



DEMANDE INTERNATIONALE PUBLIÉE EN VERTU DU TRAITE DE COOPERATION EN MATIÈRE DE BREVETS (PCT)

(51) Classification internationale des brevets ⁶ : B29B 15/10	A1	(11) Numéro de publication internationale: WO 99/22920 (43) Date de publication internationale: 14 mai 1999 (14.05.99)
(21) Numéro de la demande internationale: PCT/IB98/01738 (22) Date de dépôt international: 2 novembre 1998 (02.11.98) (30) Données relatives à la priorité: 97810826.4 4 novembre 1997 (04.11.97) EP (71) Déposant (pour tous les Etats désignés sauf US): MATERIALS TECHNICS SOCIETE ANONYME HOLDING [LU/LU]; 35, rue Glesener, L-1631 Luxembourg (LU). (72) Inventeurs; et (75) Inventeurs/Déposants (US seulement): CARAMARO, Lau- rence [FR/FR]; St. Jean de Veau, F-01480 Chaleins (FR). LAMURE, Gérard [FR/FR]; Lotissement "le jardin", 113, chemin de Monderoux, F-01700 Beynost (FR). (74) Mandataires: SAVOYE, Jean-Paul etc.; Moinas Savoye & Cronin, 42, rue Plantamour, CH-1201 Genève (CH).	(81) Etats désignés: AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZW, brevet ARIPO (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SZ, UG, ZW), brevet eurasiatique (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), brevet européen (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), brevet OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG). Publiée <i>Avec rapport de recherche internationale.</i>	
(54) Title: METHOD FOR IMPREGNATING A FIBRE OR FILAMENT ARRAY WITH POWDER, IN PARTICULAR FOR PRODUCING A COMPOSITE MATERIAL		
(54) Titre: PROCEDE D'IMPREGNATION D'UN RESEAU FIBREUX OU FILAMENTEUX PAR DE LA POUDRE, NOTAMMENT POUR PRODUIRE UN MATERIAU COMPOSITE		
(57) Abstract		
<p>The invention concerns an impregnation method for producing in particular a composite material comprising a fibre or filament array and a continuous matrix, rigid or flexible, with which said array is in close contact. The method is characterised in that said matrix is incorporated in said array in powder form before being transformed to constitute the continuous matrix. It consists in placing the powder and said fibre or filament array in an electrostatic field with an alternating current voltage of at least 20 kV for at least 5 s.</p>		
(57) Abrégé		
<p>Ce procédé d'imprégnation pour produire notamment un matériau composite comprend un réseau de fibres ou de filaments et une matrice continue, rigide ou flexible, avec laquelle ledit réseau est en contact intime. Selon ce procédé, ladite matrice est incorporée dans ledit réseau sous forme de poudre avant d'être transformée pour former ladite matrice continue. A cet effet, on place la poudre, d'une part, et ledit réseau de fibres ou de filaments, d'autre part, dans un champ électrostatique dont la tension en courant alternatif est d'au moins 20 kV pendant une durée d'au moins 5 s.</p>		

UNIQUEMENT A TITRE D'INFORMATION

Codes utilisés pour identifier les Etats parties au PCT, sur les pages de couverture des brochures publiant des demandes internationales en vertu du PCT.

AL	Albanie	ES	Espagne	LS	Lesotho	SI	Slovénie
AM	Arménie	FI	Finlande	LT	Lituanie	SK	Slovaquie
AT	Autriche	FR	France	LU	Luxembourg	SN	Sénégal
AU	Australie	GA	Gabon	LV	Lettonie	SZ	Swaziland
AZ	Azerbaïdjan	GB	Royaume-Uni	MC	Monaco	TD	Tchad
BA	Bosnie-Herzégovine	GE	Géorgie	MD	République de Moldova	TG	Togo
BB	Barbade	GH	Ghana	MG	Madagascar	TJ	Tadjikistan
BE	Belgique	GN	Guinée	MK	Ex-République yougoslave de Macédoine	TM	Turkménistan
BF	Burkina Faso	GR	Grèce	ML	Mali	TR	Turquie
BG	Bulgarie	HU	Hongrie	MN	Mongolie	TT	Trinité-et-Tobago
BJ	Bénin	IE	Irlande	MR	Mauritanie	UA	Ukraine
BR	Brésil	IL	Israël	MW	Malawi	UG	Ouganda
BY	Bélarus	IS	Islande	MX	Mexique	US	Etats-Unis d'Amérique
CA	Canada	IT	Italie	NE	Niger	UZ	Ouzbékistan
CF	République centrafricaine	JP	Japon	NL	Pays-Bas	VN	Viet Nam
CG	Congo	KE	Kenya	NO	Norvège	YU	Yougoslavie
CH	Suisse	KG	Kirghizistan	NZ	Nouvelle-Zélande	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	République populaire démocratique de Corée	PL	Pologne		
CM	Cameroun	KR	République de Corée	PT	Portugal		
CN	Chine	KZ	Kazakstan	RO	Roumanie		
CU	Cuba	LC	Sainte-Lucie	RU	Fédération de Russie		
CZ	République tchèque	LI	Liechtenstein	SD	Soudan		
DE	Allemagne	LK	Sri Lanka	SE	Suède		
DK	Danemark	LR	Libéria	SG	Singapour		
EE	Estonie						

PROCEDE D'IMPREGNATION D'UN RESEAU FIBREUX OU FILAMENTEUX
PAR DE LA POUDRE, NOTAMMENT POUR PRODUIRE UN MATERIAU
COMPOSITE

5 La présente invention se rapporte à un procédé d'imprégnation d'un réseau fibreux ou filamenteux par de la poudre, notamment pour produire un matériau composite comprenant une matrice continue, rigide ou flexible, avec laquelle ledit réseau est en contact intime. Cette inven-
10 tion se rapporte non seulement au matériau composite obtenu par ce procédé, mais également à une préforme pour matériau composite obtenue selon ce procédé.

Les matériaux composites renforcés par des fibres noyées dans des matrices thermoplastiques sont une catégo-
15 rie de matériaux extrêmement intéressante, permettant notamment de réaliser des matériaux présentant d'excellentes propriétés mécaniques pour des masses sensiblement inférieures à celles des métaux. En outre, ces matériaux sont obtenus par simple moulage, après avoir enrobé les
20 fibres ou filaments de renfort de la résine thermoplastique destinée à constituer la matrice du matériau composite. Bien évidemment, les propriétés mécaniques du matériau composite ainsi obtenu sont fonction de la qualité de l'interface entre les fibres ou filaments de renfort et la
25 matrice.

Ceci suppose donc une bonne cohésion entre les fibres ou les filaments et la matrice. Deux facteurs permettent essentiellement de déterminer cette cohésion, il s'agit d'une part des propriétés d'adhésion entre la résine et
30 les fibres ou filaments de renfort, c'est-à-dire du choix de la matière destinée à former la matrice et, d'autre part, du taux de vide à l'intérieur du composite. Ce second facteur résulte évidemment de la capacité que la résine présente pour s'infiltrer entre les fibres ou les

filaments de la masse fibreuse. En effet, chaque fibre ou filament ou chaque portion de fibre ou de filament qui ne se trouve pas enrobée dans la matrice ne participe pas ou ne participe que partiellement aux propriétés mécaniques du matériau composite. Par conséquent, le taux de vide réduit d'autant les propriétés mécaniques du matériau composite.

Dans les procédés classiques proposés pour incorporer la résine thermoplastique à la masse fibreuse ou filamenteuse, on fond la résine pour la faire pénétrer à l'état liquide dans la masse fibreuse ou filamenteuse à imprégner, après quoi on peut mouler cette masse fibreuse ainsi imprégnée pour lui donner la forme de la pièce en matériau composite que l'on désire obtenir. L'inconvénient de cette solution provient de la difficulté à faire parfaitement pénétrer la résine fondue entre les fibres ou filaments en raison de la viscosité de ces résines.

Parmi les procédés utilisés pour tenter de remédier à cet inconvénient, on a déjà proposé la postimprégnation de tissus, par passage dans un bain contenant la matrice thermoplastique dans un solvant adéquat. Les inconvénients de ce procédé sont bien connus et sont ceux liés à l'utilisation de solvants, à savoir, la nécessiter de récupérer le solvant, le risque de ne pas le récupérer totalement et les problèmes d'hygiène. En outre et ce qui est peut-être le plus gênant, c'est que les résines les plus performantes sont inertes par rapport aux principaux solvants.

On a également proposé d'incorporer la matrice thermoplastique par un procédé de tissage connu sous le nom de "Comingle" selon lequel on tisse un mélange de fibres de renforts et de fibres matrice. Après le tissage, le tissu est chauffé pour faire fondre la matrice se présentant sous forme de fibres, puis est comprimé pour obtenir la pièce souhaitée. Pendant le chauffage, et au cours de la

compression, il est nécessaire que la matrice se trouvant sous forme de fibres fonde, puis migre pour pénétrer entre les fibres de renfort. Il n'est pas évident d'obtenir de cette façon, une répartition homogène de la matrice.

5 Différentes solutions ont été proposées pour tenter de remédier à cet inconvénient et pour permettre de réduire le taux de vide. C'est ainsi que dans les EP-B1-0 226 420, EP-B1-0 354 139, EP-B1-0 466 618, on a proposé de former des fils comprenant un mélange de fibres ou de
10 filaments de renfort tel que verre, aramide, carbone, avec des fibres de matière thermoplastique. Une fois ces fils disposés dans un moule de manière à former la structure de renfort désirée, la matière thermoplastique du fil est fondue pour former la matrice, de sorte que les fibres ou
15 filaments de renfort mélangés aux fibres de matière thermoplastique se trouvent noyés dans la matrice thermoplastique. Etant donné que les fibres thermoplastiques sont mélangées intimement dans le fil composite aux fibres ou filaments de renfort, le taux de vide du matériau composite
20 obtenu est faible.

L'inconvénient de cette solution est que le coût de production d'un tel fil composite est cher, de sorte qu'il s'agit là d'une solution tout au plus réservée à de rares applications pour quelques produits haut de gamme ou de
25 technologies avancées. Par contre son prix ne rend pas cette solution compétitive pour la plupart des applications où l'on continue d'utiliser la technique conventionnelle par enduction susmentionnée.

On a déjà proposé d'introduire la matrice sous forme
30 de poudre dans un fil ou dans une masse fibreuse constituée par un tissu ou par un non-tissé. C'est ainsi que l'on a proposé un procédé selon lequel on imprègne de poudre de faible granulométrie un fil dans un lit fluidisé où la poudre est maintenue en suspension. Le fil poudré est

ensuite revêtu d'une gaine de matière thermoplastique de nature compatible avec celle de la poudre. Ce procédé, connu sous le nom de FIT, est utilisé pour la fabrication d'un préimprégné souple susceptible d'être tissé. Il faut
5 cependant noter que la souplesse du préimprégné dépend de l'épaisseur de la gaine extrudée. Si cette gaine est très fine, le préimprégné est effectivement souple, mais la gaine est fragile, si la gaine est épaisse elle est moins fragile mais le préimprégné est alors moins souple.

10 Pour que ce préimprégné conserve sa souplesse il faut que la poudre ne fonde pas à l'intérieur de la gaine. De ce fait, elle peut migrer dans le fil au cours des manipulations. Le polymère qui constitue la gaine et qui, dans le produit final, contribuera à la formation de la matrice
15 ne pourra participer à la cohésion du produit final que si il migre suffisamment entre les fibres de renfort et que si il est soumis à une compression suffisamment élevée.

Une autre catégorie de technique utilise des mats de fibres de verre notamment. Ces mats sont imprégnés par du
20 polymère fondu, par calandrage de films thermoplastiques, par moulage à la presse en compression de films de résine et de mats, par coulée de polymère fondu entre deux mats pris en sandwich par deux films calandrés de polymère ou encore par projection électrostatique de résine en poudre
25 sur le mat, suivie de la fusion de la matrice et compression de l'ensemble.

On a proposé dans le FR 2 258 254 un procédé de projection électrostatique à tension continue pour introduire de la poudre dans un matériau fibreux. Un tel procédé
30 s'apparente à celui de la peinture électrostatique. La poudre se colle aux premières fibres qu'elle rencontre, de sorte qu'elle bouche rapidement les pores du réseau et empêche sa pénétration. Ceci est confirmé par le faible

taux de fibres des échantillons testés par les auteurs de ce document.

O. R. Yurkevitch a décrit dans un article intitulé « On the role of electric forces in the processing of composites prepared with polymeric matrices » dans Polymer Engineering & Science, vol. 36, no. 8, 1 avril 1996 pages 1087-1091, un procédé d'imprégnation selon lequel on forme un lit fluidisé avec la poudre à imprégner et on charge simultanément cette poudre dans un champ électrostatique. La poudre est maintenue en mouvement par le lit fluidisé et les charges qui sont induites sur les particules en mouvement sont attirées par les filaments à revêtir, de sorte que l'on devrait obtenir une meilleure pénétration de la poudre. Il faut cependant observer que les échantillons testés selon ce document sont formés de dix couches préimprégnées superposées et pressées à chaud pour réaliser le composite, ce qui ne permet pas de savoir si le procédé permet effectivement de faire pénétrer la poudre au coeur du réseau fibreux.

De toute façon et même si il est capable d'imprégner efficacement un réseau fibreux, ce que nous ne savons pas, un tel procédé utilisant un lit fluidisé dans un champ électrostatique de haute tension est difficile à contrôler. La combinaison des deux techniques constitue donc une complication évidente posant des problèmes pour une utilisation industrielle de ce procédé.

Enfin, on peut mentionner la technique papetière qui consiste à couper les fibres et à les disperser avec une résine thermoplastique en poudre dans une grande quantité d'eau, puis à filtrer l'eau pour obtenir un feutre. Ce feutre est chauffé et comprimé pour faire fondre la résine. Toutefois cette technique est limitée à l'utilisation de fibres courtes donnant un composite dont les propriétés mécaniques sont moins bonnes qu'avec des fibres longues.

On a déjà proposé d'utiliser un champ électrostatique pour répartir de la poudre sur ou dans un substrat lorsque celui-ci est poreux.

C'est ainsi notamment que le WO-92/15404 se rapporte
5 à un procédé de fabrication de substrats de circuits électroniques selon lequel on revêt des faisceaux de fibres par de la poudre thermoplastique par voie électrostatique, on fond cette poudre pour que la matière liquide pénètre à l'intérieur des faisceaux et enrobe les filaments. Pour
10 accroître la conductivité électrique des filaments, on les humidifie. La quantité de résine est comprise entre 35 et 70% en poids du matériau composite.

Comme on peut le constater, ce procédé ne permet pas d'introduire de la poudre entre les fibres ou les fila-
15 ments, étant donné que la pénétration de la matière plastique est obtenue par infiltration de celle-ci à l'état liquide avec tous les problèmes évoqués ci-dessus.

Dans le US 3'817'211, des faisceaux de filaments continus sont amenés dans un lit fluidisé de poudre
20 chargée électrostatiquement, en passant eux-mêmes sur des électrodes pour les charger à un même potentiel de signe opposé à celui de la poudre. Les filaments ainsi chargés électrostatiquement se repoussent et permettent à la poudre attirée par eux de pénétrer entre les filaments et
25 d'adhérer à eux. Pour améliorer le chargement électrostatique des filaments, on les humidifie. Chaque filament du faisceau de filaments peut ainsi être revêtu individuellement. Selon ce document, les filaments ainsi revêtus de poudre sont disposés en faisceaux et des tissus peuvent
30 ensuite être fabriqués à l'aide de ces faisceaux poudrés. Un tel procédé n'est donc pas applicable directement sur un tissu ou un non-tissé. Il n'est pas applicable non plus à des filés de fibres, mais ne peut l'être que sur des filaments continus.

Il a déjà été proposé dans le US-2'820'716 d'introduire un liant dans un non-tissé, selon lequel on charge la poudre à un potentiel et on l'amène vis-à-vis d'une électrode de potentiel opposé en interposant le non-tissé
5 entre la poudre et l'électrode, de sorte que la poudre, attirée par l'électrode, pénètre dans le non-tissé qui se trouve sur sa trajectoire. La poudre est ici, de préférence, un liant thermoplastique ramolli par chauffage puis refroidi pour lier les fibres du voile non-tissé entre
10 eux. Compte tenu du but poursuivi par cette invention, la quantité de liant incorporée dans le non-tissé ne peut en aucun cas l'être dans des proportions aptes à la réalisation d'une matrice pour matériau composite, sinon les fibres ou filaments du non-tissé ne seraient pas liés par
15 le liant, mais noyées dans celui-ci. Ce ne serait alors plus un non-tissé, le rôle du liant étant, comme son nom l'indique, uniquement de donner une cohésion au non-tissé en liant les fibres ou filaments aux points de contact.

On a encore proposé dans le EP-B1-0 502 900 un procédé de frittage d'un matériau composite selon lequel on charge et on mélange électrostatiquement des poudres de matériau polymère et/ou de matériau minéral auxquelles une poudre métallique est ajoutée. On saupoudre des fibres de renfort avec ce mélange de poudre en procédant éventuellement à l'empilage de plusieurs couches successives saupoudrées et on procède à un nouveau traitement électrostatique pour faire pénétrer la poudre dans le réseau fibreux.
25

Outre le fait que ce procédé ne s'applique qu'à un mélange de poudres de natures différentes, on constate surtout la nécessité de charger tout d'abord la poudre, on saupoudre ensuite un tissu à l'aide de cette poudre, on empile différentes couches de tissu ainsi poudrées et on les soumet alors à un champ électrostatique en vue de
30

faire pénétrer la poudre répandue sur les différentes couches par saupoudrage, dans le réseau fibreux.

Le but de la présente invention est d'apporter une solution qui permette de répartir de la matière en poudre, notamment destinée à former une matrice d'un matériau composite renforcé par des fibres ou des filaments, à l'intérieur d'une masse fibreuse ou filamenteuse, de manière à offrir un procédé économique et performant, susceptible de remédier, au moins partiellement, aux inconvénients des solutions connues de l'art antérieur.

A cet effet la présente invention a pour objet un procédé pour produire un matériau composite comprenant un réseau de fibres ou de filaments et une matrice, rigide ou flexible, avec laquelle ledit réseau est en contact intime, selon lequel ladite matrice est incorporée dans ledit réseau sous forme de poudre avant d'être transformée pour former ladite matrice, selon la revendication 1. Elle a également pour objet le matériau composite obtenu selon la revendication 15, ainsi qu'une préforme pour matériau composite à matrice thermoplastique obtenue selon le procédé de la revendication 14.

De manière inattendue, les inventeurs ont découvert un procédé, objet de la présente invention, selon lequel il est possible de faire pénétrer dans un réseau fibreux ou filamenteux tissé ou non-tissé une quantité de poudre apte à la formation d'une matrice pour matériau composite rigide ou flexible, en soumettant simultanément la poudre et le réseau fibreux ou filamenteux à un champ électrostatique sous une tension alternative supérieure à 20 kV pendant une durée d'au moins 5 secondes.

Contrairement à ce que peuvent faire croire les documents de l'art antérieur, l'apport de la quantité appropriée de poudre jusqu'à l'intérieur du matériaux fibreux ou filamenteux, même lorsque celui-ci est d'une épaisseur

relativement importante peut être obtenu directement sur le tissu ou le non-tissé, tout au moins sur certains types de tissus et de non-tissés.

Les résultats obtenus permettent d'envisager la production de matériaux composites dont les propriétés mécaniques sont d'ores et déjà comparables à celles des produits obtenus par des procédés classiques. Par contre, la mise en oeuvre de ce procédé, qui est susceptible d'être réalisée en ligne, devrait permettre une réduction des coûts de fabrication et de mise en oeuvre du matériau.

La tension du champ électrostatique appliqué est une tension alternative comprise de préférence entre 20 et 150 kV. Avantageusement, la granulométrie de la poudre est inférieure à 200 μm , de préférence à 60 μm . De préférence également, on utilisera des surfaces ou volumes textiles de contexture à porosité adaptée, sous forme de non-tissés, de tissus, de tricots, de tresses, de mèches ou autres, qui sont désignés dans la présente description sous le nom de réseaux fibreux ou filamenteux.

Les avantages de la solution proposée résident notamment dans le fait que l'opération d'imprégnation de la poudre dans la masse fibreuse peut être réalisée en une seule opération. Une fois la masse fibreuse ou filamenteuse imprégnée, il suffit alors de la soumettre à une opération de chauffage à une température à laquelle la matière thermoplastique en poudre fond puis à refroidir. Bien entendu, suivant la forme désirée pour la pièce en matériau composite, l'opération de chauffage peut être réalisée dans un moule destiné à donner à ce matériau la forme de la pièce souhaitée. On peut d'ailleurs parfaitement envisager d'effectuer l'imprégnation selon la présente invention sur une masse fibreuse ou filamenteuse préformée. Au vu de l'imprégnation de la poudre dans la masse fibreuse, une pression faible sera exercée lors du moulage, pour

faire fluer la matière thermoplastique en fusion lors de cette opération de chauffage, étant donné que la matière de la matrice thermoplastique a déjà été répartie à l'intérieur de la masse fibreuse ou filamenteuse lors de
5 l'opération d'imprégnation électrostatique objet de la présente invention.

D'autres particularités et avantages de la présente invention apparaîtront à la lecture de la description qui va suivre et des exemples qui l'illustreront.

10 Les exemples qui seront décrits par la suite ont tous été réalisés à l'aide d'une installation prototype en utilisant deux plaques métalliques superposées et parallèles connectées aux deux pôles respectifs d'un générateur électrostatique et forment ainsi deux électrodes destinées à
15 engendrer un champ électrostatique entre elles. Les faces respectives disposées vis-à-vis l'une de l'autre de chacune de ces plaques métalliques sont recouvertes d'une plaque diélectrique, par exemple de vitrocéramique. La poudre destinée à imprégner le réseau de fibres ou de
20 filaments en vue de la formation d'un matériau composite est de préférence répartie uniformément sur la plaque isolante recouvrant la plaque métallique inférieure. Elle peut également l'être aussi sur le réseau fibreux à imprégner lui-même. Le réseau de fibres ou de filaments est
25 disposé au-dessus de la poudre entre les deux électrodes.

La distance entre les plaques métalliques formant les électrodes peut varier de 1 à 50 mm. Le phénomène étant sensible au champ, la tension doit être adaptée à l'écartement entre les électrodes. La distance inter-électrodes
30 permet de faire varier l'intensité de 5 mA à 50 mA. En effet, lorsque la distance inter-électrodes augmente, la capacité du condensateur formé par les deux plaques métalliques diminue, ce qui abaisse la charge, donc l'intensité.

Parmi les autres paramètres étudiés pour la mise en oeuvre du procédé selon la présente invention, on a pu constater à tension égale, que l'on obtenait de bons résultats qu'avec une tension alternative, la tension continue ne permettant pas de faire pénétrer la poudre. La nature, la granulométrie de la poudre, ainsi que le rapport densité/granulométrie sont aussi des paramètres qui ont une importance dans les résultats obtenus. Il est évident par ailleurs que la poudre ne doit pas avoir tendance à s'agglomérer, si on veut garantir la meilleure pénétration de cette poudre à l'intérieur du réseau de fibres ou de filaments. On a pu constater qu'il pouvait être utile avec certaines poudres de lui ajouter un additif destiné à améliorer sa fluidité. C'est ainsi que le fabricant de poudre a ajouté 0,3% en poids d'alumine pour empêcher qu'elle ne s'agglomère, cet additif étant connu sous le nom d'agent "anti-mottant", à une poudre de polyamide 12 vendue sous la marque Orgasol® par la société Atochem. On a également pu constater qu'il était plus difficile d'obtenir de bons résultats avec des poudres dont la granulométrie est supérieure à 200 µm. Des essais réalisés, il semblerait que la granulométrie de la poudre doit être d'autant plus faible que la densité de la matière est élevée.

Parmi les autres facteurs qui ont pu être mis en évidence, on peut encore citer le fait que l'on a pu constater une amélioration de l'imprégnation de la poudre dans le réseau de fibres ou de filaments lorsque l'on désensime ces fibres ou filaments avant de les soumettre à l'opération d'imprégnation électrostatique. L'ensimage a en effet tendance à coller les fibres ou les filaments entre eux et à empêcher de ce fait leur écartement.

Un autre paramètre qui a été étudié est celui du temps de traitement. Il n'a pas été possible de constater des différences notables dans la quantité de poudre incor-

porée dans un réseau de fibres ou de filaments donné, à partir de 5 secondes d'application du champ électrostatique avec tension alternative. Il n'a pas été possible non plus de constater à l'aide d'un microscope électronique à balayage, une modification de la surface des fibres soumises plus ou moins longtemps (jusqu'à 5 min.) à un tel champ électrostatique.

En revanche, on a pu constater sur les matériaux composites réalisés à l'aide des réseaux fibreux ou filamenteux poudrés selon le procédé objet de la présente invention, une amélioration des propriétés mesurées en fonction de la durée pendant laquelle le champ électrostatique a été appliqué lors du procédé de poudrage électrostatique. On peut supposer que cette amélioration est due soit à une oxydation de la surface des fibres ou filaments lorsque ceux-ci sont soumis au champ électrostatique, ce qui augmenterait l'adhésion fibres-matrice et par conséquent les résultats mécaniques du composite obtenu, soit au fait que la poudre se répartit mieux dans le réseau fibreux en fonction du temps, soit encore à l'association des deux phénomènes.

Les essais que nous avons réalisés à l'aide de l'installation susmentionnée et un générateur de 30 kV, avec tension alternative ont montré que les fibres de matériaux diélectriques, tels que verre, aramide ou polyéthylène HM (Dyneema®) permettent à ces fibres ou filaments d'accumuler des charges en surface qui ont tendance à s'opposer au champ qui leur a donné naissance. De ce fait, toutes ces fibres se chargent au même potentiel et ont par conséquent tendance à se repousser les unes les autres facilitant ainsi la pénétration de la poudre.

Dans le cas de fibres conductrices comme les fibres de carbone, il faut envisager d'appliquer une plus forte différence de potentiel, typiquement >30 kV, pour accumu-

ler suffisamment de charges en surface en vue d'obtenir un effet sur l'écartement des fibres ou des filaments.

Comme on le constate de la discussion qui précède, l'imprégnation de la poudre à l'intérieur d'un réseau de
5 fibres ou de filaments est fonction de divers facteurs parmi lesquels l'écartement entre les fibres qui peut être augmenté voire créé par la répulsion entre les fibres soumises à un champ électrique et la granulométrie de la poudre ont évidemment un rôle important.

10 Par conséquent, la texture du réseau de fibres ou de filaments joue un rôle. C'est ainsi que les non-tissés ont a priori une texture favorable à l'imprégnation par la poudre dans un champ électrique. Parmi les tissus, il y a lieu de s'orienter de préférence vers des armures dans
15 laquelle les fibres ne sont pas trop serrées, telle qu'un roving par exemple. Si il s'agit d'une armure trop serrée, il est pratiquement exclu de pouvoir écarter suffisamment les fibres pour faire pénétrer la poudre à l'intérieur du tissu. De façon générale, plus le fil multifilament ou le
20 filé de fibres utilisé est fin plus le tissu obtenu sera serré. C'est ainsi qu'une armure toile peut être serrée avec un fil fin, mais qu'avec un gros multifilament, de verre notamment, compte tenu de la texture 1.1 de la toile, il n'est pas possible d'obtenir un tissu très serré
25 avec un multifilament de verre relativement gros.

Le grammage du tissu a moins d'importance que sa texture. On peut tout de même mentionner que l'on a constaté de meilleurs résultats avec des tissus dont le grammage est $> 300 \text{ g/m}^2$. Ceci provient sans doute du fait que
30 les tissus dont le grammage est inférieur à cette valeur sont souvent constitués de fils fins très serrés.

Parmi les tissus que nous avons testés, nous avons obtenus des résultats très intéressants avec un tissu de fibres de verre à armure toile de 700 g/m^2 , comprenant 3

fils/cm dans lequel on arrive à bien faire pénétrer la poudre. Il s'agit donc ici d'un tissu réalisé à l'aide d'un gros fil, de sorte que l'armure toile ne conduit pas à un fil très serré qui se laisse bien pénétré par la
5 poudre, lorsqu'il est placé dans un champ électrostatique.

Il a été plus difficile de tester des tissus faits de fibres d'aramide, du fait que ceux qui sont disponibles sur le marché sont généralement très serrés. Par contre les tests réalisés sur des fibres d'aramide seules mon-
10 trent que pour une armure de tissu semblable, on devrait avoir, en ce qui concerne les quantités et la répartition des poudres, des résultats comparables avec un tissu de verre.

Il n'a pas été possible, avec les matériaux textiles
15 testés, de constater une différence entre ceux qui ont été conditionnés dans une atmosphère présentant un taux d'humidité relative de 65% par rapport à ceux conditionnés dans des conditions d'humidité ambiante où le taux d'humidité peut varier de 30 à 60%. En ce qui concerne la pou-
20 dre, l'humidification n'est pas souhaitable étant donné qu'elle a tendance à agglomérer la poudre.

Nous allons maintenant examiner quelques exemples de matériaux composites réalisés à l'aide de différents tis-
sus ou non-tissés de renfort dans lesquels de la poudre de
25 matière thermoplastique a été apportée par poudrage à l'aide du procédé objet de la présente invention.

EXEMPLE 1

On a pris un tissu de fibres de verre à armure toile de 700 g/m² de la firme Vetrotex et on a formé six
30 échantillons. Les résultats correspondent à des moyennes effectuées sur ces échantillons présentant par ailleurs des propriétés cohérentes. La poudre utilisée est une poudre de polyamide 12 vendue sous la marque Orgasol® par la firme Atochem. La granulométrie de cette poudre est de

20 µm. Le temps pendant lequel la poudre et le tissu ont été soumis, dans les conditions susmentionnées, au champ électrique est de 30 secondes et la distance des électrodes entre lesquelles sont placés la poudre et le
5 tissu est de 10 mm.

Après avoir procédé à l'opération d'imprégnation électrostatique, on procède à la fabrication d'une plaque de matériau composite en faisant fondre la poudre répartie entre les fibres du tissu, puis on refroidit le tout jus-
10 qu'à ce que le matériau composite soit à la température ambiante. On obtient une plaquette de matériau composite de 2,3 mm d'épaisseur, présentant une masse volumique apparente de 1,97 g/cm³ avec un taux de vide de 0,4%, un
15 pourcentage en masse de résine de 21% correspondant à un taux volumique de 40%. Les propriétés mécaniques mesurées sur ces échantillons sont de 129 MPa pour la contrainte maximum en flexion et de 15,2 GPa pour le module d'élasticité en flexion.

EXEMPLE 2

20 On a pris le même tissu et la même poudre que dans l'exemple 1, la distance entre les électrodes est la même, mais la durée pendant laquelle on a soumis la poudre et le tissu de verre au champ électrique de 30 kV en tension alternative est de 2 min.

25 Les résultats mesurés sont intéressants à observer dans la mesure où seul un paramètre a changé entre cet exemple et le précédent, à savoir la durée. Le nombre d'échantillons dans cet exemple est de 9. La moyenne des résultats montre des résultats quasi identiques pour
30 l'épaisseur 2,3 mm, la masse volumique apparente 1,94 g/cm³, le pourcentage en masse de résine 21% et le taux volumique de matrice 39%. On relève un taux de vide légèrement supérieur 1,6%, mais surtout une sensible amélioration de la contrainte maximum en flexion qui s'élève à

151 MPa ainsi qu'une amélioration du module d'élasticité en flexion qui est de 16,5 GPa. Cet exemple permet de confirmer ce qui a été dit précédemment, à savoir la constatation d'une amélioration des propriétés mécaniques mesurées sans que ni le taux de poudre varie ni le taux de vide qui est même un peu plus élevé, ce qui tendrait à faire penser que c'est du côté de l'adhérence entre les fibres et la matrice que l'on obtient une amélioration, bien que ceci ne soit pas prouvé par un indice mesurable en l'état actuel des essais effectués.

Outre les deux exemples susmentionnés réalisés à l'aide de tissus de fibres de verre à partir desquels on a réalisé des plaques de matériaux composites, afin de mesurer leurs propriétés mécaniques, on a réalisé également une série de tests de poudrage électrostatique exclusivement avec des non-tissés de fibres de verre pour comparer le pourcentage en masse de poudre par rapport à la masse de matériau fibreux. On a également fait des essais en superposant jusqu'à cinq couches de non-tissé afin de voir si il était possible d'introduire de la poudre dans une telle épaisseur de masse fibreuse. Le non-tissé avec lequel les essais ont été réalisés est un non-tissé de fibres de verre de la firme Vetrotex, vendu sous la dénomination commerciale Unifilo®. Il s'agit d'un non-tissé de 330 g/m² qui a été aiguilleté et dont plusieurs couches ont été assemblées par aiguilletage.

EXEMPLE 3

Cet exemple a été réalisé à l'aide d'une couche du non-tissé susmentionné et de la poudre de polypropylène (PP) vendue sous la dénomination commerciale Coathylène® par Plast-Labor S.A. et dont la granulométrie se situe entre 38 et 98 µm. Le rapport de masse initial entre la poudre et le non-tissé était de 1,35. La poudre et le non-tissé ont été soumis durant 1 min. au champ électrostatique

que de 30 kV sous tension alternative et la distance séparant les électrodes entre lesquelles on a disposé la poudre et le non-tissé comme indiqué précédemment est de 10 mm. On a mesuré un pourcentage de 42% de poudre dans le non-tissé ce qui constitue une quantité tout à fait satisfaisante. En outre la répartition observée de la poudre dans le non-tissé est bonne.

EXEMPLE 4

Cet exemple a été fait sur deux couches de non-tissé Unifilo® de 330 g/m² chacune à l'aide de la poudre PA 12 susmentionnée utilisée pour les exemples 1 et 2 et broyée au tonneau. Les conditions de traitement étaient les mêmes que dans l'exemple 3. Le rapport initial de masse poudre/non-tissé est de 1. Le pourcentage de poudre mesuré dans le non-tissé est de 32,30% avec une bonne répartition de la poudre à l'intérieur du non-tissé.

EXEMPLE 5

Cet exemple est identique au précédent, mais la poudre utilisée est, dans ce cas, la poudre de PP dans un rapport de masse initial avec le non-tissé de 1,13. La proportion de poudre mesurée dans le non-tissé est de 43% avec une bonne répartition à l'intérieur du non-tissé.

EXEMPLE 6

On a utilisé dans cet exemple, trois couches superposées aiguilletées ensemble du non-tissé des exemples 3 à 5 que l'on a poudrées selon le procédé de poudrage électrostatique objet de la présente invention, avec de la poudre de PP, dans un rapport de masse initial avec le non-tissé de 1. Les autres conditions sont identiques à celles des exemples 3 à 5. La proportion de poudre mesurée dans le tissu est de 42% avec une bonne répartition de la poudre à l'intérieur du non-tissé. Cet exemple peut être considéré comme très intéressant et il montre qu'il est parfaitement

possible d'infiltrer de la poudre par le procédé objet de la présente invention dans une masse fibreuse de 960 g/m².

EXEMPLE 7

Cet exemple a été réalisé avec cinq couches superpo-
5 sées et aiguilletées du même non-tissé que dans les exem-
ples précédents, ce qui représente une masse de 1650 g/m².
Dans cet exemple, la masse initiale de poudre était dans
un rapport de 1/1 avec celle du non-tissé, mais elle a été
répartie pour moitié au-dessous du non-tissé et pour moi-
10 tié au-dessus. Les autres paramètres de durée et de dis-
tance étaient semblables à ceux des exemples 3 à 6. La
proportion de poudre mesurée s'élève à 44% ce qui est
excellent et la répartition observée à l'intérieur des
couches est bonne.

15 Les exemples effectués ont été limités notamment par
les poudres disponibles sur le marché ainsi que par les
tissus ou les non-tissés. Toutefois, les résultats obtenus
jusqu'ici permettent de prouver la faisabilité de ce
procédé et de voir quels sont les principaux paramètres
20 nécessaires à la mise en oeuvre de ce procédé. Il est bien
évident que l'invention n'est nullement limitée aux exem-
ples qui précèdent mais peut au contraire s'étendre à
d'autres matériaux textile, notamment à des tricots, à
d'autres fibres ou filaments de renfort et à d'autres
25 types de poudres, telles que les poudres de céramique pour
la réalisation de matrices par frittage.

A titre de comparaison, le tableau I ci-après donne
des résultats comparatifs entre un composite du commerce
connu sous la dénomination commerciale TRE.

30 Jusqu'ici, le procédé selon l'invention a été décrit
comme un procédé destiné à apporter en une opération la
quantité de poudre nécessaire pour réaliser la matrice
thermoplastique.

TABLEAU I

ECHANTILLON	Taux de fibres (%)	Taux de vide (%)	Résistance à la flexion (MPa)		Module de flexion (GPa)	
			Chaîne	Trame	Chaîne	Trame
TRE	38	1,09	87	121	3,035	4,300
Plaque 1	50	4,47	134	136	6,338	6,213
Plaque 4	44	-0,3	137	139	5,54	5,419
Plaque 5	44	4,71	105	122	4,562	5,174
Plaque 8	44	1,19	142	144	5,732	5,747
Plaque 11	50	1,08	134	130	5,809	5,643
Plaque 12	46	0,20	127	145	5,687	6,329

Selon une variante de ce procédé, il est également possible, dans certains cas, d'apporter cette matrice en deux étapes, une première étape étant constituée par un poudrage qui n'est pas forcément réalisé par voie électro-

5 statique. En effet, le rôle de cette première étape est d'apporter une quantité de poudre non suffisante pour réaliser la matrice, mais suffisante pour permettre de faire une préforme de la pièce à réaliser, le rôle de cette poudre étant de permettre au réseau de fibres ou de filaments

10 de conserver, après refroidissement, la forme de la pièce désirée. Ensuite, au cours de la seconde étape, on soumet cette préforme à une opération d'imprégnation électrostatique, comme décrit précédemment, en vue d'apporter dans cette préforme le reste de quantité de poudre nécessaire

15 pour réaliser la matrice.

Quand bien même l'application du procédé d'imprégnation selon l'invention est plus particulièrement destiné à la fabrication de matériaux composites, ils serait aussi possible d'ajouter d'autres poudres lors de l'imprégnation

20 du réseau de fibres ou de filaments, voire d'imprégner ce réseau uniquement par ces autres poudres, dans le cas où on désire imprégner ces réseaux dans un autre but que celui d'y incorporer la matrice d'un matériau composite. C'est ainsi que l'on pourrait imprégner d'autres poudres

25 telles que des poudres minérales, des poudres de polymères thermodurcissables, ou des poudres d'agents d'expansion par exemple.

La poudre utilisée pour l'imprégnation peut aussi servir à apporter une ou des fonctions supplémentaires au

30 textile. C'est ainsi que l'on pourrait incorporer seules ou en mélange avec une autre poudre, des poudres conductrices, anti-bactériennes, antifongiques, par exemple. On pourrait aussi apporter des charges conférant au matériau des caractéristiques d'allègement et/ou d'isolation, par

exemple des billes creuses ou des agents d'expansion. Afin de bloquer ces poudres ou charges dans la structure textile, il est nécessaire de l'enduire avec une résine, ce qui peut être fait selon des techniques traditionnelles.

Enfin, la poudre servant à apporter une fonction supplémentaire au matériau peut aussi être apportée en mélangeant à celle de la matrice, dans le cas d'un composite.

Selon d'autres exemples qui se sont limités au poudrage et à la mesure de la proportion de poudre incorporée dans le matériau fibreux, ici constitué de 3 ou 4 couches de non-tissé Unifilo[®], on a incorporé d'autres poudres ou charges. Ces essais se sont déroulés avec des électrodes sous forme de plaques distantes de 10 mm et avec un courant alternatif dont la tension variait entre 40 et 50 kV.

EXEMPLE 8

Selon cet exemple on a incorporé 42% en poids de PP de 60 μm dans trois couches aiguilletées de Unifilo[®], en appliquant le champ électrostatique pendant 30 secondes.

EXEMPLE 9

On a incorporé 42% en poids de microsphères de verre creuses dans quatre couches aiguilletées de Unifilo[®]. Le procédé d'imprégnation s'est déroulé en appliquant le champ électrostatique pendant 2 min.

EXEMPLE 10

On a incorporé 42% de PPS en poudre dans un aiguilleté de quatre couches de Unifilo[®], en appliquant le champ électrostatique pendant 2 min. A noter que plus de 72% de la poudre initiale a été incorporée.

REVENDICATIONS

1. Procédé d'imprégnation d'un réseau fibreux ou filamentueux par de la poudre, notamment pour produire un matériau composite comprenant une matrice, rigide ou flexible, avec laquelle ledit réseau est en contact intime, caractérisé en ce que l'on place la poudre, d'une part et ledit réseau de fibres ou de filaments, d'autre part, dans un champ électrostatique dont la tension alternative est d'au moins 5 kV pendant une durée d'au moins 2 s.

10 2. Procédé selon la revendication 1, caractérisé en ce que la tension alternative dudit champ électrostatique est comprise entre 5 et 200 kV.

3. Procédé selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que la granulométrie de la poudre
15 est inférieure à 400 μm .

4. Procédé selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que lesdits fibres ou filaments sont en un matériau dont le module de Young est supérieur à 50 GPa.

20 5. Procédé selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que ledit réseau de fibres ou de filaments est sous forme d'un non-tissé.

6. Procédé selon l'une des revendications 1 à 4, caractérisé en ce que ledit réseau de fibres ou de
25 filaments est sous forme d'un tissu.

7. Procédé selon l'une des revendications 1 à 4, caractérisé en ce que ledit réseau de fibres ou de filaments est sous forme d'un tricot.

8. Procédé selon l'une des revendications 1 à 4,
30 caractérisé en ce que ledit réseau de filaments est sous la forme d'un roving.

9. Procédé selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que ledit réseau de fibres ou de

filaments est soumis à une opération préalable de désensibilisation.

10. Procédé selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que l'on ajoute à ladite poudre un additif destiné à réduire sa tendance à coller et à s'agglomérer.

11. Procédé selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que l'on place ledit réseau de fibres ou de filaments entre deux sources de poudre.

10 12. Procédé selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que ledit réseau de fibres ou de filaments est compris entre 5 et 3000 g/m².

15 13. Procédé selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que ladite matrice continue est en un matériau thermoplastique.

14. Procédé selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que l'on incorpore ladite matrice tout d'abord en incorporant une quantité de matière thermoplastique en poudre apte à former une préforme, puis on place ladite préforme dans ledit champ électrostatique avec ladite poudre pour incorporer le reste de la quantité de poudre nécessaire à la formation de ladite matrice.

15. Matériau composite obtenu par le procédé selon l'une des revendications précédentes, caractérisé en ce que le taux volumique de la matrice est compris entre 5 et 90%.

16. Matériau composite obtenu selon l'une des revendications 1 à 14, caractérisé en ce qu'il présente un module d'élasticité en flexion supérieur à 12 GPa et une contrainte maximum en flexion supérieure à 120 MPa.

17. Matériau composite obtenu selon l'une des revendications 1 à 14, caractérisé en ce qu'il présente un taux de vide inférieur à 3%.

18. Préforme pour matériau composite à matrice thermoplastique obtenue selon le procédé de la revendication 14.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Internat. Application No

PCT/IB 98/01738

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 6 B29B15/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 6 B29B

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	YURKEVICH O R: "ON THE ROLE OF ELECTRIC FORCES IN THE PROCESSING OF COMPOSITES PREPARED WITH POLYMERIC MATRICES" POLYMER ENGINEERING & SCIENCE, vol. 36, no. 8, 1 April 1996, pages 1087-1091, XP000594944 cited in the application see page 1087, right-hand column, line 1 - page 1088, left-hand column, line 24; figure 1	1-13, 15-17
A	FR 2 258 254 A (INST NAT RECH CHIMIQUE) 18 August 1975 cited in the application see page 2, line 10 - line 18; claims 1,2	1-18

Further documents are listed in the continuation of box C.

Patent family members are listed in annex.

° Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

20 January 1999

Date of mailing of the international search report

01/02/1999

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Attalla, G

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Intern: Application No

PCT/IB 98/01738

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<p>THRONE J L ET AL: "ELECTROSTATIC DRY POWDER PREPREGGING OF CARBON FIBER" INTERNATIONAL SAMPE SYMPOSIUM AND EXHIBITION, vol. 35, no. 2, 1 January 1990, pages 2086-2101, XP000573488 see page 2096, paragraph E; table 6 ----</p>	1-13
A	<p>MILLER A ET AL: "IMPREGNATION TECHNIQUES FOR THERMOPLASTIC MATRIX COMPOSITES" POLYMERS AND POLYMER COMPOSITES, vol. 4, no. 7, 1996, pages 459-481, XP000658227 see page 468, right-hand column, line 1 - page 475, right-hand column, line 7 ----</p>	1-18
A	<p>WO 92 20521 A (GEORGIA TECH RES INST) 26 November 1992 see page 33, line 13 - page 36, line 20 ----</p>	1-13
A	<p>US 3 813 269 A (MOLBERT R) 28 May 1974 see column 4, line 18 - line 22 ----</p>	9
A	<p>WO 91 08256 A (PRADOM LTD) 13 June 1991 cited in the application see claim 15 -----</p>	1-18

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/IB 98/01738

Patent document cited in search report	A	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
FR 2258254	A	18-08-1975	NONE	
WO 9220521	A	26-11-1992	US 5171630 A	15-12-1992
			CA 2103037 A	16-11-1992
			EP 0589925 A	06-04-1994
			JP 6510954 T	08-12-1994
			US 5409757 A	25-04-1995
			US 5360661 A	01-11-1994
			US 5198281 A	30-03-1993
			US 5302419 A	12-04-1994
			US 5296064 A	22-03-1994
US 3813269	A	28-05-1974	NONE	
WO 9108256	A	13-06-1991	FR 2655036 A	31-05-1991
			AT 142669 T	15-09-1996
			CA 2069642 A	28-05-1991
			DE 69028550 D	17-10-1996
			DE 69028550 T	17-04-1997
			EP 0502900 A	16-09-1992

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Dem: internationale No
PCT/IB 98/01738

A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE CIB 6 B29B15/10		
Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB		
B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE Documentation minimale consultée (système de classification suivi des symboles de classement) CIB 6 B29B		
Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents relèvent des domaines sur lesquels a porté la recherche		
Base de données électronique consultée au cours de la recherche internationale (nom de la base de données, et si réalisable, termes de recherche utilisés)		
C. DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS		
Catégorie °	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
X	YURKEVICH O R: "ON THE ROLE OF ELECTRIC FORCES IN THE PROCESSING OF COMPOSITES PREPARED WITH POLYMERIC MATRICES" POLYMER ENGINEERING & SCIENCE, vol. 36, no. 8, 1 avril 1996, pages 1087-1091, XP000594944 cité dans la demande voir page 1087, colonne de droite, ligne 1 - page 1088, colonne de gauche, ligne 24; figure 1	1-13, 15-17
A	--- FR 2 258 254 A (INST NAT RECH CHIMIQUE) 18 août 1975 cité dans la demande voir page 2, ligne 10 - ligne 18; revendications 1,2 --- -/--	1-18
<input checked="" type="checkbox"/> Voir la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents		
<input checked="" type="checkbox"/> Les documents de familles de brevets sont indiqués en annexe		
° Catégories spéciales de documents cités:		
"A" document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent "E" document antérieur, mais publié à la date de dépôt international ou après cette date "L" document pouvant jeter un doute sur une revendication de priorité ou cité pour déterminer la date de publication d'une autre citation ou pour une raison spéciale (telle qu'indiquée) "O" document se référant à une divulgation orale, à un usage, à une exposition ou tous autres moyens "P" document publié avant la date de dépôt international, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée	"T" document ultérieur publié après la date de dépôt international ou la date de priorité et n'appartenant pas à l'état de la technique pertinent, mais cité pour comprendre le principe ou la théorie constituant la base de l'invention "X" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme nouvelle ou comme impliquant une activité inventive par rapport au document considéré isolément "Y" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme impliquant une activité inventive lorsque le document est associé à un ou plusieurs autres documents de même nature, cette combinaison étant évidente pour une personne du métier "&" document qui fait partie de la même famille de brevets	
Date à laquelle la recherche internationale a été effectivement achevée 20 janvier 1999		Date d'expédition du présent rapport de recherche internationale 01/02/1999
Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche internationale Office Européen des Brevets, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Fonctionnaire autorisé Attalla, G

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Dem: Internationale No
PCT/IB 98/01738

C.(suite) DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS		
Catégorie	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
A	<p>THRONE J L ET AL: "ELECTROSTATIC DRY POWDER PREPREGGING OF CARBON FIBER" INTERNATIONAL SAMPE SYMPOSIUM AND EXHIBITION, vol. 35, no. 2, 1 janvier 1990, pages 2086-2101, XP000573488 voir page 2096, alinéa E; tableau 6 ----</p>	1-13
A	<p>MILLER A ET AL: "IMPREGNATION TECHNIQUES FOR THERMOPLASTIC MATRIX COMPOSITES" POLYMERS AND POLYMER COMPOSITES, vol. 4, no. 7, 1996, pages 459-481, XP000658227 voir page 468, colonne de droite, ligne 1 - page 475, colonne de droite, ligne 7 ----</p>	1-18
A	<p>WO 92 20521 A (GEORGIA TECH RES INST) 26 novembre 1992 voir page 33, ligne 13 - page 36, ligne 20 ----</p>	1-13
A	<p>US 3 813 269 A (MOLBERT R) 28 mai 1974 voir colonne 4, ligne 18 - ligne 22 ----</p>	9
A	<p>WO 91 08256 A (PRADOM LTD) 13 juin 1991 cité dans la demande voir revendication 15 -----</p>	1-18

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Renseignements relatifs aux membres de familles de brevets

Dem: Internationale No

PCT/IB 98/01738

Document brevet cité au rapport de recherche	Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
FR 2258254 A	18-08-1975	AUCUN	
WO 9220521 A	26-11-1992	US 5171630 A CA 2103037 A EP 0589925 A JP 6510954 T US 5409757 A US 5360661 A US 5198281 A US 5302419 A US 5296064 A	15-12-1992 16-11-1992 06-04-1994 08-12-1994 25-04-1995 01-11-1994 30-03-1993 12-04-1994 22-03-1994
US 3813269 A	28-05-1974	AUCUN	
WO 9108256 A	13-06-1991	FR 2655036 A AT 142669 T CA 2069642 A DE 69028550 D DE 69028550 T EP 0502900 A	31-05-1991 15-09-1996 28-05-1991 17-10-1996 17-04-1997 16-09-1992