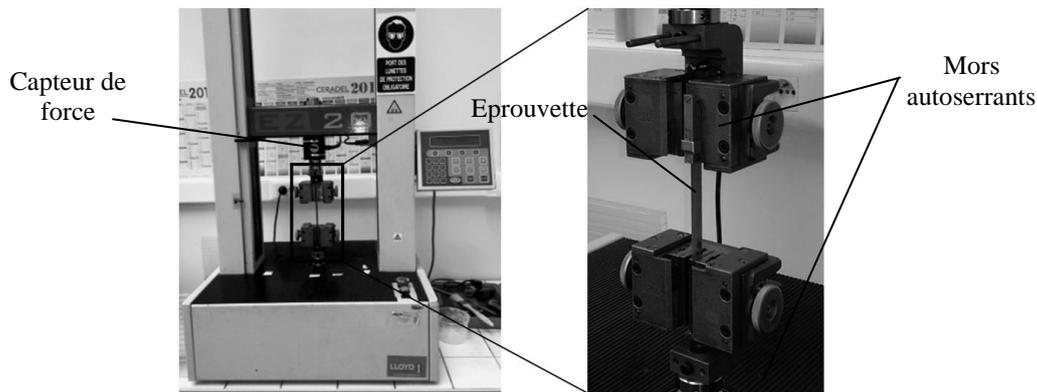


Fig. 2. Machine d'essai mécanique universelle et mors autoserrants

Un capteur de 5 kN et des mors autoserrants munis de grappes antidérapants ont été employés. La vitesse de déplacement de la traverse a été fixée à 2mm/min. La force appliquée à l'éprouvette ainsi que le déplacement qu'elle subit sont enregistrés. La contrainte est calculée en divisant la force par la section rectangulaire initiale de l'éprouvette (10x4mm²) et la déformation linéaire est déterminée à partir de la longueur initiale de la zone utile de l'éprouvette (typiquement 120 mm). La valeur du module d'Young est calculée dans la zone linéaire (évaluation de la pente dans cette zone) pour des valeurs de déformation maximale de l'ordre de 0.5%.

3. RÉSULTATS ET DISCUSSION

Les lois de comportement en traction obtenues en fonction de la proportion massique de poudre de kaolin, et ce pour les 2 distributions granulométriques sélectionnées précédemment, sont présentées sur la Fig. 3 suivante :

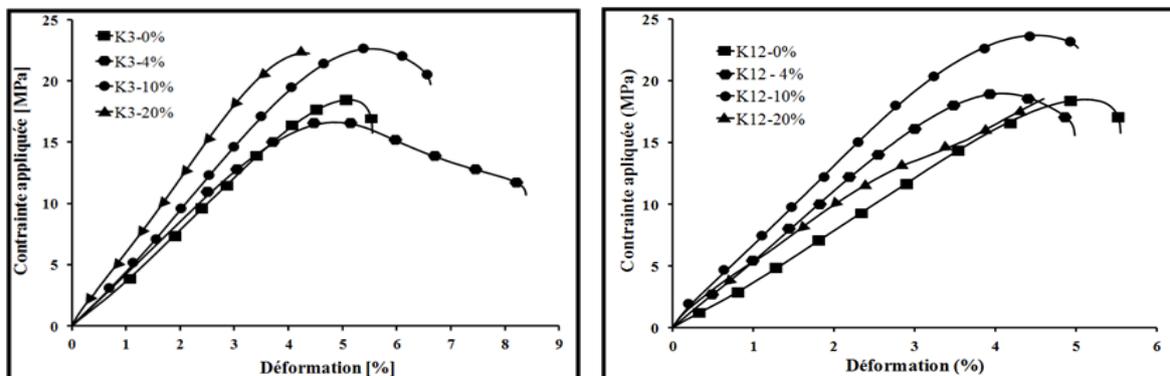


Fig. 3 Lois de comportement en traction a : granulométrie brute du kaolin et b : partie fine incorporée

L'éprouvette de résine époxy non chargée présente un comportement élastique pour des niveaux de déformation assez faibles (de l'ordre de 4% environ). Au-delà, la contrainte imposée atteint un maximum puis diminue légèrement (léger écoulement plastique). La rupture s'effectue de manière brutale après le déchirement progressif des chaînes polymériques de la résine avec un niveau de déformation modéré proche de 5,5%. Les valeurs exactes ont été reportées dans le Tab. 2 suivant. Lorsque le kaolin de Tamazert est incorporé en considérant l'intégralité de sa distribution granulométrique (échantillons notés K3 en Fig. 3.a), les composites qui ont un taux de charge situé entre 4 et 20% présentent des comportements voisins de celui de la matrice. Une augmentation significative de la déformation à la rupture (jusqu'à 8.5%) avec une légèrement diminution de la contrainte maximale est observée avec 10% massiques. Pour les éprouvettes dans lesquelles seule la partie fine du kaolin a été incorporée, on constate une faible augmentation de la contrainte maximale pour 10% massiques tandis que l'introduction d'une forte proportion (20%) semble diminuer les performances du composite (abaissement de la contrainte et disparition de l'étape d'écoulement plastique avant rupture).

Ceci vient probablement de la présence des plus gros agglomérats de kaolin qui apparaissent désolidarisés de la matrice sur la micrographie de la Fig. 4. suivante.

Tab. 2 Caractéristiques mécaniques principales issue des lois de comportement en traction

| Type d'échantillon | Taux de charge incorporée (m.%) | σ_{max} (MPa) | ϵ_{rup} (%) | E (MPa) |
|---|---------------------------------|----------------------|----------------------|---------|
| Avec la distribution granulométrique brute (K3) | 0 | 18.5 | 5.8 | 490 |
| | 4 | 16.6 | 8.7 | 510 |
| | 10 | 23.6 | 6.7 | 590 |
| | 20 | 22.3 | 4.6 | 710 |
| Avec la partie fine (K12) | 0 | 18.5 | 5.8 | 490 |
| | 4 | 19.0 | 5.2 | 660 |
| | 10 | 23.7 | 5.5 | 750 |
| | 20 | 19.6 | 5.0 | 580 |

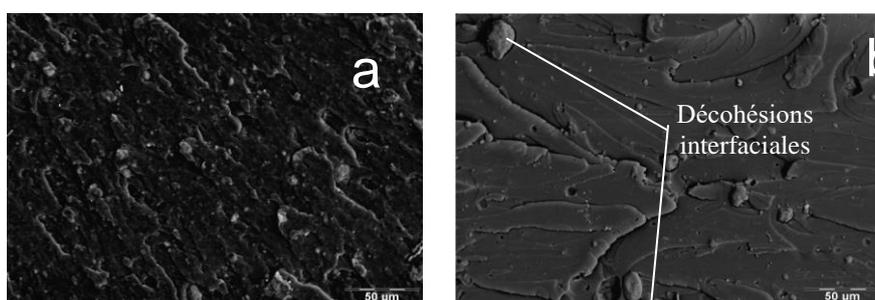


Fig. 4. Faciès de rupture (fracture) d'éprouvette après rupture a : 20% m (K3) et b : 20% m (K12)

Par conséquent, ces décohésions interfaciales avec la matrice de résine epoxy affectent le comportement mécanique global des composites. Cette hypothèse est bien confirmée par une légère diminution de la valeur du module d'Young (Tab. 2)

4. CONCLUSIONS

Ce travail a permis de mettre en évidence l'importance de la distribution granulométrique des charges minérales (ici un kaolin) incorporées dans une résine epoxy sur son comportement mécanique en traction. En effet, il semblerait qu'une granulométrie fine (diamètre moyen inférieur à 60 µm) et introduite en faible proportion (10% massiques maximum) améliore la rigidité du matériau et sa contrainte à la rupture. Des comportements similaires ont été mis en évidence avec des charges dont la composition chimique et la morphologie sont différentes [5-7]. En perspectives, il serait intéressant d'augmenter la proportion de kaolin jusqu'à 50% massiques par exemple ou de diminuer davantage la taille des particules en ne considérant que la partie la plus fine (de l'ordre de 0.6µm) ce qui pourrait permettre d'améliorer encore davantage les propriétés mécaniques.

RÉFÉRENCES

- [1] Subramaniyan A.K., Sun C.T., Enhancing compressive strength of unidirectional polymeric composites using nanoclay, *Journal of Composites Part A – Applied Science*, vol. 37, 2006, p. 2257 - 2268
- [2] Kinloch A., Taylor A. Mechanical and fracture properties of epoxy/inorganic micro-and macro-composites, *Journal of Materials Science Letter*, vol. 22, 2003, p. 1439-1441
- [3] Wang K., Chen L. Wu J., Toh M., He C., Yee A., Epoxy nanocomposites with highly exfoliated clay: mechanical properties and fracture mechanisms, *Macromolecules*, vol. 38, 2005, 788 - 800
- [4] Laouchedi D., Elaboration et caractérisation d'un matériau composite à base de résine epoxy et charges minérales, Magistère de l'Université de Boumerdes, Algérie, 2014, 123 pages.
- [5] Shokrieh M. M., Kefayati A. R., Chitsazzadeh M., Fabrication and mechanical properties of clay/epoxy nanocomposite and its polymer concrete, *Materials & Design*, vol. 40, 2012, p. 443 - 452
- [6] Farrah N. A., Mariatti J., Samayamuthirian P., Khairun A. M., Effect of particle shape of silica mineral on the properties of epoxy composites, *Composites Science and Technology*, vol. 68, no. 2, 2008, p. 346 - 353
- [7] Dai F., Xu Y.-H., Zheng Y.-P., Yi X.-S., Study on Morphology and Mechanical Properties of High-functional Epoxy Based Clay Nanocomposites, *Chinese Journal of Aeronautics*, vol. 18, no. 3, 2005, p. 279 - 282