HAL open science

Biocomposites : composites de hautes technologies en renfort de fibres naturelles et matrice de résines naturelles

Raphaël Kueny

▶ To cite this version:

Raphaël Kueny. Biocomposites : composites de hautes technologies en renfort de fibres naturelles et matrice de résines naturelles. Autre. Université de Lorraine, 2013. Français. NNT : 2013LORR0241 . tel-01750535

HAL Id: tel-01750535

https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01750535v1

Submitted on 29 Mar 2018

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

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

UNIVERSITÉ DE LORRAINE

AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4
Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10
http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php
http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm

Collegium Sciences et Techniques

Université de Lorraine

Ecole Doctorale Sciences et Ingénierie des Ressources Procédés Produits et Environnement

Département de Formation Doctorale Sciences du Bois

THESE

Pour l'obtention du titre de

Docteur de l'Université de Lorraine

Spécialité : Sciences du Bois et des Fibres

Présentée par

Raphaël KUENY

Biocomposites : composites de hautes technologies en renfort de fibres naturelles et matrice de résines naturelles

Soutenance le 14 novembre 2013 devant le jury :

Rapporteurs

Mme. Fatima CHARRIER-EL BHOUTOURY (MC HDR, IPREM, UPPA, Pau)

M. Bertrand CHARRIER (Pr, IPREM, UPPA, Pau)

Examinateurs

M. Frédéric PICHELIN (Pr, HSB-BFH, Biel, SUISSE)

M. André MERLIN (Pr, LERMAB, UL, Nancy)

M. Antonio PIZZI (Pr, LERMAB, UL, Nancy), Directeur de thèse

M. Stéphane MOLINA (MC, LERMAB, UL, Nancy), Co-directeur de thèse

Site web du lermab : http://lermab.univ-lorraine.fr/

REMERCIEMENTS

Mon travail de doctorat s'est déroulé au sein du laboratoire du LERMAB et du centre de transfert de technologie CETELOR situé tous deux sur le Campus Fibres d'Epinal de l'Université de Lorraine.

J'adresse mes plus sincères remerciements aux membres du jury et tout d'abord aux Rapporteurs :

A Monsieur **Bertrand Charrier,** Professeur de l'Université de Pau et du Pays de l'Adour**,** qui me fait l'honneur d'examiner mon travail.

A Madame **Fatima Charrier-El Bhoutoury**, Maître de Conférence (HDR) de l'Université de Pau et du Pays de l'Adour qui me fait également l'honneur d'examiner mon travail.

Je tiens aussi à remercier très vivement les examinateurs :

Monsieur **Frédéric Pichelin**, Professeur de l'Université de Bern en Suisse et Monsieur **André Merlin** Professeur de l'Université de Lorraine et Directeur du LERMAB

Mes remerciements les plus chaleureux vont à mes deux Directeurs de thèse qui m'ont encadré et accompagné jusqu'au bout : Monsieur **Antonio Pizzi** Professeur de l'Université de Lorraine et Monsieur **Stéphane Molina**, Maître de conférence de l'Université de Lorraine. Je tiens à leur adresser ma profonde gratitude pour leur très grande disponibilité et leur soutien constant. Je garderai un souvenir exceptionnel de leur richesse humaine qui est un exemple.

Cette thèse représente le fruit d'un travail en équipe et je remercie particulièrement mes collègues pour leur appui et aide technique. En particulier, je remercie **Alix Sauget** et **Arnaud Nicollin** pour leur aide importante sur la préparation des composites, **David Bienaimé** pour son indispensable aide sur la ligne de préparation des renforts, le Dr **César Ségovia** spécialiste des fibres naturelles, et bien évidemment le Directeur du CETELOR **Monsieur Lecoanet** et l'ensemble du personnel de CETELOR pour leurs encouragements.

Je remercie également vivement Monsieur **Guy Leroy** de la société ICOTEX pour son aide, ses précieux conseils et de m'avoir fait partager sa passion sans limite du métier.

Enfin, une pensée bien particulière à tous mes proches qui savent que leur soutien a été déterminant.

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION

Première partie : INTRODUCTION GENERALE

1 DÉFINITION ET CLASSIFICATION DES COMPOSITES 6

1.1 Classification par la taille des particules de renfort 7

1.2 Classification par le type de matrice 9

1.3 - Classification par marché 9

1.4 - Les biocomposites 10

2 QUELQUES DONNÉES SUR LES BIOCOMPOSITES 10

2.1 Les renforts 10

2.1.1 Généralités sur les fibres naturelles 11

2.1.2 CLASSIFICATION des FIBRES 12

2.1.3 Composition chimique 12

2.1.4 Morphologies des fibres naturelles 15

2.1.5 Propriétés des fibres naturelles 16

2.2 Les matrices : 21

2.2.1 Matrices thermoplastiques : 22

2.2.2 Matrices thermodurcissables : 23

2.3 LES MODES DE PRODUCTION DES COMPOSITES 25

3 CONTEXTE ECONOMIQUE 29

3.1 Données sur le marché automobile 30

3.2 Données sur le marché du transport ferroviaire 32

3.3 Données sur le marché du transport aérien 33
3.4 Données sur le marché du secteur du bâtiment : 33
3.5 Loisirs et sports 34
3.6 Contexte Economique des biocomposites : 35
3.7 Freins au développement des biocomposites : 38
4 Conclusion à cette introduction 39

Deuxième partie : MATERIELS ET METHODES COMPOSITES

1 LES FIBRES 41
1.1 Les fibres choisies 41
1.2 Sélection des fibres naturelles 41
1.3 Généralités sur le Lin 43
1.4 Généralités sur le Chanvre 49
1.5 Généralités sur le Jute 52
1.6 Généralités sur le Kenaf 54
1.7 Minéral Verre 56
1.8 Caractérisation des fibres utilisées 56
2 LES RENFORTS 60
2.1 Méthodes de préparation des renforts 60
2.2 Méthodes de caractérisation des renforts 60
3 LES RESINES utilisées pour les biocomposites 65
3.1 Introduction : Résines utilisées : Naturelles et synthétiques 65
3.2 Résines Synthétiques de la classe Epoxy 65
3.3 Résine naturelle : Tannin / héxamine 69
4 LES COMPOSITES 76
4.1 Méthode de préparation des composites : Introduction 76
4.2 Infusion : Présentation de la technique 76
4.1 Thermocompression : Présentation de la technique 80
5 CARACTERISATION DES COMPOSITES 85

5.1 Caractérisation physique 85
5.2 Caractérisation mécanique 86

Troisième partie : MATERIELS ET PROCESS NONTISSES

1 INTRODUCTION: Description générale du hall de technologie ‘’ Fibres ‘’ du CETELOR 90
2 PREPARATION DES FIBRES : 92
2.1 Ouverture de la balle 92
2.2 Coupe des fibres 93
2.3 Ouverture et premier nettoyage des fibres 94
2.4 Conditionnement des fibres en humidité et ensimage 106
2.5 Chargeuse – entrée de carde : 109
3 PREPARATION DE LA NAPPE : La carde à cylindres 117
3.1 Notions de formation des voiles 117
3.2 Description de la carde à cylindre 122
4 ETALEUR/NAPPEUR 132
4.1 Description 132
4.2 Réglages possibles sur le nappeur 134
5 AIGUILLETAGE 136
5.1 Description : 136
5.2 Aiguilleteuse : Réglages possibles : 143

Quatrième partie : RESULTATS ET DISCUSSIONS PREMIERE SERIE DE COMPOSITES

1 IMPACT DE LA RESINE sur les caractéristiques mécaniques des fibres 151
1.1 - Matériel et méthodes : 152
2 PREPARATION DES RENFORTS de la première série de composites 156
2.1 Réglage du cardage et production des voiles 156
2.2 Consolidation par aiguilletage 158
3 DISCUSSION sur les composites de masse surfacique faible 160
3.1 Discussion sur les matériaux résine tannin naturelle et fibre Kénaf (P3) (200 à 300 g/m²) 160
3.2 Comparaison avec une autre résine : Discussion entre résine naturelle et résine synthétique pour la fibre Kénaf 164

4 DISCUSSION sur les composites de renfort de masse surfacique moyenne 167

4.1 Discussion entre résine naturelle et résine synthétique pour une deuxième famille de fibre: Lin bR et Lin bt 167

4.2 Discussions entre 2 composites à base de résine chimiques et renfort lin 172

4.3 Discussion entre résine naturelle et résine chimique pour le jute avec P8bt et P8aR 173

4.4 Discussion entre résine naturelle et la famille de fibre jute P8 175

4.5 Discussion entre les Lin at, bt, ct (en résine tannin) 179

5 DISCUSSION sur les composites de renfort de masse surfacique elevée 187

5.1 Discussion pour le LIN/CHANVRE avec résine naturelle et chimique P6at , P6bt et P6R 187

6 Discussion pour le CHANVRE P7 (non roui) avec résine naturelle poids de renfort entre 1000 et 1200 g/m² ……195

6.2 Discussion sur l'influence de la densité des composites réalisés 198

6.3 Discussion sur la densité et modules d'élasticité en traction 199

6.4 Discussion sur la densité et modules d'élasticité en flexion 202

7 CONCLUSION GENERALE et pistes d'ameliorations pour cette première serie 203

Cinquième Partie : RESULTATS ET DISCUSSIONS

DEUXIEME SERIE DE COMPOSITE - PROCESS FIBRE OPTIMISE

1- PARTIE PRELIMAIRE : REALISATION DES RENFORTS 207

1.1- Essai avec le Lin affiné : LIN R 208

1.2- Essai avec la fibre de lin LIN D 201

1.3- Essai avec la fibre de lin LIN A 210

1.4- Essai avec les chanvres CHAN 1 et CHAN 2 Roui : CHAN 1 211

1.5- Essai avec le kénaf 214

2- ETUDE SUR LE CHANVRE 215

2.1- Les fibres 215

2.2- Les renforts 221

2.3- Les composites à matrice biosourcée à résine tanin 224

2.4- Les composites à matrice synthétique 230

3- ETUDE SUR LE LIN 234

3.1- Les fibres 234

3.2- Les renforts 242

3.3- Les composites à matrice biosourcée 248

3.4- Les composites à matrice synthétique 260

4- ETUDE SUR LE KENAF 265

4.1- Les fibres 265
4.2- Les renforts 269
4.3- Les composites à matrice biosourcée 272
4.4- Composites à matrice synthétique 278
5- SYNTHESE COMPARATIVE 281
5.1- Les fibres 281
5.2- Les renforts 290
5.3- Les composites à matrice biosourcée 301
5.4- Les composites à matrice synthétique 309

CONCLUSION 312

C’est le cerveau qui décide.

- *Sacha KUENY* -

INTRODUCTION

➢ *Contexte de l'étude*

En 2005, l'idée de créer un pôle de compétitivité centré autour de la thématique « Fibres » a germé suite à la fermeture de l'école textile d'Epinal et à la création du CETELOR (Centre d'Essais Textile LORrain) où j'occupe des fonctions d'ingénieur recherche et développement. L'ambition était de développer une industrie nouvelle des fibres. A l'origine, trois axes stratégiques étaient mis en avant :

- susciter des produits nouveaux, transversaux entre filières
- faciliter l'innovation dans les entreprises
- élever le niveau des compétences

La première action concrète dans le domaine de la recherche en appui du pôle de compétitivité Fibres Naturelles du Grand Est labellisé en 2006 a été la création d'un Plan Pluri-Formation (PPF). L'une des missions principales de ce PPF était de fédérer plusieurs acteurs (PME, laboratoires de recherche publics et de grands groupes) afin qu'ils mettent en commun leurs compétences et travaillent sur des projets relevant de la thématique « Fibres ».

Depuis cette époque, les orientations du Pôle Fibres ont évoluées vers les produits éco-conçus et bio-sourcés. La volonté du LERMAB est aujourd'hui de se positionner sur ce type de matériau tout en gardant son identité Bois.

Dans le domaine des matériaux et de l'énergie, la situation environnementale et économique mondiale nous impose de trouver des ressources complémentaires et alternatives aux produits pétroliers. Le respect de l'environnement et de la santé des utilisateurs est maintenant une notion particulièrement surveillée et demandée.

Les acteurs de la recherche sont donc de plus en plus sollicités pour apporter au monde industriel de nouveaux matériaux aux propriétés intéressantes conçus à partir de ressources naturelles renouvelables. La chimie verte en général et plus précisément la chimie du végétal sont ainsi des concepts en plein essor qui visent à un équilibre environnemental et aussi économique et social.

C’est dans ce contexte global, que le laboratoire m’a confié ce travail de thèse dédiée au développement de matériaux composites conçus à partir de matières végétales. Ces matériaux sont une combinaison de fibres et de résines naturelles dans le but d’avoir les meilleures caractéristiques possibles. L’on nommera ces matériaux les biocomposites. Les matières végétales utilisées ne devront si possible pas être prélevées sur des ressources à destination de l’alimentation humaine ou animale.

- *Objectifs de la thèse*

L’objectif principal de cette thèse intitulée « *Biocomposites : composites de hautes technologies en renfort de fibres naturelles et matrice de résines naturelles* » est de mettre en œuvre des composites à base de nontissés de fibres naturelles enrobées d’une matrice biosourcée en utilisant les installations du CETELOR qui sont représentatives des équipements que l’on trouve dans l’industrie. En corollaire, il nous a fallu :

- étudier le principe de fonctionnement des machines,
- adapter les différents organes au travail des fibres libériennes,
- mettre en œuvre une première série de matelas fibreux et de composites afin de converger vers des réglages optimaux,
- tester les propriétés globales des matériaux préparés après l’étape d’optimisation.

- Présentation du manuscrit

Pour mener à bien ce travail, nous avons commencé par dresser un état de l’art et du marché des composites. Quels sont aujourd’hui les marchés des composites et des biocomposites ? Quelles fibres ces matériaux utilisent-ils ? Comparées aux fibres synthétiques, les fibres naturelles posent problèmes pour les applications industrielles du fait de leur diversité et leur variabilité. La littérature fournit d’ailleurs sur ce type de fibres non pas des valeurs précises en terme de propriétés mais une large plage dans laquelle il est préférable de se situer. Avant tout, et pour cibler les matières à utiliser, une bonne connaissance de la structure et des propriétés des constituants des biocomposites est donc nécessaire.

S’agissant de la suite du mémoire :

• Le deuxième chapitre, dédié au matériel et méthodes utilisés, énonce les différentes fibres qui ont été choisies en reportant quelques propriétés générales. Il s’attache également à décrire les méthodes de préparation et de caractérisation des supports nontissés, les résines utilisées ainsi que les méthodes de préparation et de caractérisations des composites finaux.

• Le troisième chapitre, très technique, est consacré à la description et l’optimisation des différents organes permettant la mise en œuvre des matériaux nontissés, de la préparation des fibres jusqu’à la consolidation via l’aiguilleteuse.

• Le quatrième chapitre présente les premiers résultats de composites préparés à partir de fibres de lin, chanvre jute et kénaf. Cette première série est caractérisée et permet de dégager les pistes principales d’amélioration du process ce qui constitue d’ailleurs la fin de ce chapitre

• Le cinquième chapitre, composé de quatre parties et d’une partie préliminaire sur la préparation des renforts, est consacré à la description et la discussion des résultats sur des composites préparés à partir de trois familles de fibres différentes. La première partie s’intéresse à des matériaux préparés à base de chanvre, avec 2 types de rouissage différents. La deuxième est dédiée à des composites à base de lin préparés à partir de trois qualités de fibres différentes tandis que la troisième partie porte sur des composites obtenus à partir de kénaf. La quatrième et dernière partie de ce chapitre est une synthèse comparative tentant de dégager des tendances et des corrélations structure/propriétés.

Pour finir, les principaux résultats sont synthétisés dans la conclusion générale qui ouvre également quelques perspectives.

Première Partie

INTRODUCTION GENERALE

1 DÉFINITION ET CLASSIFICATION DES COMPOSITES

Les marchés actuels mais aussi les prévisions laissent à penser que l'importance économique des composites sera en augmentation constante dans les années qui viennent. Une grande diversité de matériaux est concernée, depuis les composites dits « de grande diffusion » jusqu'aux produits utilisés dans l'aérospatial à hautes performances mécaniques et thermomécaniques[1].

Il n'y a pas de réelle définition universelle qui puisse caractériser un matériau composite mais un consensus autour d'une description que l'on doit à Lee [2]: *"A multiphase material formed from a combination of materials which differ in composition or form, remain bonded together, and retain their identities and properties. Composites maintain an interface between components and act in concert to provide improved specific or synergistic characteristics not obtainable by any of the original components acting alone."*. Finalement, un matériau composite est un assemblage d'au moins deux matériaux non miscibles : Un renfort qui assure la tenue mécanique et une matrice qui assure à la fois la protection, la cohésion de la structure et la transmission des efforts vers le renfort.

Ces deux constituants doivent bénéficier d'une forte capacité d'adhésion afin de constituer un matériau aux propriétés nouvelles dont ne bénéficient pas les composants seuls. L'intérêt croissant des composites est dû principalement aux possibilités de gain de poids et de réalisation de pièces complexes.

Il existe plusieurs systèmes de classification des composites. Nous en avons dégagé 4, les plus usités.

---

[1] Gay, D., "**Matériaux composites**". Édition Hermes. *(1997)*

[2] Stuart Lee: **dictionary of composite materials technology** (1989)

1.1 Classification par la taille des particules de renfort

La figure suivante (figure 1) représente un organigramme de classification des composites selon Callister[3]. Dans cette classification, il est important de noter que sous la famille “structuraux” (matériaux obtenus par assemblage multicouches: sandwich et/ou stratifiés), on peut retrouver les 2 premières familles : “renforcés par des particules”, “renforcées par des fibres”.

Les particules désignent ici des éléments qui vont renforcer le matériau mais qui n’ont pas la caractéristique principale d’une fibre à savoir une très grande longueur. Généralement, ces particules présentent un facteur de forme L/d <100 avec L et d Longueur et diamètre respectifs de la particule. Dans le domaine des composites fabriqués à partir de ses renforts, on trouve une majorité de composites Thermoplastiques (TP) dont la matrice est sensible à la température et qui se consolide par refroidissement. On peut citer par exemple les composites EWF /HDPE (Extruded Wood Fiber / Haute densité Polyéthylène) préparés par mélanges de fibres de bois et de granulés thermoplastiques. Les fibres de ces matériaux peuvent présenter un ratio L(µm)/d(µm) de 8 à 20 avec une variation des performances mécaniques en fonction de la longueur. Pour ce type de composite, il semblerait qu’une longueur de fibre proche de 0,5 mm apporte une nette amélioration sur les performances mécaniques de la matrice seule[4].

Ensuite, le terme « Fibres alignées » va signifier un renfort composite utilisant un placement de fibres de type de tissu ou unidirectionnel. Les matières fibreuses utilisées peuvent être des filaments, des faisceaux de fibres constitués de filaments réunis ou des filés de fibres courtes.

Enfin, le terme “fibres discontinues” désigne un renfort réalisé à partir de fibres de longueurs déterminées (1 à 100 cm) généralement courtes (inférieure à 10 cm). Ces fibres ne sont pas assemblées préalablement les unes aux autres dans un fil. Elles peuvent soit être directement mélangées dans une matrice, soit liées un matelas de fibres que l’on nomme « Mat » ou « nontissé ». Dans ce domaine, on trouve traditionnellement et en majorité les composites à résine thermodurcissable c'est-à-dire composés d’une résine qui acquiert ses caractéristiques de dureté par l’action d’un catalyseur chimique. De plus en plus se développent également

---

[3] W. D Callister. **Science and Engineering: An Introduction**, ,Materials (6) (2006)

[4] S. Migneault,A. Koubaa, F.Erchiqui, **Effect of Fiber Length on Processing and Properties of Extruded Wood-Fiber/HDPE Composites,** Journal of Applied Polymer Science DOI 10.1002/app (2008)

des composites à matrice thermoplastique qui ont l'avantage d'être facilement recyclables. On s'oriente, de nos jours, vers la mise au point de polymères à propriétés idéales : recyclables et biodégradables (PLA, PHB,…). Après utilisation, la valorisation de ces matériaux passe par des mécanismes de dégradation dont les plus utilisés sont la photo dégradation (action des UV), la dégradation chimique (hydrolyse ou oxydation), la dégradation thermique (action de la chaleur), la dégradation mécanique (cisaillement et coupure des chaînes), et la biodégradation (par action de micro-organismes)[5].

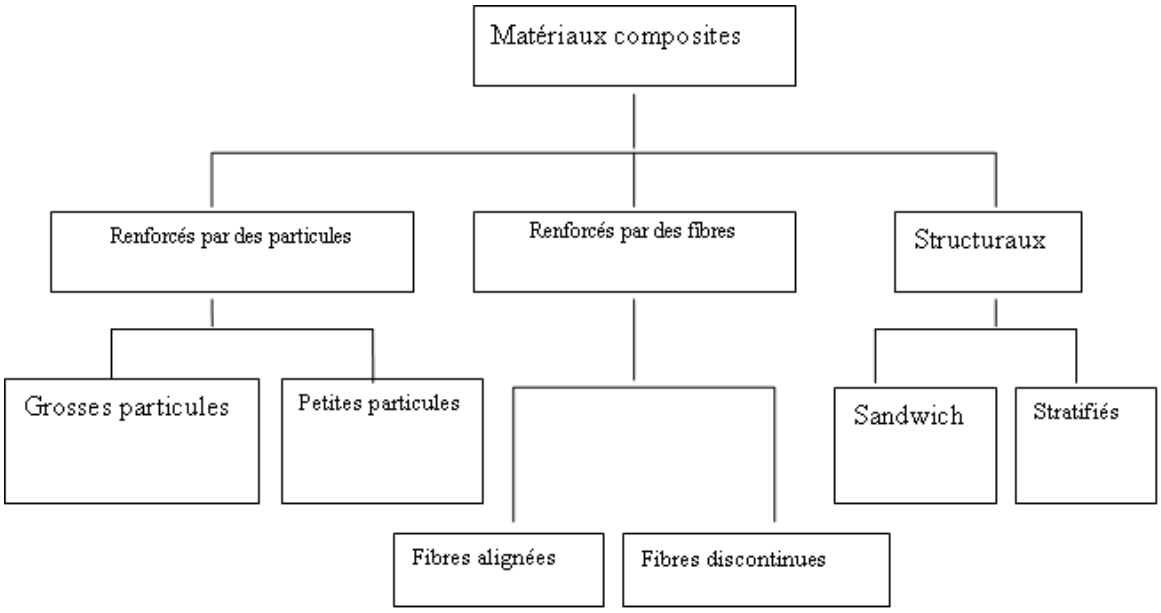


Figure 1 Classification schématique des différents types de composites

Sur la figure 2 ci-dessous, nous avons représenté une illustration de ce que pourrait être des composites selon la nomenclature Callister[3].

[5] Baley. C, Grohens. Y, and Pillin. I, **State of the art regarding biodegradable composites**. Revue des Composites et des Matériaux Avancés, 14, p. 135- 166. (2004)

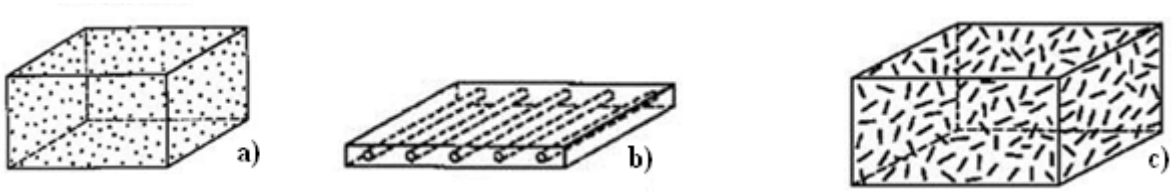


Figure 2 Illustration de composite selon la nomenclature Callister :

a) particules, b) Fibres alignées, c) Fibres discontinues)

1.2 Classification par le type de matrice

Un deuxième type de classification couramment utilisé est la classification selon la matrice.

Dans ce cas, on distingue également 3 grandes familles de composites: Les CMO (matrices organiques thermodurcissables et thermoplastiques), les CMC (matrice céramique) et les CMM (matrice métallique). Le choix du renfort fibres, éventuellement d'une charge et d'une interface, doit être fait en fonction de la matrice et du procédé de fabrication de la pièce. Les composites organiques (CMO) sont les composites les plus courants en termes de volumes. Du fait de leurs propriétés, la production de ces composites est en très forte augmentation, notamment pour tous les marchés à haute technicité : transport militaire et civil (aérien, ferroviaire, automobile), l'industrie, le bâtiment et les sports de compétition.

1.3 - Classification par marché

On retrouve souvent la distinction suivante par laquelle les matériaux sont classés en fonction de leur marché :

Les composites de grande diffusion (GD). Ce sont des composites peu coûteux (< 10 à 40 €/kg) qui occupent une large part de marché. On les trouve dans l'industrie du bâtiment, le transport nautique, les piscines, les équipements électriques.

Les composites hautes performances (HP), ce sont des composites assez onéreux, dont le marché est encore réduit pour les applications aérospatiales, transports, sports de compétition (coût > 40€/kg)

1.4 - Les biocomposites

Enfin, depuis peu, on trouve une nouvelle classe de matériaux que l'on nomme "biocomposites". Il existe d'autres appellations proches comme "éco-composites" et "agro-composites" qui s'inscrivent également pleinement dans les concepts émergeants de chimie verte et de chimie durable.

Il n'existe pas de définition encore officielle des biocomposites, mais il est maintenant admis que ces matériaux doivent être fabriqués impérativement à partir de ressources naturelles plus ou moins transformées mécaniquement et/ou chimiquement. Les biocomposites sont ainsi composés dans le principe de renforts généralement en fibres naturelles et d'une matrice également issue préférentiellement de la biomasse. Toutefois, le terme bio-polymère caractérise lui la biodégradabilité dans le milieu naturel, un bio-polymère pouvant très bien être d'origine fossile[6].

Cette famille de composites, les "biocomposites" est le cœur de cette thèse.

2 QUELQUES DONNÉES SUR LES BIOCOMPOSITES

2.1 Les renforts

D'un point de vue renfort, les fibres naturelles sont une alternative écologique pour des applications courantes et pour les pièces techniques. Ces fibres naturelles intéressantes d'un point de vue bilan carbone et recyclage, peuvent apporter de part de leur nature, des propriétés supplémentaires au composite, notamment en terme de résistance aux vibrations et gain de poids.

De nombreux travaux sont en cours pour réaliser des composites biosourcés combinant les fibres naturelles, transformées en un support adéquat, et de résines compatibles. Mais à ce jour, les caractéristiques générales de ces matériaux restent très insuffisantes dans l'objectif de réaliser des pièces techniques, notamment, car les renforts utilisés ne sont pas suffisamment optimisés et/ou compatibles avec la résine.

---

[6] Błędzki A. K, Jaszkiewicz A, Urbaniak M, Stankowska-Walczak D, **Biocomposites in the Past and in the Future** ,FIBRES & TEXTILES in Eastern Europe; 20, 6B (96): 15-22 (2012)

2.1.1 Généralités sur les fibres naturelles

Sur la figure suivante, nous avons représenté une classification synthétique des fibres à usage matériaux. On distingue trois grandes familles: les fibres inorganiques obtenues par fusion ou pyrolyse, les fibres chimiques (synthétiques + artificielles) issues de ressources fossiles ou de la biomasse et les fibres naturelles. Les fibres naturelles sont subdivisées en 2 sous-familles, les fibres animales et les fibres végétales.

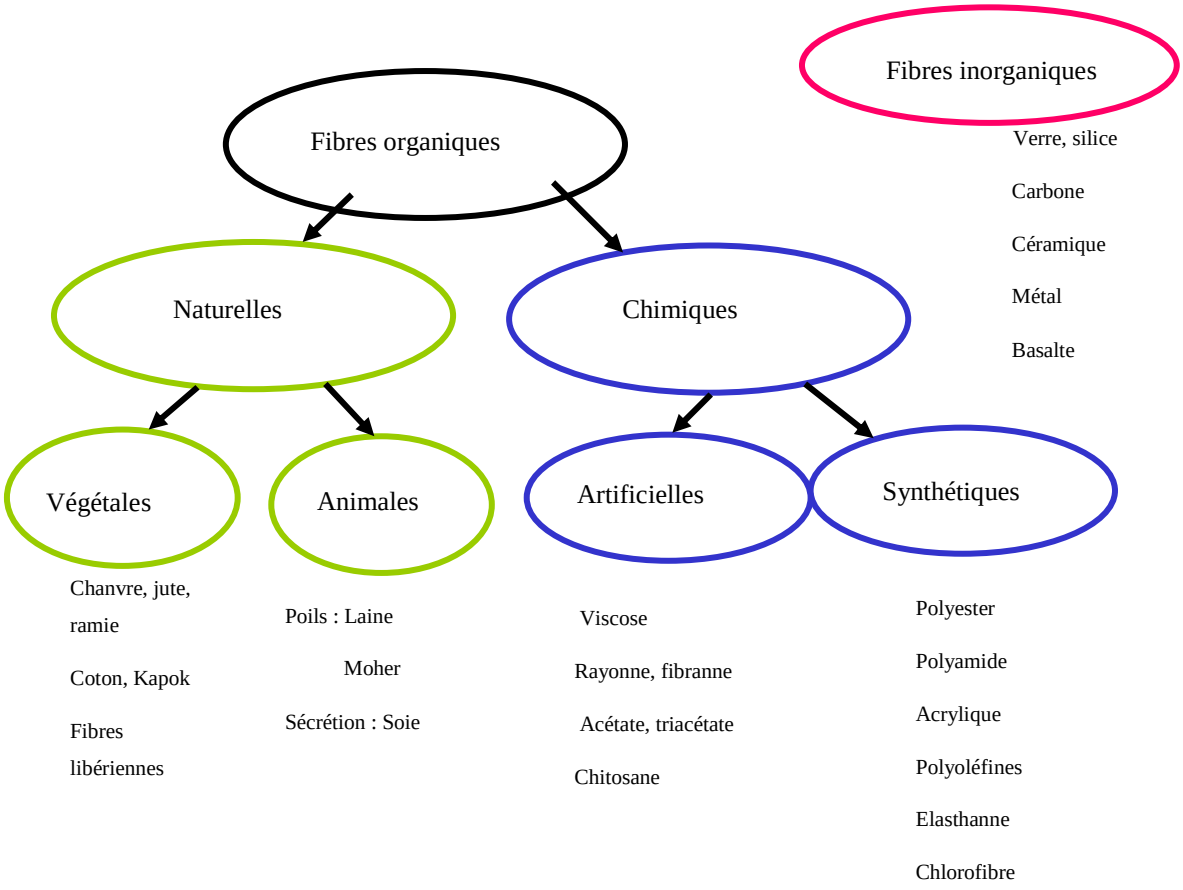


Figure 3 Classification générale des fibres

2.1.2 CLASSIFICATION des FIBRES

Globalement, dans le domaine des matériaux composites rigides thermoplastiques (TP) ou thermodurcissables (TD), on va trouver essentiellement des fibres inorganiques type verre, carbone, céramique, basalte, mais aussi des fibres chimiques essentiellement synthétiques avec le plus souvent les para-aramide.

Comme nous l'avons déjà évoqué les contraintes environnementales et économiques orientent les marchés vers les fibres naturelles disponibles et renouvelables et à faible impact environnemental. Dans ces fibres, les fibres animales et le coton pour les fibres végétales sont majoritaires et plus destinées au textile / habillement, tandis que les autres fibres végétales et en particulier les fibres des plantes à tiges vont se retrouver dans des applications plus techniques. Ces fibres de plantes à tiges (lin, chanvre ou jute) devant assurer un rôle de maintien de la plante, possèdent des caractéristiques, notamment de rigidité, appréciables pour la réalisation de matériaux composites TD et TP.

2.1.3 Composition chimique

Les fibres naturelles sont des structures biologiques principalement composées de cellulose, hémicelluloses et lignines[7]. Elles contiennent aussi des extractibles, des protéines et certains composés inorganiques en faibles proportions[8]. La cellulose est une macromolécule linéaire qui peut avoir une structure amorphe ou cristalline[9], tandis que les hémicelluloses ont une structure ramifiée. Le degré de polymérisation des hémicelluloses est généralement compris

---

[7] S. Panthapulakkal, A. Zereshkian, M. Sain, **Preparation and characterization of wheat straw fibers for reinforcing application in injection molded thermoplastic composites**, Elsevier, Bioresource Technology 97 265–272 (2006)

[8] R.M Rowell, R.A Young, J.K Rowell: **Paper and composites from agro-based resources**. Ed Rowell R.M , Lewis publishers, Boca Raton, USA, (1997)

[9] G.B Mitra.., P.S Mukherjee, **X-Ray diffraction study of fibrous polymers /Degree of paracristallinity a new parameter for characterizing fibrous polymers**, Polymer,21, p. 1403-1409. (1980)

entre 200 et 300 et leur structure dépend de l'espèce végétale[10, 11, 12]. La cellulose et les hémicelluloses forment le groupe des holocelluloses. Les macromolécules de cellulose ont une bonne résistance mécanique et un caractère hydrophile. La lignine est constituée d'un réseau tridimensionnel complexe[13] qui apporte de la rigidité, de l'hydrophobie et une bonne résistance à la décomposition. On trouve également des cires, des tannins, des minéraux et des pectines.

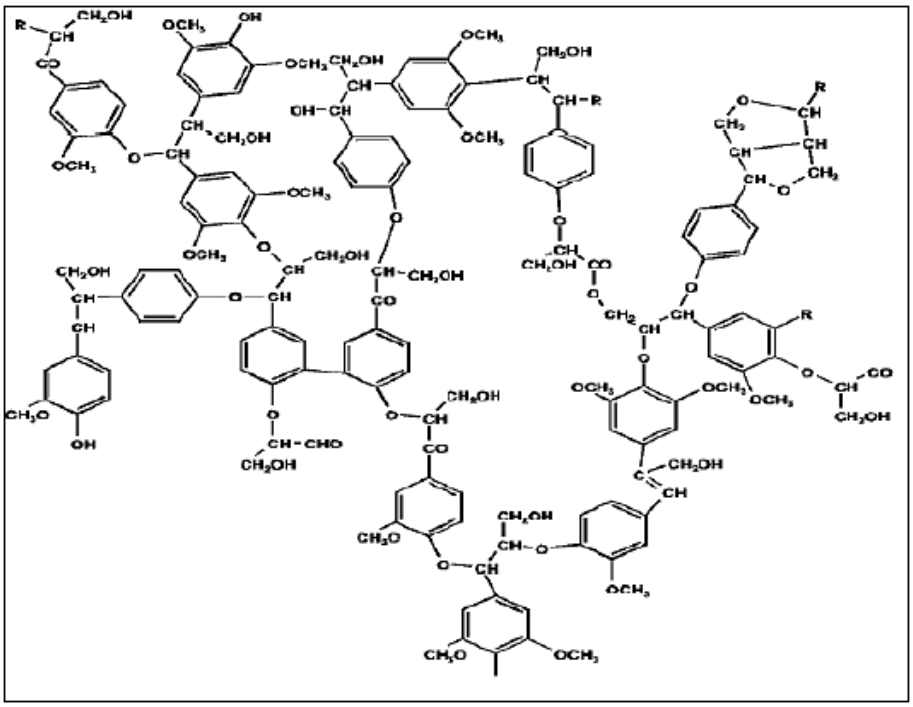


Figure 4 Illustration d'une structure possible de lignine[14]

---

[10] Fengel. D., Wegener. G., **Wood chemistry ultrastructure and reactions**, Edition K.V. Sarkanen et G.H. Ludwig, Wiley Interscience, p. 106. (1984)

[11] Shimizu. K., **Chemistry of hemicelluloses**, Wood and cellulosic chemistry,Edition D. N-S. Hon et N. Shiraishi, , p.177-214. (1991)

[12] Mazumdar. A.K, **A note on the hemicelluloses of some bast fibers**, Journal of Scientific and Industrial Research, (1955), 14, p. 542-544.

[13] A. Day A. Katia Ruel, G. Neutelings,D. Cronier ,H. David, S. Hawkins,B. Chabbert, **Lignification in the flax stem: evidence for an unusual lignin in bast fibers,** Planta, 222 (2) PP 234-245 (2005)

[14]K.Freudenberg, A.C. Neish, **The constitution and biosynthesis of lignin.** Constitution and Biosynthesis of Lignin, New York: Springer-Verlag, pp. 47–74.(1968).

Dans le tableau suivant, nous avons reporté les proportions des différents composants pour quelques fibres naturelles trouvées dans la littérature [15] [16].

%	Cellulose	Hemi-cellulose	Lignine	Pectine	cires	minéraux
Coton	90,0	6,3	-	-	0,7	1,1
chanvre	57,0 à 92,0 (70)	6,0 à 22,0 (16)	2,8 à 13,0 (6)	0,8 à 2,5 (1)	0,7 à 0,8 (0,7)	0,7 à 3,0 (1,5)
lin	60,0 à 81,0 (70)	10,0 à 21,0 (17)	1,0 à 5,0 (2,5)	0,9 à 3,8 (2)	1,3 à 3,0 (1,5)	1,0 à 1,5 (1,5)
Jute	51,0 à 84,0 (65)	12,0 à 24,0 (15)	5,0 à 14,0 (10)	0,2 à 4,5 (1,5)	0,4 à 0,8 (0,5)	0,17 à 0,7 (0,4)
Ramie	68,0 à 85,0 (72)	3 à 17 (14)	0,5 à 1 (0,7)	1,9 à 2,1 (2)	0,3 (0,3)	0,3 (0,3)
Kenaf	36,0 à 72,0 (44)	20,0 à 21,0 (21)	9,0 à 19,0 (18)	2,0 (2)	_	_
noix de coco	32,0 à 53,0 (40)	0,2 à 0,3 (0,2)	40,0 à 45,0 (43)	3,0 à 4,0 (3)	_	0,3
Sisal	43,0 à 88,0 (66)	10,0 à 15,0 (12)	4,0 à 14 ,0 (10)	0,5 à 10,0 (2)	0,2 à 2,0 (1)	-
Abaca	56,0 à 68,0 (60)	109,0 à 25,0 (21)	5,0 à 13,0 (10)	0,5 à 1,0 (0,8)	0,2 à 3,0 (1,4)	-

Tableau 1 Composition chimique des fibres naturelles les plus courantes (hors bois)

[15] **Industrial Application of Natural Fibres** / Jörg Mûssig Editor p301-305 (2010)

[16] Faruk O, et al. **Biocomposites reinforced with natural fibers** : 2001 – 2010 Prog Polym Sci (2012)

Les valeurs entre parenthèses sont les valeurs moyennes indicatives. La première remarque que l'on peut faire, c'est la grande variabilité de la contribution de chaque constituant. C'est la particularité des fibres naturelles. Il est bien évident que les propriétés générales de la fibre seront variables avec ces caractéristiques. Le taux de cellulose, en particulier, aura une influence importante sur les propriétés mécaniques des fibres, puisque c'est le polymère qui apporte le plus de rigidité. A titre d'exemple, le taux de cellulose dans la fibre de kénaf peut varier du simple au double en passant de valeur trouvée dans la littérature de 36 à 72%. La remarque est également valable pour le sisal (entre 43 et 88% avec une valeur moyenne à 66%). De même, on observe une grande variabilité pour les fibres de jute, puisque même si le taux moyen est de 65%, il peut varier entre 51 et 84%. Sans préjuger des résultats qui figureront dans cette thèse, on pourra s'interroger sur un éventuel classement que l'on fera sur les performances des matériaux préparés compte tenu de ces variabilités. Ces variabilités ont des causes très diverses notamment génétiques. En outre, lors de la période de croissance, la plante réagit en fonction des conditions pédoclimatiques qu'elle subit. On peut également avancer d'autres paramètres : nature du sol, nombre de graines au m², apport d'azote[17], autre traitement, période d'arrachage, rouissage et nettoyage de la fibre.

2.1.4 Morphologies des fibres naturelles

Les macromolécules de cellulose vont former en s'associant une microfibrille de cellulose. Les chaines de cellulose qui constituent les microfibrilles sont organisées en spirales et forment un angle avec l'axe de la fibre nommé angle microfibrillaire. Ces microfibrilles vont à leur tour s'associer entre-elles grâce à des ponts hémicelluloses pour former des macrofibrilles qui vont constituer l'essentiel de la paroi de la fibre. La paroi de la fibre est constituée de 3 couches S1, S2 et S3 pour lesquelles l'angle microfibrillaire est différent. En principe la couche S2 est la plus importante, et c'est elle qui impose majoritairement les propriétés mécaniques de la fibre. Cette couche peut également se subdiviser en plusieurs

[17] Sicard C, **Effect of initial fertilization on biomass and nutrient content of Norway spruce and douglas-fir plantation at the same site**. In PITRE E.F., et al. Short-term effects of nitrogen availability on wood formation in hybrid poplar. Trees, , 21, pp 249-259 (1955)

couches très fines. De façon générale, plus l'angle microfibrillaire est important, plus le caractère élastique s'accroit[18].

La lamelle mitoyenne constituée d'hémicelluloses et de lignines assure la liaison entre les fibres élémentaires pour former un faisceau de fibres (bundle).

Ces faisceaux de fibres sont à l'échelle des machines de préparation industrielle. Ainsi, ils peuvent être séparés en fibres élémentaires par des opérations mécaniques, chimiques et biochimiques[19] (Fig.6).

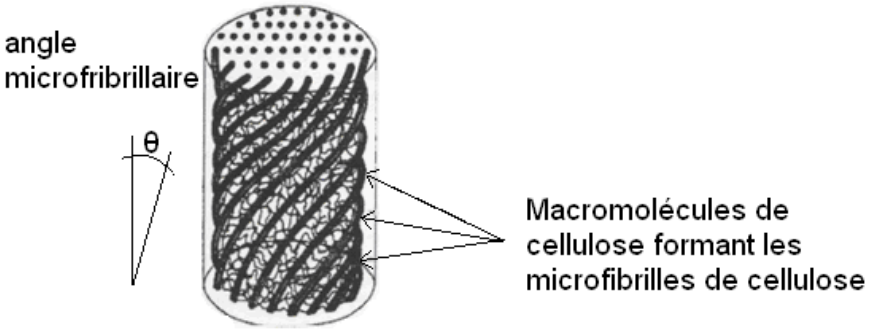


Figure 5 Angle des microfibrilles d'une fibre végétale[18]

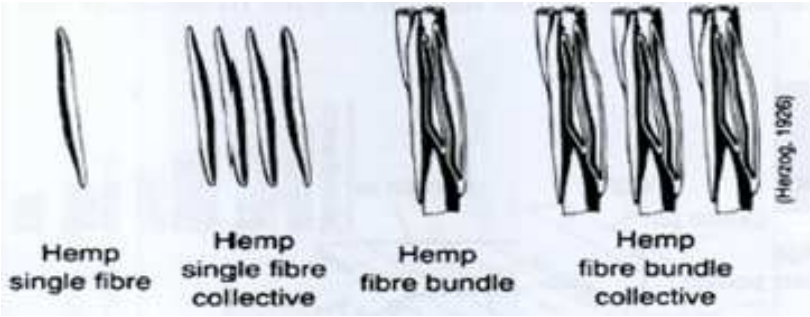


Figure 6 Fibres élémentaires (single fibre) et l'association des fibres en faisceaux de fibres (bundle)

2.1.5 Propriétés des fibres naturelles

Les propriétés des fibres peuvent être approchées par la mesure de nombreux paramètres.

Certaines mesures sont liées à la géométrie :

---

[18] J.R Daniel, **Cellulose, structure and properties**, Encyclopedia of polymer science and ingeneering, Edition Wiley-Interscience Publication, 3, pp. 91-123. (1987)

[19]HERZOG (1926), **Industrial Application of Natural Fibres** / Jörg Mûssig Editor p284

-Longueur de la fibre: mesurée sur la fibre individuelle ou un faisceau de fibres. La longueur peut être décomposée en plusieurs paramètres: Longueur moyenne, longueur moyenne de fractions de fibres, diagramme d'uniformité de longueur et détermination du pourcentage de fibres courtes.

-Diamètre: mesure par microscopie en µm qui reste une valeur approchée puisque les fibres ne sont pas nécessairement rondes.

-Finesse: Rapport diamètre sur longueur mesurés. Pour cette mesure, on peut utiliser un appareil de mesure à débit d'air : Une masse de fibres est traversée par un flux d'air dans une chambre. Plus la fibre est fine, plus grande sera la surface spécifique et donc plus grande sera la perte de charge. En mesurant cette perte de charge entre l'entrée et la sortie, on peut donner une valeur de finesse à partir d'un abaque.

-Frisure: Aspect de frisure, nombre de frisures par cm. Cette valeur caractérise le nombre d'ondulations de la fibre. La frisure est très caractéristique sur la laine, pour certaines fibres chimiques et synthétiques, mais est très variable et difficile à caractériser précisément avec les fibres végétales.

D'autres mesures de caractérisation concernent les propriétés mécaniques et en particulier la résistance à la rupture: Cette grandeur mesurée en cN peut être déterminée à l'aide d'un dynamomètre adapté à la mesure de la résistance des fibres. Les unités de mesures sont :

-Ténacité: C'est la résistance à la rupture ramenée à la masse de l'échantillon testé

-Résistance au sec et au mouillé: Les valeurs de résistance des fibres sont influencées par l'humidité ambiante. En principe les tests sont réalisés en ambiance de laboratoire stabilisée à 65% d'humidité relative et 20°C. Pour réaliser les résistances au sec et au mouillé, les fibres sont préalablement séchées en étuve ou immergées dans de l'eau distillée.

-Module de Young ou module d'élasticité MOE (en GPa) : Déterminé dans la partie linéaire de la courbe qui porte la contrainte (en Pa) exercée sur la fibre en fonction de sa déformation (en %).

-Densité: Mesurée à l'aide d'un pycnomètre à gaz.

On peut aussi effectuer des mesures des propriétés physico-chimiques :

-Degré de polymérisation : Caractérise la longueur de la chaine moléculaire. En général, pour les fibres naturelles, on peut mesurer la longueur des chaines de cellulose après l'élimination des autres composants.

-Composition chimique : Au-delà des trois constituants déjà évoqués ci-dessus, on peut également déterminer le taux de pectines, de cires et de minéraux présents dans la fibre.

-Taux de cristallinité de la cellulose contenue dans la fibre: Ce taux peut être approché par la mesure de viscosité de solution de cellulose dissoute. Il a une influence sur la rigidité des microfibrilles de cellulose et sur l'affinité tinctoriale.

-Taux de reprise : Le taux de reprise caractérise la quantité d'eau absorbée par une quantité de fibre sèche à l'équilibre dans une atmosphère stabilisée.

-Gonflement transversal / axial: C'est la variation dimensionnelle que l'on observe lorsque la fibre est soumise à une immersion dans l'eau.

-Rétention d'eau : capacité de la fibre à absorber de l'eau sous forme liquide. Elle est calculée en % par rapport à la masse de fibre sèche.

-Réaction aux bases, aux acides et aux solvants: Pas de normes spécifiques par rapport à ce type de tests, mais on peut plonger les fibres dans des solutions à pH donné pendant une durée déterminée et à une température fixe. On peut mesurer ensuite un certain nombre de grandeur comme la résistance mécanique, masse spécifique, aspect de surface. Ces tests sont plus facilement réalisables si l'on dispose des fibres mise sous la forme d'une étoffe.

Sans vouloir être exhaustif, on peut également évoquer des caractérisations de type comportement vis-à-vis des UV et résistances aux attaques biologiques.

A titre d'information, les tableaux suivants présentent des valeurs de quelques propriétés recueillies dans la littérature et relatives aux principales fibres végétales et susceptibles d'être intégrées dans des biocomposites [20, 21].

---

[20] **Industrial Application of Natural Fibres** / Jörg Mûssig Editor p302 et 303

[21] O.Faruk, A.K.Bleddzki, H.Fink, M.Sain, **Biocomposites reinforced with natural fibers : 2001–2010** Prog Polym Sci (2012)

Type de fibre	Ténacité à sec (cN/tex)	Ténacité au mouillé (cN/tex)	Contrainte de rupture (MPa)	Module d'élasticité (GPa)	Elongation de rupture (%)	Densité (g/cm3)	Angle de fibrillation (°)
Chanvre	-	-	310-1110 (700)	3-90	1,3-6,0 (3)	1,4-1,6	2-6
lin	20 à 33	29 à 33	343-1500 (700)	8-100	1.2-4,0	1,4-1,5	5-10
Jute	26 à 35	28 à 48	187-800 (500)	3-90 (65)	1,3 – 6,0 (3)	1,3-1,5	7-10
Ramie	59	66	290-1060 (800)	5-128 (65)	0,2-6,0 (3)	1,5-1,5	7-12
Kénaf	-	-	180-1191 (700)	22-128 (55)	1,6 - 6,9 (3)	1,2-1,4	-
Noix de coco	-	-	95-270 (200)	2,8-6 (5)	15,0 -51,4 (30)	1,15-1,5	30-49
Sisal	-	-	80-855 (600)	9-38 (12)	1,9-14,0 (3)	1,0 – 1,5	10-25
Abaca	-	-	12-980 (600)	12 -72 (50)	1,0-12,0 (4)	1,4-1,5	-

Tableau 2 Propriétés mécaniques des fibres naturelles les plus courantes (hors bois)

Les valeurs suivantes représentent les diamètres et les longueurs données pour les fibres élémentaires ou en faisceaux. Il s'agit des valeurs les plus couramment retrouvée dans la littérature[22]. On trouve également les valeurs données en dTex ou Tex, c'est-à-dire la masse linéique des fibres donnée pour 10 000 ou 1000 m.

[22] **Industrial Application of Natural Fibres** / Jörg Mûssig Editor p299 et 300

Type de fibre	Diamètre fibre ou faisceaux (µm)		Finesse en Tex : (g/1000m)		Longueur (mm)	
	Fibre élémentaire	Faisceaux de fibres	Fibre élémentaires	Faisceaux	Fibre élémentaires	Faisceaux
Chanvre	3,0 à 51,0	25 à 500	0,3 à 3,0	5,4 à 40,0	8,3 à 55,0	650 à 5000
lin	1,7 à 76,0	40 à 620	0,1 à 0,5	0,4 à 10,0	4 à 140	100 à 1500
Jute	5,0 à 30,0	25 à 200	0,2 à 1,3	1,4 à 25,0	1 à 6	150 à 3600
Ramie	4,6 à 126,0	16 à 904	0,2 à 8,0	-	40 à 260	800 à 2000
Kenaf	12 à 50,0	40 à 90	1,9 à 2,2	-	1,5 à 11	750 à 1500
Noix de coco	12,0 à 24,0	50 à 460	-	15,0 à 50,0	0,3 à 1,2	36 à 330
Sisal	4,0 à 47,0	9 à 460	1,0 à 4,6	15,0 à 20,0	0,5 à 8,0	40 à 1250
Abaca	6,0 à 46,0	10 à 1000	-	4,2 0 44,4	2 à 12	60 à 2500

Tableau 3 Finesses et longueurs des fibres naturelles présentées en fibre unitaire ou faisceau

Enfin, le tableau suivant donne des informations complémentaires sur le comportement vis à vis de l'eau de quelques fibres dont les fibres libériennes, et en particulier du gonflement qui pourrait avoir une influence sur la qualité des composites réalisés avec une résine aqueuse ou lors de son cycle de vie en condition humide.

Type de fibre	Taux de reprise à 65% et 20°C (%)	Gonflement transversal (%)	Gonflement Axial (%)	Gonflement en Volume (%)	Rétention d'eau (%)
Chanvre	6,0 à 12,0				50 à 55
lin	7,0 à 12,0	20 à 25	0,05 à 0,20	29,5	50 à 55
Jute	8,5 à 17,0	20 à 22	0,37	44,0 à 35,0	25 à 35
Ramie	11,0 à 17,0	12 à 15		32,0	
Kenaf	17,0				
noix de coco	2,0 à 13,0	6 à 15			
Sisal	10,0 à 22,0	18 à 20		39,5	30 à 45
Abaca	5,0 à 14,0			42,0	

Tableau 4 Comportement de quelques fibres naturelles vis à vis de l'eau

Une analyse succincte de ces données met en évidence la très grande disparité des propriétés des fibres naturelles et donc la difficulté de pouvoir disposer de fibres dont les propriétés sont reproductibles.

2.2 Les matrices :

Beaucoup de recherches sont en cours sur les matrices issues de la biomasse. Cependant, ces résines ont pour l'instant des caractéristiques mécaniques et de comportement à la chaleur encore faibles. Elles sont donc utilisables dans des applications où l'aspect respect de l'environnement (ressource renouvelable, santé, biodégradabilité ou recyclabilité) prime sur la technicité.

2.2.1 Matrices thermoplastiques :

Les matrices biosourcées, les plus anciennes ont été produites à partir de cellulose bien connue dans le domaine du textile ou le domaine de la photographie argentique. Ainsi les procédés d'obtention d'acétate de cellulose et procédé viscose (ou cellulose régénérée) permettent d'obtenir des polymères artificiels à partir de la cellulose du bois ou de coton.

On trouve également sur le marché les matrices thermoplastiques de PLA (acide polylactique)[23] et le PHA (polyhydroxyalkanoates) qui sont tous deux des polyesters aliphatiques linéaires produits par des bactéries réalisant principalement une fermentation de sucres du maïs ou de betterave[24]. On trouve également la classe des PHB (Polyhydroxybutyrate) qui sont à la fois issus de la biomasse et biodégradables[25].

Il existe également des formes de polyamides PA 11 et PA 10.6 et 10.10 notamment pouvant être synthétisés tout ou en partie à partir d'huile de ricin[26] et du PE (polyéthylène). Ils sont donc biosourcés mais non biodégradables. Ces polymères sont tous des polymères thermoplastiques.

Enfin pour cette classe des thermoplastiques, on trouve également des élastomères le plus souvent à bases styrènes ou de polyuréthanes mais qui peuvent être préparés à partir de polyol eux-mêmes biosourcés à partir de céréales ou d'algues. On peut également citer une nouvelle génération de composites développés à partir de fibres de bois et d'une matrice élastomère biosourcée de type poly (ether-b-amide) (de marque commerciale Pebax®) qui montre des résultats spectaculaires en termes de stabilité thermique[27] et de propriétés mécaniques[28].

---

[23] iBIB2011, **International Business Directory for Innovative Bio-based Plastics and Composites,** Nova Institute (2011)

[24] Vink. E.T.H, Rabago. K.R, Glassner. D.A, Gruber. P.R, **Applications of life cycle assessment to NatureWorksTM polylactide (PLA) production**. Polym. Deg. Stab, , 80, p. 403-419(2003)

[25] Freier. T, C. Kunze, C. Nishan, S. Kramer, K. Sternberg, M. Sab, Hopt. U.T, Shmitz. K.P, **In vitro and in vivo degradation studies for development of a biodegradable patch based on poly(3-hydroxybutyrate).** Biomaterials, 23, p. 2649-2657. (2002)

[26] **BIO BASED Polyamide**, Société EMS GRIVORY, www.ems.grivory.com

[27] Fabien Sliwa, Nour-eddine El Bounia, Gérard Marin, Fatima Charrier, Frédéric Malet, **A new generation of wood polymer composite with improved thermal stability**, Polymer Degradation and Stability,P 97 496e503 (2012)

2.2.2 Matrices thermodurcissables :

Dans le domaine des matrices thermodurcissables, on trouve peu de résines issues en totalité de la biomasse. On peut citer la résine de cardanol synthétisée à partir de l'écorce de la noix de cajou[29]. Cette résine a permis de réaliser des composites aux caractéristiques mécaniques suffisantes pour envisager une commercialisation pour des applications automobiles et ameublement.

On trouve plusieurs process dans lesquels on effectue un mélange entre une résine chimique conventionnelle type polyester ou époxy et une résine biosourcée. On peut alors parler dans ce cas de biocomposites ou de composites hybrides

La figure N°12 ci-dessous réalisée par l'Université de Kassel est une revue des polymères courants actuellement utilisables pour la réalisation de biocomposites hybrides ou 100% biosourcés. L'intérêt de cette représentation est également de préciser le caractère biodégradable ou non du polymère. La partie de gauche est un rappel des polymères issus de la chimie du pétrole et utilisables en tant que matrice pour faire des biocomposites hybrides, c'est-à-dire éventuellement en mélange avec une autre matrice qui soit biosourcées et des fibres ou particules de renfort issues de la biomasse. Au centre, on retrouve les résines en mélanges qui vont former des matrices hybrides. Enfin, à gauche sont représentées les matrices biosourcées biodégradables et non biodégradables. On remarque que l'on ne trouve pas de résine thermodurcissable dans cette catégorie. En parallèle, certaines formulations de colles à base de tannins issues de la filière bois offrent des caractéristiques prometteuses tout en restant très majoritairement naturelles. Ces colles développées ardemment par les équipes du Professeur A.PIZZI[30,31] sont maintenant utilisées pour la réalisation des panneaux de

---

[28] Fabien Sliwa, Nour-eddine El Bounia, Fatima Charrier, Gérard Marin, Frédéric Malet, **Mechanical and interfacial properties of wood and bio-based thermoplastic**, Composites Science and Technology 72 1733–1740 (2012)

[29] Alfonso Maffezzolia, Emanuela Calo`, **Cardanol based matrix biocomposites reinforced with natural fibres**, Elsevier, *Composites ,Volume 64, Issue 6, Pages 839-845 (may 2004*)

[30] A. PIZZI, **Chemistry and technology of cold and thermosseting tannin-based exterior wood adhesive. PhDThesis**. Univ. Of the Orange Free State, South Africa. (1977)

particules bois (type OSB), agglomérés et lamellés collés. De plus ces résines ne dégagent que très peu, voir pas de COV de type formaldéhydes et répondent donc avec succès aux exigences des nouvelles normes les plus strictes en matière de santé et de protection de l'environnement[32]. L'utilisation de ces colles composées de tannins en tant que résines (ou matrice) va être l'objet de cette thèse pour le développement de nouveaux matériaux composites.

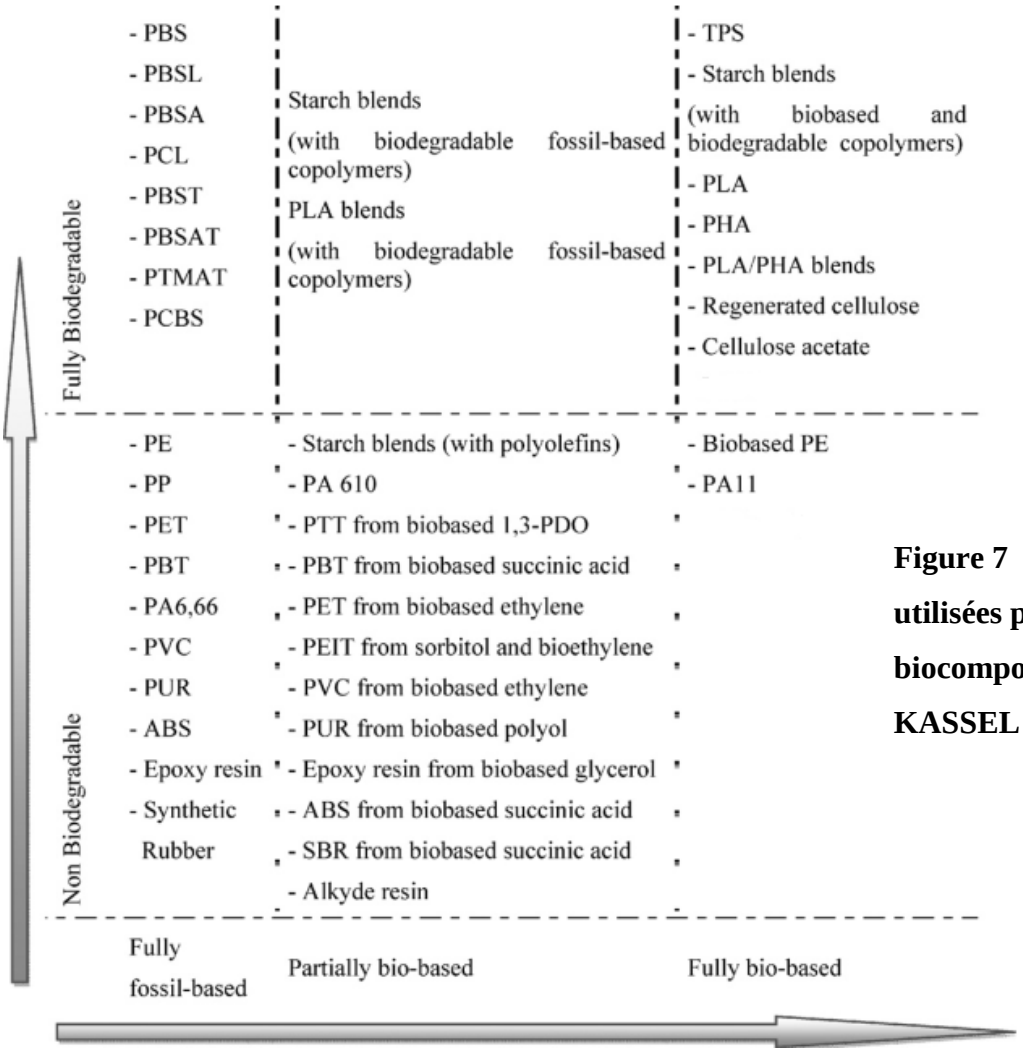


Figure 7 Synthèse des résines utilisées pour réaliser un biocomposite (University of KASSEL 2012)

---

[31] P.NAVARRETE FUENTES, A**dhésifs naturels à base de tanin, tanin/lignine et tanin/gluten pour la fabrication de panneaux de bois**, Thèse de Doctorat spécialité Sciences du Bois et des Fibres, Université Henri Poincarré, Nancy 1 (2011)

[32] S. WIELAND, **Utilisation d'adhésifs respectueux de l'environnement pour la fabrication de panneaux dérivés du bois à faible émission de formaldéhyde- caractérisation des paramètres de pressage – évaluation des propriétés des panneaux**, THÈSE Spécialité : Sciences et Technologies Industrielles, Université Henri Poincarré, Nancy 1(2007)

2.3 LES MODES DE PRODUCTION DES COMPOSITES

Cette partie est une revue rapide des procédés de préparation des composites conventionnels. Ces principes de procédés peuvent être utilisés après adaptation aux spécificités des fibres naturelles pour préparer des biocomposites :

Les procédés de 1 à 13 sont des procédés qui mettent en œuvre principalement des résines thermodurcissables. Les procédés suivants 14 à 19 sont des procédés basés spécifiquement pour les résines thermoplastiques. Ce sont des procédés issus des techniques de la plasturgie qui utilisent des fibres très courtes (de 500 microns à 5mm en général) pour réaliser des pièces composites thermoplastiques. Ces procédés principaux sont l'injection, l'extrusion et la thermo compression.

1) Hand Lay up ou moulage au contact[33]

Cette méthode consiste à appliquer successivement dans un moule: un agent de démoulage (cire ou film), éventuellement un gel-coat pour l'aspect extérieur, et les couches de renforcement constituées de mat (nontissés), de tissus ou de fibres coupées et imprégnées de résines. Ces opérations sont réalisées manuellement en utilisant des outils types brosses et racles de débullage. On peut disposer successivement plusieurs couches de fibres imprégnées afin de réaliser une épaisseur plus importante.

2) Spray up

Le process consiste à déposer par spray simultanément dans le moule, de la fibre coupée et imprégnée. La fibre déposée a en général une longueur de 30 mm dans un process fibre de verre.

---

[33] M.Baiardo, E.Zini, M. Scandola, **Optimization of the wet lay-up/vacuum bag process for the fabrication of carbon fibre epoxy composites with high fibre fraction and low void** content,Composites,Volume 20, Issue 5, September 1989, Pages 441–452

3) RTM - Resin Transfert Molding

Ce process consiste à placer dans un moule fermé les renforts fibreux de type mat, tissés 2D et 3D ou multiaxiaux et préformes. On injecte ensuite la résine dans le moule par un ou plusieurs points en fonction de la taille de la pièce à réaliser.

4) Resin Infusion

La résine vient imprégner les fibres par une aspiration et mise sous vide partiel dans un moule constitué d'une forme rigide recouverte d'un film. Les fibres et la résine sont comprimées par la pression exercée par le film. Au cours de ce process, on peut rajouter un tissu d'arrachage, une grille permettant une meilleure répartition de la résine et un feutre capable d'absorber les surplus de résine. On retrouve dans ce process l'ensemble des textiles utilisables en RTM que ce soit mat de fibres courtes, mat de filaments continus, tissés, multiaxiaux, tissus 3D et sandwichs et préformes

5) SMC - Sheet Molding Compound

Les fibres coupées sont imprégnées et déposées sur un tapis, éventuellement entre 2 feuilles de protection à faible énergie de surface (silicone) et compressées éventuellement à chaud. Les fibres sont en général des fibres de verres et les résines des polyesters ou des phénoliques. On trouve également ces produits dans la catégorie PREPPREG, c'est-à-dire que la réaction de réticulation n'est pas achevée. Ce produit est présenté sous la forme d'un rouleau dans lequel on va découper les pièces de renfort qui seront utilisées en process RTM ou Résin infusion.

6) BMC - Bulk Molding Compound

Un moule fermé est alimenté par une extrudeuse, elle-même alimentée par un mélange de polymère et de fibre. En général, la formulation contient 15 à 25 % de fibres de longueur de 5 à 30 mm. Les résines les plus couramment utilisées sont les résines polyesters et les phénoliques. Ce process existe également pour réaliser des pièces de grande longueur type extrusion.

7) Enroulement filamentaire

Les fibres sont présentées sous la forme d'un ruban ou d'une mèche, d'un fil ou assemblage de fil. Un système va guider et croiser la matière textile autour d'un mandrin ou d'une forme en rotation. Les fibres sont imprégnées lors du placement ou par la suite par contact. Ce système est très utilisé dans le domaine des composites carbones pour réaliser des tubes de n'importe quel diamètre.

8) Centrifugal casting ou rotomoulage

Les fibres et la résine sont placées dans un moule mis en rotation. Sous l'effet de la force centrifuge, les matières sont plaquées sur la paroi du moule qui reste en rotation le temps de la réticulation. Les fibres sont en principe des fibres coupées, mais des mats et des tissus sont utilisables pour ce procédé.

9) Continuous sheet production

Plusieurs couches de fibres coupées, de mat ou de tissus sont déposées sur un tapis. Entre ces couches, on fait couler la matrice. Un film protecteur est déposé sur le dessus du complexe et l'ensemble avance à la continue dans un four de compression. L'écartement entre les tapis de compression diminue progressivement et la température est réglée en fonction de la résine. La vitesse de production de ce type de machine peut atteindre 15 m / min. En sortie de machine, le composite peut être découpé en feuilles ou plaques.

10) Pultrusion

On utilise principalement des filaments continus mais il arrive que la mise en œuvre s'effectue à partir de mèches (roving) ou de tissus étroits ou tissus 3D pour des applications type carbone. Les filaments sont disposés sur un cantre et pénètrent sans être coupés dans une tête d'imprégnation.

11) Technologies RIM : Injection Basse Pression

Ce système consiste à injecter une solution de résine réactive qui peut être renforcée de fibres dans un moule. La pression exercée permet d'évacuer les éventuelles bulles d'air. La pièce peut ensuite subir une cuisson après démoulage.

Les fibres sont courtes (3 mm maxi). Ce procédé est courant pour la fabrication de pièce en polyuréthane, mais il peut également se baser sur l'utilisation de résines polyester, époxy et phénolique.

12) Système LFI

Un robot dispose d'un bras piloté qui est alimenté par un ruban ou une mèche de fibres, une résine et un catalyseur. Le robot dépose les matières sur le moule suivant un protocole de placement. Il est possible de déposer plus de matière sur certaines zones, dont l'objectif est de les renforcer.

13) Injection

La matière thermoplastique présentée sous la forme de granulés de quelques millimètres est ramollie et dosée par une vis de dosage avant la phase d'injection dans un moule. Ensuite le contre-moule vient mettre en pression la matière. On peut utiliser également ce procédé avec des élastomères, et des alliages à bas points de fusion. Les fibres sont mélangées à l'entrée avec les granulés de thermoplastique ou des pellets (granulés) de résine thermoplastique déjà préparés avec des fibres mélangées.

14) TRE : Extrusion puis compression (Thermoplastique renforcé Estampable)[34]

Le composite thermoplastique renforcé de fibres est préparé par extrusion puis consolidé par compression dans un four de thermocompression à bandes.

15) Vaccum moulding

---

[34] T. Renault, **Les matériaux composites dans l'automobile, Elsevier,** Mec. Ind. 2, 211–218 (2001**)**

Une membrane met en pression avec un système de mise sous vide par aspiration un film thermoplastique déposé sur un moule. L'ensemble est chauffé pour permettre la mise en forme.

16) Diaphragme / thermoforming / stamping

Un film thermoplastique est chauffé à plat dans un four et envoyé entre un moule et contre-moule non chauffé. Un flux d'air refroidit légèrement la pièce afin de contrôler le durcissement.

17) Compression moulding

Des plaques de fibres réalisées avec une proportion minimum de fibres thermoplastiques sont chauffées dans un four (à infrarouge par exemple) et sont convoyées jusqu'à une presse d'estampage qui vient frapper la pièce pour la mettre en forme.

18) TP filament winding

Les filaments thermoplastiques sont préchauffés et enroulés sur un mandrin pour obtenir une pièce de révolution.

3 CONTEXTE ECONOMIQUE

Au niveau mondial, le marché des matériaux composites est un marché en croissance importante (+ 6% en valeur en moyenne sur les dernières années) et représentera au moins environ 90 milliards d'euros, pour plus de 10 millions de tonnes en 2015 d'après les prévisions du groupe d'étude JEC[35].

[35] **Overview of the worldwide composites industry 2010-2015** – Par JEC

Ce marché se répartit en valeur à raison de 40 % en Amérique du Nord, 31% en Europe et 29 % en Asie. Les composites à matrice thermodurcissable représentent environ 70 % des composites transformés en Europe[36].

En 2013, on estime que la production mondiale sera d'environ 9,2 millions de tonnes.

En France, le volume du marché français représentait 300 000 tonnes en 2010 et le chiffre d'affaire était segmenté entre :

Les matières premières et leur fabrication (matrices, fibres, machines) qui représentent pour la France environ 30 % du marché

La fabrication des produits semi-finis (mat, tissus de renfort en fibres...) qui représente 10 % du marché

La fabrication des produits finis soit 60 % du marché

Le marché le plus important est celui des transports, suivis du bâtiment. Nous avons dans la suite de ce contexte reporté quelques données sur le domaine des sports et loisirs en pleine progression[37] et fait un focus particulier sur le contexte économique des biocomposites.

3.1 Données sur le marché automobile

D'un point de vue global, les composites à matrice thermoplastique qui sont plus facilement recyclables, se développent de manière plus importante dans l'automobile que les systèmes basés sur des matrices thermodurcissables.

Le plus souvent dans le domaine de l'automobile les matériaux sont réalisés en matrice polyester et renfort en fibres de verre longues. Concernant les composites thermoplastiques, on trouve le plus couramment des polypropylènes et des polyamides renforcés avec des fibres de verre courtes avec un taux de renfort de 20 à 40% en volume. On trouve également des pièces techniques devant supporter les écarts de température réalisées en résine phénolique et

[36] SESSI Ministère de l'Economie des finances et de l'Industries N° 158 - février 2002

[37] **Les composites en France** - Publication Edité par JEC (2013)

fibres courtes toujours principalement en verre. On trouve également des feutres thermocompressés pour des pièces n'ayant pas à supporter d'effort importants comme les intérieurs de portes ou les supports de roues de secours. Ces feutres thermo-compressés peuvent être préparés à partir d'un mélange de fibres polyester et de fibres thermocollantes ou encore de fibres biosourcées (Viscose, coton, kénaf, chanvre ou lin) ou recyclés. Une bonne combinaison de ces fibres peut apporter à ces matériaux thermocompressés une amélioration des performances acoustiques[38].

L'allègement des véhicules est une priorité imposée par les nouvelles directives européennes adoptées par les états membres de l'Union Européenne[39]. En particulier des objectifs d'émissions de dioxyde de carbone par km parcouru pour les nouveaux véhicules avec un objectif de 130g par km dès 2015 et un second objectif de seulement 95 g de dioxyde de carbone par km en 2020. Pour les constructeurs, ces directives vont entraîner des pénalités financières. En conséquence, les composites sont de plus en plus utilisés comme solution d'allègement en alternative aux aciers et à l'aluminium. Les biocomposites dont on attend de bonnes propriétés, offrent également en plus l'avantage de provenir de ressources renouvelables.

Les procédés les plus classiques de mise dans l'industrie automobile sont les suivants :

● Pour les très petites séries (Prototypes et Compétition), on utilise le moulage au Contact ou l'infusion

● Pour les petites séries d'environ 15 pièces par jour /moule, on privilégie la technique RTM

● Dans les cas des moyennes et grandes séries, on peut utiliser la compression SMC, mais aussi l'injection de matrice polypropylène chargée de fibres courtes ou longues

● Pour les pièces de carrosseries ou les pare-chocs, on trouve plutôt la technologie pré-imprégnée TRE

---

[38] Albrecht Nick,1,2 Udo Becker,1 and Wulf Thoma1, **Improved Acoustic Behavior of Interior Parts of Renewable, Resources in the Automotive Industry,** Journal of Polymers and the Environment, Vol. 10, No. 3, July 2002 (2002)

[39] Règlement (CE) n° 443/2009 du Parlement européen et du Conseil du 23 avril 2009 établissant **des normes de performance en matière d'émissions pour les voitures particulières neuves** (2009)

● Les pièces très techniques (commande de circuits de refroidissement par exemple) sont quant à elles fabriquées à partir des technologies RIM.

De façon non exhaustive, on peut citer quelques exemples de produits à base de composite utilisés pour le secteur automobile :

• Platine de rétroviseur :

Depuis avril 2009, les Peugeot 207 sortent d'usine avec une pièce de rétroviseur contenant 30% de fibres de chanvre en compound.

• Concept car U-BOX de Huntsman :

Futur véhicule de livraison dont la structure est composée de résine époxy et de fibres de lin sous forme de renfort tissé.

3.2 Données sur le marché du transport ferroviaire

Dans ce secteur, les composites les plus utilisés sont les composites à matrice thermodurcissable (essentiellement polyester) et fibres longues. Ils restent une grande marge de progression pour les composites sur ce marché qui utilise encore beaucoup les matériaux traditionnels. Les biocomposites sont encore très peu présents dans ce domaine du fait des contraintes de durabilité et de sécurité feu.

Les procédés et technologies que l'on trouve le plus souvent sont:

- Procédés au contact pour les pièces de petite série (ex : panneaux d'habillage, nez de TGV)
- RTM pour les éléments d'aménagement intérieur

De même, on peut citer quelques exemples d'applications : aux Pays-Bas, la Société NPSP Compositen a conçu un composite à base de mousses pour la fabrication du nez et des

panneaux extérieurs du dernier train néerlandais[40]. Des charges ignifugeantes sont ajoutées à la résine.

3.3 Données sur le marché du transport aérien

L'aéronautique utilise des composites de hautes performances CMO, CMM et CMC. Pour les CMO, on trouve principalement des composites à matrice époxy associée à un taux élevé de renforts en fibres de carbone. Dans le domaine des matrices thermoplastiques, on va trouver des matrices PEEK et PEI ou hybride (TP/époxy). Ces composites thermoplastiques sont réalisés par dépôt successif de rubans de fibres imprégnés de résines, soumis à une forte pression et chauffés.

En termes de perspectives, selon le rapport de Lucintel, la carlingue des avions pourrait d'ici 2018 être composée de matériaux composites pour 35% de sa masse. En outre, selon un rapport récemment publié sur le sujet, la demande en composite pour l'industrie aéronautique devrait augmenter de plus de 10% durant les cinq prochaines années.

Par contre, à notre connaissance, les données concernant l'utilisation des fibres naturelles et des agro-composites dans le marché du transport aéronautique sont quasi-inexistantes.

3.4 Données sur le marché du secteur du bâtiment :

Le secteur du bâtiment représente une consommation de 1,2 millions de tonnes de matières plastiques chaque année (soit 23% de la totalité des matières plastiques produites en France). La construction est un marché prometteur : sur 800 kT de polymères consommés en France, le potentiel pour les compounds fibres naturelles est d'environ 60 kT (sans les profilés). D'après l'étude réalisée par le groupe JEC en 2012 sur le marché des composites en France, la part de

[40] http://www.npsp.nl/oplossing.asp?ID=276&IDP=1

10% en biocomposites du marché des composites en France serait atteinte grâce à la grande représentation dans ce secteur des matériaux type profilés de terrasses (ou dekking).

Les composites utilisés dans le bâtiment peuvent être :

- A matrice thermodurcissable (polyester, vinylester, phénolique, polyuréthane) pour les structures des bâtiments
- A matrice thermoplastique pour les aménagements intérieurs

Les technologies utilisées sont le plus souvent :

- La compression SMC et BMC, le drapage, ou procédé RTM
- La découpe de rouleaux thermoplastiques renforcés
- La pultrusion

3.5 Loisirs et sports

Les composites utilisés dans le secteur des sports représentent 8% de l'ensemble des composites utilisés dans l'industrie. Les biocomposites sont émergents dans ce domaine et exploitent les propriétés spécifiques des fibres naturelles. Les producteurs mettent maintenant particulièrement en avant l'aspect écologique, la résistance intéressante des fibres et l'absorption des vibrations. Les fibres sont utilisées seules ou en combinaison avec d'autres comme le verre ou le carbone.

A titre d'exemple, pour illustrer les applications nécessitant de la résistance, la société Urge utilise un tissé de lin pour ses casques en série avec une capacité d'absorption des chocs certifiée[41]. Dans d'autres domaines, ce sont les capacités d'absorption des vibrations qui sont recherchées : Le groupe Décathlon a introduit une part de lin dans certaines de ses raquettes de tennis avec un résultat important sur l'absorption des vibrations et le confort du joueur[42].

---

[41] http://www.urgebike.com/index.php/fr/technologie/eco-conception

[42] Réf : **Artengo 820** Flax Fiber développé en collaboration avec la société française LINEO

Les sports nautiques sont également très consommateurs de matériaux composites. Les coques, les mâts, leurs structures internes les utilisent systématiquement. Par exemple, la société Plasmor expérimente depuis un an la fabrication d'un kayak de mer dans lequel le lin a remplacé la fibre de verre.

La société Huntsman a exposé « l'Araldite Boat », le premier bateau au monde à intégrer des fibres de lin dans sa structure composite composée de résine époxy et de fibres de carbone.

Sans vouloir être exhaustif, on peut également citer l'entreprise française Notox qui a mis au point une production de surf stratifiés en fibres de lin fabriquées par hydroliage et résine époxy partiellement biosourcée (33 à 55% de GREEN EPOXY).

3.6 Contexte Economique des biocomposites :

Concernant les marchés des fibres pour les biocomposites, les fibres naturelles utilisées en textiles, en emballages, et papiers ont un gisement potentiel de renforts pour les biocomposites. Les ressources sont disponibles car l'on dispose déjà en France de surfaces suffisantes et productives de fibres de bonnes qualités. Le gisement européen des fibres végétales aurait été, sur la période 2001 à 2008, de 115 000 hectares annuels moyens cultivés soit une évaluation à 208 000 tonnes. La contribution de la France représenterait 80% de la production Européene soit 169 000 tonnes, dont 93 000 tonnes de fibres longues (supérieurs à 10 cm) et 76 000 tonnes de fibres de longueur inférieure 10 cm [43].

S'agissant des matrices, en 2010, la capacité annuelle mondiale de production de résines biosourcées était de 0,72 millions de tonnes, soit 0,3% de la production mondiale de plastique. Cette capacité devrait atteindre 1,6 millions de tonnes en 2013. La dynamique de croissance de la production de résines biosourcées est tirée par les acteurs nord-américains qui pourraient voir leurs capacités de production croitre de plus de 400%.

[43] **Compte rendu de la société d'étude FRD** - Troyes (2011)

La France est encore peu présente dans la production de résines biosourcées. La production en France en 2010 ne dépasse pas 40 000 tonnes/an, soit environ 5% des capacités mondiales de résines biosourcées. Les principaux acteurs les plus impliqués sont ARKEMA pour la production de PA 11, mais aussi LIMAGRAIN, FUTURAMAT, ROQUETTE, SPHERE, et VEGEPLAST pour la production de résines à base d'amidon.

Ci- dessous, pour illustrer, cette carte montre les principales zones de production de matrice biosourcées[44].

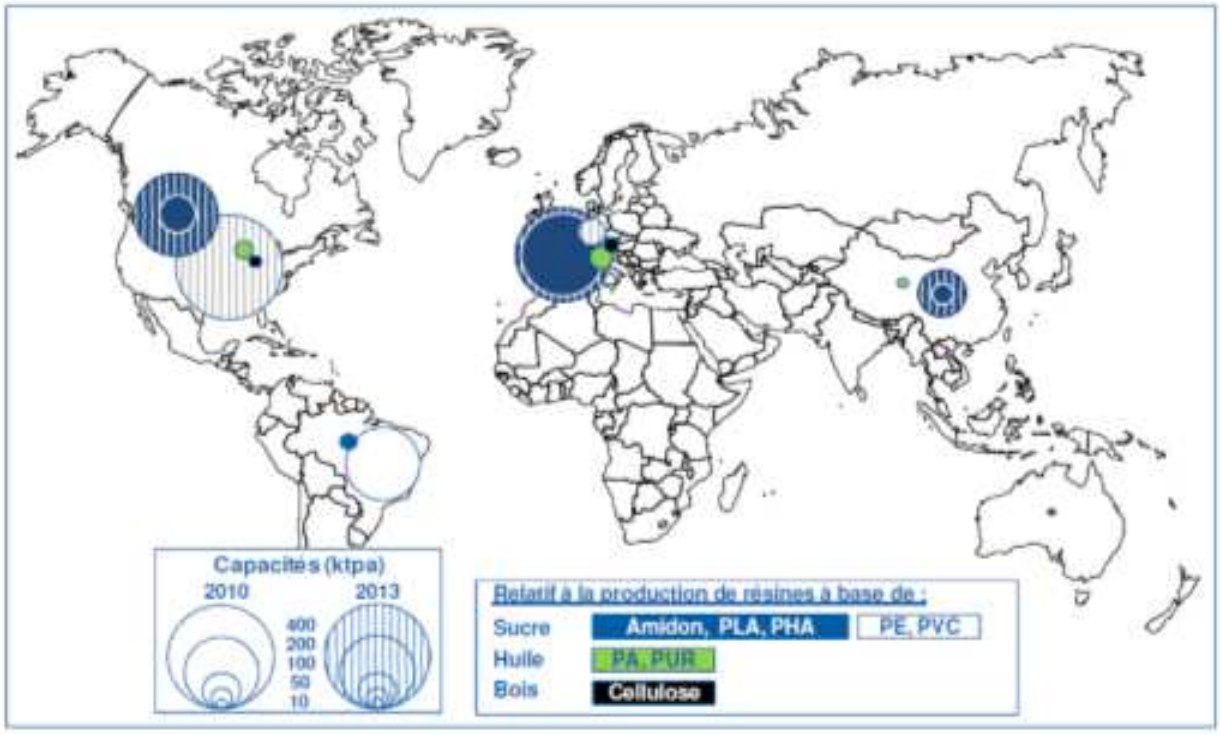


Figure 8 Capacités de production mondiales de résines biosourcées par zones géographiques et typologies de ressources

[44] PROBIP, **des résines biosourcées** : **quels développements en France, dans l'Union Européenne et dans le monde 2009**, ADEME (2011)

A partir de fibres naturelles (y compris fibres bois) et de résines biosourcées ou pas, il est donc maintenant possible d'élaborer des biocomposites partiellement biosourcés. Le tableau ci-dessous basé sur les information du Nova-Institute, résume les tendances au niveau de l'Europe sur les perspectives d'industrialisation des biocomposites face aux composites sous réserve d'une poursuite d'une politique favorable au développement de ces matériaux.

Biocomposites	Quantités estimées en Europe en 2010	Quantités estimées en Europe en 2020
Thermocompression avec : (essentiellement application automobile) Fibres naturelles : lin, jute , kénaf, sisal, abaca, coco et coton Fibres de bois	140 000 tonnes (dont 100 000 tonnes avec coton) 50 000 tonnes	220 000 tonnes 150 000 tonnes
Injection et extrusion : Construction, fournitures industrielles, Biens de consommation, automobile Fibres de bois : Fibres naturelles :	120 000 tonnes 5000 tonnes	360 000 tonnes 100 000 tonnes
Biocomposites au total	315 000 tonnes	830 000 tonnes
Composites au total	2.4 millions de tonnes	3.0 millions de tonnes
% de ressources renouvelables	18%	23 %

Tableau 9 Perspectives d'évolution des volumes de production des composites[45]

[45] http://www.eiha.org/attach/569/10-11-25_LMI_Bio-Composites_EIHA_PM.pdf

3.7 Freins au développement des biocomposites :

Cependant un certain nombre de barrières techniques (process, comportement des résines et des fibres, propriétés des matériaux et cycle de vie) et de freins économiques sont à prendre en compte dans le développement des biocomposites. La disponibilité des matières est maintenant réelle, mais la très grande diversité des sources de fibres et le peu de caractérisation des matières sont encore un frein à un développement industriel de ces matériaux. Le coût plus élevé des matières naturelles ou biosourcées par rapport aux matières utilisées pour les composites de grande diffusion peuvent également constituer un frein. L'amélioration des productions et des modes de préparation des fibres ou des résines devraient à terme être plus favorable. Dans le tableau ci-dessous sont synthétisés certains freins identifiés au développement des biocomposites[46].

Coûts plus élevés des biocomposites	Prix matières et process : Fibres et résines Faible échelle de production Nécessité d'adapter l'outil de production Frais de caractérisation complémentaires
Des caractéristiques techniques à améliorer	Nécessité d'améliorer les caractéristiques techniques des matières premières et en particulier de caractériser l'impact des propriétés des fibres dans les composites réalisés et donc des matériaux finaux Faible tenue thermique Faible stabilité dimensionnelle Absorption d'eau Nécessité de développer des résines et des process spécifiques Nécessité de caractériser le vieillissement des matériaux .
La disponibilité des matériaux	Des circuits de distribution insuffisamment développés Faible nombre de fournisseurs de process complet
L'origine des matières premières	Concurrence pour l'utilisation des ressources végétales à vocation alimentaire (surtout pour les résines, moins pour les fibres naturelles et le bois)
La gestion des produits en fin de vie	Filière recyclage peu développée

Tableau 5 Freins à l'offre et à la demande en matériaux composites biosourcés

[46]: **Etude de marché des biocomposites**, CEIS/CETELOR (2011)

4 CONCLUSION A CETTE INTRODUCTION

La France a une place majeure à prendre et à occuper dans la production européenne de matériaux à base de fibres végétales, du fait de sa position dominante au niveau de la production brute de fibres potentiellement utilisables pour les composites avec respectivement 80 % de la production de lin fibres et de chanvre, et également 20 % des surfaces boisées. La part des composites à base de fibres naturelles au sein du marché global des composites reste faible mais atteint 10 % en 2012, nous l'avons vu en comptant les composites à fibres de bois (WPC). L'arrivée de nouveaux produits de plus en plus techniques et certifiés intégrant des biocomposites sur les marchés, notamment de la construction, des biens de consommations et de l'automobile sont la preuve de la faisabilité de ces produits. Si les process de transformation des composites sont déjà nombreux, un certain nombre de freins et de verrous existent d'un point de vue technique et économique. L'objet des travaux de cette thèse sera donc d'examiner les moyens de production de biocomposites performants en réalisant des choix techniques en principe intéressants d'un point de vue économique.

Deuxième Partie

MATERIELS ET METHODES COMPOSITES

1 LES FIBRES

1.1 Les fibres choisies

Les fibres ont été choisies suivant les critères de disponibilité et d'intérêt théorique pour les applications techniques du type biocomposites. Ainsi, la famille des fibres des plantes à tiges a été choisie pour la réalisation des renforts de ces travaux. Ces fibres peuvent ainsi également être nommées fibres libériennes car elles se trouvent dans le liber (synonymes de phloème) qui assure des fonctions de conduction de la sève et de maintien mécanique de la plante. Toutes ces fibres sont anisotropes avec une orientation par rapport à l'axe de la fibre des fibrilles de cellulose conférant des caractéristiques propres, notamment d'allongement limité, afin de s'approcher des fibres utilisées habituellement pour les composites qui disposent de peu d'allongement comme la fibre de verre ou la fibre de para-aramide.

1.2 Sélection des fibres naturelles

Nous avons ainsi sélectionné des matières présentant à priori des caractéristiques de rigidité propres aux fibres libériennes : la fibre de Lin en plusieurs qualités différentes préparée spécialement pour ces essais, la fibre de chanvre avec et sans rouissage, la fibre de kénaf de la meilleure qualité possible préparée spécialement pour ces essais et la fibre de jute pour ses qualités écologiques et son utilisation déjà répandue dans le domaine des nontissés.

Réf.	Origine géographique :	Présentation de la fibre :	Particularités :
LIN D	Normandie	Lin technique, culture et préparation optimisée pour l'intégration dans les matières plastiques. Pas encore testé ni utilisé en nontissé. Fibres coupées en usine	faisceaux calibrés en longueur à 48 mm
LIN R	Normandie + affinage en Pologne	Lin affiné préparé spécifiquement pour nos essais avec un process de préparation de type filature fibres longues, sans huile d'ensimage. Présentation en paquet de 2 kg	Présenté sous forme de roving à couper Grande propreté et finesse de la matière*
LIN A	Normandie + affinage en Belgique	Etoupes recoupées de Lin avec affinage complémentaire, présentées en balles de 200kg environ*	Etoupes, donc beaucoup de poussières et une matière peu homogène. Fibres bon marché
CHAN1	Allemagne	Chanvre Non roui* (chanvre vert) balles de 200kg environ	Fibres grossières et bon marché
CHAN2	Allemagne	Chanvre Roui 3en balle* balles de 200kg environ	Fibres grossières et bon marché
KENAFB	Océan Indien	Kénaf en tiges teillées mais non coupées, Grade B	Fibres de haute qualité, beaucoup de poussières
JUTE 1	Asie	Jute en fibres coupées de 60 mm* balles de 200kg environ	Fibres grossières et bon marché, écologique

* utilisation déjà répandue en nontissés

Tableau 1 Récapitulatif des fibres sélectionnées

1.3 Généralités sur le Lin

Le nom scientifique de l'espèce cultivée est LINUM USITATISSIUM et correspond aux deux applications pour lesquelles le lin est cultivé : lin graine et lin fibre. Le lin fibre a un rendement en fibres plus important et les fibres sont de très haute qualité par rapport aux fibres disponibles avec le lin graine. Cette plante est cultivée depuis plus de 7000 ans et c'est la fibre libérienne la plus importante pour le textile en terme de volume. Le lin est une plante herbacée annuelle dont le cycle végétatif dure environ 3 mois. La tige mesure en moyenne 1m de hauteur à maturité pour un diamètre compris entre 1 et 3 mm Le. En général le lin est cultivé en zone tempérée. L'ouest de l'Europe est une des zones les plus importantes du monde en termes de volume et la France en est un producteur majeur.

La production du lin demande peu d'intrants chimiques. On peut espérer une densité de 200 à 400 plants par m² [1], avec un rendement possible de 25 à 30 % de fibres en masse de paille sèche (Stephens 1992) pour le lin fibre. Pour la culture du lin graine, la densité est voisine les 750 plants par m².

1.3.1 Morphologie :

Concernant la morphologie de la tige de lin, l'épiderme ou écorce est constitué d'une couche de cellules à paroi cellulosique avec une première couche de cellule nommé cuticule.

Les fibres regroupées en faisceaux appelé également le cortex, qui contient les fibres corticales regroupées en amas, appelés faisceaux. Les tiges comportent de 20 à 40 faisceaux, et l'on peut trouver dans chaque faisceau entre 12 et 40 fibres élémentaires[2]. Ces fibres ou cellules fibreuses mesurent de 4 à 10 cm de longueur en général et 10 à 30 µm en général de diamètre[3]. Sur la figure ci-dessous (a) la vue en coupe nous permet de distinguer les faisceaux

---

[1] F.Flénet, **Références pour de nouveaux itinéraires techniques en lin graine**, ALTERNATECH, 69 (2004)

[2] Tahir et al. **Review of bast fiber retting** ; BioResources 6(4), 5260-5281 p 5273 (2011)

[3] C.Karine*, J.P Jernot Jean-Paul*, M.Gomina, C.Baley,L. Bizet, J Bréard , **Morphologie and mechanical behavior of a natural composite: The flax fiber**, 16TH International Conference on Composite Materials, (2007)

et les fibres les composant. La vue (b)) montre la morphologie de deux fibres élémentaires de lin.

Dans le cylindre central, on va trouver le bois ou anas, qui est constitué de parenchymes (cellules vivantes à paroi pecto-cellulosique mince. La moelle est constituée de parenchymes médullaires et d'un lumen, espace creux au centre de la tige (voir figure suivante avec coloration des lignines).

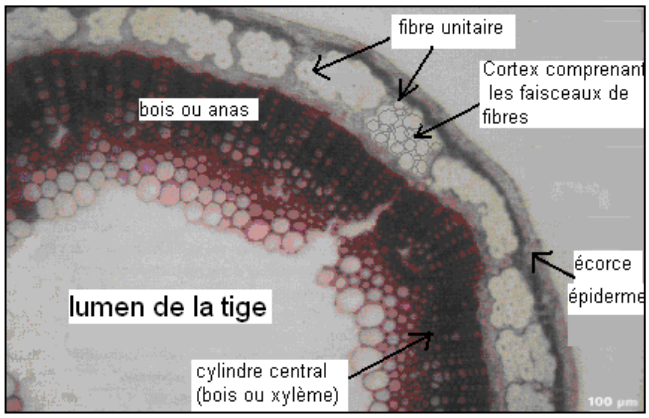


Figure 2 Vue en coupe d'une tige de lin (coloration des lignines en rouge)

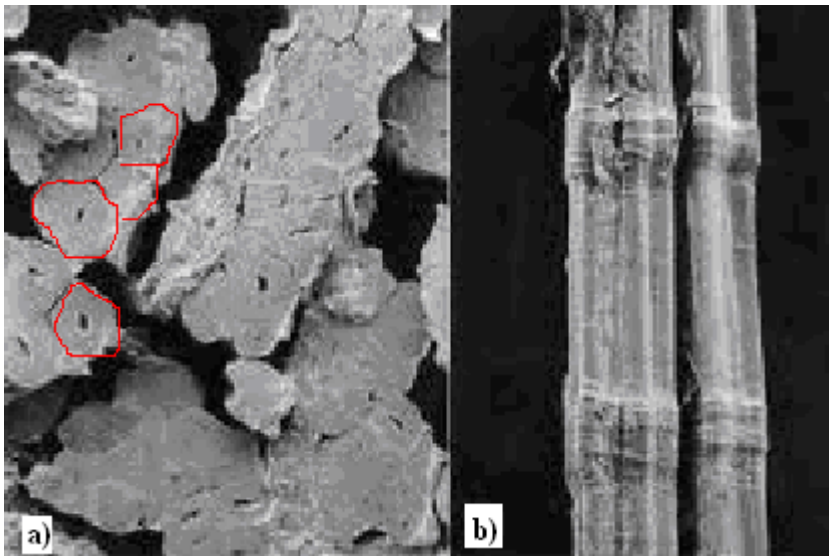


Figure 1 Vue en coupe et longitudinale de fibres de lin

Diamètre de la fibre moyen	19 µm (5 à 38 µm)
Longueur moyenne des faisceaux de fibres	<6,5 cm (de 9 à 7cm)
	10 à 20 cm (étoupes)
	20 à 90 cm (longs brins)
Section	polygonale avec des angles arrondis

Tableau 2 Données morphologiques de la fibre de lin

1.3.2 Composition chimique :

Concernant la composition chimique de la fibre de lin, les fibres élémentaires sont constituées majoritairement de cellulose (98%). En réalité, les fibres élémentaires sont difficilement individualisables et sont donc accompagnées d'une quantité plus ou moins grande d'autres matières (voir tableau ci-dessous). Le taux de lignines[4] et de pectines sont faibles avec respectivement 2% et 2,5% Il est important de noter que ces valeurs sont généralement diminuées par les traitements de préparation de la fibre et de son affinage (élimination du bois ou xylème et des liants). Par contre, le pourcentage massique de cellulose et d'hémicellulose reste très important avec respectivement des valeurs moyennes citées dans la littérature de 70% et 17 %. Combiné à un faible de taux de lignine au caractère hydrophobe, ce taux de cellulose qui reste élevé confère à la fibre un caractère hydrophile important.

	Cellulose	Hemi-cellulose	Lignine	Pectine	cires	minéraux
% masse	60 à 81 (70)	10 à 21 (17)	1 à 5 (2,5)	0,9 à 3,8 (2)	1,3 à 3 (1,5)	1 à 1,5 (1,5)

Tableau 2 Composition chimique du lin [17]

La longueur de la chaine de cellulose est caractérisée par le degré de polymérisation. Sa valeur va diminuer en fur et à mesure des traitements et process subi par la fibre. Ainsi le DP pour le lin est donné de 2300 à 8000 [17] pour de la fibre brute. En industrie, on a l'habitude de considérer un DP de 3000 comme élevé et pour une fibre brute avant les opérations mécaniques, puis de 2500 à 2800 en écru sur du fil ou du tissu et tombe à 1750 pour des fibres ayant subi un traitement de blanchiment.

[4] A. Day A. Katia Ruel, G. Neutelings,D. Cronier ,H. David, S. Hawkins,B. Chabbert, **Lignification in the flax stem: evidence for an unusual lignin in bast fibers,** Planta, 222 (2) PP 234-245 (2005)

1.3.3 Propriétés chimiques :

Acide et base : les acides dilués sont sans action sur le lin, en revanche les acides concentrés désagrègent la fibre. Les alcalis à chaud sont sans action[5].

Action des oxydants et des réducteurs : action de blanchiment de la fibre + dégradation plus ou moins rapide de la fibre.

Action des solvants : les solvants chlorés et oxydés (acétone…) sont sans action sur le lin.

1.3.4 Opérations de préparation importantes :

Outre les conditions pédoclimatiques de la plante qui vont fortement influencer la qualité finale des fibres, on distingue 2 opérations importantes réalisées avant et après la récolte du lin : le rouissage et le teillage.

1.3.5 Rouissage :

Le but du rouissage est de séparer et d'isoler les fibres et les faisceaux de fibres des éléments non fibreux par dissolution des matières pectiques et des hémicelluloses par fermentation (matières pectiques et hémicelluloses). Le rouissage est démarré lorsque la tige parvient à la maturité de croissance désirée. Plusieurs types de rouissage possibles :

Rouissage par fermentation en champs.

Le rouissage en champs est le plus répandu en Europe et permet d'obtenir des fibres de hautes qualités. Les tiges de lin sont déposées à terre après coupe ou arrachage. Les tiges subissent alors une dégradation par les microorganismes en présence[6]. On attend le niveau optimal pour lequel les faisceaux de fibres commencent à se séparer[7]. Dans les exploitations les plus modernes, les tiges sont alors retournées mécaniquement (le « retournage ») afin d'opérer un rouissage à partir de l'autre face de la tige. Cette méthode rend le producteur très exposé aux

---

[5] G.FISCUS, D. GRUNENWALD , **Ennoblissement textile, guide complet**, p63 (1993)

[6] A. Jauneau, F. Bert, C. Rihouey, C. Morvan, **Les traitements biologiques du lin,** Original Research Article, Biofutur, Volume 1997, Issue 167, Pages 34-37 (May 1997)

[7] W.J.M. Meijer, N. Vertregt, B. Rutgers, M. van de Waart, **The pectin content as a measure of the retting and rettability of flax Original Research Article**, Industrial Crops and Products, Volume 4, Issue 4, , Pages 273-284 (December 1995)

conditions climatiques qui vont influencer sur la qualité moyenne et finale des fibres. En fonction de ces conditions climatiques et du produit final attendu, la durée du rouissage choisie par le producteur peut durer de 1 à 6 semaines.

Les microorganismes possibles en présence dans le phénomène de rouissage sont les champignons type Aspergillus, Cladosporium, Fusarium, Rhizopus et Trichoderma) et les bactéries du type Epicoccus migrum enzymes pectinases, hémicellulases, cellulases…)

En fonction des microorganismes présents lors rouissage en champs la couleur des fibres obtenues pourra varier. La fibre sera plus foncée que dans le cas d'un rouissage à l'eau.

Rouissage à l'eau. Traditionnellement, ce type de rouissage s'effectuait dans un cours d'eau. Les cultivateurs de kénaf et de jute utilisent encore cette solution mais la méthode a été abandonnée dans les pays développés pour cause de pollution importante.

Rouissage par hydrolyse chimique

Beaucoup de travaux de recherche notamment effectués pour remplacer le rouissage en champs couteux en matériel agricole et main d'oeuvre et dont la qualité est très dépendante des conditions météorologiques. On peut citer les agents chimiques suivant que l'on retrouve le plus souvent dans la littérature :

Acide sulfurique H2SO4

Acide oxalique HOOC-COOH 5 (rongeant)

Soude

Ces agents chimiques peuvent être mis en œuvre par autoclave et améliore la séparation des fibres des autres composants.

Rouissage par enzime commerciale

La mise au point d'une technologie de rouissage utilisant des enzymes est considérée comme une alternative possible au rouissage en champs par plusieurs avantages [12] car elle permet un contrôle plus fin du rouissage permettant d'optimiser la fibre produite pour l'application industrielle recherchée. L'autre avantage de cette méthode est de pouvoir traiter des fibres dans des zones climatiques moins spécifiques.

La plupart des projets de rouissage par enzime se sont focalisés sur les pectinases, complétés par des hémicellulases et cellulases. Les fibres sont submergées dans de l'eau en présence des enzimes pour remplacer les bactéries[6].

Rouissage par utilisation de vapeur

Cette possibilité permettrait une bonne séparation des fibres élémentaires en préservant les caractéristiques mécaniques et sans contamination bactérienne. A notre connaissance cette technique à l'étude n'est pas encore utilisée de manière industrielle[8,9,10]

1.3.6 Teillage

Après le rouissage, un broyage préliminaire permet de séparer mécaniquement les faisceaux des fibres des anas et de débarrasser les fibres des résidus ligneux de la tige. Ce broyage est réalisé par un passage des fibres rouies entre des rouleaux cannelés ou un moulin à marteaux. Ensuite le teillage proprement dit consiste en un battage par des marteaux ou des systèmes à cylindres rotatifs de la matière afin de parfaire le broyage. Les fibres des faisceaux commencent progressivement à s'individualiser. La fibre est ensuite mise sous balle. Ces opérations mécaniques ont une influence non négligeable sur la qualité de la fibre et ses propriétés mécaniques finales.

Dans les opérations suivantes, on pourra séparer les fibres longues (ou filasses mesurant entre 60 et 90 cm),des fibres courtes (ou étoupes).

---

[8] R. W. Kessler, U. Beccker , **R. Kohler and B. Goth, steam explosion of flax - a superior technique for upgrading fibre value,Elsevier**, Biomass and Bioenergy Vol. 14, No. 3, pp. 237±249 (1998)

[9]C. Garcia-Jaldon, D. Dupeyre, M.R. Vignon, **Fibres from semi-retted hemp bundles by steam explosion treatment, Biomass and Bioenergy**, Volume 14, Issue 3, 1, Pages 251–260 (March 1998)

[10] M. R. Vignon, D. Dupeyre, C. Garcia-Jaldon, **Morphological characterization of steam-exploded hemp fibers and their utilization in polypropylene-based composites**, Bioresource Technok, 58 , pp 203-215 (1996)

1.4 Généralités sur le Chanvre

Le chanvre est également classé dans la famille des fibres libériennes et connu comme l'une des plus anciennes fibres naturelles. Le chanvre est une dicotylédone. L'espèce cultivée est *Cannabis sativa* L. ou l'on distingue deux catégories:

Cannabis sativa L. var. *vulgaris* (ou chanvre à fibres) que l'on trouve dans les régions tempérées· *Cannabis sativa* L. var. *indica* (ou chanvre à drogues) que l'on retrouve dans les régions tropicales.

La culture du chanvre qui est une espèce robuste et peu parasité, demande un climat moins spécifique que le lin. Elle est bien adaptée aux zones tempérées, mais demande un sol riche en minéraux et profond. La surface de culture du chanvre comptait plus de 176 000 hectares au 19°siècle ne compte plus qu'environ moins d'un dixième actuellement avec 6000 hectares en 2011, mais les nombreuses applications possibles de cette plante laisse envisager une augmentation future des surfaces cultivées. Au niveau européen, la surface cultivée a été au maximum de 18 000 hectares en 2003 et de 14 000 hectares en 2012 ce qui représente 76 000 tonnes de paille de chanvre. Cette surface pourrait facilement être augmentée à 20 000 hectares compte tenu des unités de défibrage en activité[11]. La filière française a mis en place une traçabilité complète de cette culture afin de garantir et d'optimiser les semences (sources CCPSC Coopérative Centrale des Producteurs de Semences de Chanvre et FNPC Fédération Nationale des Producteurs de Chanvre). Pour faciliter la récolte, les semences commercialisées pour la culture sont sélectionnées « monoïque variable » (avec un pourcentage de plante mâle résiduel de 5 à 30%) ou de haute pureté monoïque pour ne pas avoir à pas pâtir notamment d'une vitesse de croissance inégale entre plante mâle et femelle. La durée de pousse de la plante est rapide, en 3 mois si les conditions sont bonnes, mais l'on doit attendre plus longtemps si l'on veut récolter les graines. La résistance des fibres en fonction du temps de croissance de la plante a été analysée par Pickering qui rapporte une amélioration importante (d'environ 150 MPa) entre 99 et 109 jours de croissance et une durée optimale à 114 jours sur son étude. Cependant, un gain de 200 MPa est encore possible si l'on

[11] M.Carus, S.Karst, A.Kauffmann, J.Hobson, S.Bertucelli, T**he European Hemp Industry: Cultivation, processing and application for fibres, shives and seeds**, EIHA (march 2013)

ne fait pas subir de rouissage à la fibre qui atteint alors une moyenne de 800 MPa[12]. L'intérêt d'utiliser une fibre non rouie serait aussi de s'affranchir d'une contamination microbienne des fibres à l'origine d'une grande variabilité des propriétés des fibres. De plus, des fibres de chanvre non traitées par rouissage sont constituées de fibres élémentaires bien collées contre l'épiderme et travaillent comme une seule fibre élémentaire. Le rouissage et le teillage va affiner en principe le diamètre des fibres, bénéfique pour une meilleur cohésion, mais crée des interstices entre fibres qui ne seront pas forcément remplis de résine et peuvent être à l'origine d'une baisse de ténacité du matériau. L'intérêt pour le textile du rouissage est évident puisque l'on cherche une fibre la plus fine, souple et propre possible. Par contre pour les applications composites où les caractéristiques recherchées sont bien différentes, la préparation des fibres et en particulier l'opération de rouissage pourra être remise en cause[13].

La densité optimale pour la production de chanvre à fibres est très variable et est donnée dans la littérature[14] de 50 à 750 plantes par m². Le rendement peut atteindre plus de 35% pour des sélections de chanvre industriel à haut rendement de fibres (semence USO-31 par exemple) Mais, la densité aurait cependant une forte influence sur la qualité des fibres, comme notamment la finesse.

De même que le lin, la production du chanvre demande peu d'intrants chimiques, mais demande beaucoup d'eau.

1.4.1 Morphologie :

La tige chanvre peut mesurer de 2 à 4 m à maturité et est composée globalement d'environ 30 % de fibres en masse. Le reste se décompose en chènevotte pour 55% et en fibres très courtes et poussières pour 15 % en masse.

---

[12] K.L.Pickering, GW.Beckermann, S.N.Alam, N.J.Foreman, **Optimising industrial hemp fibre for composites**, Elsevier, Composites Part A:applied science and manufacturing (38) pp 461-468 (2007)

[13] D.G. Hepworth,, R.N. Hobson, D.M. Bruce, J.W. Farrent, **The use of unretted hemp fibre in composite manufacture,** Composites: Part Applied Sciences and Technologies, A 31 1279–1283 (2000)

[14] P. Bouloc, **Le chanvre industriel**, page 114, Collection : Produire mieux (2006)

La morphologie de la tige est similaire à celle du lin avec une couche supérieure constituée par un épiderme, la couche inférieure nommée cortex comportant les faisceaux de fibres, puis la zone constituant le bois et la tige de chanvre.

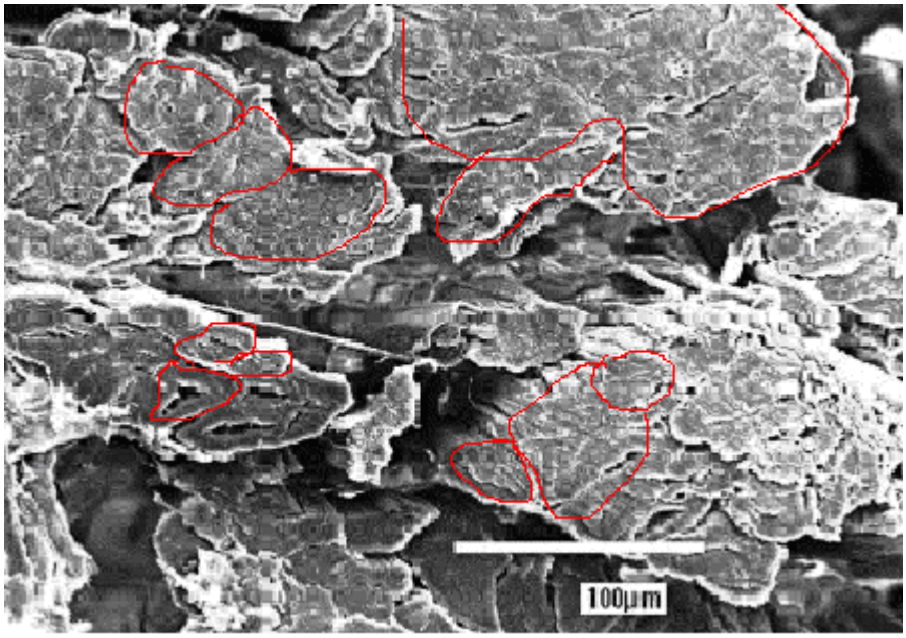


Figure 3 Vue en coupe d'un faisceau de fibres de chanvre

Les fibres dégagées de la tige sont relativement similaires d'aspect à celle du lin. Elles sont cependant généralement moins fines et moins individualisées et fortement unies par de la lignine mise en évidence par coloration et lumière UV [15].

Une des grandes différences avec le lin est que les usines ne préparent pas le chanvre à la manière du lin à plus haute valeur ajoutée pour les applications textiles, en alignant les fibres techniques, mais en produisant des fibres non alignées, coupées et stockées avec une orientation aléatoire en balle.

---

[15] D.CRONIER, B.MONTIES, B. CHABBERT, **Structure and Chemical Composition of Bast Fibers Isolated from Developing Hemp Stem,** Journal of Agricultural and food Chemistry, 53(21), pp 8279-8289 (2005)

1.4.2 Composition chimique :

Comme pour le lin, le pourcentage massique de cellulose est également relativement élevé, ce qui laisse envisager un caractère hydrophile important. Par contre, la lignine dont une des fonctions est de lier les microfibrilles de cellulose a pour le chanvre un pourcentage massique plus important que pour le lin. Ce pourcentage un peu plus élevé serait une des causes de plus grande rigidité de la fibre.

% massique	Cellulose	Hemi-cellulose	Lignine	Pectine	cires	minéraux
Chanvre	57 à 92 (70)	6 à 22 (16)	2,8 à 13 (6,)	0,8 à 2,5 (1,0)	0,7 à 0,8 (0,7)	0,7 à 3,0 (1,5)

Tableau 3 Composition chimique du chanvre [17]

1.5 Généralités sur le JUTE

Le jute est une plante appartenant au genre des Corchorus, famille Tiliaceae. Le plus grand producteur de jute est l'Inde avec plus de 1,7 millions de tonnes produites sur en 2007 et 2008, suivi du Bangladesh avec plus de 1,2 millions de tonnes sur la même période. A titre de comparaison la production mondiale est évaluée à un peu moins de 3 millions de tonnes. (Source FAO statistics on jute, Kénaf and Allied Fibres, 2008). L'utilisation principale du jute est la filature et le tissage pour la fabrication de sacs, mais de nombreuses autres applications sont possibles comme les revêtements de sol, le nontissé pour les agrotextiles. Dans le domaine des matériaux rigides, les déchets de décorticage du jute sont déjà utilisés industriellement dans le domaine des panneaux de particules.

Après la récolte, la fibre doit subir un rouissage qui est en principe réalisé à l'eau. Le rouissage à l'eau consiste à immerger totalement la plante après effeuillage dans une rivière ou un plan d'eau naturel ou artificiel. Les bactéries (anaérobiques) qui vont se développer vont dégrader les pectines, avec une grande uniformité et une grande qualité si le process est bien contrôlé. La durée du rouissage en eau de 7 à 14 jours est en général plus rapide que le rouissage en terre.

L'opération d'extraction des fibres sous forme de fillasse peut être mécanique mais reste encore le plus souvent réalisée manuellement et traditionnellement ; même pour les applications industrielles. L'avantage de cette méthode est qu'elle préserve beaucoup plus les qualités mécaniques des fibres.

1.5.1 Morphologie :

Le jute est une plante herbacée annuelle qui peut mesurer jusqu'à 2,5 à 4 mètres de hauteur. Les fibres sont elles aussi situées en périphérie de la tige. Les faisceaux peuvent avoir un diamètre de 200 µm, alors que les longueurs et diamètres des fibres élémentaires généralement rapportées par la littérature peuvent être courtes (de 2 à 4 mm de longueur et 15 à 20 µm de diamètre[16].

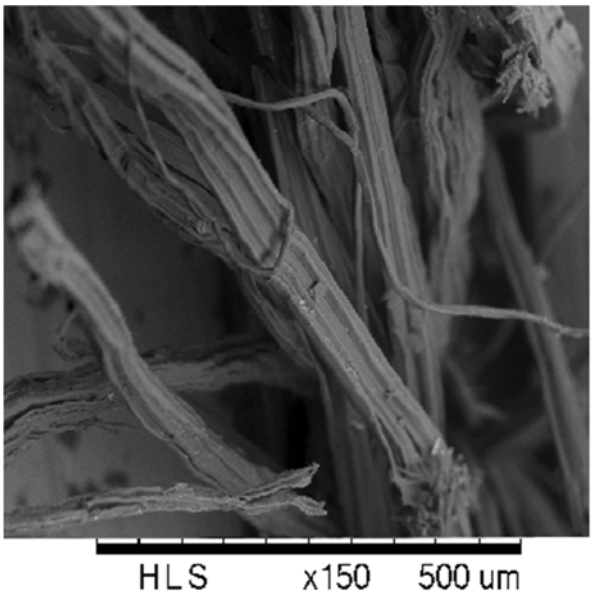


Figure 4 Vue en coupe fibres de jute

[16] Abdullah, Latifa, Matin, **Composition and Some Physical and Chemical Properties of Jute Fiber**: Physical A , International Jute Organization ,Dhaka (mars 1992)

1.5.2 Composition chimique:

Jute	Cellulose	Hemi-cellulose	Lignine	Pectine	cires	minéraux
% masse	51 à 84 (65)	12 à 24 (15)	5 à 14 (10)	0,4 à 0,8 (0,5)	0,17 à 0,7 (1,5)	0,5 à 2,0 (1,0)

Tableau 4 Composition chimique du jute[17]

Le pourcentage massique moyen de cellulose pour cette fibre est en moyenne plus faible que pour les fibres de lin et de chanvre, ce qui laisse envisager un caractère hydrophile légèrement moins important. Le taux de lignine lui est beaucoup plus important et amène à disposer d'une fibre beaucoup plus rigide. Outre cette propriété intéressante de rigidité pour la préparation des composites, ce fort pourcentage pourrait également avoir une interaction au niveau chimique lors la préparation des biomcomposites.

1.6 Généralités sur le KENAF

Le kénaf (Hibiscus cannabinus L) peut pousser sous un climat dans les zones tropicales et sub-tropicales. La hauteur de la plante peut atteindre 4 mètres dans de bonnes conditions. Le pays le plus producteur de kénaf est l'Inde avec 156 000 tonnes, suivi de la Chine avec 86 000 tonnes et la Thaïlande avec 35 000 tonnes. La production mondiale était au total en 2008 de 328 000 tonnes Les applications de cette plante se trouvent dans l'industrie du papier, du cordage et des nontissés.

Après un rouissage généralement à l'eau et un teillage généralement réalisé manuellement, le kénaf permet d'obtenir également des fibres multicellulaires comme le chanvre et lin et le jute à majorité de cellulosique. Une étude récente en laboratoire a comparé les différents types de

[17] **Industrial Application of Natural Fibres** / Jörg Mûssig Editor p 303 (2010)

rouissage à l'eau, chimique (traitement par NaOH notamment), à une extraction mécanique. Cette étude a montré que le rouissage à l'eau était le prétraitement le plus performant qui peut préserver au mieux les caractéristiques des fibres ; une résistance à la traction finale des fibres plus de deux fois et demi supérieure à une extraction simplement mécanique[18].

1.6.1 Morphologie :

Les fibres élémentaires du kénaf sont données de 1 à 7 mm dans la littérature et pour un diamètre de 10 à 30 µm et ne sont pas utilisables pour le textile habillement du fait de la difficulté à les travailler avec les machines conventionnelles[19].

Le kénaf est classé par grade de qualité de A à E pour la commercialisation avec pour critère notamment la finesse des fibres, la couleur, et la propreté. Le grade A est la meilleure qualité qui est généralement réservée à l'industrie du papier.

La fibre est de type multicellulaires de formes polygonales et un lumen, de taille moyenne[18].

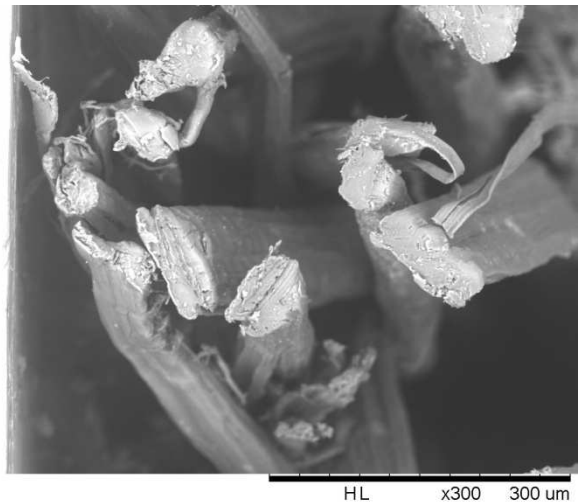


Figure 5 Vue en coupe fibres de Kénaf

[18] P.Tahir et al. , **Review of bast fiber retting**, BioResources 6(4),pp 5260-5281 (2011)

[19] T.A. Calimari, W Tao, Goynes, **A preliminary study of kenad fiber bundles and their compositecells**, Tappi Journal 80 (8), pp 149-154 (1997)

1.6.2 Composition chimique:

Kénaf	Cellulose	Hemi-cellulose	Lignine	Pectine
% masse	44-57	21	15 -19	2

Tableau 5: Composition chimique du jute[20,18 ,17,20]

Le pourcentage massique de cellulose pour cette fibre est très bas, ce qui explique le peu d'application dans le domaine du textile. Comme la fibre de jute, le taux de lignine se révèle particulièrement élevé.

1.7 Minéral Verre

Un renfort nontissé standard composé de fibres de verre avec ensimage standard pour résine époxy et de masse spécifique 800g/m² a été approvisionné pour réaliser les essais comparatifs.

1.8 Caractérisation des fibres utilisées

1.8.1 Microscope à balayage électronique

Les observations par microscopie électronique à balayage ont été effectuées en utilisant un microscope HITACHI TM 3000. Les fibres sont préalablement séchées en étuve car l'appareil est sensible à l'humidité. Cette technique a été utilisée pour examiner la morphologie des fibres et réaliser des mesures de diamètres via un logiciel d'analyse d'image.

---

[20] M. Thiruchitrambalam, A. Alavudeen and N.Venkateshwaran, **Review on kenaf fiber composite**, Rev.Adv.Mater. Sci. 32 106-112 (2012)

1.8.2 Composition chimique

Les fibres utilisées ont été caractérisées chimiquement afin d'en déterminer la composition. Les fibres ont été prélevées à la sortie de la carde afin d'obtenir la composition chimique du nontissé final.

La méthode utilisée est une méthode par extraction successive des composants de la matière fibreuse par solvants selon le principe que :

% cellulose = 100 % - % (cires + graisses + pectines + lignines + hémicelluloses)

Les normes internationales ASTM 1972 et ASTM 1977 sont utilisées. A partir d'une masse de fibre broyée d'environ 2g et séchée. Les durées d'extraction varient de 40 min à 24h. Le premier solvant utilisé est une solution constituée d'un mélange alcool-toluène qui va dissoudre les cires et les graisses. La seconde extraction est réalisée avec de l'eau chaude à 90°C qui va permettre de déterminer la quantité de sels minéraux ainsi que les faibles pourcentages de tannins, d'amidon et des galactanes (polysaccharides). La troisième extraction est réalisée par une solution aqueuse d'oxalate d'ammonium. Cette extraction va séparer les constituants non cellulosiques dont les pectines. Ensuite les lignines sont dissoutes par une solution de chlorite de sodium et acide acétique glacial. Enfin, les hémicelluloses sont solubilisées par une solution d'hydroxyde de potasse puis par une solution de soude et vont permettre de déterminer le pourcentage de cellulose et d'hémicellulose, par élimination. L'ensemble des valeurs trouvées est réajusté avec la valeur initiale d'humidité de la fibre complète. Ci-dessous, nous avons synthétisé le protocole de caractérisation chimique pratiqué sur toutes les fibres de notre étude.

Protocole de détermination de la composition chimique		
	Broyage et séchage préalable de la matière	
1	Extraction par mélange de solvant l'alcool-Toluène (1:2 en volume)	Dissolution des cires, des graisses accessibles, résines, et huiles.
2	Extraction à l'eau chaude (90°C) (2 cycles)	Extraction des sels minéraux, tanins et amidon
3	Extraction, par une solution aqueuse d'oxalate d'ammonium a 1% en masse chauffée à 85°C pendant 2h pour éliminer les pectines	Elimination des constituants non cellulosiques, dont les pectines).
4	Extraction par chlorite de sodium et acide acétique glacial (2 cycles)	solubilisation complète de la lignine
5	Extraction des hémicelluloses par une solution d'hydroxyde de potassium à 24% en masse à 25°C puis à la soude à 8,3%	Solubilisation complète des hémicellulose La cellulose est la fraction qui reste insoluble.

Tableau 6 Protocole de détermination de la composition chimique

1.8.3 Propriétés mécaniques des fibres

Dans un premier temps, une première étude a été réalisée sur une ancienne machine de mesure de la résistance des fibres de coton de type pendule nommé Stelomètre. (STrength-ELOngation-METER) La particularité de cet appareil est de prendre la mesure de force pour un ensemble de fibres et donc de donner directement une moyenne des résistances de fibres. Cela est particulièrement intéressant pour les fibres naturelles dont la variabilité des caractéristiques peut être particulièrement importante et donc pour donner une valeur globale plus rapidement. Cependant, cet appareil Stelomètre, en réalité prévu pour les fibres de coton qui sont très homogènes, ne permet pas de caractériser précisément les fibres libériennes qui ont une capacité d'allongement beaucoup plus faible (c'est l'un de nos objectifs). Le fait de prendre la mesure de force sur un ensemble de fibre pose problème car les fibres n'ayant pas le même module d'élasticité, les valeurs sont minorées par une rupture dispersée des fibres. Un dispositif de préparation des fibres pour limiter ce phénomène a bien été étudié, mais les résultats se révèlent encore trop aléatoires pour les fibres les plus grossières.

Un autre équipement utilisé de type FAVIMAT ensuite, a pour avantage de nous permettre d'accéder à des valeurs précises des fibres individuelles (méthode SFT Single Fiber Tensil Test) [21] et qui sont plus habituelles dans le monde des composites.

Les fibres ont été mesurées sur cet appareil de traction de type Favimat, par série d'environ 50 mesures par qualité. Cet appareil est un appareil de traction automatique. La vitesse de traction est fixée à 5 mm/min et l'on applique une légère pré-tension sur la fibre pour assurer un bon départ de la mesure. La résistance moyenne de rupture est donnée ainsi que l'allongement de rupture. En utilisant les données de mesures de diamètre réalisées au MEB nous aurons les valeurs de force ramenées à la section de chaque fibre et nous obtiendrons donc des valeurs de MOE et MOR plus fiables que des contraintes et des modules basés sur les diamètres moyens. (Les fibres étant elles-mêmes des matériaux composites complexes, ses propriétés peuvent varier en fonction du diamètre[22,23,24]).

Remarque : Les premières mesures ont été réalisées chez le fournisseur de la machine (figure ci-dessous). Ensuite en 2011, Cetelor a fait l'acquisition d'un module permettant de faire ces mêmes mesures.

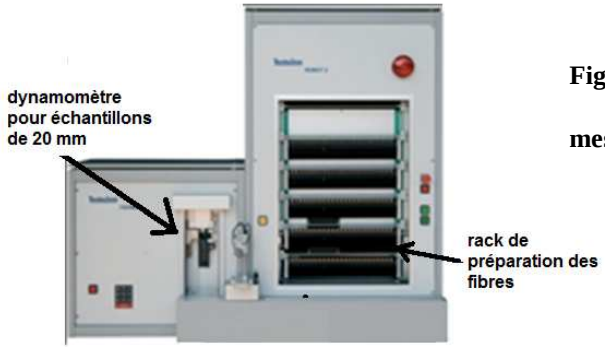


Figure 6 Appareil de mesure type Favimat

[21] W Hu, Minh-Tan Ton-That, F.Perrin-Sarazin, J. Denault, **An Improved Method for Single Fiber Tensile Test of Natural Fibers**, Industrial Materials Institute, National Research Council of Canada, Boucherville, Quebec, Canada J4B 6Y4 (2010)

[22] V.Placet, Fr.Trivaudey,. Cisse,. Gucheret-Retel, L.Boubakar, **Diameter dependence of the apparent tensile modulus of hemp fibres: A morphological, structural or ultrastructural effect?**, Elsevier, Composites: Part A 43 pp 275-287 (2012)

[23] J. Summerscales, N.Dissanayake , A.Virk a, W. Hal, **Review of bast fibres and their composites. Part** 2, Elsevier, Composites: Part A 41 1336–1344 (2010)

[24] K. Charlet ,C. Baley , C. Morvan , J.P. Jernot , M. Gomina , J. Breard, **Characteristics of Herme`s flax fibres as a function of their location in the stem and properties of the derived unidirectional composites**,Elsevier, Composites: Part A 38, pp1912–1921 (2007)

2 LES RENFORTS

2.1 Méthodes de préparation des renforts

2.1.1 Simple épaisseur

Les renforts simple épaisseur sont les renforts réalisés de manière conventionnelle par un seul passage d'aiguilletage sur un nombre de voile limité par le volume de fibres ou la hauteur de matelas en entrée d'aiguilleteuse. Voir chapitre décrivant le process nontissé.

2.1.2 Double et triple épaisseurs

Afin de pouvoir préparer sur la machine des renforts avec une masse surfacique plus importante, plusieurs renforts réalisés sur la ligne de nontissés sont réassemblés par un second passage d'aiguilletage afin d'obtenir un composite de poids supérieur. L'aiguilletage complémentaire va permettre d'obtenir une cohésion des 2 ou 3 couches de voiles superposés dans le but d'obtenir un matériau épais qui ne se délamine pas.

2.2 Méthodes de caractérisation des renforts

Le but de ces essais est de pouvoir différencier les caractéristiques et la qualité des renforts réalisés en fonction des process et des fibres utilisés. En plus d'un contrôle préliminaire visuel et sélectif, 5 moyens de mesures ou de contrôles ont été retenus.

Les éprouvettes de contrôle sont découpées aux dimensions de 200 x 200 mm en utilisant une presse à découper hydraulique et un gabarit de découpe. Les éprouvettes sont prélevées dans un rouleau de nontissé en s'écartant d'au moins 100 mm des bords, afin de ne pas subir l'irrégularité des lisières. Les échantillons sont numérotés et le sens de sortie machine est indiqué. L'ensemble des mesures des renforts est réalisé en atmosphère conditionnée en température (20°C +- 2°C) et en humidité (65% d'humidité relative +-4%). Les échantillons sont préalablement stockés dans ces conditions pendant 24h.

2.2.1 Contrôle préliminaire visuel sur table lumineuse

Dans le but d'éliminer les échantillons présentant une irrégularité de densité (manque de fibres), on effectue un tri visuel des échantillons sur table lumineuse. On a ainsi pu remarquer que les irrégularités sont plus présentes pour la catégorie des renforts de poids léger < 300g/m².

2.2.2 Masse spécifique

La masse spécifique est mesurée sur une balance de laboratoire.(Mettler AM 100) La norme NF EN 29073-1 (équivalent ISO 9073-1) sert de référence de méthode. Le résultat est donné en g/m². Si l'on suit la norme textile pour la masse spécifique d'un nontissé, il est nécessaire de prendre 10 valeurs réparties et d'en faire la moyenne. Un écart type de 10 % est généralement considéré comme très acceptable pour ce type de nontissés (cardés-nappés) produits sur ligne industrielle.

2.2.3 Epaisseur

L'épaisseur est relevée sur un comparateur adapté en matière textiles selon la norme NF EN ISO 9073-2. Un disque de diamètre 50 mm est relié au comparateur. Le disque applique sur le nontissé une charge de 0,5 kPa. Il est important de faire descendre très doucement le disque sur le support fibreux pour le préserver de tout écrasement.

Figure 7 Appareil de mesure d'épaisseur

2.2.4 Perméabilité à l'air

Le perméabilimètre de type Textest (FX3300) est un appareil utilisé principalement pour caractériser la propriété d'un matériau fin (film ou surface textile) à freiner ou stopper le passage d'un flux d'air soumis à une certaine dépression. Le perméabilimètre à air est utilisé suivant la norme NF EN ISO 9073-15.

Principe de la méthode :

Le nontissé à tester est mis en place sur un support et fermement fixé. L'appareil va produire un flux d'air constant qui va traverser à la verticale l'échantillon. La surface testée est de 20 cm². La pression entre les 2 faces de l'échantillon est contrôlée entre le capteur A et B (figure ci-dessous). La différence de pression permet d'évaluer la perte de charge. On peut choisir sa valeur en fonction du matériau à tester. L'appareil donne la valeur de débit une fois la perte de

charge stabilisée. Le résultat de la perméabilité est exprimé en L/m²/s. La surface de mesure étant de 20 cm², donc il nous est possible de faire plusieurs mesures sur les échantillons préparés en 20x20cm. La perte de charge est réglée sur 100 Pa ce qui permet une analyse non destructive sans dégradation des propriétés mécaniques.

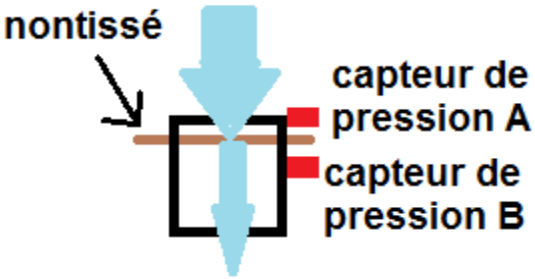


Figure 8 Vue en coupe du perméabilimètre à air

Ce type de test vient compléter les deux précédents, et nous permettra aussi d'avoir une idée de la capacité de la résine à pénétrer au cœur de la fibre. Sans préjuger des résultats, une bonne perméabilité à épaisseur constante pourrait conduire à un composite à bonne propriété mécanique.

Les facteurs qui devraient influencer la valeur de débit sont principalement : l'épaisseur du nontissé, la finesse[25] des fibres et donc la surface spécifique, la masse spécifique et la « qualité » du nontissé. En effet pour ce dernier paramètre, le moindre défaut, conséquence d'un manque local de fibres va produire nécessairement une augmentation très importante du débit d'air donc augmenter la variabilité des mesures.

En s'inspirant de la loi de DARCY[26] formulée par Henry Darcy en 1856, les valeurs de perméabilité nous permettrons d'accéder à un coefficient K qui pourrait s'avérer intéressant pour qualifier les matériaux. De part les tests de perméabilité réalisés sur l'ensemble des échantillons nontissés, nous disposons de la valeur de débit d'air en l/m²/s pour des

[25] P.C.Gervais, N.Bardin-Monnier, D.Thomas, **Détermination de la perte de medias nontissés composés de mélanges binaires de fibres**. Journée d'étude sur les matériaux poreux, Nacy (2010).

[26] H.DARCY, **les fontaines publiques de la ville de Dijon**, éd.Dalmont, Paris (1956)

échantillons de 20 cm², la perte de charge est de 100 Pa et l'épaisseur mesurée. L'idée est de pouvoir déterminer la valeur de K qui va dépendre des propriétés du milieu poreux formé par les fibres et les propriétés d'écoulement de l'air. A partir de ce K on peut en déduire une valeur inversement proportionnelle à la surface spécifique des fibres et donc notamment du diamètre. En théorie, en utilisant des fibres de petit diamètre, nous aurons une plus grande surface spécifique (en travaillant à densité constante). Une plus grande surface spécifique devrait entraîner un composite plus résistant avec une meilleur homogénéité et une meilleure répartition des contraintes[27].

$$Q = K.S.\Delta \frac{H}{L}$$

Avec :

Q = Débit volumique (l/s)
K : Coefficient de perméabilité du milieu poreux
S : Surface de la section étudiée (m²)
ΔH : Perte charge entre l'entrée et la sortie de l'échantillon au perméabilimètre à air
L : Longueur de l'échantillon (épaisseur dans notre cas)

2.2.5 Contrôle des caractéristiques mécaniques

La résistance à la traction et à l'allongement est mesurée sur un appareil de traction de type Tinius Olsen H10 avec capteur de force à 1kN équipé de mâchoires de largeur 50 mm. Les éprouvettes sont recoupées en échantillons de 100 mm x 60 mm. La vitesse de traction est fixée à 100 mm/min. L'écartement entre les mâchoires supérieure et inférieure est de 80mm.

[27] X. Daoshun , M. Menghe, H. Hong, **Permeability anisotropy of flax nonwoven mats in vacuum-assisted resin transfer molding**, Journal of The Textile Institute, 102:7, 612-620 (2011)

Cette analyse permet de déterminer la force maximale de rupture (N)[28] et l'allongement à la force maximale de rupture (%).

2.2.6 Test de flexion

Le principe de ce test de flexion (également nommé « cantilever test ») est de mesurer l'angle de flexion[29] que crée une bandelette de nontissé sous l'action de son propre poids. Une bandelette de 20 mm de large est disposée sur l'appareil. On fait avancer la bandelette vers la partie inclinée du dispositif. La bandelette est avancée jusqu'à ce que son extrémité se plie parallèlement à une ligne de référence à 45°. On note alors la longueur d'avancement A (figure ci-dessous) C'est cette valeur, donnée en mm, qui nous permettra de comparer les nontissés réalisés et de donner une idée de leur rigidité ou de leur souplesse suivant que A est élevé ou faible.

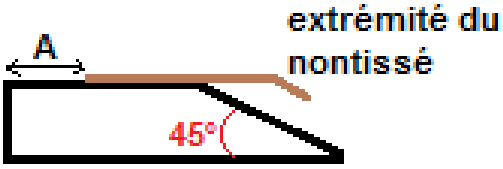


Figure 9 Appareil de mesure de l'angle de flexion

[28] A.Rawal, R.Anandjiwala, Technical note, **Comparative study between needlepunched nonwoven geotextile structures made from flax and polyester fibres**, Geotextiles and Geomembranes 25 pp 61-65 (2007),

[29] T.Gereke, O.Döbrich, M.Hübner, C.Cherif, **Experimental and computational composite textile reinforcement forming** : A review, Elsevier, Composites: Part A 46 p4 (2013)

3 LES RESINES UTILISEES POUR LES BIOCOMPOSITES

3.1 Introduction : Résines utilisées : Naturelles et synthétiques

L'objet général de nos travaux est de pouvoir utiliser une résine naturelle à base de tannins capable de remplacer les résines performantes des systèmes phénol/formaldéhydes et de se positionner par rapport aux résines spécifiques utilisées dans les matériaux composites à matrice organique (CMO) et en particulier les résines époxy. Ces résines de classe époxy sont utilisables avec de nombreux process comme l'enroulement filamentaire, la pultrusion, le moule ouvert, l'infusion. Elles ont une excellente stabilité dimensionnelle, une grande capacité d'adhésion sur la plupart des polymères standards utilisés comme renfort. Ces résines ont une résistance chimique importante et ne dégagent pas de COV (composés organiques volatils) une fois réticulées. L'utilisation de ces deux catégories de résines qui appartiennent à la famille des résines thermodurcissables permettra spécifiquement de déterminer les différences entre les renforts.

3.2 Résines Synthétiques de la classe Epoxy

3.2.1 Généralités sur les systèmes époxydes

Les résines époxydes ou couramment appelée époxy une fois réticulées, vont former des macromolécules comportant des liaisons établies dans les 3 directions à partir de groupes époxy réactifs. La réticulation chimique de la résine et du durcisseur est réalisée par polyaddition exothermique. Il y a deux étapes pour arriver à la résine réticulée au sein du matériau composite. Une première étape préliminaire réalisée par le formulateur de résine, consiste à préparer le précurseur de résine par condensation de la fonction époxy de l'épichlorhydrine avec le bisphénol A ou du Bisphenol F, pour obtenir du diglycidyléther de BisphénolA ou DGEBA (voir figure ci–dessous). Le DGEBA est donc un pré-polymère qui comporte 2 groupes epoxy et dont le degré de polymérisation peut atteindre 25. La deuxième étape qui est réalisée au cours de l'élaboration du matériau composite, consiste à faire réagir ce pré-polymère diépoxy ou DGEBA par réaction d'addition avec une diamine. Sur la figure

ci-dessous, est schématisée la réaction d'addition de 4 fonctions époxy avec la diamine par ouverture des liaisons C-O des groupes époxy.

Si les proportions de précurseur et de diamine ainsi que les conditions de température notamment sont bien ajustées, on obtient une résine réticulée en un réseau qui peut être très important (Figure ci-dessous)

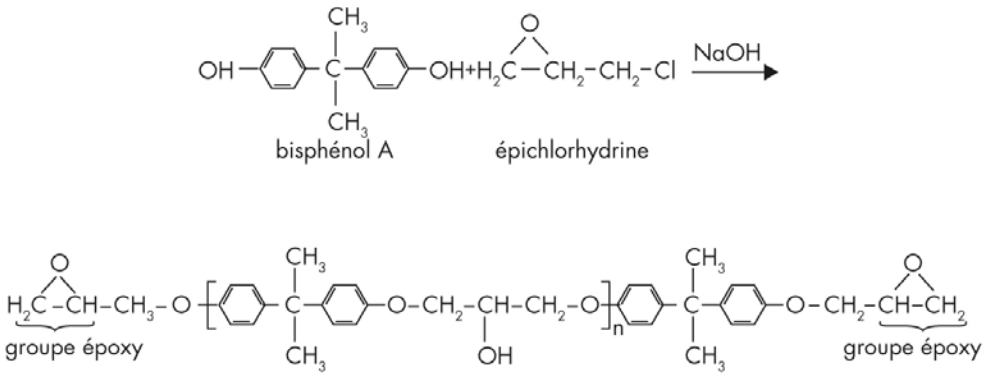


Figure 10 Réaction entre le bisphénol A et l'épichlorhydrine : obtention du diglycidyléther (DGEBA)

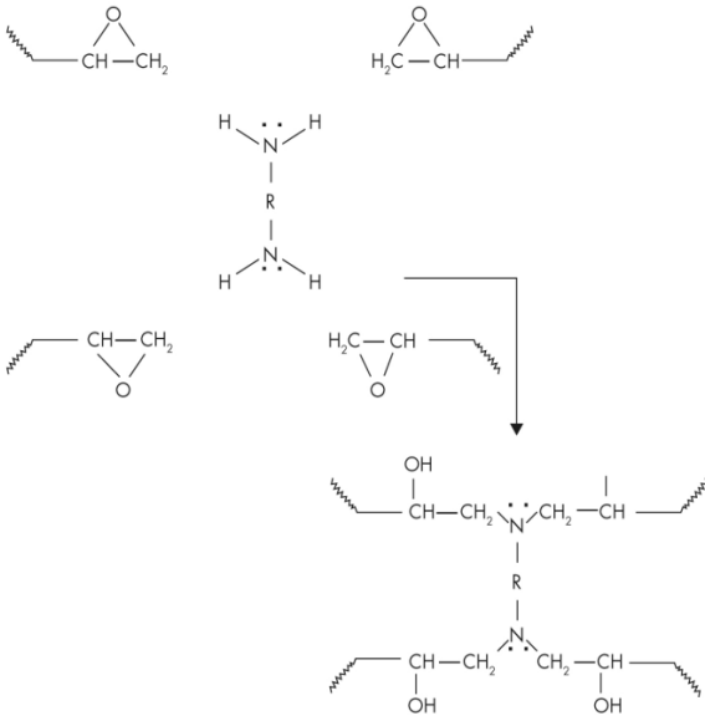


Figure 11 Tableau 7 Réaction d'addition de 4 fonctions époxy avec diamine

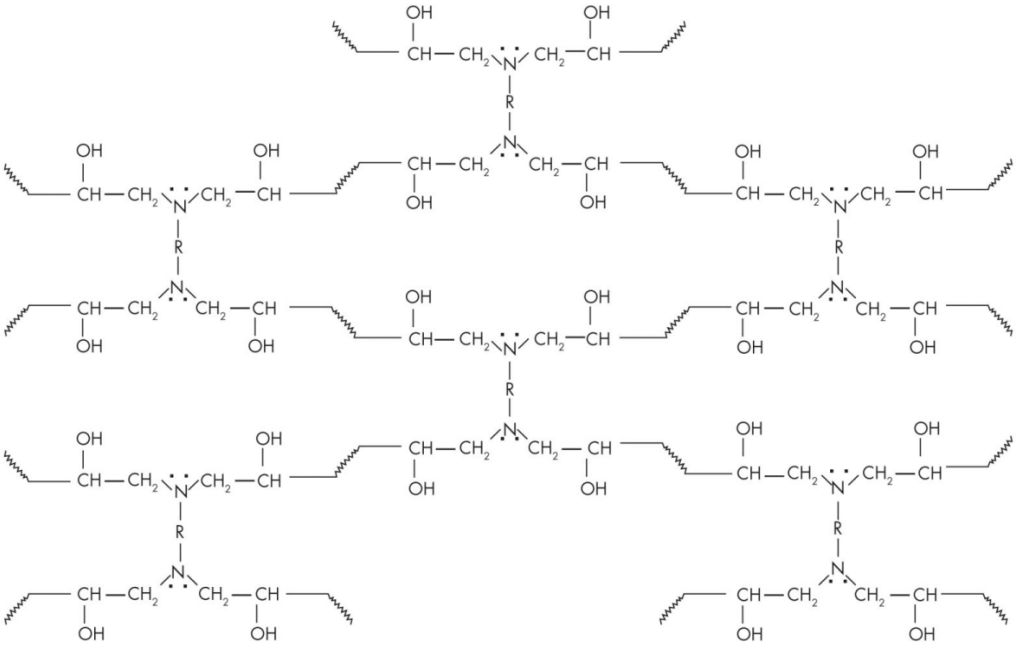


Figure 12 Exemple de réseau Fonction diépoxy réticulé par une fonction

3.2.2 Résines époxy utilisées dans le cadre de ce travail :

Une série d'essais préliminaire de différentes résines commerciales époxy a été réalisée par le procédé de mouillage au contact. Deux types de résines époxy ont été sélectionnées pour la préparation des biocomposites à résine synthétique : Résines synthétiques de type époxy : RESOLTECH 1050 et EPOLAM.

Les résines époxy ont une grande plage de viscosité qui varie notamment avec la température d'utilisation qui doit en principe être comprise en 15 et 40°C. Cette viscosité se trouve couramment pour ces types de résine entre 110 m Pa.s à 1800 mPa.s. Ces résines ont également été choisies pour leur simplicité d'utilisation, car il n'est pas nécessaire de réaliser une cuisson du composite (ou curing) après démoulage.

Système R: RESOLCOAT 1050 de la société RESOLTECH, choisi pour sa très basse viscosité bien adaptée pour les composites réalisés en infusion et qui est également adapté pour les process types imprégnation au contact.

Système M : EPOLAM de la société AXSON : Cette résine est une résine polyvalente adaptée à la préparation de composites au contact, par infusion ou injection sous vide avec

une viscosité plus haute mais encore très raisonnable, ce qui maintient une bonne diffusion de la résine à travers les renforts de fibres.

Les caractéristiques générales ont été reportées dans le tableau suivant :

Réf. Résine	Température de transition vitreuse Tg (°C)	Temps durcissement complet	Viscosité à 25°C(+ /- 2) mPa.s	Densité à 25°C (+ /- 2)
Système R RESOLTECH 1050 (35% durcisseur en poids)	75	Une semaine sans cuisson	205	1 ,10 avec la résine
Système M EPOLAM 2022 (40% durcisseur en poids)	100	Une semaine sans cuisson	1600	1,10

Tableau 8 Caractéristiques générales des résines époxy utilisées

Ces deux résines donnent théoriquement des résultats mécaniques relativement similaires (tableau ci-dessous). Cependant, et à mesure de nos investigations, nous avons rencontré des différences de mise en œuvre qui nous ont fait préférer la deuxième résine EPOLAM. En effet, il est apparu que malgré une viscosité un peu plus élevée, cette résine se diffuse mieux à travers le renfort fibreux par rapport aux deux premières. Les systèmes E et R avec leur très fiable viscosité semblent avoir une très grande affinité avec les fibres naturelles avant la réticulation, obligeant à augmenter les temps d'imprégnation par infusion, avec en finalité des taux de fibres relativement bas.

Réf. Résine	Résistance à la rupture en traction (MPa)	MOE traction (MPa)	Résistance à la rupture en flexion (MPa)	MOE flexion (MPa)
Système R RESOLTECH 1050 (35% durcisseur en poids)	59,4	3307	90,2	3178
Système M EPOLAM 2022 (40% durcisseur en poids)	56	-	110	3400

Tableau 9 Caractéristiques mécaniques des résines époxy utilisées

3.3 Résine naturelle : Tannin / héxamine

3.3.1 Généralités sur les tannins et les phénols naturels :

Les tannins sont des molécules d'origines végétales qui peuvent être synthétisés en plus ou moins grandes quantités par un très grands nombres de plantes et d'arbres, et par tous les organes d'une plante : graines, fruits, fleur, feuilles, racines. Les tannins font partie de la famille des polyphénols naturels car ce sont des molécules naturelles composées de cycles aromatiques -C6 comportant un ou plusieurs groupes hydroxyles -OH.

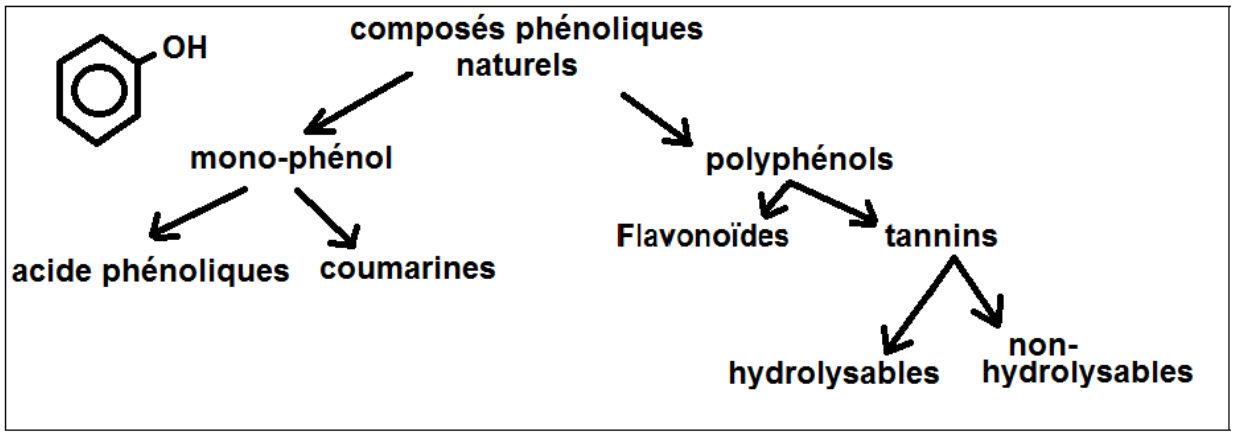


Figure 13 Classification des composés phénoliques naturels

Sur la classification des composés phénoliques naturels ci-dessus, les acides phénoliques et les coumarines sont regroupés dans les phénols simples car ils ne comportent qu'un cycle aromatiques –C6. Dans les polyphénols, on trouve les flavonoïdes et les tannins. Les flavonoïdes sont composés de deux cycles aromatiques reliés par trois carbones : C_6-C_3-C_6. Les tannins sont des macromolécules de hauts poids moléculaire et constitués d'un grand nombre d'unités flavonoïdes. Les tannins utilisés pour notre résine sont donc des polyphénols qui appartiennent à la catégorie des tannins condensés qui sont non –hydrolysables. Les tannins que l'on trouve dans la classe des tannins non hydrolysables ou condensés ont un poids moléculaire compris en 500 et 3000. L'autre catégorie de tannins, les tannins hydrolysables contiennent une fonction -ester instable en milieu aqueux.

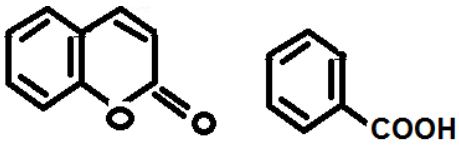


Figure 14 Représentation d'une coumarine et d'un acide phénolique

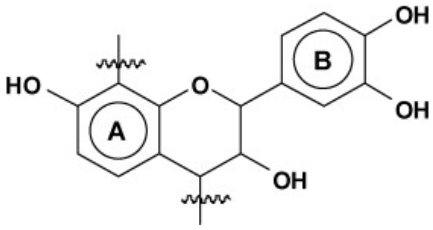


Figure 15 Flavonoïde (monomère simplifié de tannin)

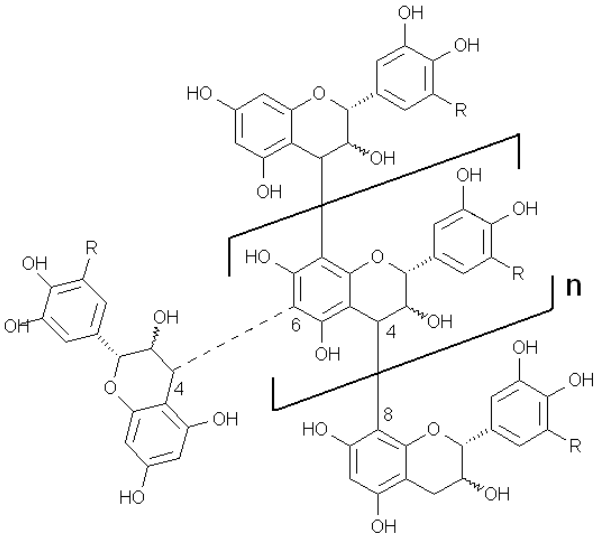


Figure 16 Représentation d'un tannin non hydrolysable

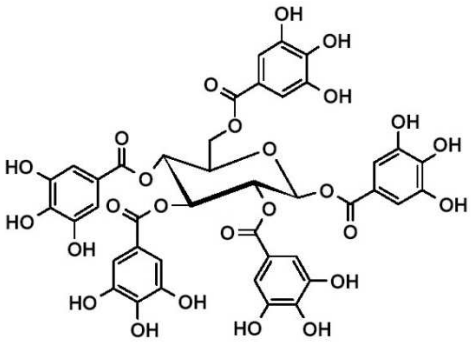


Figure 17: Exemple de tannin hydrolysable

3.3.2 Système de résine tannin/hexamine utilisé pour les biocomposites

Les résines phénoliques sont des résines thermodurcissables obtenues par polycondensation de monomères polyfonctionnels (phénols et catalyseur formaldéhyde), comme le schématise la figure ci-dessous. La température de réticulation est habituellement comprise entre 120°C et 150°C sous presse pendant plusieurs minutes.

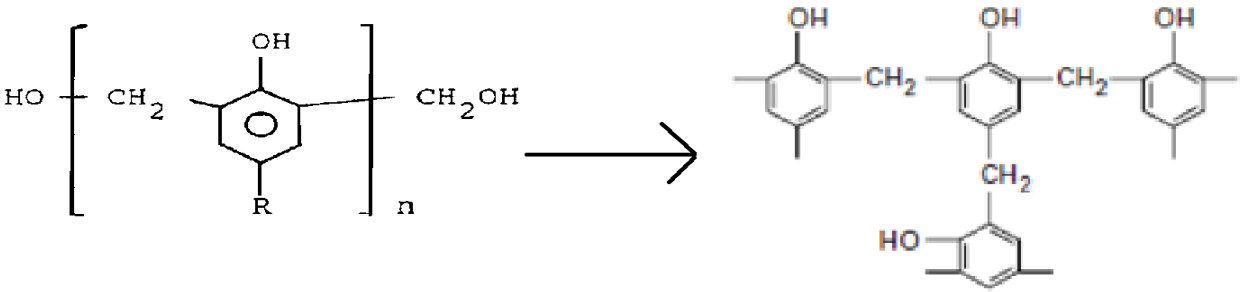


Figure 18 Résine phénolique obtenue par polyaddition

Un des systèmes de collage le plus répandu dans le domaine de la fabrication industrielle des contreplaqués et de panneaux de particules de fibres bois est le système phénol/formaldéhydes (PF) de type résoles qui réticulent en milieu basique[30]. On trouve également principalement dans le domaine des panneaux de particules les colles (UF) uréee-formaldéhydes et mélamine urée-formaldéhydes. Ces deux dernières colles sont réputées moins performantes notamment vis-à-vis du comportement à l'humidité que le système PF.

[30] Pizzi A. **Recent developments in eco-efficient bio-based adhesives for wood bonding opportunities and issues**. J. Adhes. Sci. Technol. 2006;20:829–846.

Le principe de développement des résines à base de tannin est donc de remplacer le phénol de synthèse par une molécule naturelle qui présentera des fonctions alcool (-OH) réactives similaires au phénol de synthèse. On utilise comme catalyseur l'hexamine qui contient des fonctions aldéhyde (COH) qui se décompose en espèces réactives à partir de 65°C et se transforme en formaldéhydes.

La résine Tannin/ hexamine utilisée est préparée à partir de tannins fournis par société Sylva et extraits des écorces de l'arbre Mimosa Acacia Mearnsii . L'extraction est réalisée par un procédé à la vapeur d'eau. Ces tannins sont de type Resorcino et sont constitués de 3 ou 4 unités flavonoïdes. Ils présentent donc la particularité d'avoir un poids moléculaire bas aux alentours de 1250[31], permettant la formulation de résine de viscosité basse recherchée pour faciliter l'imprégnation des fibres. Ces tannins de nature phénolique, réagissent comme les phénols : ils sont très réactifs en milieu acide ou basique[32].

L'hexamine ou hexaméthylènetetramine est un composé hétérocyclique organique préparé à partir de formaldéhyde et d'ammoniac. Elle est utilisée en solution aqueuse à 30% en masse d'hexamine extrait sec. Il faut souligner qu'il a été montré que l'hexamine n'a pas le temps de se décomposer en formaldéhyde en présence de tanins flavonoïdes pour les applications de collage[33, 34]. Ainsi, les formulations tanin/ hexamine ne donnent aucune émission de formaldéhyde une fois la résine réticulée, tout comme des panneaux de particules de bois fait à partir de cet adhésif. Ce qui est un point positif pour nos futurs matériaux.

Réactions chimiques :

En milieu alcalin et à une température supérieure à 65°C, l'hexamine se décompose en différentes espèces intermédiaires instables et de type amino-imines telles que $^{+}CH2\text{-}NH\text{-}CH2^{+}$ et en triméthylamine, toutes très réactives. Les tannins vont réagir avec ces espèces

---

[31] Paola Jeannette NAVARRETE FUENTES, **ADHESIFS NATURELS A BASE DE TANIN, ANIN/LIGNINE ET TANIN/GLUTEN POUR LAS FABRICATION DE PANNEAUX**, UNIVERSITE HENRI POINCARE, NANCY 1 (Thèse 2011)

[32] Garcia, R. et Pizzi, A. (2) : **Polycondensation and autocondensation networks in polyflavonoid tannins. II. Polycondensation versus autocondensation**. J. Appl. Polym. Sci, vol 70, 1093-1109, 1998.

[33] Kamoun, C.; Pizzi, A.; Zanetti, M. 2003. **Upgrading of MUF resins by buffering additives – Part 1: hexamine sulphate effect and its limits**. Journal of Applied Polymer Science 90(1): 203-214

[34] Kamoun, C.; Pizzi, A. 2000a. **Mechanism of hexamine as a non-aldehyde polycondensation hardener,** Part 1, Mechanism. Holzforschung Holzverwertung 52(1):16-19

instables pour créer des chaines de plus haut poids moléculaire entrainant une augmentation de la viscosité de la résine puis le durcissement.

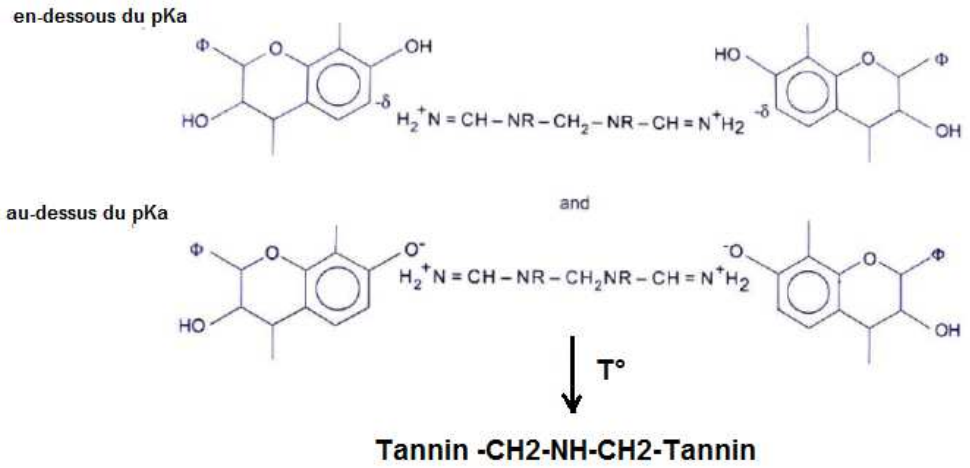


Figure 19 : Réaction de l'amine avec les tannins

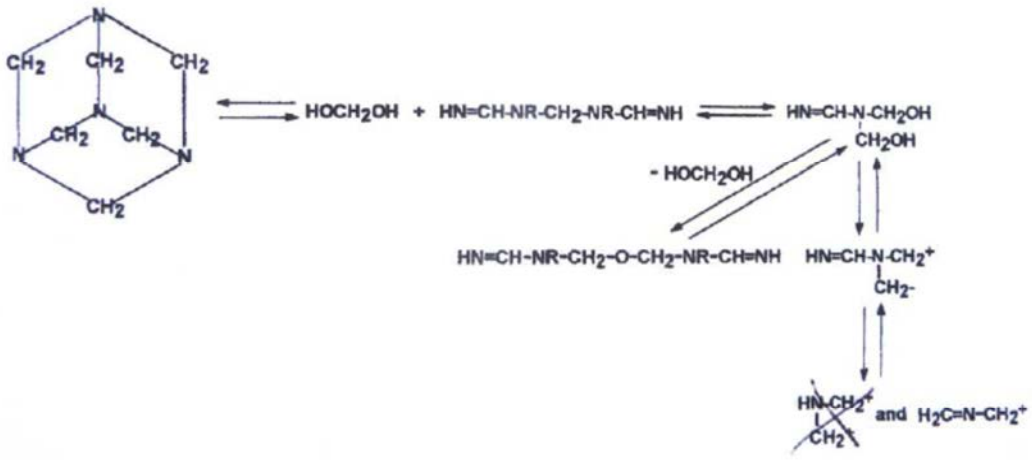


Figure 20 Décomposition de l'hexamine (hexaméthylènetetramine)

3.3.3 Composition de la résine naturelle tannin de mimosa Resorcino

Réf. Résine **Tannin condensés de Mimosa OP à 45%**	**Tannin Mimosa** **% Tannin pour la masse totale de résine**	**Héxamine** **% Hexamine pour la masse totale de résine**	**Soude** **% Soude pour la masse totale de résine**	**Eau distillée**
Tannin condensés de Mimosa OP à 45%	Tannin : 45%	Hexamine : 5% (concentration à 30%)	Soude (diluée à 30%) : 38% (En fonction du pH)	Eau en complément 20%
Tannin condensés de Mimosa OP à 40%	Tannin : 40%	Hexamine : 8% (concentration à 30%)	-	Eau en complément 54%

Tableau 10 Composition de la résine naturelle tannin/ hexamine à 45%

3.3.4 Mode de préparation de la résine

Les composants principaux (tannins en poudre, eau, soude et hexamine) sont mélangés sous agitateur. En fonction de la viscosité désirée, on adapte le pourcentage massique final de tannin entre 35 et 45%. Les tannins de mimosa en poudre sont versés progressivement dans un volume d'eau distillée sous agitateur. La solution de soude est ajoutée pour atteindre 5% de la masse de résine finale. Le pH est vérifié à pH = 10 et ajusté par ajout de soude 33%. La solution aqueuse d'hexamine à 30% est ajoutée pour atteindre 5% de la masse de résine finale.

Rq : un pH trop faible peut entraîner une émission de formaldéhydes.

3.3.5 Caractéristiques de la résine naturelle

De part leur acidité naturelle, une augmentation de la fraction en tannins dans la résine fait baisser le pH, dont la valeur conditionne notamment le temps de gel. Ainsi, à un pH proche de 4 (sans ajout de soude), le temps de gel de la résine tannin/hexamine à 45% de tannins est très rapide puisqu'il est mesuré à seulement 7,5 minutes pour une température de 95°C. Un taux de tannins plus élevé accélérerait encore la vitesse et réduirait le temps de gel. Par contre, pour un pH à 8,47 (obtenu par ajout de soude) et toujours avec un taux de tannin à 45%. le

temps de gel à 95°C est mesuré à 16 minutes[35] (Figure ci-dessous N° Figure 21 temps de gel de la résine Mimosa tannin/hexamine à 5% en fonction du pH). En fonction du pH, on peut donc ajuster le temps nécessaire au gel de la résine.

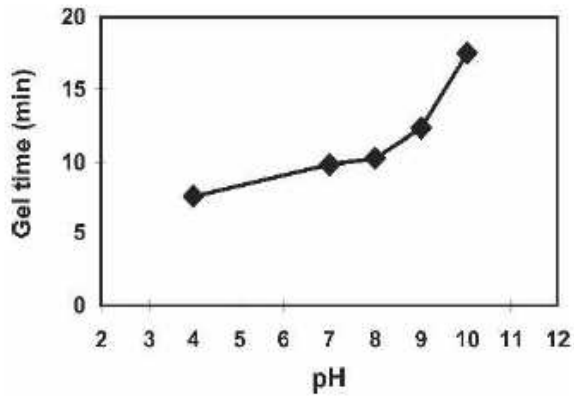


Figure 21 temps de gel de la résine Mimosa tannin/hexamine à 5% en fonction du pH

Une augmentation du taux de tannins fait également augmenter la viscosité. La résine choisie à 40 % de tannin de mimosa est un bon compromis entre viscosité et homogénéité. En dessous de 35%, les tannins s'agglomèrent en grumeaux. Aux dessus de 50% la viscosité est trop importante car on obtient une pâte qui ne peut plus être utilisée comme résine. Figure ci-dessous. En revanche, à ce niveau de viscosité, d'autres applications sont envisageables en dehors des composites notamment dans le domaine de l'enduction et du collage.

La densité de la formulation choisie est de 1,08 toujours avec un taux de tannin de 45%

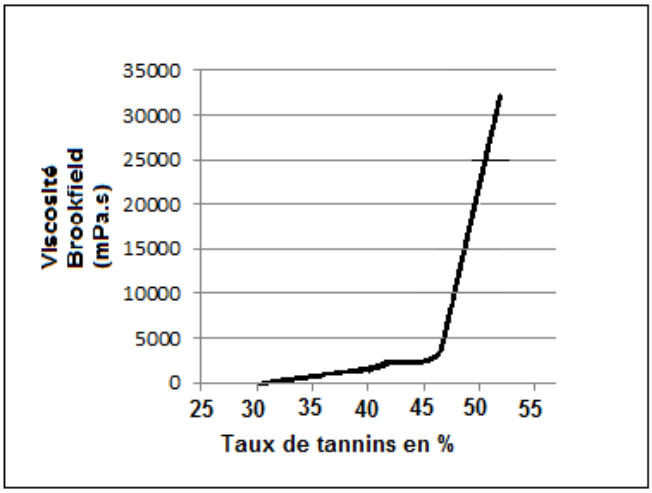


Figure 22 Viscosité en fonction du taux de tannins

[35] F.Pichelin.; M.Nakatani.; A. Pizzi.; S. Wieland; A. Despres; S. Rigolet (2006). **Structural beams from thick wood panels bonded industrially with formaldehyde-free tannin adhesives**, Forest products journal, vol. 56, no5, pp. 31-36 (2006)

Les principales caractéristiques pour l'utilisation de la résine sont répertoriées ci-dessous :

	Température de transition vitreuse Tg (°C)	Temps durcissement complet	Viscosité à 25°C(+ /- 2) mPA.s	Densité à 25°C (+ /- 2)
Réf. Résine Tannin condensés de Mimosa OP à 45%		16,2 min	4000	1,08

Tableau 11 Caractéristique de la résine naturelle tannin/ hexamine

4 LES COMPOSITES

4.1 Méthode de préparation des composites : Introduction

Deux systèmes de réalisation des composites ont été choisis : l'infusion pour les résines pouvant réticuler à froid avec un catalyseur et la thermocompression pour les résines naturelles à base de tannins qui nécessitent nous l'avons vu, une activation par la chaleur.

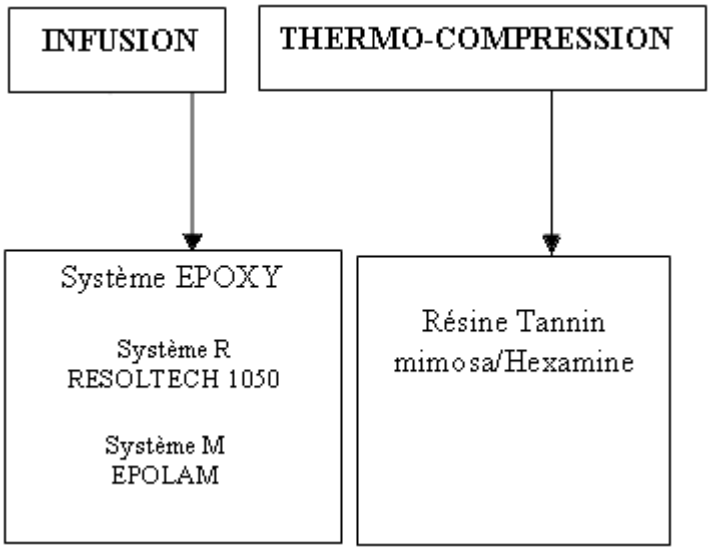


Figure 23 Organigramme des procédés de préparation des composites

4.2 Infusion : Présentation de la technique de mise en forme des composites par infusion

Les premiers essais de préparation de biocomposites à résine époxy ont été réalisés par la technique d'imprégnation au contact au rouleau sur nos renforts de fibres naturelles. Il s'est tout de suite avéré qu'il était très difficile d'imprégner de manière homogène nos éprouvettes de fibres naturelles de Kénaf, chanvre ou lin. Le nontissé est difficile à mouiller dans sa totalité car les résines époxy testées présentent en pratique une très grande affinité avec les fibres testées. La fibre absorbe littéralement la résine et donc il faut rajouter plusieurs fois de la résine pour correctement mouiller l'éprouvette. Avec la fibre de verre, ce phénomène n'est pas ou peu observable, puisqu'avec un rouleau d'ébulleur, on va facilement repousser les surplus de résine vers les zones les moins imprégnées. Il a donc été décidé de créer et développer un dispositif d'infusion par aspiration de résine par le vide. Avec les matériaux à renforts conventionnels (verre, carbone, aramide), cette technique permet d'obtenir des taux plus élevés de renfort que l'imprégnation au contact au rouleau, et d'obtenir de ce fait des propriétés mécaniques comme par exemple de résistance à l'impact plus importante[36] En la transférant aux fibres naturelles, nous espérons obtenir une bonne homogénéité et un bon taux de renfort.

Le principe de la technique d'infusion est de faire fluer (infuser) la résine à travers les renforts en créant une dépression à l'opposé de l'arrivée de la résine et dans un système fermé. Les zones d'injection de la résine sont choisies de manière judicieuse pour lui permettre de diffuser (mouiller) de manière homogène l'ensemble des renforts. Le temps de diffusion doit être limité car la résine doit s'être complètement diffusée avant même qu'elle ne commence à durcir. Il est donc important de connaitre avec précision le temps de gel et la viscosité de la résine à la température d'utilisation.

---

[36] G.Belingardi, M.Pia Cavatorta, D. Salvatore Paolino, **Repeated impact response of hand lay-up and vacuum infusion thick glass reinforced laminates**, Elsevier,International Journal of Impact Engineering 35 609–619 (2008)

Les biocomposites en fibres naturelles et résine synthétique ont été préparés sous forme de plaques sur une table en verre renforcée de 6mm d'épaisseur. La table en verre permet de visualiser l'avancement de la résine par le dessous et donc de vérifier la bonne imprégnation du mat. Un des défauts de cette technique est qu'elle donne des pièces avec une seule face vraiment lisse (la face lisse reposant sur la table en verre).

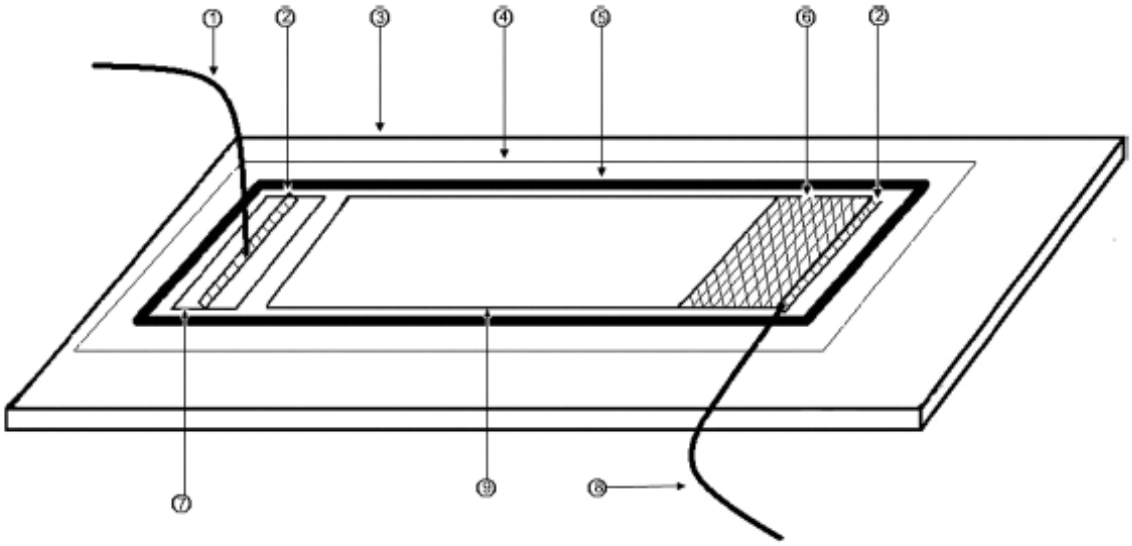
La littérature et les recommandations de fabrication insistent sur le fait que les fibres doivent être préalablement séchées 4 heures à 80°C pour évacuer l'humidité qu'elle contiennent pour obtenir une interface de qualité avec les résines de type époxy. Dans notre cas, l'objectif est de comparer les différents systèmes : fibres naturelles avec résine époxy et fibres naturelles avec résine naturelle tannin/hexamine. Hors pour les systèmes tannins, nous travaillons en phase aqueuse, il est donc inutile de sécher les fibres. C'est la raison pour laquelle nous avons finalement choisi de ne pas procéder à un séchage systématique de nos fibres, y compris pour les systèmes époxy[37].

4.2.1 Préparation de l'infusion :

La température du laboratoire doit être supérieure à 18°C pour conserver la fluidité de la résine et assurer un bon mouillage. Une surface en verre est préparée enduite de démoulant en cire. Les renforts de fibres sont découpés aux dimensions de 200 x 200 mm en utilisant une presse à découper hydraulique et un gabarit de découpe. Les éprouvettes sont prélevées dans le rouleau de nontissé en s'écartant d'au moins 100 mm des bords, afin de ne pas subir l'irrégularité des lisières. Les échantillons sont numérotés et le sens de sortie machine est indiqué. Les échantillons sont placés sur cette surface en verre en tenant compte de l'orientation des fibres. Pour faciliter l'imprégnation des nontissés, nous avons placés les fibres dans le sens d'avance de la résine. Derrière les échantillons est placé un nontissé (ou tissu de charge) destiné à absorber le surplus de résine (Figure 25 Positionnement des échantillons pour l'infusion ci-dessous). Les échantillons de renforts sont placés entre les tuyaux d'alimentation en résine et l'aspiration. Sur les échantillons, on place un tissu

[37] C. Baley, A. Le Duigou, A. Bourmaud, P. Davies, **Influence of drying on the mechanical behaviour of flax fibres and their unidirectional composites**, Original Research Article, Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, Volume 43, Issue 8, , Pages 1226-1233 (August 2012)

d'arrachage de polyester, puis par-dessus une grille drainante, puis enfin le film ou bâche étanche à l'air. L'ensemble est rendu étanche et solidaire de la table en verre en utilisant un joint adhésif en cartouche ou en ruban. La résine est préparée en mélangeant la résine et son durcisseur suivant les proportions massiques données par le formulateur. Les composants doivent être mélangés avec soin afin d'obtenir un composite homogène. Sur certain montage, on peut rajouter un tissu ou nontissé d'absorption équivalent au-dessus de la grille de drainage. Cette possibilité n'a pas été employée pour ici car nous avons disposé des tissus de charge après la zone de mouillage des renforts.



1- Aspiration 2- Spiral 3- Plaque de verre 4 - Bâche à vide
5 - Joint (mastic) 6 - Tissu de drainage 7 - Nontissé d'abosorption 8 - Alimentation
9 - renfort de fibres

Figure 24 Préparation de l'infusion[27]

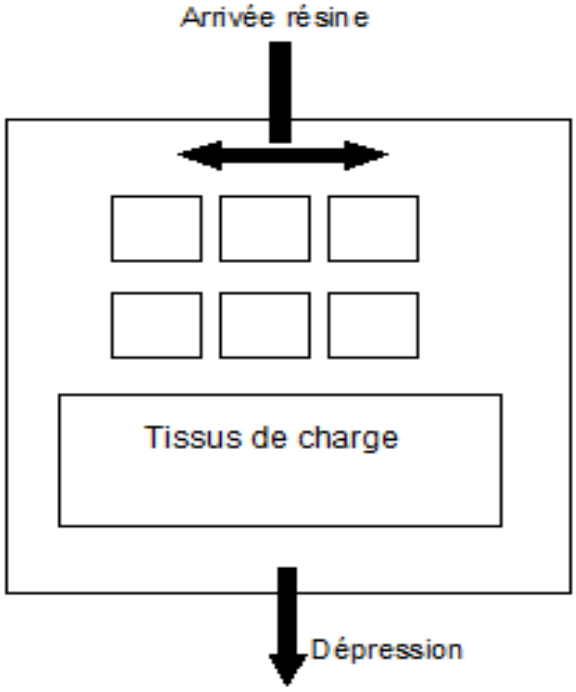


Figure 25 Positionnement des échantillons pour l'infusion

4.2.2 Lancement de l'infusion :

Une dépression de 0,5 et 0,7 bars est réalisée par la pompe à vide et la valve du réservoir à résine ouvert. Le front de résine avance et quand l'ensemble des échantillons est imprégné, on ferme l'arrivée de la résine. La vitre transparente permet de vérifier qu'il n y a pas de zones sans résine liée à une hétérogénéité du renfort ou à une mauvaise implantation des tuyaux d'aspiration[38]. Le vide est conservé pendant 12 heures pour obtenir la réticulation complète de la résine. Les composites peuvent alors être démontés du système d'imprégnation. Avec les résines utilisées ici, la réticulation est complète au bout d'une semaine. Les échantillons sont ensuite stockés à température pendant minimum 7 jours. (évite la cuisson (curing) en étuve avec ces résines) pour achever la réticulation. Les plaques sont ensuite découpées pour réaliser les caractérisations.

Les figures suivantes illustrent les étapes de l'infusion des composites à résine chimique :

Figure 26 Positionnement des échantillons

Figure 27 a) et b) avancée du front de résine

[38] D.Modi, N.Correia, M.Johnson, A.Long, C.Rudd, F.Robitaille, **Active Control of vacuum infusion process**, Composites Part A 38 1274-1287: applied sciences and manufacturing (2007)

4.1 Thermocompression : Présentation de la technique de mise en forme des composites par Thermocompression

Les biocomposites à résines naturelles ont été réalisés par thermocompression. Pour ces essais, nous avons principalement utilisé une presse à plateaux chauffants de la marque JOOS. Préalablement, le renfort de fibres doit être imprégné par la résine naturelle, puis ensuite partiellement séché.

4.1.1 Imprégnation du renfort par la résine

Après plusieurs essais de process différents, le système d'imprégnation retenu est l'imprégnation de la résine par foulardage (nommé aussi Pad Batch). Cette opération d'imprégnation est réalisée sur un foulard de laboratoire distribué par Mathys et destiné initialement au traitement des textiles. Le principe du foulard est de mettre en contact deux cylindres de 40 cm de largeur de travail garnis de caoutchouc d'une dureté shore A d'environ 50. La résine est retenue entre ces deux cylindres en contact. Les cylindres sont équipés de flasques sur les côtés pour éviter à la résine de s'écouler. La pression entre les cylindres est réglable entre 1 et 4 bars et choisie à 3,5 bars pour avoir une bonne imprégnation. La vitesse est réglable jusqu'à 10 m/min, et de manière pratique la vitesse de 2 m par minute est choisie. Le surplus de résine est évacué du renfort par la pression des cylindres. L'imprégnation est contrôlée visuellement et il est possible de refaire un passage complémentaire si elle est jugée insuffisante. Ce système permet une bonne imprégnation à cœur, avec une bonne reproductibilité du taux d'imprégnation, tout en optimisant la consommation de résine. Ce procédé a pour avantage également de ménager les caractéristiques mécaniques du renfort. A noter que ce procédé sera facilement transposable ensuite sur le système pilote semi-industriel du CETELOR en 1200 mm de largeur de travail.

Formule du calcul du taux d'exprimage :

$$\text{Taux d'exprimage} = \frac{\text{Poids de renfort imprégné - Poids de renfort sec}}{\text{Poids de renfort sec}} \times 100$$

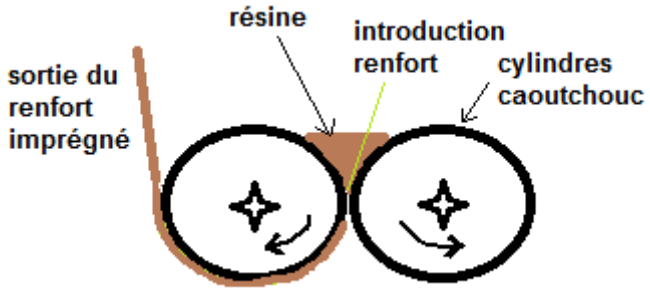


Figure 28 Schéma du procédé d'imprégnation par foulardage

4.1.2 Préséchage du renfort imprégné

Comme nous l'avons vu, la résine tannin/hexamine est choisie avec une viscosité très basse pour pouvoir imprégner à cœur les renforts en nontissé. Ce type de formulation comprend près de 50% d'eau. Pour les premiers essais, les fibres imprégnées étaient directement placées dans la presse. Cela occasionne un temps de pressage beaucoup plus long, puisqu'il s'agit d'abord d'évacuer sous forme de vapeur toute l'eau puis de faire réticuler la résine.

Ce procédé a plusieurs inconvénients : Temps de cycle beaucoup plus long dont il est difficile de bien déterminer la durée optimale, dégagement de vapeur et de résine chaude potentiellement dangereux pour l'opérateur, cuisson du composite peu homogène, risque localisé de retrait important de la matière. Pour ces différentes raisons, il a été trouvé comme solution d'imposer un cycle de séchage avant la thermocompression du composite. Le taux d'humidité doit être abaissé (et si nécessaire réajusté) à 20%. Ainsi, la thermocompression s'effectue toujours avec le même taux d'humidité et les paramètres de cuisson sont alors reproductibles. Ce séchage peut être réalisé en étuve ou dans un four de séchage ou tout simplement en atmosphère sèche pendant une durée de 10 à 24 heures.

Pression en Bars :	1 à 4 bars
Vitesse :	0 à 10 m/ minutes
Nombre de passage :	1 à 3
Temps de séchage :	10 à 24 heures
Réajustement de l'humidité à 20 %	

Tableau 12 Paramètres principaux d'imprégnation du renfort

4.1.3 Thermoformage du renfort imprégné

La résine tannin/hexamine étant thermodurcissable, on utilise une presse chauffante à double plateaux de la marque JOOS. Cette machine permet en particulier de régler indépendamment la température de la plaque supérieure et inférieure jusqu'à une valeur de 300°C. Il est également possible de programmer la presse pour l'amener à compresser le matériau à une certaine épaisseur ou de choisir de travailler avec une valeur de pression maximale. La force de pressage effective peut atteindre 200 kN, soit pour une surface de plateaux de 500x500 mm, une pression de 800 kPa. Si un seul échantillon de 200x200 mm est introduit dans la presse, la pression maximale que l'on pourra lui appliquer sera donc de 200kN/0,04 soit 5 MPa. Cette valeur va s'avérer largement suffisante.

Mode opératoire :

Dans un premier temps nous avons travaillé en mode distance, c'est-à-dire en comprimant le matériau jusqu'à une épaisseur donnée. L'avantage de cette technique, est que comme l'on connait la masse surfacique du renfort imprégné, on peut fixer la densité finale du composite en jouant sur l'épaisseur du matériau. Mais en pratique, les résultats ne sont pas ceux escomptés, puisque l'écrasement conduit aussi à un étirage qui occasionne une diminution de la masse surfacique du composite final.

En fonction de la température, le temps de chauffe est choisi avantageusement pour permettre une réticulation complète. Ainsi, en se basant sur la base de travaux antérieurs, nous avons

fixés les paramètres suivants: temps de chauffe de 35 minutes avec une température de 130°C ou de 20 minutes à 160°C [39],[40].

Il est encore possible de monter en température pour diminuer le temps de cycle, toute fois, il est préférable de rester à une température basse afin de rester bien en-dessous de la température de dégradation des fibres naturelles étudiées[41,42]

130°C	35 minutes	20%	Entre 50 et 100kN (1,25 à 2,5 MPa)
160°C	20 minutes	20%	Entre 50 et 100kN (1,25 à 2,5 MPa)
190°C	8 minutes	20%	Entre 50 et 100kN (1,25 à 2,5 MPa)

Tableau 13 Temps préconisé avec résine tannin/hexamine à 43%

Pour la réalisation des composites optimisés, nous avons utilisé le mode pression en disposant des cales autour de l'échantillon et nommées « stoppers ». Ces cales vont garantir une épaisseur minimale du composite. L'avantage de cette technique est de quasiment supprimer l'étirage des matières.

[39] A. Pizzi , R. Kueny, F. Lecoanet, B. Massetau, D. Carpentier, A.Krebs, F.Loiseau, S.Molina, .Ragoubi, **High resin content natural matrix–natural fibre biocomposites**, Industrial Crops and Products ,Volume 30, Issue 2, Pages 235–240 –(2009)

[40] A. Sauget , A. Nicollin & A. Pizzi, **Fabrication and mechanical analysis of mimosa tannin and commercial flax fibers biocomposites**, Journal of Adhesion Science and Technology, 27:20, pp 2204-2218 (2013)

[41] A.Bourmaud, C.Balay, **Effects of thermo mechanical processing on the mechanical properties of biocomposites flax fibers evaluated by nanoindentation**, Elsevier, Polymer Degradation and Stability 95 p1492 (2010)

[42] S.Ouajai, R.A.Shanks, **Composition, structure and thermal degradation of hemp cellulose after chemical treatments**, Polymer Dégradation and Stability 89 pp 327-335 (2005)

Protocole de thermocompression en mode pression:

La mise en chauffe des plaques est effectuée pour atteindre température nécessaire. Le mat est introduit dans la presse. On positionne un papier sulfurisé pour éviter l'adhésion sur les plaques chauffantes et améliorer l'état de surface. On applique une force comprise entre 50 et 100 kN, ce qui correspond à une pression effective de 1,25 à 2,5 MPa. On écrase le mat jusqu'à arriver aux stopper. En principe, la pression commence alors à augmenter. Lorsque l'on atteint les stopper la force est alors de comprise entre 50 et 100kN en fonction de la densité. On vérifie que l'épaisseur est bien atteinte à l'aide d'un jeu de calibres. Le calibre réglé à l'épaisseur du stopper doit être légèrement bloqué. Ainsi, on s'assure que l'épaisseur de pressage est bien atteinte. Il est inutile de presser plus. On laisse en pression le temps prévu. Avec des faibles grammages par m², il n'est pas nécessaire de prévoir un cycle particulier de dégazage.

5 CARACTERISATION DES COMPOSITES

Le but de ces essais est de pouvoir différencier les caractéristiques obtenues sur les composites et de mettre en valeur l'influence des propriétés des fibres et des nontissés. En plus d'un contrôle préliminaire visuel et sélectif, 3 moyens de mesures ont été retenus.

Les éprouvettes de contrôle sont découpées en utilisant une scie sur table après avoir tracé les lignes de découpes dans le sens travers par rapport à la sortie machine. L'ensemble des mesures des renforts est réalisé en atmosphère conditionnée en température (20°C).

5.1 Caractérisation physique

5.1.1 Masse spécifique

Après découpe, la masse de chaque échantillon est mesurée sur une balance de laboratoire. Les dimensions des éprouvettes sont systématiquement relevées au pied à coulisse afin de pouvoir calculer précisément les masses spécifiques. De cette valeur, on peut calculer le ratio fibres / matrice en masse.

5.1.2 Epaisseur

L'épaisseur des échantillons est relevée au pied à coulisse en vérifiant systématiquement 3 zones et en faisant la moyenne des 3 valeurs. A partir de l'épaisseur et de la masse spécifique préalablement mesurée, on en tire la densité du composite.

5.2 Caractérisation mécanique

Les modes de ruine des matériaux sous une sollicitation mécanique peuvent venir de nombreux paramètres à différentes échelles du matériau (moléculaire à macroscopique) et se combiner à des sollicitations chimiques et thermiques.

Les tests mécaniques que nous allons réaliser donneront donc une image globale des performances atteintes par les composites avant vieillissement. Le process envisagé pour la réticulation de la résine naturelle en effectuant une imprégnation puis une thermocompression, nous amène à disposer de composites de structure solide dans laquelle ces trois familles de sollicitations ont donc déjà agit sur les composants fibres et matrice. Sans réaliser de test de vieillissement des matériaux finaux, il sera donc intéressant de comparer les fibres préparées sous la forme d'un composite chimique où les sollicitations appliquées sont en principe d'une intensité moins élevée.

Les deux familles de tests utilisés sont donc les tests d'endommagement sous effort de traction et flexion.

5.2.1 Essai de traction

La résistance à la traction et à l'allongement est mesurée sur un appareil de traction de type Tinius Olsen H10 avec capteur de force à 1kN équipés de mâchoires de largeur 50 mm. Les éprouvettes sont recoupées en échantillons de 200 mm x 20 mm. La vitesse de traction est fixée à 2 mm/min. L'écartement entre les mâchoires supérieure et inférieure est de 100 mm.

Cette analyse permet de déterminer la force maximale de rupture (N) et l'allongement à la force maximale de rupture (%), la contrainte normale (MPa) et le module d'élasticité (GPa) en traction de matériau.

Formule utilisée pour la détermination de la contrainte de traction (MPa):

$$\sigma_t = \frac{F}{S} \times 1000$$

Formule utilisée pour la détermination du MOE flexion dans le domaine élastique (MPa)

$$MOE_t = \frac{\frac{\Delta F}{\Delta d} \times E}{S}$$

Avec

F = Force de rupture (N)

S = Section de l'éprouvette (mm²)

A% = déformation en pourcentage de l'éprouvette et en pratique

d = déformation en mm

E = Ecartement entre mâchoires (mm)

5.2.2 Essai en flexion 3 points

La résistance des composites en flexion 3 points est déterminée sur un dynamomètre de type Instron 4467 monté avec une cellule de 1000 N. Pour cet essai nous nous sommes basés sur la norme composite ISO 14125 – 1998 normalement applicable aux composites à base de fibres de verre et carbone. Cette norme définie les écartements à utiliser en fonction du type de placement des fibres et des dimensions des éprouvettes. Avec les épaisseurs réalisées, nous avons adapté nos paramètres à ceux utilisés pour les composites en renforts multidirectionnels d'épaisseurs inférieurs à 2 mm, qui sont compris entre 40 et 80 mm pour une longueur d'éprouvette maxi de 100 mm. Compte tenu du fait que nos matériaux auront certainement un module d'élasticité plus bas que des composites verre et carbone, nous avons resserré de 20 mm la valeur d'écartement pour arriver à 60 mm (voir figure ci-dessous). Cette distance a pour avantage de suivre également la norme NF T 54-06 concernant les matériaux composites multicouches (sandwich) qui redemandent une distance de 15 à 20 fois l'épaisseur, ce qui correspond au réglage choisi. Pour la vitesse de la charge, nous avons privilégié une vitesse lente en principe donnant en principe des résultats plus reproductibles

(pas d'effet de rupture choc). La vitesse est de 1 mm / min, ce qui correspond à l'épaisseur max du composite en cm divisé par 2.

V (mm/min) = e (cm) / 2

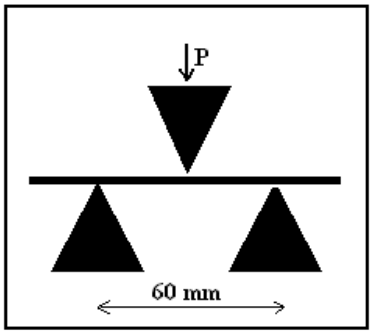


Figure 29 Schéma flexion 3 points

Ce test de flexion 3 points permet donc de déterminer un certain nombre de paramètre Force max, contrainte, module d'élasticité, flèche à la rupture.

Formule de calcul utilisée pour la détermination de la contrainte(MPa) :

$$\sigma_f = \frac{3FL}{2bh^2}$$

Formule utilisée pour la détermination du MOE flexion dans le domaine élastique (GPa):

$$MOE = \frac{L^3}{4bh^3}\left(\frac{\Delta F}{\Delta s}\right)$$

Avec

F = Force de rupture (N)

L = portée (mm)

b = largeur de l'éprouvette (mm)

h = épaisseur de l'éprouvette (mm)

s = flèche de la poutre en son milieu (mm)

Troisième Partie

MATERIELS ET PROCESS NONTISSES

1 INTRODUCTION : DESCRIPTION GENERALE DU HALL DE TECHNOLOGIE ‘’ FIBRES ‘’ DU CETELOR

Dans ce chapitre nous relatons la mise en place au CETELOR des machines pilotes, des transformations et des réglages destinés à la réalisation des renforts pour biocomposites. Les premières machines pilotes du CETELOR sont arrivées en 2006. Les lignes pilotes principales ont évoluées depuis leurs premières mises en route : nous pouvons maintenant séparer les machines pilotes disponibles en deux grandes applications :

- L’assemblage des matériaux souples avec les 2 lignes de contre-collage, l’une par poudres thermocollantes et l’autre par colle chaude (hotmelt).
- Les lignes de nontissés par la carde à cylindres (travail mécanique des fibres) avec liage par aiguilletage et par la carde pneumatique (projection des fibres par flux d’air en matelas) et liage par four de thermoliage (utilisant une part de fibres thermocollantes). (voir figures ci-dessous).

La configuration initiale avec une carde à cylindres destinait cette ligne au travail des fibres chimiques fines coupées (type polyester) et des fibres de coton. La deuxième ligne avec le cardage pneumatique était destinée au travail des fibres naturelles

La ligne de carde à cylindre a été mise en route avec ces deux types de matières, à savoir une classe de fibres chimiques absolument optimisées pour une utilisation textile et nontissé et les fibres de coton, une fibre certes naturelle mais qui bénéficie également d’une grande préparation en amont : culture optimisée, récolte optimisée, préparation de la fibre, égrenage.

Dans le cadre de ma thèse et des objectifs de recherche du CETELOR, il a été nécessaire de revoir en grande partie la configuration de ces lignes et de les optimiser pour pouvoir traiter les fibres dites libériennes pour la réalisation des biocomposites. Ces fibres sont très différentes car plus longues, beaucoup plus grosses en termes de diamètre, beaucoup plus rigides, plus ou moins affinées et comportant une part plus ou moins importante de matière organique (déchets) à éliminer. Nous verrons que nous nous sommes ensuite focalisés sur la ligne de carde à cylindres pour la réalisation des biocomposites. La possibilité d’utilisation de la ligne pneumatique, dite Arlaid, pour fibres naturelles s’est donc révélée trop contraignante et moins adaptée pour une étude comparative dans le cadre de cette thèse, puisqu’elle oblige à

utiliser des fibres thermoliantes en principe non biosourcées. Cette ligne pneumatique ou Airlaid est plus adaptée pour la réalisation de matériaux grossiers, pour des applications dans le domaine de l'isolation.

La ligne utilisée avec la carde à cylindres est donc schématisée sur la figure ci-dessous. Dans le process par carde pneumatique, les fibres sont transportées par un réseau de conduites à air de la chargeuse de fibres à la carde pneumatique. Les fibres ressortent de la carde pneumatique sous la forme d'un matelas qui peut être consolidé dans le four ou par aiguilletage.

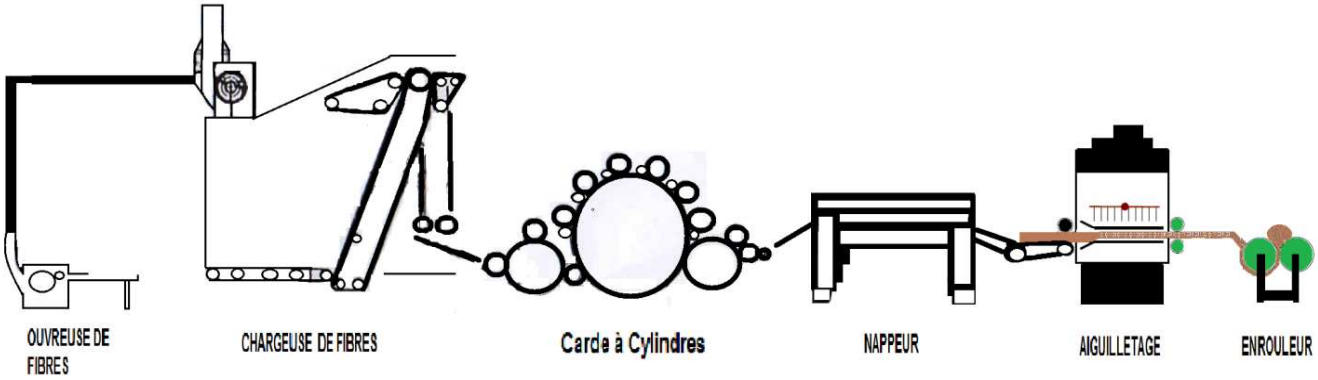


Figure 1: Ligne de cardage et aiguilletage

Dans la figure ci-dessous, nous avons synthétisé les grandes étapes de préparation des renforts de composites à partir d'une balle de fibre pour arriver à la réalisation d'un renfort présenté sous la forme d'un rouleau.

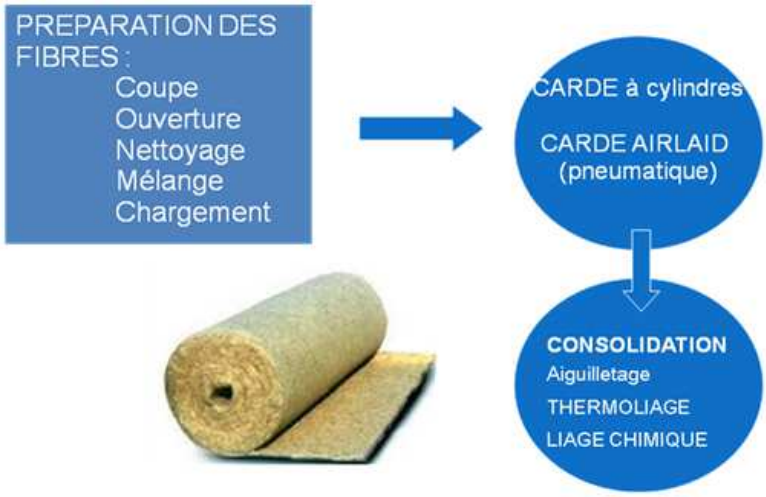


Figure 2: Organigramme général des machines pilotes de travail des fibre

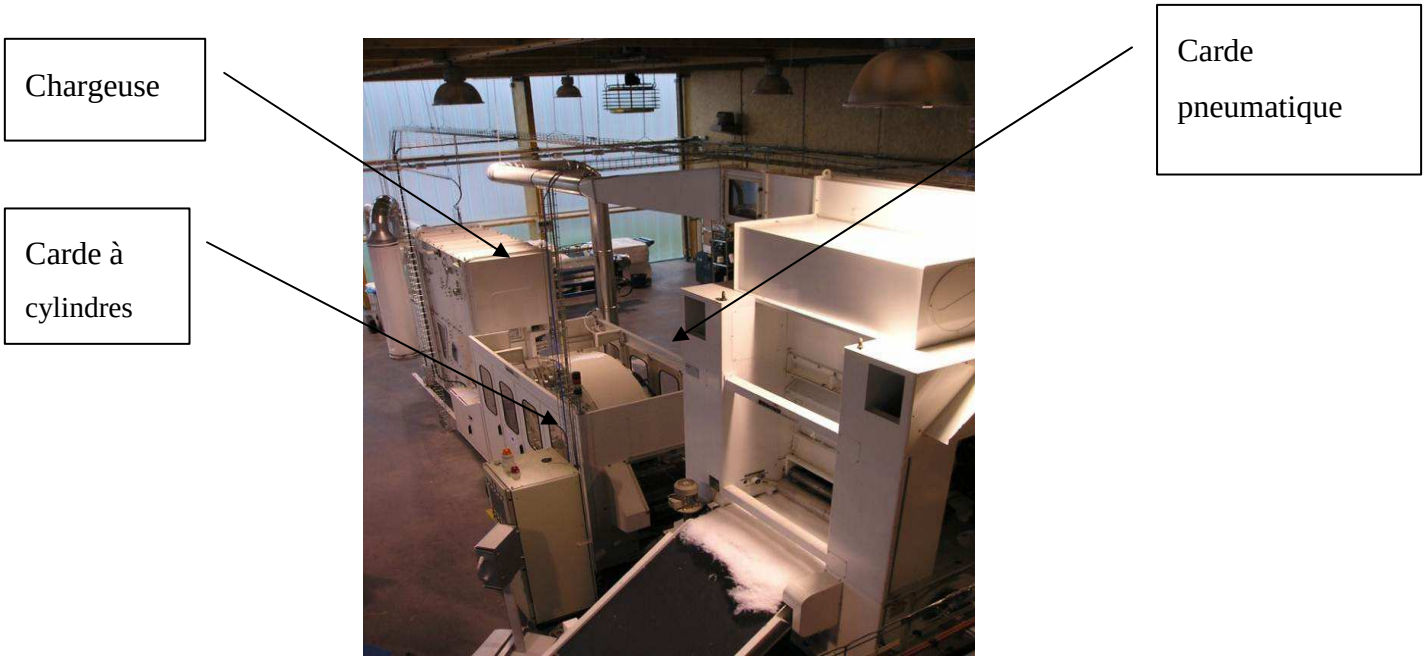


Figure 3 Aperçu de la ligne de cardage principale étape de préparation des renforts

2 PREPARATION DES FIBRES :

- La première étape consiste en la préparation des fibres :
- Ouverture de la balle
- Coupe des fibres
- Ouverture et premier nettoyage des fibres
- Conditionnement des fibres en humidité
- Ensimage des fibres

Les fibres sont livrées en balles de 150 à 300 kg environ.

2.1 Ouverture de la balle

La première étape consiste à décercler la balle de ses liants textiles ou métalliques pour permettre à la matière de gagner en volume. On commence à séparer les fibres qui sont très enchevêtrées les unes aux autres. En industrie, une machine dite ouvreuse de balle ou éplucheuse prélève automatiquement la matière des balles de fibres sous la forme de gros flocons de fibres de 3g à 50g qui sont ensuite facilement transportables par tapis ou conduite

pneumatique pour ensuite les mélanger. Ici cette opération est manuelle et permet de vérifier qu'il n'y a pas de corps étranger dans la matière : déchets plastiques, métalliques ou cailloux par exemples risquant d'endommager les machines.

2.2 Coupe des fibres

Les 2 types de cardes disponibles imposent des longueurs de fibres à ne pas dépasser pour ne pas risquer de détérioration par bourrage et assurer un bon cardage. De manière pragmatique, on se fixe de ne pas dépasser 80% de la périphérie des plus petits organes de la machine.

En fonction de la présentation de la matière par le fournisseur, il peut être nécessaire de diminuer la longueur des fibres. Ainsi étoupes de lin et de chanvre sont livrées en bourre de fibres dont la longueur moyenne ne dépasse pas 100 mm. Cette matière est acceptable telle quelle.

Par contre, les fibres de Kénaf peuvent se présenter sous la forme de longs faisceaux de fibres de plus 1,5 m et de diamètre allant de 2 à 4 mm. Elles sont donc coupées sur la coupeuse. Le choix de coupe est de 70 mm en coupe droite correspondant à la longueur des fibres chimiques classiques et normalement bien adaptée au matériel.

La machine de coupe est une machine de type « Pierret » avec système de coupe par guillotine. Le couteau principal effectue un va et vient avec un mouvement rectiligne au moment de la coupe, permettant une coupe franche et droite avec une précision importante par rapport au couteau fixe. Un rouleau cannelé alimentaire positionné très près des couteaux amène la matière, qui est chargée manuellement sur un tapis. Afin de couper précisément les fibres, les faisceaux sont retenus manuellement sur le tapis pour garantir leur bon alignement au moment où ils sont pincés par le cylindre cannelé. La vitesse de coupe est réglable, Vitesse de coupe : de 50 à 200 coupes/min et ici choisie à 100 coupes / min.

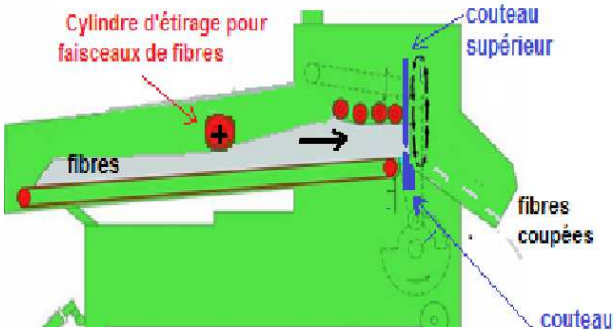


Figure 4 Photo de la coupeuse et schéma de principe

Afin de pouvoir couper les fibres de la manière la plus précise et aussi pour couper le plus celles qui se présentent sous la forme de faisceaux ou en tiges, nous avons ajouté un cylindre de pression garni de caoutchouc de Ø110. Ce cylindre permet de bien diriger et de retenir les fibres au moment de la coupe. Les tiges se présentent ainsi de manière parfaitement parallèle en arrivant devant 2 couteaux et l'on assure une coupe bien régulière.

Dans le tableau ci-dessous, nous avons résumé les réglages possibles sur cette machine. Il est également possible de changer les lames de coupe pour des lames avec une dureté d'acier plus importante. Cette possibilité n'est pas nécessaire avec les fibres végétales. Elle est à envisager pour découper des fibres minérales.

COUPEUSE : Réglages possibles :		
Longueur de coupe :	0,5 cm à	30 cm
Vitesse de coupe :	50 coupes/min à	200 coupes/min
Vitesse avance tapis :	0,25 m/min à	60 m/min
cylindre de retenu	Oui	Non

Tableau 1 Coupeuse : Réglages possibles

2.3 Ouverture et premier nettoyage des fibres

2.3.1 Généralités sur l'ouverture et nettoyage des fibres naturelles

Le but de l'ouvraison est d'individualiser progressivement les fibres, également de les nettoyer et de les dépoussiérer.

Les ouvreuses industrielles modernes sont constituées de plusieurs cylindres en rotation garnis de garnitures en dent de scie ou de pointes que l'on nomme aussi aiguilles ou douves. Les amas de fibres compactées sont progressivement ouverts en passant sur ces cylindres équipés de pointes ou de garnitures de plus en plus fines et de plus en plus rapprochées. (Voir vues ci-dessous). Les angles d'attaques des douves et des garnitures sont également choisis de plus en plus agressifs en partant d'un amas de fibres très compactées pour aller vers la fibre individuelle. La hauteur de garniture sera généralement de plus en plus petite en allant vers la fibre individuelle. Les valeurs de hauteur de garniture peuvent aller de 4 à 10 mm et les angles

de 10° d'inclinaison à 40° d'inclinaison en fonction des fibres à travailler. Les vitesses de rotation doivent également être optimisées et coordonnées pour trouver la bonne combinaison entre productivité et bonne ouverture et nettoyage des fibres tout en préservant leur longueur et caractéristiques mécaniques.

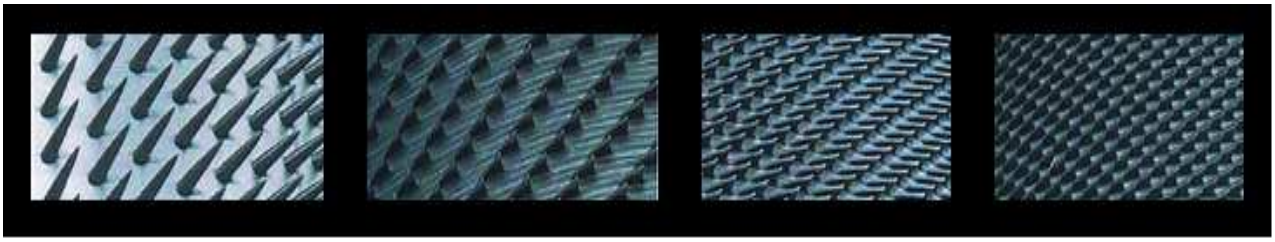


Figure 5 Vues rapprochées de 4 garnitures de tambour d'ouvreuse[1]

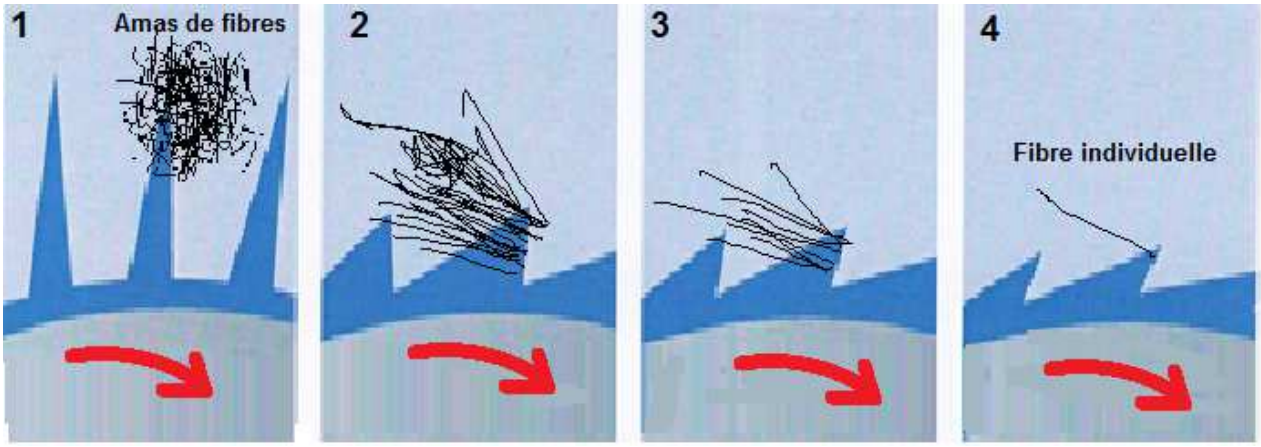


Figure 6: Individualisation des fibres par les cylindres d'ouvreuse

1 : Cylindre de première ouverture garni d'aiguilles ou douves de grande hauteur de l'ordre de 10 mm avec un angle d'attaque très faible de l'ordre de 10°. Des amas fibres de plusieurs grammes sont emportés par les douves. La population de pointes est de l'ordre de 5 pointes par cm².

2 : On passe sur une dent garniture métallique de hauteur plus faible que la douve et de population en principe plus importante. L'amas de fibres commence à être ouvert et réduit en flocon de fibres de plus en plus léger.

3 : Garniture plus agressive avec un angle d'attaque plus marqué et hauteur plus faible. La densité de pointes augmente.

[1] **Blow room**, TCC Gmbh, www.truetzschler-cardclothing.de

4°: Garniture d'ouvreuse fine : la dent a une hauteur très limitée, un angle d'attaque marquée de l'ordre de 40°. La population des dents peut atteindre les 90 dents par cm2 en fonction de la matière travaillée.

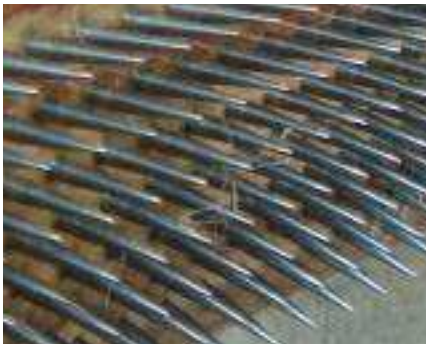


Figure 7 Vue des douves (ou pointes) montées sur le cylindre ouvreuse Bonino/Cetelor

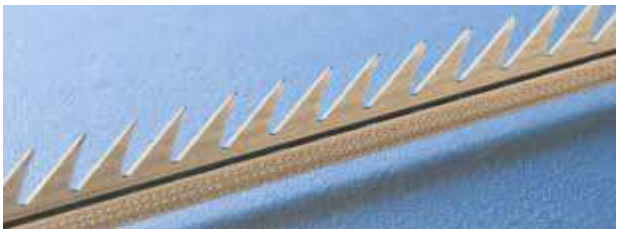


Figure 8 : Vue d'une garniture rigide

Lors de l'ouverture sur ces machines, les particules les plus grosses comme les particules de bois, chènevottes ou anas sont éjectées par la force centrifuge à travers les grilles sous les cylindres.

Des cylindres percés appelés condenseurs (fig. ci-dessous), récupèrent et transfèrent les fibres tout en aspirant et envoyant les particules fines dans le système d'aspiration des déchets. Le condenseur ne doit pas re-compacter les fibres. Les condenseurs déportés sont utilisés pour le transport de la matière entre machines. Un cylindre perforé avec aspiration sépare les poussières, tandis que les fibres se plaquent à la surface du cylindre. Un système de racles souples animées d'un mouvement rotatif vient frapper les fibres sur le cylindre perforé pour les détacher et les faire tomber la cheminée d'entrée de la machine suivante.

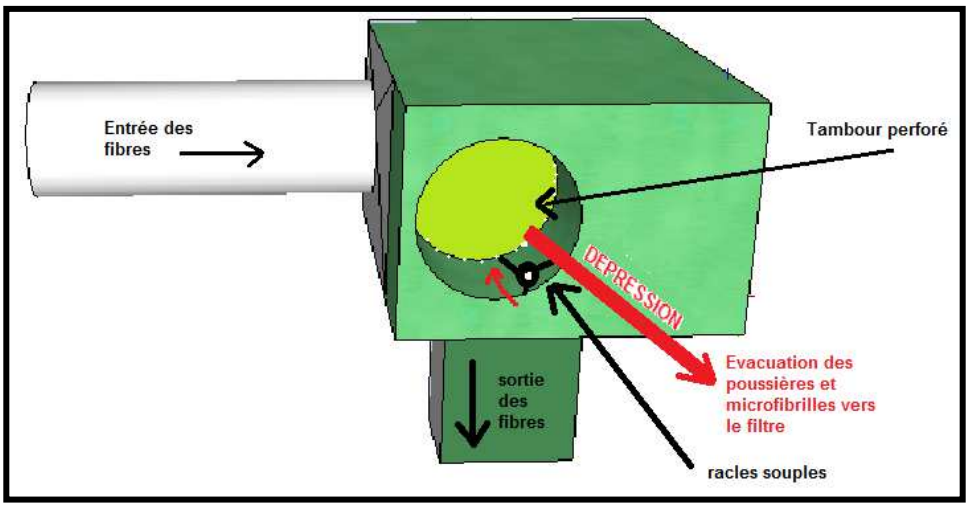


Figure 9 Schéma d'un condenseur déporté

CETELOR dispose de 2 lignes machines d'ouvraison : Ligne Cadette Modifiée du constructeur Laroche et la ligne Bonino (nom du constructeur).

2.3.2 Ouvreuse / Effilocheuse Laroche :

2.3.2.1 Description :

Cette machine est au départ une machine d'effilochage destinée au recyclage textile et est capable d'extraire les fibres d'un tissu ou d'un nontissé coupés en morceaux de 10 cm de côté maximum. Deux zones de travail identiques sont montées en ligne. On les nomme Cadette N°1 (entrée) avec douves et Cadette N°2 (sortie) avec garnitures métalliques. Les garnitures utilisées sont très fines et peuplées.

La ligne d'ouvraison Laroche est donc composée de deux modules d'ouvraison. Chaque module est composé d'un tambour garni de douves ou d'une garniture métallique en dents de scie qui a pour fonction d'ouvrir les fibres, suivi d'un cylindre condenseur qui va réaliser une nappe fibreuse. Les condenseurs sont reliés à un système d'aspiration qui permet de plaquer les fibres contre les parois du condenseur garni de petits trous. Ce dispositif à également pour avantage de dépoussiérer les fibres puisque le système d'aspiration des condenseurs rejette l'air utilisé à travers un système de filtre. Les cylindres tournent très rapidement. Pour changer de vitesse, il faut intervenir en changeant les diamètres de poulies commandées par le

moteur principal. L'opérateur surveille essentiellement la quantité ou le volume de fibres au niveau de l'alimentation du tapis en veillant à ne pas dépasser une charge limite repérable à un bruit aigu de cisaillement des fibres.

Le tambour du module 1 est garni de pointes rondes pour offrir une première ouvraison efficace et moins agressive. Le tambour module 2 sera plus agressif avec un tambour muni de garnitures (dents) plus courtes et une plus grande densité de dents.

Avec cette machine, il est possible de réaliser une ouverture des fibres sur les deux modules et de récupérer les fibres sous forme d'un matelas peu dense et en principe facilement transportable manuellement depuis à la sortie du condenseur du module 2 vers la machine suivante, la chargeuse.

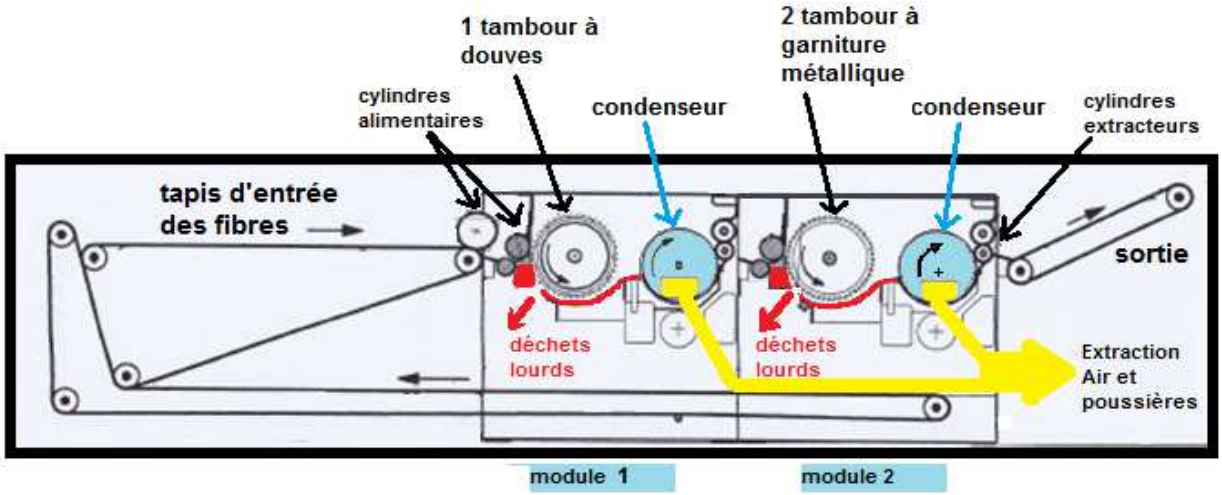


Figure 10 ligne d'ouverture et défibrage LAROCHE - Cadette [2]

2.3.2.2 Concernant les garnitures montées sur cette machine

Le tambour du module 1 est garni de douves peu agressives de 16 mm de hauteur avec une densité peu importante de 2,55 pointes par cm², alors que les garnitures du tambour du module 2 ont une très petite hauteur pour une garniture d'ouvreuse (mesurée à 22 mm). La densité relevée est logiquement plus importante à 44 dents par cm².

[2] Source documentation technique Laroche (modifiée)

Ce cylindre initialement destiné à l'effilochage, est donc relativement agressif pour un cylindre d'ouvreuse.

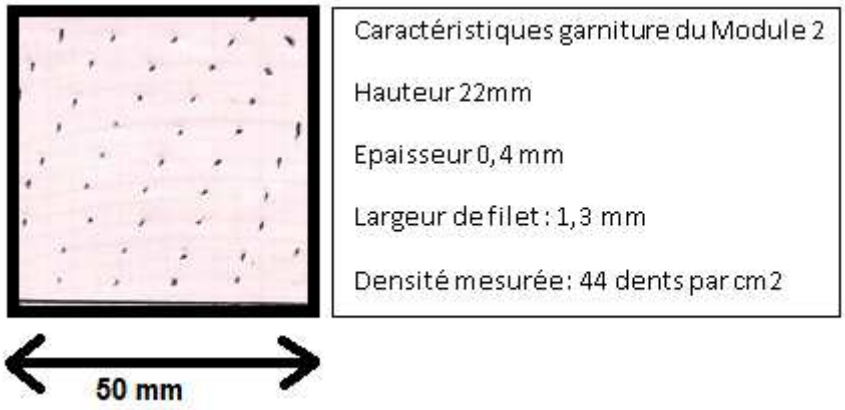


Figure 11: Garniture du tambour du Module 2 : Implantation et Contrôle des caractéristiques de la garniture

2.3.2.3 Modifications opérées :

Le traitement opéré par les deux cylindres des modules 1 et 2 s'est avéré trop agressif avec les fibres testées. La dégradation des longueurs de fibres en particulier et donc la perte mécanique nous a obligé à modifier cette machine.

Ci-dessous, nous avons listé les modifications complémentaires opérées pour modifier la machine pour traiter l'ouvraison de fibres naturelles :

1 –Nous avons découpé la machine afin de séparer les modules. Nous disposons donc maintenant de 2 entités distinctes, l'une dotée d'une garniture métallique en dents de scie et l'autre dotée de douves. Entre les 2 unités, nous avons disposé un tapis pour pouvoir utiliser sans danger les cadettes de manières indépendantes ou en ligne.

2- Réduction des vitesses :

Réduction de la vitesse de rotation du tambour 1 équipé de douves à pointes inclinées de 1798 tours par min à 1156 t/mn en changeant la poulie ø 180 par une poulie ø280 mm.

Réduction de la vitesse du tambour 2 par un montage de poulie ø236 mm à la place de la poulie ø 180 mm, ce qui fait diminuer la vitesse de rotation de 1798 à 1372 tours par min. Cette vitesse va s'avérer encore trop rapide pour les fibres testées avec une diminution trop importante de longueur de fibre.

vitesse moteur	diamètre poulie cylindre	diamètre poulie moteur	vitesse tambour en tours/min
2891	180	112	1798,8
2891	236	112	1372,0
2891	280	112	1156,4
3193	180	112	1987,0
3193	236	112	1515,3

Tableau 2 Vitesses de tambour obtenues en changeant les poulies

2.3.2.4 Méthode d'utilisation de cette machine

Pour une utilisation avec des fibres naturelles, il s'est avéré que la machine réduit beaucoup la longueur des fibres. Il faut donc mettre en œuvres des techniques et précautions que nous détaillons ci-dessous.

2.3.2.5 Utilisation de la 1ere partie de la machine :

On utilise le module 1 (entrée) pour ouvrir les fibres dans le cas d'amas de fibres très compactées ou/et trop dense et de faisceaux de fibres trop compacts ou difficiles à ouvrir directement à la chargeuse. L'opération de séparation des 2 modules est dans ce cas très pratique, car on peut récupérer les fibres avant leur entrée dans le module 2. On peut utiliser également ce module 1 pour réaliser des mélanges de fibres.

On gère la quantité de fibres à l'alimentation, en ne dépassant pas une hauteur totale de 4 à 8 cm à vitesse d'avance lente. Ce paramètre est important, sinon, le travail des fibres sera dégradé (plus de fibres raccourcies, plus de poussière et risque de bourrage de la machine).

2.3.2.6 Utilisation de la 2ème partie de la machine :

Sauf cas particulier où il serait nécessaire de raccourcir les fibres, le module n° 2 n'est donc pas nécessaire pour la préparation des fibres car la longueur est fortement diminuée. Etant donné que ce process va fortement solliciter mécaniquement les fibres en passant dans le

tambour d'ouvreuse, nous pouvons supposer que cette diminution de longueur de fibre sera accompagnée d'une diminution de la résistance ou ténacité des fibres travaillées.

2.3.2.7 Cas des mélanges :

La machine peut être utilisée pour réaliser trois types de mélanges. Soit un mélange constitué d'un même type de fibre dans l'objectif d'augmenter l'homogénéité. Soit un mélange constitué de 2 fibres naturelles différentes dans le but d'associer des propriétés différentes. Enfin, la machine peut éventuellement réaliser le mélange d'une fibre naturelle et d'une fibre thermoplastique dans le but de réaliser une consolidation par la voie sèche dans un four par thermoliage.

Pour les mélanges, on réalise le mélange en poids, en dehors du tapis, en réalisant des paquets de fibres correspondant à la quantité déposée sur le tapis d'entrée, chaque paquet étant adapté, en poids, au % du mélange à opérer.

Les fibres végétales sont déposées en un matelas de 3 à 4 cm d'épaisseur environ par-dessus les fibres thermoplastiques. Les fibres végétales sont alors directement attaquées par les pointes du tambour. Les fibres thermoplastiques situées en-dessous des fibres naturelles sont plus éloignées des pointes et sont moins sollicitées ce qui permet d'éviter au mieux les échauffements et donc la fusion.

On pulvérise l'entrée de la machine si nécessaire avec une solution d'ensimage ou de l'eau pour abaisser la température de travail lors de l'utilisation de fibres thermoplastiques / thermo liantes pour éviter la fusion.
Le module n° 2, trop agressif, ne convient pas à une opération de mélange sauf cas particulier où il serait nécessaire de raccourcir les fibres.

2.3.2.8 Points restants à améliorer :

Cette machine est donc à la base une effilocheuse que nous avons optimisée pour l'utiliser en tant qu'ouvreuse de fibres naturelles. Il reste des améliorations à réaliser pour pouvoir ouvrir en ménageant au maximum les fibres.
L'aspiration ou dépression des condenseurs doit être maximale pour bien dégager les fibres des tambours et séparer les poussières
Réduire encore la vitesse du tambour 2, pour ménager les longueurs et la résistance des fibres
Réduire encore les vitesses d'alimentation.
Diminuer la densité et prévoir de nouvelles garnitures beaucoup moins agressives sur la cadette N°2 pour préserver la longueur des fibres

Prévoir de nouvelles douves moins agressives sur la cadette N°1 pour préserver la longueur des fibres

Ces améliorations permettront d'utiliser les 2 modules à la suite sans intervention avec en principe un travail plus progressif et moins agressifs des fibres.

2.3.2.9 En conclusion

Cette machine de préparation des fibres permet de réaliser un matelas de fibres en 50 cm de laize qui se tient suffisamment pour être transportable. Ce matelas aura pour avantage de pouvoir être déposé dans la chargeuse de carde et donc de permettre de contrôler très précisément le poids de matière introduit dans la ligne. Cette machine sélectionnée pour son intérêt dans la préparation des biocomposites permet également de nettoyer, de dépoussiérer et d'ouvrir les fibres de manière plus agressive que l'ouvreuse Bonino disponible.

Ouvreuse « Laroche » Réglages possibles :	Module 1	Module 2
Type de tambour	Douves 2,55 pointes par cm²	Garniture 44 dents/cm²
Diamètre poulies tambour	180	180
	236	236
	280	
Diamètre poulie moteur	112	112
Vitesse organe moteur	1156 à 1798 trs/min	1515 à1987 trs/min
Pulvérisation eau	OUI possible	OUI possible
Ensimage	OUI possible	OUI possible

Taleau 4 Résumé des réglages possibles sur l'ouvreuse Laroche

2.3.3 Ouvraison sur ouvreuse Bonino

2.3.3.1 Description l'ouvreuse de fibres Bonino:

La deuxième machine utilisable au laboratoire pour ouvrir des fibres est l'ouvreuse appelée ouvreuse Bonino

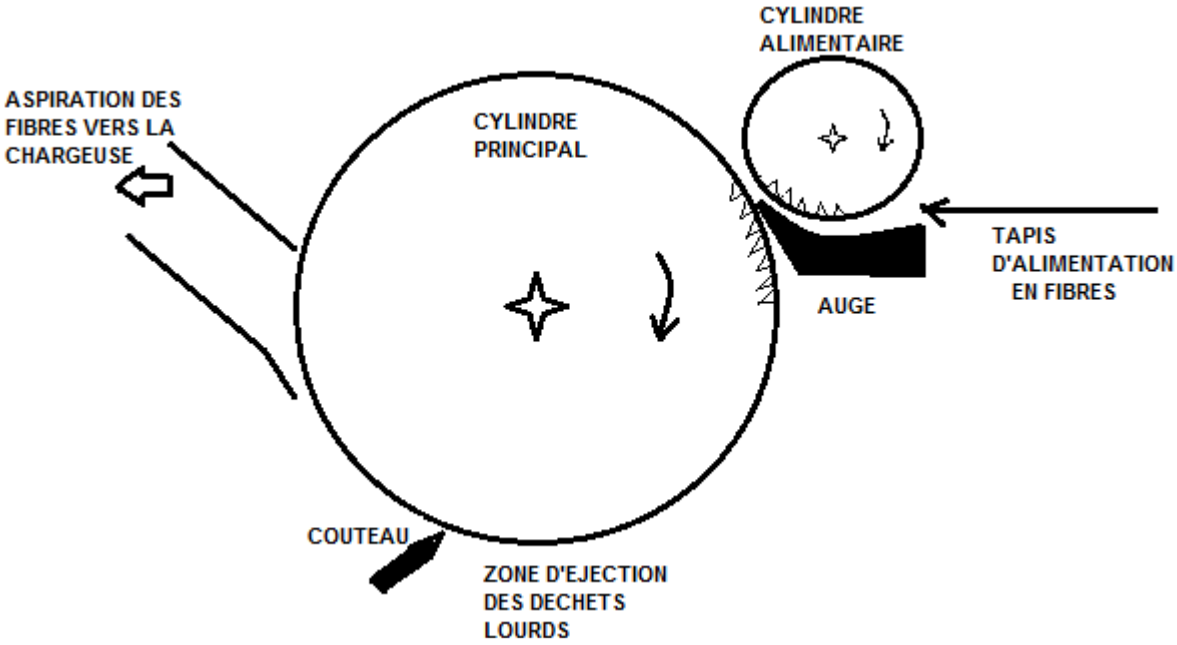


Figure 12 Schéma de principe de l'ouvreuse type Bonino

L'ouvreuse Bonino dispose d'une alimentation par tapis et cylindre alimentaire et d'un cylindre à pointes au-dessus d'une auge. Sur cette machine, il est possible de régler la vitesse d'alimentation du tapis et la quantité de fibres déposées sur le tapis. Un cylindre condenseur installé à quelques mètres de la machine va aspirer les fibres et assure l'évacuation des fibres éjectées du cylindre d'ouverture pour les envoyer dans la machine suivante. Il va s'avérer que ce cylindre condenseur sera un point bloquant pour la préparation des fibres longues, et que l'on sera obligé d'en modifier le principe.

Le cylindre est initialement équipé de garniture rigide. L'ouverture des fibres artificielles et chimiques est suffisante bien que lente, avec cette technologie. On remarquera que par rapport

à la machine précédente de type Laroche, les fibres peuvent être très fortement pliées avec un angle de plus de 90° puisque entrainées par le cylindre principal, la queue de chaque fibre est retenue entre l'auge et le cylindre alimentaire. Un essai de rotation inverse du cylindre principal a été envisagé qui aurait eu pour avantage de ne pas plier les fibres. Cette modification n'a pas été réalisée étant donnée la position trop défavorable de la tuyauterie de sortie des fibres et de la position du couteau inférieur.

Avec les fibres naturelles qui sont plus longues et éventuellement chargées en déchets, il s'avère que ce cylindre principal n'arrive pas évacuer les fibres et est vite saturé. Très rapidement, un encrassement s'opère et les dents chargées n'effectuent plus leur travail d'ouverture et de transport des fibres. En diminuant la vitesse du tapis d'alimentation, on diminue le risque d'encrassement, mais on observe quand même une diminution très importante de la longueur des fibres qui sont alors arrachées entre le cylindre alimentaire et le tambour d'ouvreuse. On peut supposer également qu'à l'issu de ce traitement, les fibres ont perdu de leurs propriétés mécaniques.

2.3.3.2 Modifications opérées sur cette machine :

Le cylindre de tambour avec sa garniture a donc été changé par un cylindre à douves. Les douves sont constituées de supports en bois sur lesquels sont disposées des pointes métalliques en formes de cônes allongés très espacées. Avec ces pointes, le cylindre est beaucoup moins agressif envers les fibres et ne souffre pas d'encrassement. La hauteur des pointes installées est maintenant de 18 mm et la densité des plaques garnies est de 0,44 douves par cm^2, le cylindre étant lui-même seulement garni à 70% de sa surface.

La machine était initialement installée en ligne avec la chargeuse de carde dans le but d'avoir un process continu. Le cylindre condenseur déporté était chargé de l'évacuation des fibres de l'ouvreuse et de la séparation air / matière tout en assurant une fonction de dépoussiérage. Ce condenseur avec les fibres longues se charge et se bloque très rapidement, même en faisant tourner l'ouvreuse au minimum de production. De multiples essais nous ont finalement tout simplement amené à supprimer ce condenseur pour envoyer directement, via un ventilateur, les fibres dans la chargeuse qui fait office de chambre de décompression.

De manière empirique, une mesure grossière des fibres en longueur a mis en évidence que le réglage le plus performant est de fixer l'avance à 30% de la vitesse du tapis avec un volume de fibres déposées d'environ 5 cm de hauteur.

2.3.3.3 Réglages possibles

Ouvreuse Bonino : Réglages possibles :		
Vitesse d'alimentation :	5% à 100 %	
Cylindre d'ouverture :	Garniture métallique	Douves
Ecartements :		
Vitesse organe moteur	800 Tours/min	800 Tours/min
Pulvérisation eau	Oui possible	Oui possible
Ensimage	Oui possible	Oui possible

Tableau 3 Ouvreuse Bonino : Réglages possibles

2.3.4 Conclusions : Comparaison des machines :

Avec les réglages optimisés nous avons comparé les longueurs de fibres en sortie de machine. Il se trouve que l'ouvreuse Laroche diminue bien plus fortement la longueur moyenne de fibre puisque l'on passe d'une moyenne des longueurs moyennes relevées à la Laroche de 29 mm à 38 mm pour la sortie de la Bonino soit une différence de près de 30%. (Voir tableau ci-dessous).

Pour les longueurs maximum (qui correspondent environ à 10% de la longueur max des fibres), on observe également une diminution plus importante de près de 20 % en défaveur de l'ouvreuse Laroche.

Dans le cadre de cette étude dont le but est d'obtenir des biocomposites hautes performances, nous privilégions donc l'ouvreuse Bonino qui apporte une ouverture suffisante des fibres et préserve mieux la longueur et donc les caractéristiques mécaniques.

Type de fibre	Ouvreuse Laroche Longueur moyenne	Ouvreuse Bonino Longueur moyenne	Ouvreuse Laroche Longueur max	Bonino Laroche Longueur max
Lin raffiné	35	40	50	50
Faisceaux lin	36	42	42	48
Etoupe de lin	18	32	50	60
Chanvre	28	38	40	70

Tableau 4 : Longueurs en mm pour 4 fibres à la sortie des deux types d'ouvreuse

2.4 Conditionnement des fibres en humidité et ensimage

Concernant le conditionnement hygrométrique des fibres:

Les fibres sont stockées dans le hall des machines pilotes du CETELOR pour les mettre en condition hygrométrique. Pour cela, les balles de chaque fibres sont ouvertes et les matières étalées à la main sur une dizaine de mètres et environ 15 à 25 cm d'épaisseur.

Le conditionnement d'air est mis en route avec pour objectif de maintenir une hygrométrie importante au minimum 65% à 70% d'humidité relative pendant la préparation des fibres.

Le taux d'humidité relative se calcule avec la formule suivante[3] :

$$HR\% = \frac{\text{Pression de Vapeur d'eau réelle}}{\text{Pression de vapeur saturante}}$$

La pression de vapeur saturante est la pression maximale d'eau que l'on peut mesurer au-dessus de l'eau liquide à l'équilibre à une température donnée. Au-delà de cette pression l'eau

[3] E.B.Grover, D.S. Hamby, A.C. Lineberger, **Handbook of textile, Testing and Quality Contro**l, Interscience Publishers INC, New York (1960), p 141-154

se condense. On peut traduire cette pression en un poids de vapeur mesurée par kg d'eau sec à une température donnée.

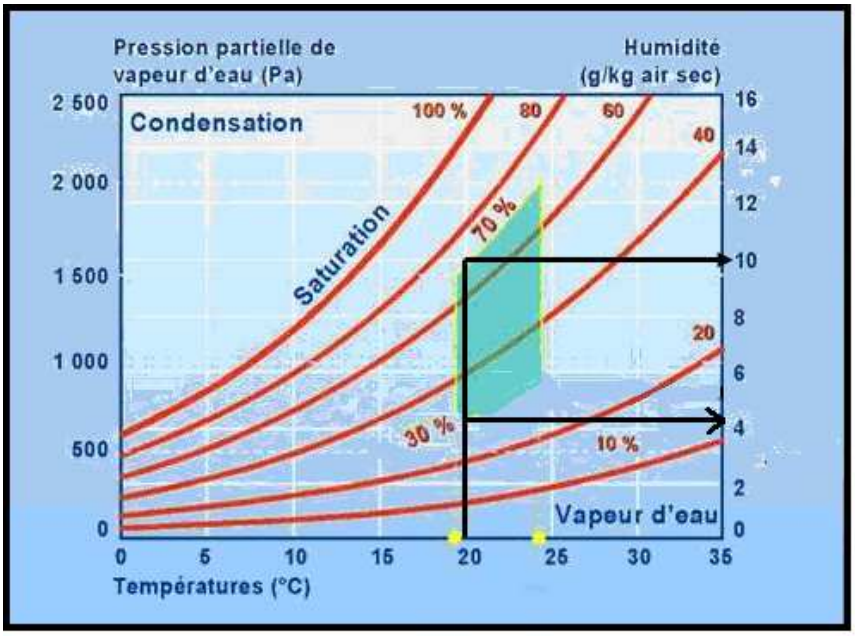


Figure 13 diagramme simplifié de l'air humide

La figure ci-dessus représente le diagramme de l'air humide. En fonction de la température, on peut donc estimer la quantité d'eau à évaporer pour atteindre le taux d'humidité relative nécessaire en suivant la courbe rouge sur l'échelle de droite.

En été, dans la salle d'essai on observe très souvent un air très sec et une température supérieure à 20°C liée notamment à l'exposition du bâtiment au soleil et à la chauffe des machines.

Donc par exemple pour passer d'une humidité relative de 30 % à 70% à la température de 20°C, il nous faut faire évaporer 10 – 4 g = 6 g d'eau /kg d'air sec d'après le diagramme de l'air humide.

En prenant un Volume molaire de l'air à 25l/mol à 20°C, cela nous donne 40 moles par m3 soit 40x29g = 1160 g d'air / m3

En prenant un volume d'atelier de 6 m x 20 x 40 = 4800 m3

On obtient une masse d'air à humidifier de 5568 kg.

soit 5568 x 6 = <u>33 ,5 litres d'eau</u>.

Cette valeur est importante et de plus, cette approche ne tient pas compte de l'absorption par les matériaux de la salle et du renouvellement d'air dans la salle.

Pour satisfaire notre objectif de 65 à 70% d'humidité relative, il a été nécessaire de mettre en place 2 dispositifs complémentaires à ceux prévus pour pulvériser sous la forme d'un brouillard une grande quantité d'eau dans l'air. Ces 2 dispositifs ont été accrochés au plafond de la salle au-dessus de la zone que nous avons prévue pour la préparation et le conditionnement des fibres. En pratique, nous avons également utilisé un pulvérisateur à eau manuel pour mieux humidifier les fibres, mais cette technique est dangereuse, car les fibres risquent de se coller fortement ensemble et de provoquer des blocages à la carde.

En hiver, pas temps froid, avec la température de salle à 15°C, pour passer d'un air d'humidité relative 30% contenant d'après le diagramme 3 g d'eau à 70%, il faudra pulvériser 5 g d'eau pour passer à 8g d'eau par kg d'air sec, ce qui est donc un peu moins contraignant que le cas précédant en condition été.

Concernant l'ensimage :

Pour améliorer encore le conditionnement, on peut utiliser un ensimage qui peut être une huile minérale ou végétale mélangée à de l'eau et pulvérisée lors du conditionnement. On retourne la matière plusieurs fois et au bout de plusieurs heures, le produit d'ensimage sera réparti dans la masse. Le rôle de cette opération est double :

En premier lieu, l'ensimage va rendre en principe les fibres plus conductrices à l'électricité et va donc permettre d'évacuer les charges d'électricité statique crées par les frottements. Ce phénomène connu est très fréquent avec certaines fibres chimiques et les laines.

En second lieu, l'huile d'ensimage doit aussi permettre une lubrification des fibres pour leur permettre de bien glisser les unes par rapport aux autres et donc améliorer le cardage et la qualité du voile de sortie. L'ensimage peut également avoir un effet bénéfique lors de l'étape de liage par aiguilletage en facilitant la pénétration des aiguilles dans la matière.

Avec les fibres végétales étudiées, nous observons de plus un assouplissement des fibres bénéfique pour un bon cardage. Nous avons réalisé des essais de cardage avec deux types d'huiles d'ensimage fournis par la société Agatex et classiquement utilisées sur les process textiles avec une quantité d'ensimage recommandée d'environ 7%. Pour avoir un effet sur les fibres testées, et suivant les recommandations, il est important de laisser l'huile pénétrer dans la fibre pour la ramollir pendant au moins une dizaine d'heures. Cela améliore effectivement

la marche de la carde, cependant, il est difficile de réaliser une grande quantité d'un mélange bien homogène. De ce fait, on peut alors obtenir par intermittence des problèmes de collage dans la carde. Des dépôts composés d'huile s'agglomèrent avec les impuretés et les poussières pouvant entraînant des arrêts de carde. Ce phénomène augmente avec l'humidité.

Compte tenu de l'utilisation des nontissés pour la réalisation de renfort de composite, il a été choisi de se passer d'ensimage pour également ne pas perturber ensuite le collage (compatibilité) avec les résines.

En fin de compte, toutes les améliorations réalisées pour le travail des fibres naturelles permettent de s'affranchir de l'ensimage. Par contre, le paramètre humidité a vraiment beaucoup d'influence sur la qualité du voile produit et il est indispensable de bien conditionner les fibres longtemps à l'avance (24h minimum) avant d'envisager le cardage.

2.5 CHARGEUSE - ENTREE DE CARDE :

2.5.1 Principes de mélange adaptés à une chargeuse :

Les caractéristiques (de diamètre et de longueur notamment) des fibres naturelles livrées ne sont pas homogènes à l'intérieur d'une balle (et à fortiori entre différentes balles de fibres et entre des balles de livraisons différentes). Afin d'assurer un bon mélange, il existe plusieurs principes de machine dites mélangeuses utilisés dans l'industrie pour mélanger les fibres ou les flocons de fibres. Sur le schéma ci-dessous, les couleurs représentent des qualités de fibres différentes et le but est donc d'obtenir le meilleur mélange et donc dans cette représentation une couleur stabilisée.

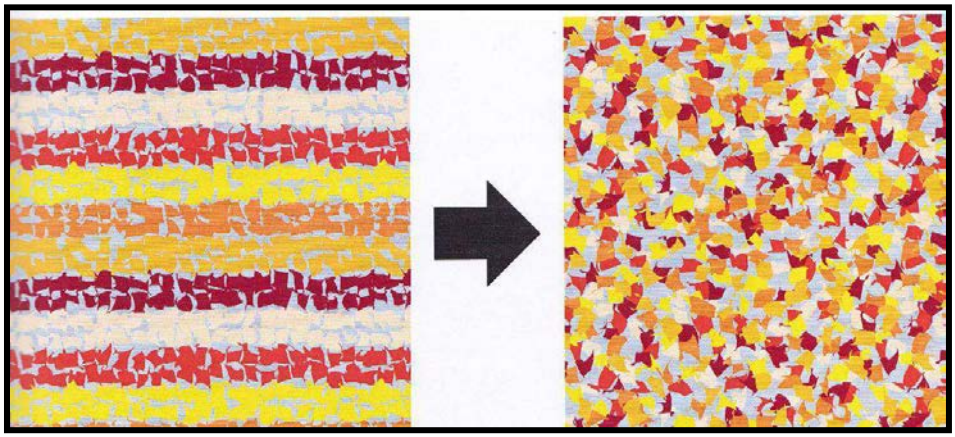


Figure 14 : Représentation d'un mélange en préparation fibres

2.5.2 Principes du mélange adaptés à une chargeuse :

Ces machines dites mélangeuses conçues spécifiquement pour cette application ne sont pas disponibles dans les lignes pilotes du CETELOR. Sur la figure ci-dessous N°Figure 15 : Principe de la mélangeuse à cheminées[4] , nous avons représenté une mélangeuse à cheminée. La matière arrive par le haut à gauche et est distribuée par un système de clapets ou de tapis dans plusieurs cheminées verticales. Les cheminées se remplissent de fibres. Ensuite un système de rouleaux d'appel vide les cheminées. Un amas de fibres mélangées se forme sous les cheminées et la matière est envoyée dans la machine suivante.

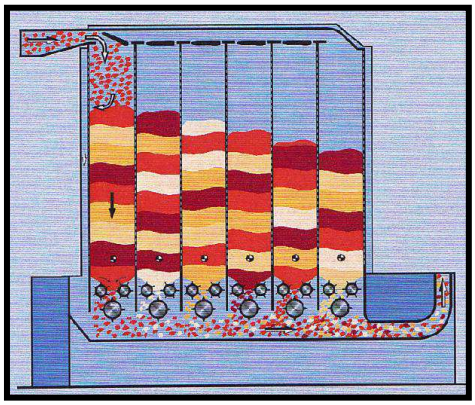


Figure 15 : Principe de la mélangeuse à cheminées

Dans les systèmes de mélange les plus sophistiqués, on peut coupler en tandem deux machines de ce type (figure ci-dessous)

Figure 16 : Principe de la mélangeuse tandem

[4] **Publication Technologie de la fibre, TCC Gmbh,** www.truetzschler-cardclothing.de **TCC gmbh :**

Il existe un autre système, plus simple, nommé chargeuse ou nommé aussi brise balle (Figure ci-dessous). Cette machine est équipée d'un système de deux tapis. Les strates de fibres sont dans ce cas horizontales au départ, contrairement au système à cheminée. Le CETELOR est donc équipé d'une machine de ce type.

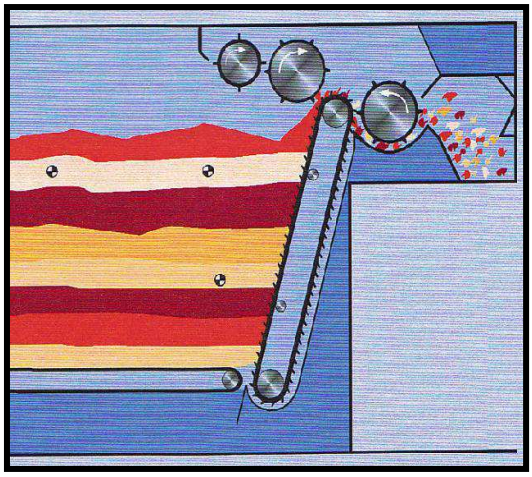


Figure 17 Principe de la chargeuse

On peut enfin trouver des machines « hybrides », qui vont coupler un système de mélangeuse verticale à une cheminée, et ensuite une stratification horizontale comme dans la chargeuse, avec une évacuation de la matière par tapis.

2.5.3 Schéma de principe de la chargeuse pilote :

Le but de cette machine est d'alimenter en fibres ou en flocons les machines suivantes, c'est-à-dire, cardes pneumatiques ou cardes à cylindres. Cette machine est importante car elle conditionne la bonne stabilité des réglages des machines suivantes et donc la qualité et reproductibilité des opérations suivantes.

Avec les fibres chimiques et artificielles qui sont très faciles à carder, la chargeuse n'est utilisée que pour assurer une alimentation continue des machines. En introduisant un maximum de matière dans la chargeuse (20 à 35 kg), les cardes ne risquent donc pas de rupture d'alimentation. Aucun réglage particulier n'a besoin d'être mis en œuvre. Par contre, avec les fibres naturelles, il s'avère que cette machine doit assurer des fonctions complémentaires indispensables à un bon travail des fibres pour la suite du process. Ainsi, la chargeuse doit réaliser 3 fonctions avec les fibres naturelles :

-Alimentation beaucoup plus régulière de la cheminée de carde à cylindres ou de la carde pneumatique

-Ouverture complémentaire des fibres ou des flocons de fibres grâce au tablier à pointes

-Mélange / homogénéisation complémentaire des fibres

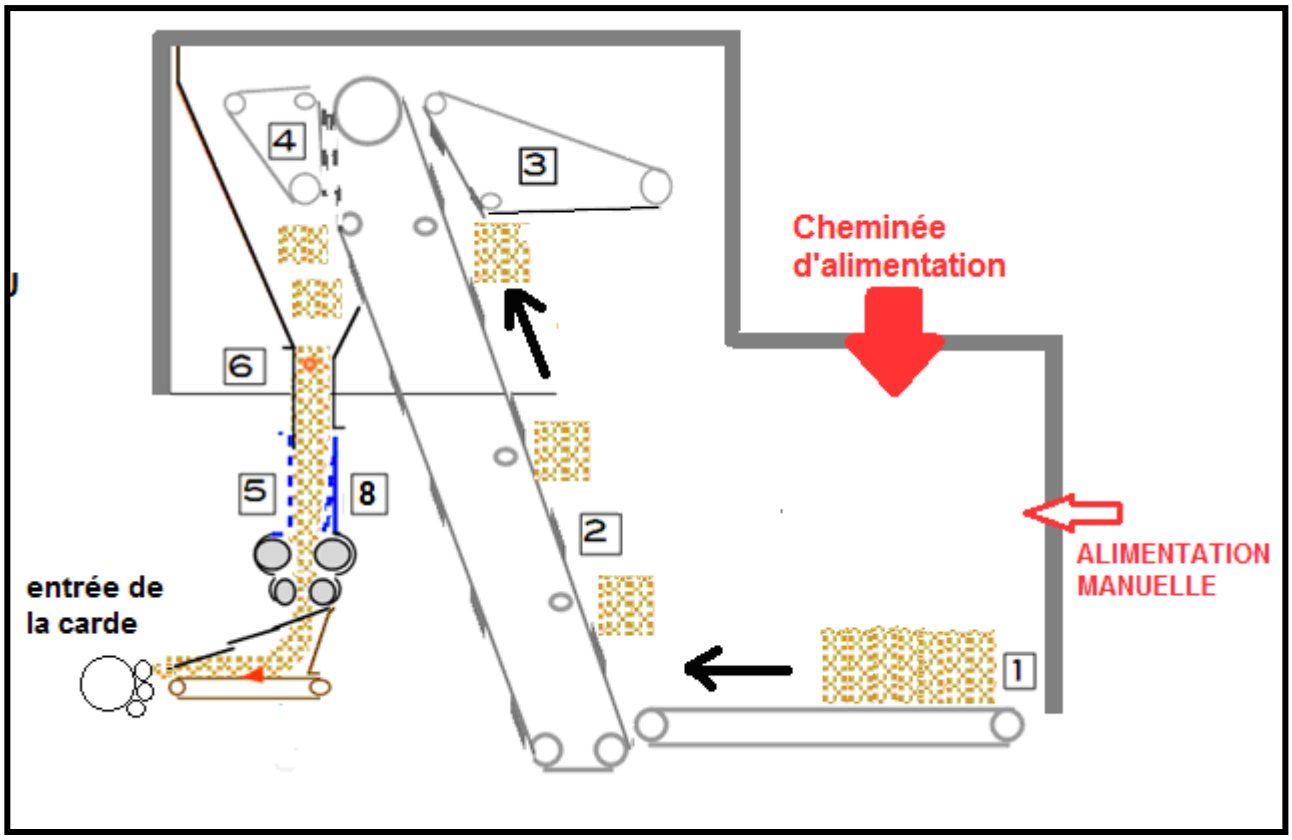


Figure 18Schéma de principe de la chargeuse pilote

1 : Tapis d'alimentation et arrivée de la matière (chargement manuel)

2 : Tablier vertical à pointes

3 : Tapis détacheur à pointes (= tablier égalisateur)

4 : Tapis délivreur à pointe (= tablier égalisateur)

5 : Rouleaux d'appels

6 : Cheminée volumétrique

2.5.4 Modifications et Méthode mise au point avec la chargeuse pilote

2.5.4.1 Alimentation de la matière :

La matière est alimentée manuellement par un matelas de fibres réalisé avec la cadette Laroche sur le tapis d'alimentation, ou arrive par le condenseur et la cheminée d'alimentation dans le cas d'une alimentation en fibres par la machine d'ouverture Bonino.

2.5.4.2 Commande du tapis d'alimentation et du tapis vertical :

La vitesse des différents tapis doit être établie en fonction de la consommation de matière de la carde, de telle sorte que l'on ait idéalement un processus qui tourne en continu. En effet, nous avons observé que dans ces conditions, on améliore la régularité de la densité du matelas dans la cheminée.

Avant la mise au point de ces réglages, le dispositif (adapté aux fibres synthétiques) fonctionnait en tout ou rien. Dès que le capteur décelait un manque de matière, cela déclenchait une arrivée très importante de matière (vitesse importante de l'organe 2) ce qui avait pour conséquences de grosses variations de densité des fibres dans la cheminée, en particulier au niveau des cylindres d'appel n°5 (pouvant entraîner des blocages) et entrainant de fortes irrégularités du voile. On a donc réglé la vitesse du tapis 2 pour que le niveau de fibres dans la cheminée reste le plus constant possible, et supprimer les à-coups d'avance du tapis 2 et donc le faire tourner de manière presque continue.

Avec les fibres naturelles libériennes, la densité observée dans la cheminée est très variable et le degré d'ouverture des fibres également avec la configuration précédente. Ces variations qui augmentent la difficulté de régler la vitesse des cylindres de cheminée et le volet de tassement, augmentent également le risque de blocage des fibres dans la cheminée par tassement.

On va donc chercher à avoir le minimum d'interruption de vitesse du tapis. Pour cela, il faut en réalité faire avancer le tablier d'alimentation à vitesse lente. Cette avance est commandée par un cliquet commandé par le tablier 2.

Le bon choix de réglage est d'ajuster une prise de 3 dents au cliquet, ce qui est une avance satisfaisante avec le matelas de fibres provenant de module N°1 de l'ouvreuse cadette.

Si le tablier à pointes n'est pas assez alimenté (fibres très ouvertes), on augmente alors l'avance d'un cran.

A ce stade, les vitesses des tapis N°1 et N°2 doivent maintenant être ajustées afin qu'ils fonctionnent durant les 3 / 4 à 7 / 8 du temps, soit peu d'arrêts.

Le tablier vertical à pointes N°2 °est réglé par potentiomètre à une vitesse relativement faible par rapport aux deux tabliers égalisateurs N°3 et N°4. Cette différence de vitesse provoque une nouvelle ouvraison des fibres qui retombent dans le bas de la chargeuse. La matière à ce stade est alors assez divisée en flocons, et transportée vers la cheminée° 6 par le tapis N°4. La taille des flocons doit être suffisamment homogène à ce stade pour apporter une bonne régularité dans la cheminée.

2.5.4.3 Cheminée : Réglage du volet de profondeur

Une tôle vibrante, réglable sur une distance de 70 mm (et amovible) permet de régler la profondeur de la cheminée, donc d'en augmenter le volume initial et donc le poids de fibres transportées. La tôle vibre afin d'assurer la progression de la matière vers le bas. Il s'agit de trouver le bon compromis entre vitesse de descente des fibres dans la cheminée, maîtrise du tassement des fibres dans la cheminée pour ne pas re-densifier trop la matière et risquer un blocage des cylindres. Il s'avère que la profondeur minimum fonctionne correctement. 13,5 mm avec les différentes densités obtenues de 0,90 à 1,80 kg/m, sur 45 cm de largeur alimentée en sortie de cheminée. Il est possible d'augmenter jusqu'à 20.5 mm, ce qui permet une augmentation de 50% supplémentaire du poids de fibres. Cependant, compte tenu de la vitesse ensuite limitée de la carde (20m/min) au laboratoire, sauf blocage, la cheminée doit toujours être en capacité d'alimenter la carde. Par contre cette option est intéressante pour aller sur la carde pneumatique où la demande en fibres est toujours importante.

Un volet de tassement alternatif est présent dans la cheminée avant les deux couples de cylindres N°5. Ce volet permet l'avance de la matière et une bonne alimentation des cylindres 4. Ce volet posait problème avec les fibres naturelles, car les fibres se bloquaient encore à son niveau et créaient donc des irrégularités. On a modifié la course de basculement de ce volet afin qu'à l'horizontal il s'aligne sur le bec du carter de protection du rouleau d'entraînement de la matière, et non plus en arrière. La bielle de commande de ce volet a été raccourcie pour rectifier le problème constaté et réduire le compactage des fibres.

Ce réglage de volume est le seul réglage de production de la carde avec la régulation de l'avance des cylindres d'entrée synchronisés avec les alimentaires de cheminée. IL faut s'assurer que les fibres, alimentant la cheminée, soient au niveau supérieur de la fenêtre, ce niveau est proche de la cellule N°6 qui gère l'arrêt ou la mise en route du tablier à pointes N°2.

La vitesse des rouleaux de cheminée a été réduite dans le rapport de 26 à 34 (dents) correspondant approximativement à la vitesse des alimentaires.

Précaution importante : Lorsque les cylindres alimentaires de carde sont arrêtés, la chargeuse doit être stoppée pour éviter le tassement des fibres dans la cheminée par le volet, qui peut provoquer augmentation du poids alimenté sans cette zone, avec des conséquences importantes sur le fonctionnement de la carde et la qualité du voile.

2.5.4.4 Tabliers à pointes N°3 et N°4

Leur rotation rapide améliore l'ouvraison, c'est ce que l'on que l'on constate usuellement par la fenêtre de la cheminée. On laisse ces tabliers fonctionner même lorsque le tablier d'alimentation et le tablier vertical s'arrêtent.

Chargeuse : Réglages possibles :	mini	maxi
Alimentation en fibre	en rouleau d'ouvreuse	en vrac
Tapis alimentation	3 dents	4 dents (+ course tige cliquet)
Tapis vertical à pointes	Potard sur 2 (lent)	
Tapis détacheur	Potard sur 8 (rapide)	
Tapis délivreur	Potard sur 8 (rapide)	
Tôle vibrante (course)	13.5 mm	20,5 mm

Tableau 5 réglage de la chargeuse

2.5.5 Amélioration à prévoir à l'alimentation de la carde :

La tôle inclinable entre les rouleaux délivreurs et les cylindres d'entrée de carde n'est pas adéquate. Quelque soit sa position, les fibres ralentissent dans ce passage et à la sortie des rouleaux le matelas se décompresse, augmente de volume jusqu'à provoquer un blocage de la matière. Ce phénomène est très augmenté avec une matière comportant des zones trop

humides et donc légèrement collantes. La vitesse des fibres n'est pas régulière et oblige à une surveillance permanente par un opérateur complémentaire.

L'idéal serait d'installer un tablier de transport horizontal de la matière avec un système de mesure de poids permettant une régulation inexistante aujourd'hui de la vitesse des alimentaires de la carde. Ainsi les variations de densité seraient compensées par une régulation dite « courte » car agissant pratiquement immédiatement. L'ensemble cylindres alimentaires+Tablier+Rouleaux d'appel est donc synchronisé pour alimenter en poids constant la carde et apporter la matière sans plis et donc avec une densité constante des cylindres d'appel vers les cylindres alimentaires. Cette modification couteuse dans sa totalité car demandant du matériel spécifique (palier peseur notamment), est maintenant à l'étude au CETELOR.

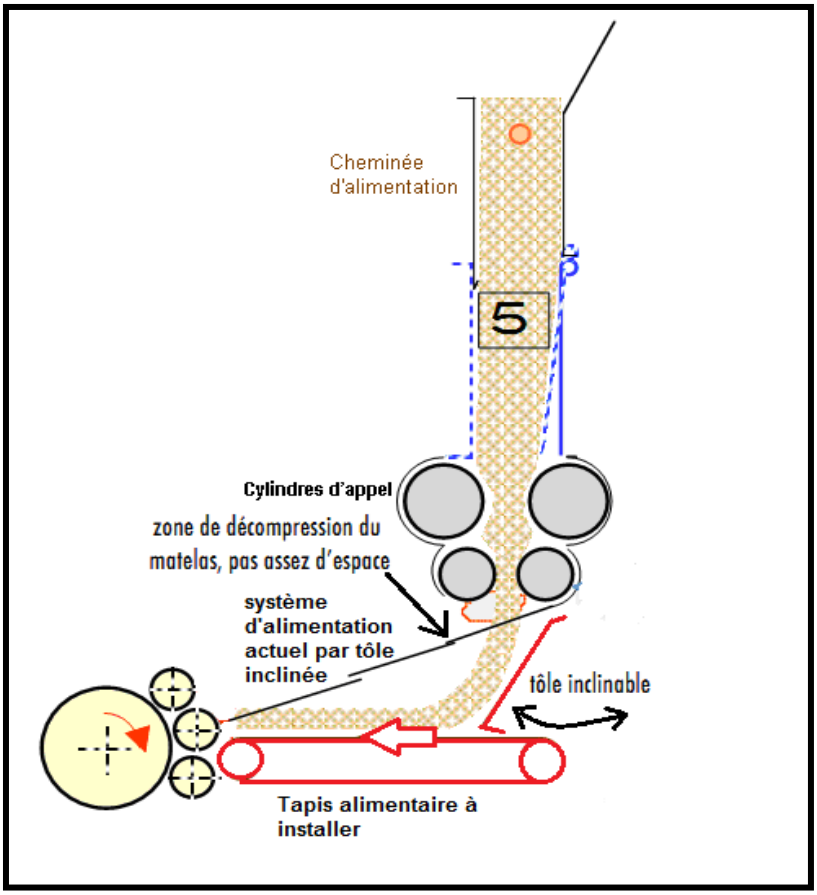


Figure 19 Schéma de la cheminée d'alimentation de la carde

3 PREPARATION DE LA NAPPE : LA CARDE A CYLINDRES

3.1 Notions de formation des voiles

On appelle voile, un enchevêtrement de fibres (préalablement individualisées) ayant suffisamment de cohésion pour être transporté jusqu'à l'étape de consolidation proprement dite. Le voile est généralement très léger, de 10 à 50 g/m². Les fibres peuvent être disposées de manière privilégiée dans le sens machine ou de manière plus aléatoire de façon à obtenir des résistances à la déchirure proches dans les deux directions du voile (sens machine et sens travers) et s'approcher d'un matériau isotrope. Un bon voile doit être homogène, d'épaisseur uniforme, sans trous, sans fibres trop enchevêtrées sous la forme de boutons. Pour une bonne cohésion de voile, plusieurs facteurs influencent la qualité et la résistance du voile :

Paramètre fibres	Longueur
	Finesse
	Frisure
	Propreté
	Elasticité de la fibre
	Electricité statique
	Longueur
Préparation et nettoyage de la fibre,	Mode de formation de voile
	Mode de transport du voile

Tableau 6 Facteurs d'influence sur la qualité de voile de carde

Il existe de nombreux systèmes de formation de voiles ou de nontissés choisis en fonction de la composition chimiques des fibres et de leurs caractéristiques. Pour pouvoir travailler les fibres naturelles, trois grandes catégories de système de formation de voile sont possibles et mises en œuvre en fonction des fibres utilisées et des produits à réaliser :

3.1.1 Voie humide ou voie papetière :

Les fibres sont véhiculées par de l'eau pour former un voile consolidé chimiquement et séché. Ce procédé est en principe réservé pour la réalisation de voiles légers. Une masse surfacique (ou spécifique) de 200g/m² peut être atteinte. On utilise en principe des fibres courtes (<1mm).

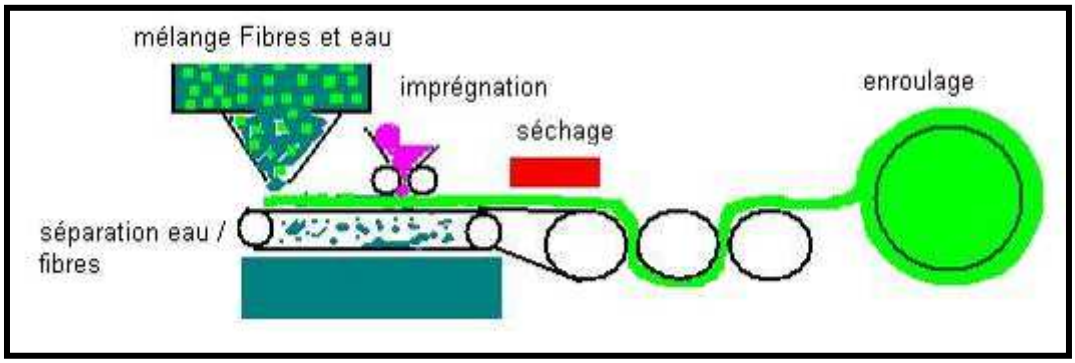


Figure 20 Principe de formation et de consolidation d'un voile nontissé voie humide

3.1.2 Voie pneumatique (ou Airlaid):

La matière est ouverte par un ou une série de cylindres à pointes et les fibres sont projetées ou déposées par un flux d'air sur un tapis ou un tambour rotatif pour former un matelas de 1 à 60 cm en fonction de la technologie. Une masse très importante de fibres peut être déposée. On parlera alors de matelas et non de voile de fibres. Suivant le modèle de machine, on pourra travailler des fibres très courtes (inférieures à 1 mm) ou longues (jusqu'à 100 mm).

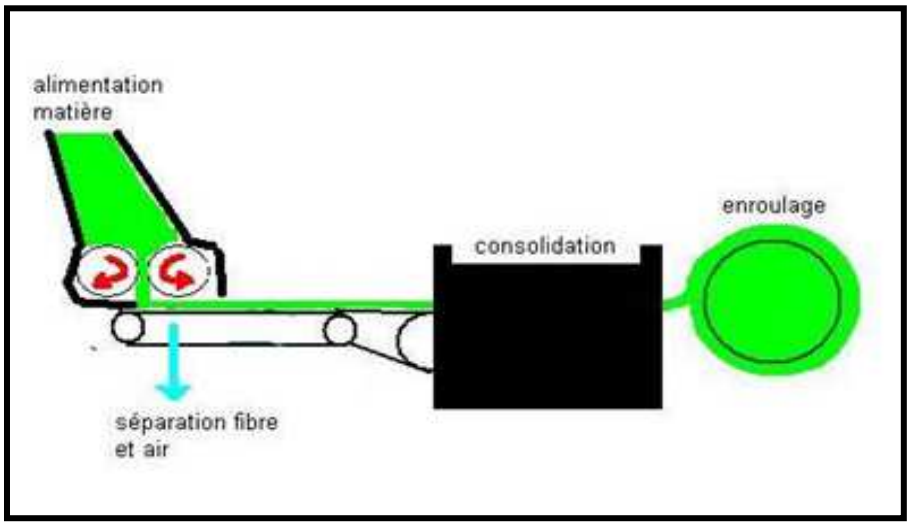


Figure 21 Principe d'un nappage de fibre par voie pneumatique (Airlaid)

3.1.3 Voie cardée :

Il existe deux grands types de machines pour le travail des fibres par la voie dite « cardée » : On trouve tout d'abord les cardes pour fibres courtes que l'on nomme les carde à chapeaux (pour la filature coton) où le cardage est réalisé entre un cylindre et un point cardant fixe. Les systèmes de carde à chapeaux[5] sont quasiment uniquement utilisés pour la filature de fibres courtes, types coton ou fibres cotonisées (longueur environ de minimum 20 mm à 50 maximum). Ensuite, l'autre catégorie est représentée par les cardes pour fibres longues supérieures (environ 40 mm minimum), qui utilisent des cylindres et donc adaptée pour la filature laine ou la préparation de nontissés.

Dans la catégorie des cardes à cylindres, on trouve une subdivision: La carde de filature qui produit un voile de sortie ramassé en un ruban prêt pour la filature et les cardes spécifiques nontissés qui réalisent uniquement le voile.

Les dispositifs disponibles au CETELOR sont représentés en gras sur le schéma ci-dessous.

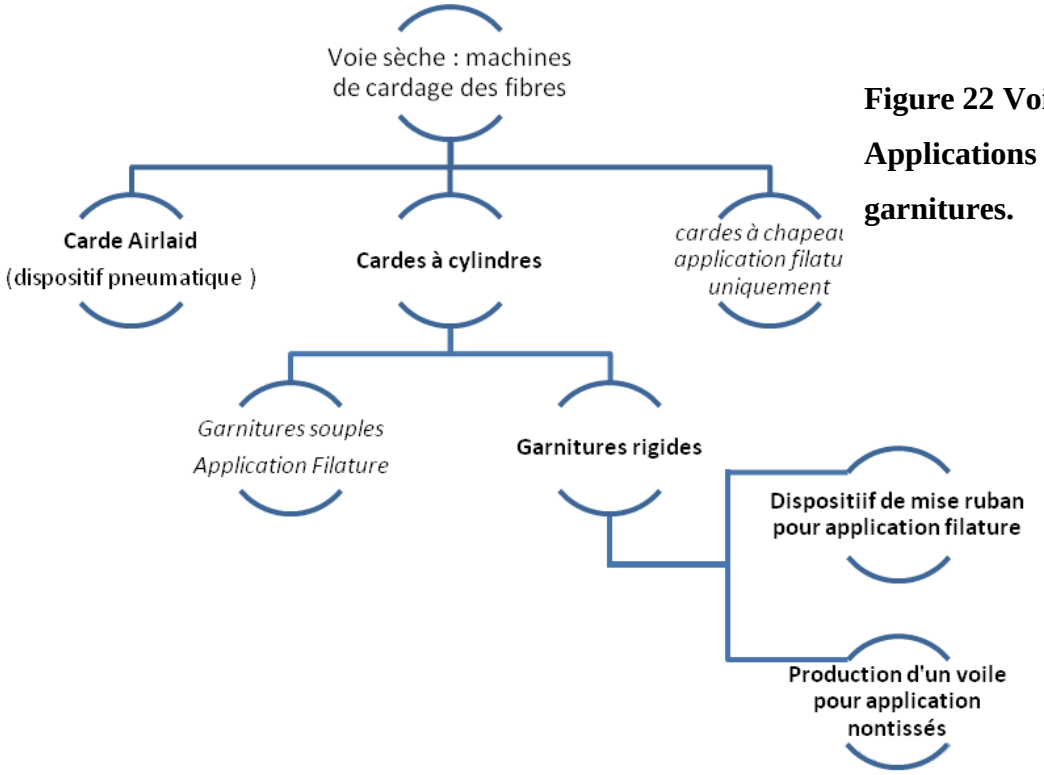


Figure 22 Voie sèche: Applications et système de garnitures.

[5] V. Dorugade, R.D. Parsi, L.S. Girase, **Influence of card to flats settings in the improvement of yarn quality, Journal of The Textile Institute**, Volume 104, Issue 4, pages 370-374 (2013)

La carde de Cetelor est une carde de laboratoire capable de réaliser ces deux opérations puisqu'elle dispose d'un module adaptable qui réunit le voile en un ruban. Ce dispositif nommé «coïler» est composé d'un entonnoir pour former le ruban et de deux petits cylindres tournant pour extraire le ruban réalisé (figure ci-dessous).

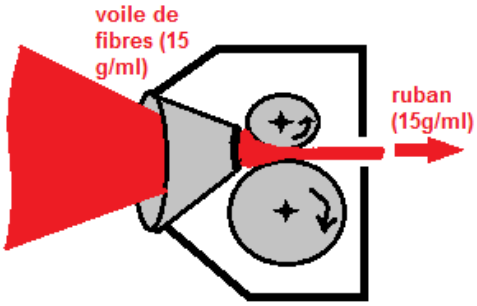


Figure 23 Représentation du dispositif de mise en ruban « coïler »

3.1.4 Principe du cardage et du débourrage:

Les fibres sont travaillées mécaniquement par des cylindres garnis de pointes ou aiguilles implantées sur un textile multicouches (tissus+ feutre ou caoutchouc) que l'on nomme garniture souple, par des dents métalliques (garnitures dites rigides) en forme de scies enroulées en hélice autour du cylindre et inclinées dans le sens de la rotation. Le principe du cardage consiste à mettre face à face les rangées d'aiguilles ou dents écartées d'environ 1mm. Les cardes modernes sont en principes garnies de garnitures rigides qui sont plus performantes à hautes vitesses. Les garnitures souples se retrouvent encore dans les cardes pour travailler des fibres sensibles comme la laine et les chapeaux des cardes de filature coton et le « volant » dans la carde nontissé.

Ces aiguilles ou dents sont disposées sur les cylindres de la carde. Ces cylindres sont animés d'un mouvement en rotation et opposés les uns par rapport aux autres. Les cardes disposent de zones de cardage de zone de débourrage et d'une zone de peignage. Plus la surface de cardage est importante, plus la carde peut être productive.

En passant dans la zone de cardage, les fibres sont prélevées par les aiguilles et démêlées et également redressées et étirées. Le cardage final ne s'effectue pas en une seule opération. Comme les fibres sont encore entremêlées par petits paquets à l'entrée de la carde, il est nécessaire de faire plusieurs cardages successifs avec des garnitures de plus en plus fines. Le

poids des fibres travaillées diminuent en conséquence, jusqu'au moment théorique (si la garniture est bien adaptée) où la dent ne transporte plus qu'une fibre individuelle.

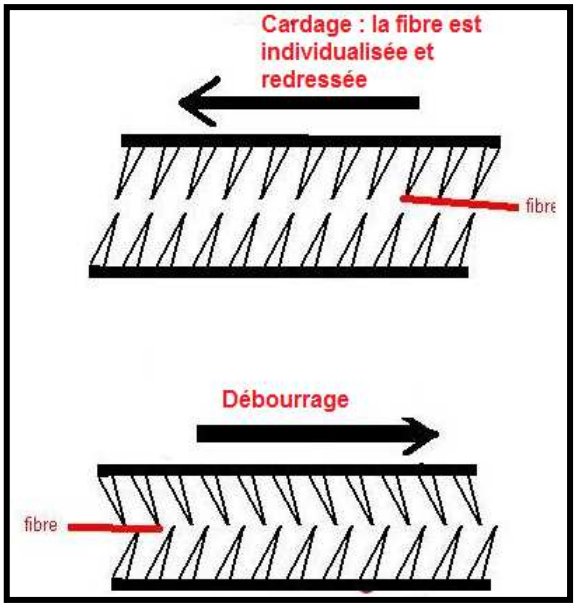


Figure 24 Principe du cardage et du débourrage

Les fibres élastiques, comme la laine et dans une moindre mesure le coton et les fibres chimiques type polyester ou polypropylène par exemple, ne vont pas rester parallèles mais vont de nouveau s'enchevêtrer pour former un voile avec une certaine tenue. Ce phénomène ne va pas se produire avec les fibres rigides choisies pour la réalisation de nos biocomposites. Ces fibres vont en effet rester bien parallèles et très individualisées. Donc pour avoir un voile avec une certaine tenue, on peut s'aider d'un organe nommé brouilleur (ou randomiseur) qui est un cylindre tournant à vitesse plus lente et qui comme son nom l'indique, va forcer les fibres à se ré-enchevêtrer et donc à gagner en poids de voile et résistance à la déchirure.

Les zones qui ne sont pas des zones de cardage sur la carde sont les zones de débourrage. Ces zones vont dégager les surplus de fibres des cylindres cardants et faire ressortir les fibres qui sont descendues profondément dans les garnitures. Les débourreurs vont éviter les encrassements en évitant de trop charger les cylindres cardants et participant à la bonne répartition des fibres. Sur la figure ci-dessous sont représentés les principes de ces cylindres cardants et débourreurs que l'on trouve sur une les cardes à cylindres.

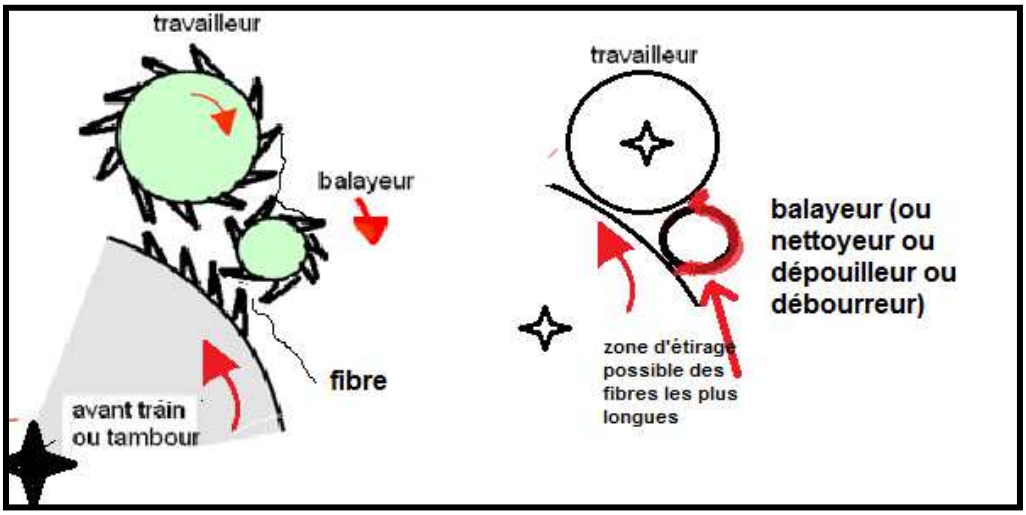


Figure 24 Schéma d'un groupe travailleur/ débourreur monté sur tambour

3.2 Description de la carde à cylindre

La carde du CETELOR est une carde pilote, c'est-à-dire que les organes essentiels de cette machine ont les dimensions normales d'une machine de production, mais seul la largeur est diminuée. Ainsi tous les organes ont la même largeur (= arasement) à 50 cm. Cette carde permet donc de mettre au point des réglages qui pourront ensuite être transférés vers l'industrie. La carde est dite double car elle possède un tambour d'avant train qui opère à un cardage de préparation des fibres avant le cardage plus fin réalisé avec le tambour (principal).

La carde est constituée des organes suivants :

D'un système de trois cylindres d'alimentation des fibres en provenance de la cheminée d'alimentation en fibres. Ces 3 cylindres alimentaires sont animés d'un mouvement rotatif lent dont la vitesse est choisie par l'opérateur mais qui n'est pas régulée. Nous avions vu dans la partie précédente l'intérêt qu'il y aurait à disposer d'une régulation. Ces cylindres vont envoyer les fibres au briseur qui tourne très rapidement. Ce cylindre est parfois aussi appelé dans le langage textile ' rouletabosse'. Avant d'être complètement libérées des cylindres alimentaires, les fibres sont redressées et légèrement étirées entre le briseur et les cylindres alimentaires. Ce phénomène s'observe aussi entre le briseur et l'avant train. A ce stade, il convient donc de bien choisir la vitesse de rotation du briseur pour ne pas détériorer outre mesure les fibres.

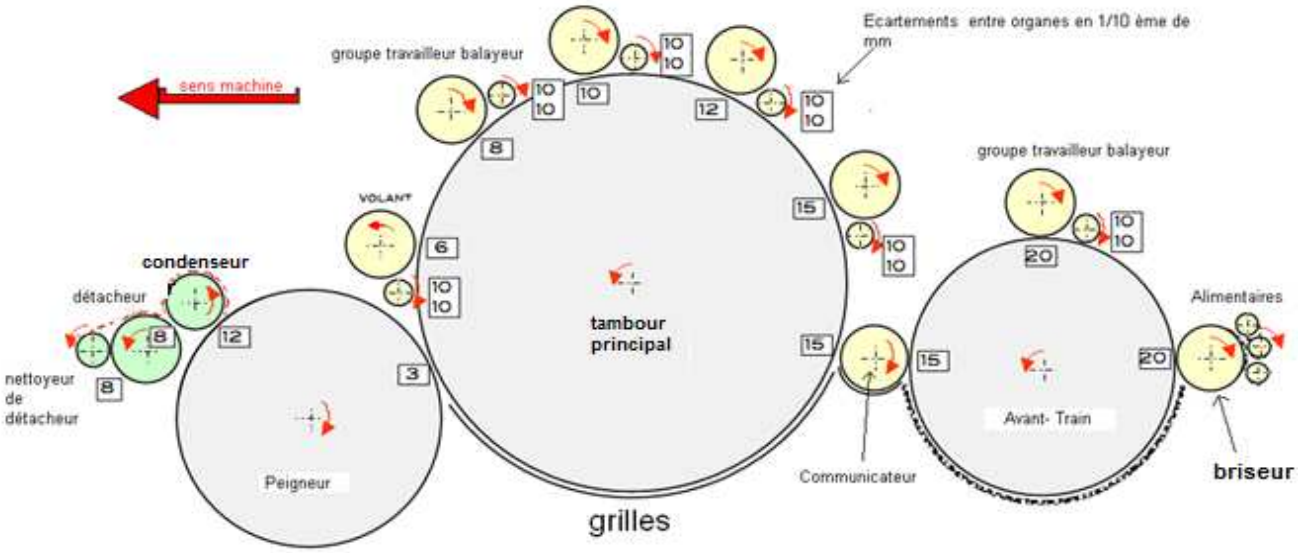


Figure 25 Schéma de principe de la carde

Les fibres se trouvant sur le briseur vont être transférées au cylindre dit d'avant-train de la carde avec une quantité à peu près constante de fibres. Un premier point (zone) cardant est réalisé entre l'avant-train et le cylindre travailleur du premier groupe cardant (le travailleur est le plus grand cylindre, tandis que le petit cylindre constitue le balayeur du groupe cardant balayeur / travailleur). Ces organes vont assurer une première ouvraison et un premier cardage léger de la matière tout en protégeant les garnitures des organes suivants. Le travailleur tourne en sens inverse du tambour d'avant train et plus doucement. Les cylindres sont relativement écartés à 20 1/10 mm (soit 2 mm) car à ce stade les fibres sont encore entremêlées. Le balayeur (qui peut aussi être appelé dépouilleur) va lui débourrer le travailleur. Ces organes vont opérer un nettoyage grossier, un mélange intime et un début de parallélisation des fibres de manière à bien préparer les fibres avant le cardage sur le tambour principal. Ainsi les fibres passe de tambour d'avant train au travailleur, puis au balayeur et retourne ensuite sur l'avant train (figure 24 page précédente)

Ensuite, les fibres sont transférées sur le grand tambour grâce au communicateur qui est un petit cylindre avec une auge (plaque de forme courbe) située sous cet organe et empêchant que les fibres ne tombent de la carde.

Le tambour principal (ou grand tambour) dispose de garnitures d'acier en forme de dents plus fines et plus rapprochées que l'avant train et avec un angle d'attaque plus agressif. Sur ce cylindres sont positionnées 4 groupes de travailleurs / balayeurs afin d'assurer le cardage complet de la fibre. Les débourreurs nettoient les travailleurs et le tambour principal reprend les fibres sur les travailleurs. Sur la figure ci-dessous, nous avons schématisé le principe du

système de cardage par balayeur et travailleur. Ces balayeurs ont un petit diamètre qui ne permet pas de traiter les fibres longues au-delà de 150 mm car les fibres entoureraient complètement la partie supérieure du cylindre. La queue de fibre peut alors être pincée au niveau du point de contact balayeur/travailleur et la tête de fibre pincée au niveau du point de contact balayeur/tambour. Avec une vitesse plus rapide du balayeur, on crée un étirage qui peut entrainer la rupture des fibres, surtout avec des fibres peu élastiques. En rouge sur le schéma de droite est représentée la partie de périmètre libre entre 2 cylindres. Cette distance détermine la longueur maximum de la fibre avant étirage. Pour éviter qu'une fibre longue soit pincée par ses extrémités et étirée jusqu'à rupture, on peut fortement diminuer la vitesse du balayeur, mais le travail de parallélisation et de redressement des fibres sera moins efficace.

On peut noter que ce système de cardage avec balayeur et travailleur ne réalise théoriquement pas de nettoyage des fibres, puisque toute la matière est reprise par le tambour. Dans la pratique, la carde réalise quand même un nettoyage et on génère une petite quantité de déchet par 2 phénomènes : Tout d'abord, le travail rapide des fibres va créer une quantité de poussières qui vont se mettre en suspension et dégager de la carde. Ensuite, les petits déchets de fibres (anas, bois, grosses poussières et fibres très courtes) vont être en partie évacués par gravitée ou projection à travers le bain de carde (grille sous le tambour principal) ou tomber entre deux cylindres (en passant du tambour ou peigneur par exemple).

La carde du CETELOR possède un « volant » (parfois nommé « fancy »). C'est un cylindre réglé très près du grand tambour. La garniture du volant est souple, c'est-à-dire qu'elle est réalisée à partir de fils métalliques rigides de plusieurs centimètres de longueur et fixées sur une bande de caoutchouc. Le réglage permet à cette garniture de pénétrer légèrement, de 1mm environ, la garniture du tambour de façon à faire ressortir les fibres coincées dans le fond de la garniture du tambour principal. Cet organe sera démonté pour les essais avec les fibres végétales pour des raisons d'encrassement trop rapide et d'utilité finalement limitée pour une machine de laboratoire. L'idée envisagée plus tard sera de transformer cet organe en un travailleur, c'est-à-dire en ralentissant sa vitesse, en remplaçant sa garniture par une garniture rigide et en inversant son sens de rotation.

Le peigneur collecte les fibres en surface du tambour, grâce à la différence de vitesse entre le peigneur et le tambour et à la forme plus agressive et de la densité plus importante et donc plus accrocheuse des dents de garnitures du peigneur. A ce stade, les fibres sont bien individualisées et il se forme donc un voile entre le peigneur et le tambour.

Le condenseur de cette carde a deux fonctions : il doit consolider les fibres en les enchevêtrant pour donner de la cohésion et augmenter le poids de voile puisqu'il a une vitesse linéaire inférieure à celle du peigneur. Sur les cardes industrielles, on trouve en principe deux condenseurs à la suite ou deux brouilleurs. Notre condenseur pourrait ainsi être aussi nommé brouilleur/condenseur.

Le détacheur de peigne est un cylindre monté avec une garniture de dents en forme de triangle isocèle qui permet de détacher le voile du cylindre précédant sans le détériorer.

Enfin, le cylindre nettoyeur assure la propreté du cylindre détacheur pour éviter les trous voir les casses de voile.

A ce stade du cardage, les opérations principales du process de traitement des fibres sont donc principalement[6] :

- Démêlage et individualisation des fibres en complément de l'ouvreuse
- Nettoyage complémentaire de la matière
- Homogénéisation de la matière (surtout dans le cas d'un mélange)
- Redressement des fibres
- Etirage (Diminution progressive de la masse linéaire)
- Parallélisation des fibres
- Brouillage éventuel des fibres
- Condenseur : Augmentation du poids de voile
- Présentation des fibres en un voile (ou ruban) de qualité[7]

Les Effets liés à ces opérations sont les suivants :

- Ouverture complémentaire de la matière

---

[6] J.A. Foulk, D.E. Akin,R.B. **Dodd,Processability of flax plant stalks into functional bast fibers**, Composite Interfaces, 15:2-3, 147-168 (2008)

[7] Qian Lin, **A study of the drafting force in roller drafting and its influence on sliver irregularity**, The Journal of The Textile Institute, Vol. 102, No. 11, 994–1001 (November 2011)

- Défibrillation des fibres vers la fibre individuelle
- Diminution de la longueur des fibres
- Production de poussières

3.2.1 Opération et modifications réalisées sur la carde pour assurer un travail possible des fibres libériennes :

Pour pouvoir travailler les fibres, plusieurs longues mises au point ont été nécessaires.

Tout d'abord les réglages des écartements de cylindres : On utilise des calibres (fines lames métalliques de différentes épaisseurs) qui sont glissées entre les garnitures supportées par les cylindres pour en fixer l'écartement. Ensuite, on resserre les vis de positionnement des paliers supportant les cylindres en veillant à ne pas perdre le réglage.

Lors des premiers essais, seuls les fibres les plus fines de lin étaient cardables, c'est-à-dire qu'un voile de qualité sortait de la machine. Les autres fibres étaient trop dégradées par la machine. L'ensemble des écartements a été vérifié. Ces écartements ont été augmentés afin de pouvoir mieux travailler les fibres libériennes dont le diamètre est plus important que les fibres polyester classiques ou les fibres de coton. Pour la préparation des renforts avec les fibres sélectionnées, nous avons progressivement augmenté l'ensemble des écartements de façon à ce que les fibres les plus grosses ressortent de la machine. La méthode utilisée pour trouver les bons écartements a été la suivante : les écartements initiaux faibles ont été progressivement augmentés (au double de leur valeur en finalité) de l'entrée à la sortie de la carde, jusqu'à ce que les fibres puissent ressortir de la carde sans être broyées. Ces écartements étant relativement pénibles à modifier sur cette machine sont ensuite laissés fixes et l'on se concentre sur le réglage des vitesses des organes. En réalité, il n'a pas été possible de trouver un réglage correct pour permettre de faire ressortir les fibres intactes. La cause en est la vitesse trop importante de certains organes ainsi que la présence de garnitures beaucoup trop fines et serrées pour les fibres testées. Il a donc fallu proceder au démontage et au changement de nouvelles garnitures plus adaptées sur les principaux organes de la carde

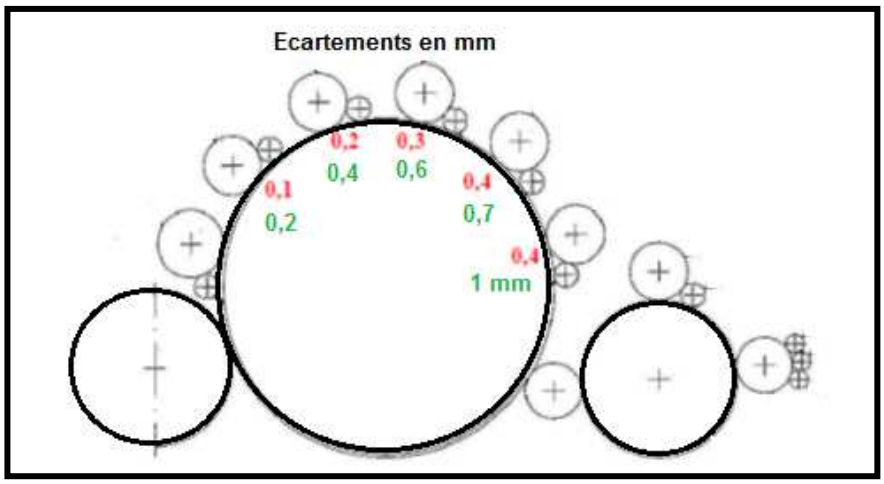


Figure 26 Ecartements initiaux de la carde et augmentés (en vert)

- Changement des garnitures :

Les organes posant le plus de problèmes sont les organes qui sont montés avec une garniture beaucoup trop dense et fine, c'est à dire les garnitures du grand tambour, du peigneur et des groupes balayeurs/travailleurs ont été modifiées. La hauteur de dents est augmentée et la population des dents a été diminuée de 30%. Cette opération a été réalisée par le fournisseur de garniture et permettra de travailler en sollicitant beaucoup moins la résistance mécanique des fibres envisagées.

- Réglage des vitesses :

Les commandes ne sont pas flexibles, Il manque des moyens de changement des rapports entre organes, comme les vitesses des communicateurs ou des travailleurs par rapport au tambour et l'avant-train. L'idéal serait de disposer de moteurs à commande variable pour chaque organe. Nous avons cherché le compromis. Cependant en changeant les pignons il nous a été possible de fortement diminuer la vitesse de certains organes comme le tambour principal et la vitesse relative des travailleurs et balayeurs.

- Réglages des travailleurs :

Les travailleurs ont des rapports de cardage progressifs et la différence des vitesses entre le grand tambour et les travailleurs est de plus en plus grande de l'entrée vers la sortie, de telle sorte que les travailleurs ont une vitesse propre de plus en plus lente. Un défaut majeur de cette machine est que la commande des travailleurs est en réalité fixe par rapport à la vitesse

du tambour. En d'autres termes, la vitesse de chaque travailleur est certes réglable, mais elle n'est pas indexée à la vitesse globale de la ligne et dans tous les cas relativement rapide. Compte tenu que la machine d'aiguilletage demande une vitesse minimum relativement importante pour ne pas caler, nous avons été obligés de fixer la vitesse de travail de la carde à sa vitesse maximum (20 m/min). Les travailleurs ont donc été accélérés au mieux afin de limiter le cardage qui sera suffisant avec les 5 travailleurs au-dessus du tambour principal. Par la suite nous avons démonté le premier travailleur, car le travail des fibres semble suffisant avec 4 groupes travailleurs/balayeur et permet donc en principe de mieux préserver les caractéristiques mécaniques.

- Problème pendant le cardage :

La ventilation interne provoque des bouchons de fibres latéralement, c'est-à-dire que des paquets de fibres s'entremêlent très fortement et peuvent aboutir au blocage de certains organes comme en particulier le tambour contre le communicateur ou le communicateur contre l'avant-train.

Pour pouvoir travailler, nous avons installé des systèmes d'aspirations réalisés à partir d'un aspirateur industriel, sur un coté du grand tambour et sur le côté du peigneur pour permettre un dégagement des bouchons de fibres. Un système de soufflage constitué d'un réseau de tuyau d'air comprimé placé judicieusement agit en préventif et permet de ramener les fibres ressortant du tambour vers le centre du tambour. Une surveillance permanente et un nettoyage manuel régulier est également nécessaire.

- Réglage de l'avant train :

Le cylindre d'avant train souffre d'une vitesse très élevée périphérique par rapport à celle du tambour : (voir tableaux de vitesse A (vitesses de base) et B (vitesses modifiées)). Cette vitesse trop élevée est inadaptée et dégrade les fibres. Cela sera particulièrement visible avec les fibres plus faibles en cisaillement comme le bambou. On va retrouver alors beaucoup de fibres cassées et poussières sous la machine. Le problème est que là aussi on ne peut pas agir directement via un automate puisque la vitesse de cet avant-train est prise sur l'axe du tambour. Il faudra réaliser une poulie spéciale d'un diamètre inférieur à monter sur l'avant-train. Cette poulie sert également de commande au communicateur et donc il faudra également réadapter la vitesse de cet organe. Il apparaît qu'en montant une poulie de ø 400

mm sur le tambour et en maintenant la poulie de ø 500 mm sur l'avant-train, on modifie le rapport entre ces deux organes dans le bon sens.

Cette amélioration a été réalisée pour permettre donc une réduction de la plus basse vitesse de l'avant-train par le changement de la poulie d'avant train.

- Réglage de la vitesse de tambour principal :

Le tambour principal était initialement réglé à une vitesse de 180 t/min. Cette vitesse que l'on retrouve sur les lignes industrielles, est bien adaptée pour le travail en production de fibres chimiques type polyester adaptée au cardage. Suite au changement des garnitures et pour les fibres naturelles autres que le coton qui sont donc moins souples et plus fragiles, cette vitesse est trop rapide et nous avons pu modifier cette vitesse en reprogrammant les automates et en la diminuant de plus de 40%.

- Réglage du peigneur :

Le peigneur détache les fibres du tambour. Plus la vitesse différentielle est importante plus le peigneur sera capable de prélever de la matière et de réaliser un voile avec de la cohésion et un poids suffisant. Il s'est avéré que ce peigneur tournait beaucoup trop doucement quelque soit les réglages possibles au pupitre de commande. Nous avons reprogrammé l'automate de cet organe de façon à ne plus travailler dans les vitesses basses mais uniquement dans une plage de vitesse jusqu' à 3 fois plus rapide par rapport à la vitesse initiale. De cette manière, le peigneur peut se charger beaucoup plus efficacement en fibres. Le tambour est donc bien déchargé, on risque moins de bourrage, la qualité s'améliore et l'on charge plus le peigneur. La vitesse est donc passée pour une vitesse de ligne prise à l'avant peigneur de 20 m /min à 30 m/mn environ. Cette vitesse permet une augmentation de production de la carde sans modifier les vitesses du tambour, de l'avant-train et des entrées parce que cela réduira le recyclage des fibres au tambour et leur chute sous le tambour. Les organes suivants devront être réglés sur cette vitesse. Avec ces réglages, on atteint des poids déjà satisfaisant de voile entre 14 et 20g/m² en fonction des fibres.

- Réglage du cylindre condenseur (ou brouilleur-condenseur)

Si l'on veut augmenter le poids du matelas avant l'aiguilleteuse ou tout simplement cadence de production, on peut utiliser le cylindre brouilleur/condenseur qui permet donc de ralentir la vitesse de sortie du voile tout en augmentant son poids. L'idéal serait de pouvoir doubler le poids de voile. Cette opération n'est pas possible pour l'instant car on arrive à une vitesse seulement d'environ 10 % inférieure, ce qui est le strict minimum. Il faudrait que la vitesse du peigneur soit 1,5 à 2,5 fois supérieure à la vitesse du cylindre n° 17 pour avoir un voile beaucoup plus lourd.

Par contre ce cylindre assure quand même bien le rôle de brouilleur, car les fibres gagnent suffisamment de cohésion avec ce réglage pour être transportées hors de la carde en formant un voile dont l'aspect laisse à penser qu'il est de qualité pour être ensuite être transporté par l'étaleur nappeur.

La vitesse générale N°17 et N°18 de ces cylindres s'avère être inchangeable par la commande de la machine, bien que commandée par un moteur indépendant (sauf en modifiant directement les automates dans l'armoire électrique de la machine). Le réglage de la qualité se fait donc en jouant sur la vitesse du peigneur.

- Réglages des cylindres délivreurs 18-19.

Les défauts de voile type « carotte » se produisent au transfert entre 17 et 18. (Figure ci-dessous). Ce défaut est un enchevêtrement de fibres qui se produit car les vitesses des cylindres sont trop faibles par rapport au cylindre brouilleur condenseur et que ces cylindres sont montés avec une garniture avec un angle d'attaque neutre (forme isocèle). La « carotte » en formation constitue un défaut périodique sur le voile qu'il faut absolument éviter pour garantir la qualité et aussi la sécurité puisque ce défaut peut entrainer un bourrage du nappeur.

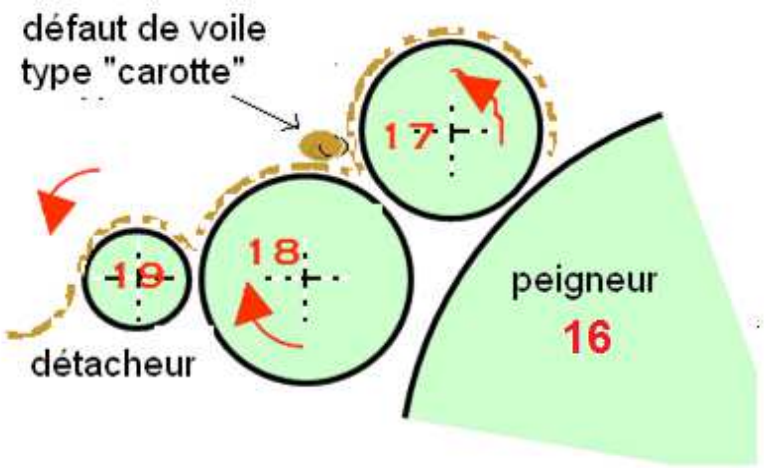


Figure 27 Schéma de la sortie de carde et apparition d'un défaut type carotte

Pour résoudre ce problème, des pignons spécifiques ont été commandés et montés pour donc avoir une vitesse légèrement supérieure avec Vitesse 19 > Vitesse 18 > Vitesse 17 > Vitesse 16. Le défaut de « carotte » réapparait alors beaucoup plus tardivement et très lentement sans occasionner d'arrêt machine et seulement lorsque que l'on travaille les fibres les plus longues.

Tous les premiers essais ont été réalisés avec le condenseur. Mais suite à des améliorations complémentaires réalisées sur la ligne, nous avons pu par la suite utiliser la machine sans ce condenseur. La grande différence est que les fibres seront orientées majoritairement dans le sens de la carde et donc nous disposerons d'un voile de fibres orientées en sortie de carde et non pas d'un voile isotrope.

A ce stade, nous disposons maintenant du voile de carde qui est prêt à être machiné par la machine suivante l'étaleur/nappeur nommé aussi pour simplifier nappeur.

4 ETALEUR / NAPPEUR

4.1 Description

L'étaleur – nappeur ou simplement nappeur est une machine dont la fonction est de superposer les voiles de cardes qui sont très légers en un matelas de masse plus importante prêt à être consolidé en un renfort.

Cette machine est alimentée par le voile via un tapis d'entrée. Les fibres sont ensuite transférées sur le tapis de sortie pas un couple de cylindres délivreurs du chariot de distribution, animés d'un mouvement de va et vient pour déposer la matière en « Z » sur le tapis du groupe de sortie. Ce mouvement alternatif va conditionner la vitesse maximale de toute la ligne.

Cette vitesse maximale a été réglée initialement à sa valeur limite maximale, c'est-à-dire que le chariot est animé d'une vitesse moyenne 20 m/min.

Compte tenu que les poids des voiles en sortie de carde sont relativement faibles et donc qu'il est nécessaire de superposer un nombre important de couches pour obtenir le poids de matelas de fibres en sortie du nappeur, la vitesse de sortie sera fortement diminuée. Cette faible vitesse pourra poser un problème avec la machine suivante, l'aiguilleteuse, car cette machine, également animé d'un mouvement alternatif, a beaucoup d'inertie et n'est pas prévue pour tourner très lentement.

Enfin, pour un bon transfert de voile, il convient de prévoir un léger étirage opéré entre les organes, et donc il est nécessaire de rentrer légèrement moins vite que la vitesse de sortie. En atteignant la vitesse maximale de 20m/min du chariot alternatif du nappeur , on va donc créer cet étirage qui améliore le transport des fibres.

Cette vitesse d'entrée du nappeur conditionne donc également la vitesse du cylindre de sortie de la carde, c'est-à-dire la vitesse linéaire du cylindre détacheur (N°19) de la carde.

Ce qui est très important à prendre en compte sur cette machine c'est que le système de superposition des nappes va modifier l'orientation générale des fibres dans le matériau. Ainsi en sortie de carde, les fibres seront majoritairement orientées dans le sens machine. Par contre

en sortie de nappeur les fibres seront majoritairement orientées perpendiculairement au sens machine.

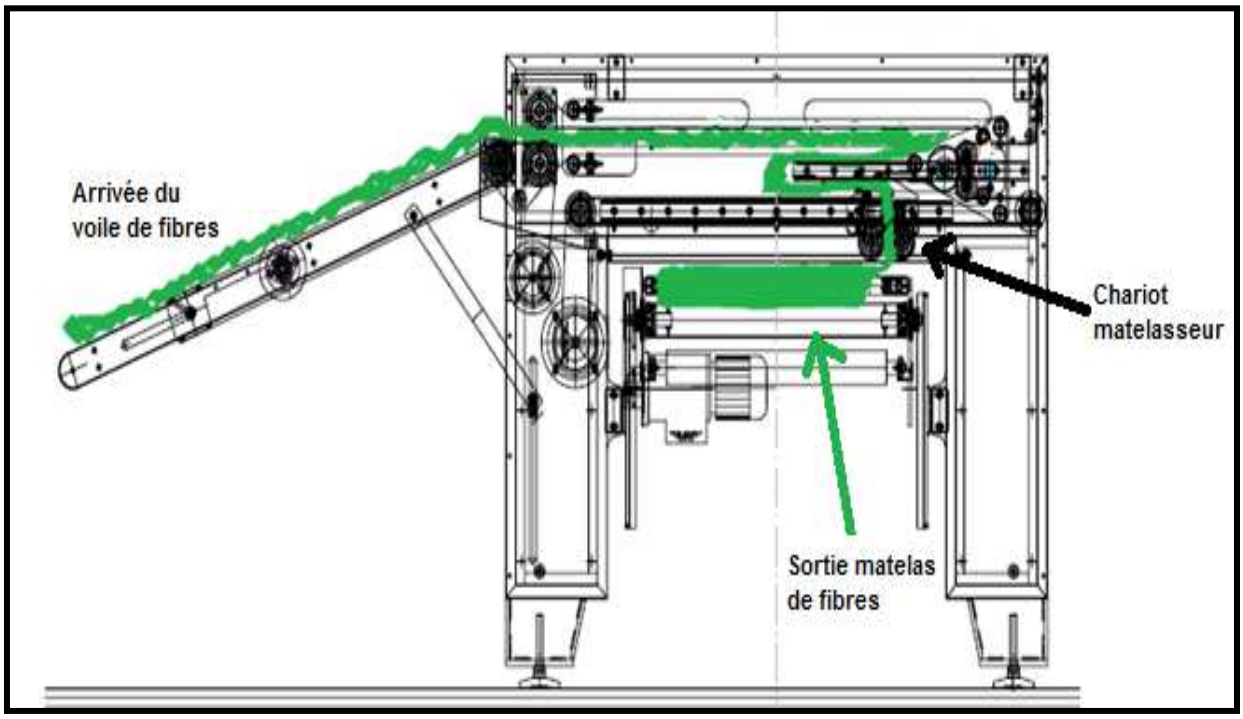


Figure 28 Schéma du nappeur[8]

[8] source modifiée : documentation technique Techno plan

4.2 Réglages possibles sur le nappeur

Le nombre de voiles est une relation entre la largeur nappée, la vitesse de l'entrée du nappeur et la vitesse du tablier de sortie. Le nombre de voile maximum est dépendant de l'épaisseur du voile d'entrée.

Nappeur : Réglages possibles :		
Nombre de couches (N)	>2	<100
Largeur du matelas (L)	>0.2 m	<1.2 m
Vitesse tapis groupe introduction (Ve) (En m/min ou % d'étirage)	-	<20
Vitesse du chariot distributeur (Vc) (En m/min ou % d'étirage)	-	<20
Vitesse du tapis du groupe de sortie (Vs) (En m/min ou % d'étirage)	0.2 m/min	<10m/min (2 couches minimum)

Tableau 7 Nappeur : réglages possibles

4.2.1 Exemple de réglage : de la vitesse du nappeur :

Nombre de couches (N)	40
Largeur du matelas (L)	1,0 m
Vitesse tapis groupe introduction (Ve) (En m/min ou % d'étirage)	19,6 m/min
Vitesse du chariot distributeur (Vc) (En m/min ou % d'étirage)	E1 = 1,02 % et 20 m/min
Vitesse du tapis du groupe de sortie (Vs) (En m/min ou % d'étirage)	E2= 1,1 % et 0,55 m/min

Tableau 8 Exemple de réglage du nappeur

Calcul de la vitesse de chariot : Vc = Ve x Ec

Compte tenu de l'étirage réglé à 2% entre le tapis du groupe d'introduction et le chariot distributeur et en mettant le chariot translateur à 20 m/min pour obtenir la plus grande vitesse possible, la vitesse d'entrée est donc réglée en pratique à **19,6 m /min**.

Calcul de la vitesse de sortie : VS = Vc/L/N*E2

Compte tenu de l'étirage réglé à 1% entre le chariot distributeur et le tapis de sortie, du nombre de voiles distribués et de la largeur de dépose de voile, la vitesse pratique de sortie sera donc **de 0,55 m /min.**

4.2.2 Amélioration sur cette machine :

Cette machine n'est pas conçue au départ pour le transfert des fibres naturelles. En effet, quelques soit les réglages, des fibres se mettent en bourre dans les cylindres et finissent par bloquer les tapis. Le moindre défaut de voile va créer un déchirement du voile dans la machine et on sera obligé de stopper toute la ligne.

Cette machine sera finalement complètement modifiée afin de pouvoir travailler en toute sécurité et de manière fiable sans l'obligation d'une intervention humaine permanente. En particulier les tapis de conduite des fibres seront écartés afin de permettre un passage aisé des fibres sans risques de bourrage.

Malgré tout, d'autres améliorations sont encore possibles. Ainsi, avec les fibres naturelles qui sont légères, on obtient assez rapidement un matelas épais mais insuffisamment dense qui va nous obliger à le tasser manuellement pour obtenir le poids désiré sans détériorer la machine.

L'idéal serait de pouvoir installer un tablier presseur qui compacterait la nappe. Cet équipement aurait également pour avantage de bien préparer le matelas à pénétrer dans la machine suivante qui est l'aiguilleteuse.

5 AIGUILLETAGE

5.1 Description :

5.1.1 Introduction :

L'aiguilletage est un procédé appartenant au domaine de la voie dite sèche[9]. Dans cette famille de process, on applique une consolidation soit mécanique comme l'aiguilletage, soit thermique (thermoliage sur calandre chauffante ou thermobonding dans un four à air traversant, soit encore, par soudure à haute fréquence de fibres thermoplastiques).

Par opposition à la voie sèche, on peut réaliser une consolidation par voie humide en mettant en œuvre des techniques de liage chimique par pulvérisation ou imprégnation de résine avant séchage ou polymérisation.

5.1.2 Principe de l'aiguilletage :

Le principe particulier de l'aiguilletage consiste à créer un enchevêtrement des fibres grâce à des aiguilles munies de crochets (barbes) qui vont traverser le matelas de fibres rentrant dans la machine. L'aiguilletage est une technique qui permet d'utiliser de nombreuses fibres différentes et d'obtenir des matériaux relativement diversifiés qui trouvent des applications dans de nombreux domaines (hygiène, filtration, géotextiles, moquettes, feutres pour automobile…). Ainsi, les fibres classiques pour le textile (laine, coton, polyester), les fibres hautes performances (polyamide, carbone, métal) et les fibres naturelles. (Lin, chanvre, kénaf) peuvent par exemples être utilisées en aiguilletage

En sortie de carde, la gamme de poids théorique commence à 15 g/m² pour un voile unitaire et léger de sortie de carde qui n'aura que très peu de tenue. En pratique, il est possible de préparer des matelas par superpositions de voiles au nappeur à partir de 50 g/m² et jusqu'à un poids égal ou supérieur à 2000 g/m² pour un matériau qui sera alors classé dans la catégorie des aiguilletés lourds.

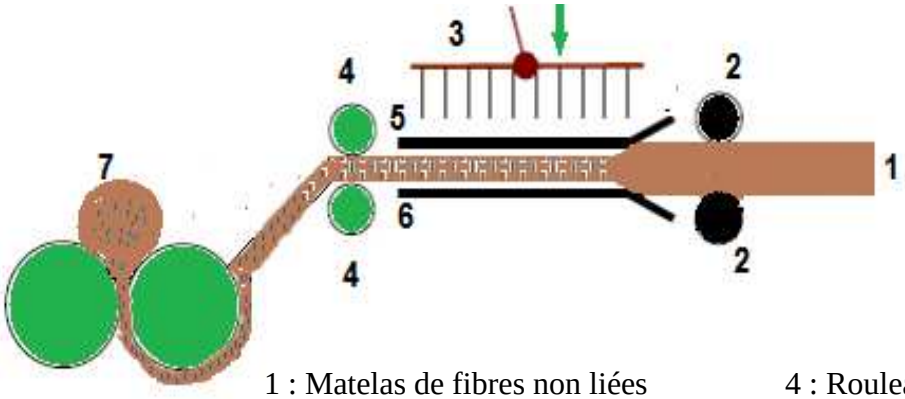
La pénétration des aiguilles dans le matelas va consolider le matelas de fibres pour le rendre transportable, résistant et lui conférer les caractéristiques de renforts pour nos applications biocomposites. Ainsi, une des caractéristiques les plus importantes d'un matelas aiguilleté est

---

[9] J.P.Bruggman, **L'aiguilletage, des produits omniprésents**, L'Industrie Textile, N°1239 (1993) pp 40-44

la densité d'aiguilletage. Cette densité va caractériser la quantité de fibres entrainées et donc enchevêtrées par les aiguilles dans le matelas fibreux. Comme paramètres directement être modifiés par densité d'aiguilletage on peut citer l'épaisseur et la flexion. .Un bon aiguilletage doit aussi préserver les caractéristiques mécaniques des fibres et donc le type d'aiguilles et leur montage sont des paramètres particulièrement importants.

5.1.3 Le principe de l'aiguilleteuse disponible au Laboratoire du CETELOR.



1 : Matelas de fibres non liées

2 : Rouleaux presseurs supérieur et inférieur

3 : Plateau ou Planche d'aiguilles

4 : Rouleaux d'appel de sortie

5 : Stripper ou racleur

6 : bed plate ou plateau inférieur

7 : Système d'enroulage

Figure 29 Schéma de principe de l'aiguilletage

Le cœur de la machine est constitué d'une plaque garnie de nombreuses aiguilles orientées vers le bas. Cette plaque est animée d'un mouvement vertical de va et vient. La plaque qui équipe la machine a pour longueur 1200 mm de long et accepte jusqu'à 5000 aiguilles par ml soit 6000 aiguilles. La plaque fait 350 mm de large ça correspond à 45 rangées d'aiguilles. On obtient donc avec cet équipement une population de 14 000 aiguilles par m².

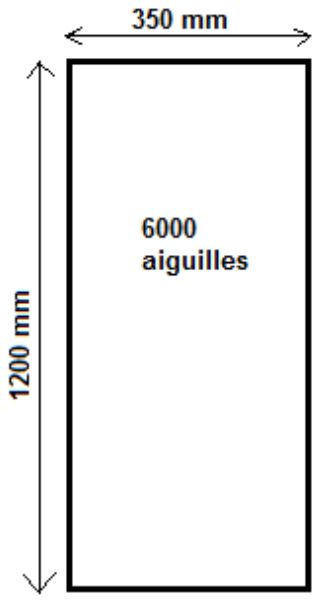


Figure 30 Forme de la plaque à aiguilles

L'aiguilleteuse du laboratoire CETELOR est une machine dite simple frappe puisqu'elle ne dispose que d'une seule plaque d'aiguilles. Le matelas de fibres est amené par le tapis d'entrée qui est synchronisé avec le tapis de sortie du nappeur. Les fibres sont ensuite acheminées entre le stripper plate (plateau supérieur ou racleur) et le bed-plate (plateau inférieur) par deux tapis presseur en caoutchouc qui compriment la matière. Les deux plateaux sont garnis de trous laissant passer les aiguilles lors de la frappe du plateau d'aiguille. La distance entre ces deux plateaux est réglable et va avoir une grande influence sur l'aspect et les caractéristiques de la nappe fabriquée.

5.1.4 Les aiguilles :

Ces aiguilles sont réalisées dans un alliage métallique souple afin de pouvoir supporter les efforts radiaux liés à l'avance du voile qui est entraîné par les cylindres de sortie.
La planche initiale était garnie de 6000 aiguilles en 38 rangées. Il s'est avéré qu'il n'était pas possible de faire descendre la densité avec ce nombre d'aiguilles sans faire caler la machine en travaillant à une fréquence de frappe faible. Il a donc été monté une nouvelle planche avec seulement 1500 aiguilles.

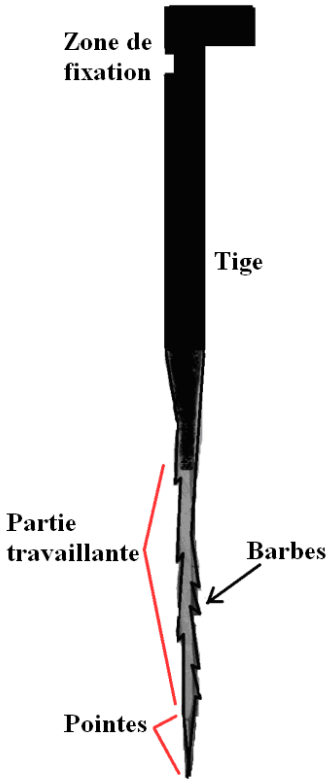


Figure 31 Schéma d'une aiguille

L'aiguille est fabriquée à partir d'un fil métallique qui va constituer une tige de forme ronde, bloquée dans la planche à aiguille. On distingue 3 parties : une partie constituée par une tige métallique qui se fixe sur la planche à aiguille, une partie intermédiaire et une partie inférieure dite travaillante. Dans la partie travaillante sont confectionnés des crochets ou barbes qui vont entraîner les fibres pour réaliser le liage. Lors de la pénétration de l'aiguille dans le matelas fibreux, les premières barbes en bout vont prioritairement se charger en fibres. Un trou se forme et les barbes suivantes seront moins efficaces car elles se chargeront moins en fibres durant cette phase. Le nombre de barbes et la disposition de ces barbes va varier en fonction des applications à réaliser. On trouve en principe des aiguilles disposant jusqu'à une dizaine de barbes et il existe des aiguilles spéciales pour la réalisation de nontissés très lourds (au dessus de 3000g/m²) qui comportent jusqu'à 35 barbes. Les barbes sont plus ou moins espacées en fonction de leur disposition. La forme de la section de la partie travaillante est en général celle d'un triangle équilatéral. Il existe d'autres formes très élaborées, comme par exemple des sections coniques ou encore en forme de goutte d'eau avec des barbes alignées sur une seule ligne ou enfin multilobées ou en étoiles. Dans le cas des aiguilles dont la section est en triangle équilatéral, les aiguilles sont disposées sur les arêtes ou sommets du triangle en

vue de coupe. Lors du montage, il faut donc également veiller à l'orientation des aiguilles qui va conditionner également l'orientation ou l'alignement des barbes par rapport au sens de production de la machine.

Lors de l'aiguilletage, en fonction de l'avance de la matière dans la machine notamment, l'aiguille pourra être fortement soumise à des efforts de flexion. On peut différencier les aiguilles par leur souplesse (caractérisée par une valeur de résistance à la flexion) pour adapter le montage à cette contrainte. Les aiguilles souples sont généralement plus fines que les aiguilles rigides et sont réalisées avec plusieurs diamètres de section. Chez le fournisseur sélectionné (GROZ-BECKERT), le diamètre de la partie tige de l'aiguille est compris entre 1,21 mm et 2,67 mm.. La section intermédiaire sera inférieure à la tige en étant usinée entre 0,65 et 1,55 mm en épaisseur constante ou variable pour les aiguilles souples. Pour la partie travaillante, on va mesurer la longueur des côtés du triangle. Cette valeur est comprise entre 0,40 mm et 2,45 mm. Il existe également des aiguilles coniques dans le cas où il est nécessaire d'obtenir de grande résistance à la flexion.

La taille des barbes peut également être modifiée et a une influence sur les fibres. Une barbe de taille trop importante risque d'endommager le renfort nontissé, tandis qu'une barbe de taille trop petite ne sera pas capable d'accrocher une fibre d'un plus grand diamètre et donc d'entremêler les fibres. Avec une trop grande taille de barbe, on augmente le risque de casse d'aiguilles, puisque que l'on augmente les contraintes sur l'aiguille en emportant plus de fibres. On peut également faire varier la forme de la barbe : barbe conventionnelle, à forme arrondie (très protective pour les fibres) ou à fond arrondie dite tridimensionnelle de dernière génération. La barbe à fond arrondie permet en principe un travail plus doux des fibres. La taille de la barbe est aussi définie par la saillie. Plus la saillie est grande, plus la profondeur de la barbe est grande et plus les fibres seront retenues par la barbe. La pointe de l'aiguille a une importance sur le produit fini Ainsi, une pointe trop affinée va déchirer les fibres et une pointe trop ronde va créer des boucles avec les fibres avec risque de casse des aiguilles et des fibres. L'idéal est de pouvoir faire travailler une fibre simultanément avec plusieurs barbes pour transporter cette fibre en répartissant les contraintes.

Pour ménager les fibres, il existe aussi la possibilité de traiter les fibres par polissage ou par traitement de surface.

Caractéristiques des aiguilles sélectionnées :

Trois types d'aiguilles ont été sélectionnés pour la réalisation des renforts de biocomposites. Elles sont nommées A, B et C. Le type A est l'aiguille montée d'origine sur la machine et prévue pour être polyvalente, et plutôt pour le travail des fibres fines. Les longueurs et diamètres de tige sont les mêmes pour pouvoir monter les aiguilles sur la même planche à aiguilles et pouvoir conserver les mêmes réglages de position de planche.

Les aiguilles A disposent de plus de barbes (9) que B et C (6) et la distance entre les barbes est donc la plus courte pour ces aiguilles A. Dans cette étude, on rechercher à ménager les fibres naturelles sans faire forcément un aiguilletage intense lors de la préparation du renfort pour obtenir le composite le plus performant.

L'aiguille C se distingue de l'aiguille A et de la B car elle est conique avec un diamètre de section intermédiaire situé entre les 2 autres à 3 mm au -dessus de la pointe et va en augmentant jusqu'à 1,35 mm au niveau de la section intermédiaire. Cette aiguille fera donc un trou moyen si on l'enfonce avec une profondeur de pénétration faible. Il faudra veiller à ne pas utiliser une profondeur de pénétration trop importante pour ne pas endommager le matelas fibreux. De par sa forme conique, l'aiguille C devrait être la plus résistante aux sollicitations du travail d'aiguilletage.

Concernant la taille de la barbe, l'aiguille A et l'aiguille C ont la même profondeur de barbe et en ajoutant la valeur de saillie de barbe, on atteint 0,16 mm de taille de barbe totale. Il est intéressant de comparer cette valeur aux diamètres des fibres travaillées. D'après le tableau des diamètres des fibres végétales, les fibres végétales que nous allons travailler ont des diamètres de fibres de 0,017 (lin affiné) à 0,04 (chanvre). En théorie, avec une taille de barbe totale de 0,16 mm on peut emporter 4 (chanvre) à 10 (lin affiné) fibres par barbe. En utilisant l'ensemble des barbes, une aiguille va pouvoir donc emporter, s'il n'y a pas de glissement, environ 24 à maximum 148 fibres par coup.. Ces valeurs paraissent assez élevées, ce qui signifie que les aiguilles seront fortement sollicitées d'un point de vue mécanique si l'on utilise l'ensemble des barbes. On peut émettre la remarque que si les opérations de préparation des fibres et d'ouverture et de cardage n'individualisent pas complètement les fibres, les diamètres des faisceaux de fibres seront plus importants, Ainsi l'aiguille emportera moins de fibres, mais la contrainte devrait rester dans la plage de grandeur.

	Type A	Type B	Type C
Longueur	90,7 mm	90,7 mm	90,7 mm
Diamètre de la tige	2,03 mm	2,03 mm	2,03 mm
Diamètre section intermédiaire	1,19 mm	1,19 mm	1,35 mm
Diamètre section travaillante	0,60 mm	0,90 mm	0,70 mm à 3 mm au-dessus de la pointe
Distance entre les barbes	6,36 mm	3,18 mm	6,36 mm
Nombres de barbes par arête	2	3	2
Nombre de barbes	6	9	6
Forme de partie travaillante	Triangle équilatéral	Triangle équilatéral	Conique et variable
Forme de la barbe	Tridimensionnelle (fond arrondi)	conventionnelle	Tridimensionnelle (fond arrondi)
Saillie	Petite	Standard	Petite
Saillie	0,05	0,08 mm	0,05
Profondeur de la barbe	0,11 mm	0,20 mm	2 profondeurs : 0,11mm X 3barbes 0.14 x 3 barbes
Total taille de la barbe	0,16 mm	0,28 mm	0,16 mm et 0,19 mm
Distance de la pointe avant la première barbe	4,8 mm	6,36 mm	3,18 mm
Traitement de Surface	Non	Non	Non

Tableau 9 Caractéristiques des aiguilles sélectionnées

Concernant la profondeur, ce paramètre est très important à surveiller pour ne pas faire plus tard de fausses interprétations, si l'on change d'aiguilles. Ainsi, l'aiguille B, avec la distance de la pointe avant la première barbe est la plus importante. Avec une même profondeur de pénétration, cette aiguille réalisera moins d'enchevêtrements que les aiguilles A et surtout C Source : société Groz Beckert.

Figure 32 : Barbe conventionnelle

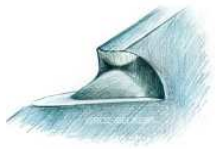


Figure 33 : Barbe avec fond arrondie

Figure 34 : Représentation d'une barbe

5.2 Aiguilleteuse : Réglages possibles :

5.2.1 La densité de pénétration :

Le langage textile utilise couramment le terme « densité » ou de « densité de pénétration » pour qualifier un aiguilletage. La densité caractérise la quantité de fibres entrainées et donc enchevêtrées par les aiguilles dans le matelas fibreux obtenu de sortie de carde ou de nappeur.

Une grande densité d'aiguilletage (ou de pénétration) va permettre la réalisation d'un matériau plus rigide et plus dense jusqu'à une certaine valeur limite précédant une détérioration des fibres par un excès d'aiguilletage.

Cette densité dépend notamment fortement de :

- La profondeur de pénétration des aiguilles dans le matelas. Etant donné le type d'aiguilles choisies et en particulier leur longueur et le nombre de barbes dont elles sont équipées, le matelas sera plus lié si l'on règle une plus grande pénétration d'aiguilles permettant à toutes les barbes d'agir.

Inversement, si les aiguilles ne traversent pas complètement le matelas, l'aiguilletage sera partiel et uniquement sur l'une des faces.

- Du nombre de coups d'aiguilles ou de pénétration par unité de surface. Ce paramètre est dépendant du nombre d'aiguilles montées sur la plaque, de la vitesse en coups par minute du plateau d'aiguilles, et de la vitesse d'avance (ou de sortie) de la matière dans la machine.

Calcul de la densité de pénétration en coups / cm²

$$DP = \frac{\text{Nombre de pénérations (coups) d'aiguilles}}{\text{cm}^2}$$

$$DP = \frac{\text{Nombre d'aiguilles (par m)}}{\text{Pas d'avance (mm) x 10}}$$

Le nombre d'aiguilles signifie le nombre d'aiguilles montées sur une plaque de 35 cm x 100 cm dans notre cas

Le Pas d'avance (en mm): C'est la distance que parcourt le nontissé dans la machine entre chaque coup.

5.2.2 La vitesse de frappe :

La « vitesse de frappe » ou « frappe » se mesure en coups/min et est corrélée à la vitesse en tours par minutes du moteur principal de l'aiguilleteuse.

$$\text{Frappe} = \frac{\text{vitesse de sortie (m/min) x DP (coups/cm}^2\text{)x10000}}{\text{Nombre aiguilles/m}}$$

Remarque : Plus le nombre coups d'aiguilles par unité de surface est élevé, plus la machine doit tourner vite, aura de l'inertie, et donc plus grande sera la facilité à faire pénétrer les

aiguilles dans la matière. Une des difficultés dans le cadre de cette thèse sur la ligne CETELOR, c'est que pour avoir un matelas d'un grammage suffisamment élevé pour les biocomposites, la ligne d'aiguilletage doit être fortement ralentie pour permette à la carde et au nappeur de déposer suffisamment de couche. Le nappeur est l'organe limitant. Ainsi, quand on utilise les machines en ligne pour réaliser une production, la vitesse de frappe devient un facteur limitant qui doit atteindre une valeur minimale pour ne pas faire caler la machine.

Outre l'aspect vitesse de pénétration, cette facilité de pénétration des aiguilles est donc dépendante de beaucoup de paramètres principalement :

Paramètres influençant la facilité de pénétration des aiguilles :
La densité finale du matériau
Son poids par unité de surface
L'épaisseur du matelas
Les éventuels étirages dans le sens de marche et le sens travers
Le type de fibre (finesse, dureté, longueur…)
L'utilisation ou pas d'ensimage pour faciliter la pénétration des aiguilles
Le type et la longueur des aiguilles
Le nombre et la position des aiguilles sur la planche

Tableau 10 Paramètres influençant la facilité de pénétration des aiguilles

5.2.3 Le pas d'avance :

Le pas d'avance peut être déterminant dans la qualité de l'aiguilletage car des harmoniques en fonction de l'implantation des aiguilles peuvent apparaître à certaines valeurs de pas d'avance. De plus, parce que le matériau continue d'avancer, quand l'aiguille pénètre dans le matériau, le pas d'avance ne peut dépasser une certaine limite qui entrainerait la rupture des aiguilles qui seraient soumises à une flexion trop importante.
L'avance par coup est donné en mm/coup :

$$\text{Avance par coup} = \frac{\text{vitesse de sortie (m/min) x 1000}}{\text{coups/min}}$$

5.2.4 La vitesse de production

Pour calculer une vitesse de sortie du produit de l'aiguilleteuse réelle, il faut tenir compte de l'étirage qui peut avoir lieu dans la machine. Ce taux d'étirage va augmenter la vitesse de production en m/min, pendant que la masse surfacique du produit va diminuer.
La vitesse de production VP est donnée en m/min

$$Vp = \frac{\text{Nombre d'aiguilles/m x Frappe (coups /min)}}{\text{Densité de Pénétration (coups / cm}^2\text{) x 10000}} \times \left(1 + \frac{\text{Etirage}}{100}\right)$$

5.2.5 Principaux réglages possibles

Dans le tableau ci-dessous, nous avons synthétisé les paramètres importants de la machine pour le développement des renforts nontissés.

Type d'aiguille	A, B ou C	
Nombre d'aiguilles	Mini 500	Maxi 5000
Longueur des aiguilles	3,5 Pouces	5 pouces
Nombre de pénétration par unité de surface (Coups/ cm²) ou (p/cm²)	Mini fonction de l'avance machine	Maxi dépend de la résistance des fibres
Profondeur pénétration (mm)	0	15
Distance entre les 2 plateaux (mm)	0	90
Pas d'avance (mm)	2	20
Etirage de sortie (%)	0	50%
Vitesse de marche (m /min)	Fonction du nappeur	

Tableau 11 Principaux réglages possibles

5.2.6 Paramètres influençant la qualité :

Dans un premier temps, et dans le cadre de la réalisation de biocomposites, l'opération d'aiguilletage va avant tout servir à lier entre elles les fibres pour rendre le mat de sortie du nappeur enroulable et transportable[10].

Ensuite, on peut chercher à donner d'une manière ou d'une autre une cohésion complémentaire qui devrait avoir une répercussion dans le matériau final. Mais il faut garder à l'esprit que le critère final n'est pas forcément la résistance du nontissé réalisé, mais bien la réponse mécanique des matériaux composites finaux. Pour tenir cet objectif, nous pouvons déjà prendre en compte les trois hypothèses suivantes :

- Une trop grande cohésion pourrait rendre le matelas de fibres liées en une nappe trop rigide et donc peu conformable, c'est-à-dire difficile à positionner ensuite dans un moule pour composite.
- Une trop grande cohésion pourrait rendre le matelas difficile à imprégner de résine
- En cherchant une trop grande cohésion, on modifie fortement le positionnement des fibres dans la matière, ce qui peut avoir une influence sur les caractéristiques mécaniques des composites finaux.
- Une augmentation de la densité entraine en principe une diminution de la longueur et éventuellement une fragilisation des fibres.

En pratique, en faisant tourner la carde et le nappeur en process continu à leur maximum, il est possible de réaliser un aiguilletage d'une densité minimum 30 coups/cm² pour un matelas léger d'environ 400 g/m². Cette valeur minimum d'aiguilletage sur la ligne pilote est conditionnée également par la largeur du matelas choisie pour le nappeur.

---

[10] R. Alok Nath, R. Prabir, **Optimization of Jute Needle-Punched**, Nonwoven Fabric Properties: Part I—Tensile Properties, Journal of Natural Fibers, 6:3, 221-235 (2009)

Quatrième Partie

RESULTATS ET DISCUSSIONS

PREMIERE SERIE DE COMPOSITES

Introduction

Les premières mises au point effectuées sur la ligne de production de nontissés ont permis d'aboutir globalement à 3 familles de matériaux fibreux. C'est à partir de ces trois familles que par imprégnation ou par infusion, ont été préparé des matériaux composites respectivement à matrice biosourcée ou polymère synthétique. Dans ce premier chapitre de résultats et discussions, nous nous sommes attachés à dégager des tendances pour chacune des familles de composites basées sur des matelas fibreux :

- De 200 à 300 g/m²
- De 300 à 500 g/m²
- De 500 à 800 g/m²

Dans le cadre de développements des biocomposites la configuration de cette ligne a été adaptée au travail des fibres naturelles visées à savoir les fibres libériennes. Nous avons lors de cette étude également testé d'autres fibres, de la famille des fibres libériennes (plusieurs types de kénaf et de chanvre) ou hors de la famille des fibres libériennes. Les fibres qui se sont avérées poser trop d'inconvénients à une bonne marche machine ont été rapidement éliminées. On peut en citer par exemple une fibre de bambou nouvellement mise au point (qui présente l'avantage d'une très faible densité). Le process de préparation des fibres par voie pneumatique s'est avéré plus adapté au travail de ces fibres que la carde à cylindre envisagée, mais la consolidation par aiguilletage n'a pas été possible. Les données sur ces fibres qui sortent maintenant de notre objectif n'ont donc pas été présentées dans cette thèse. Pour pouvoir les travailler, plusieurs longues mises au point ont été nécessaires.

Avant de passer au développement de composites, on s'est attaché à vérifier que la résine n'avait pas d'autres rôles sur les fibres que celui d'une matrice. Cette vérification fait l'objet de la partie suivante.

1 IMPACT DE LA RESINE SUR LES CARACTERISTIQUES MECANIQUES DES FIBRES

Lors de la mise en œuvre des composites, les fibres sont soumises pendant une certaine durée à trois types d'actions pouvant modifier ou dégrader leurs caractéristiques: pression, température et action chimique de la résine. L'objet de cette partie complémentaire a été d'évaluer l'impact de la résine naturelle (tannin mimosa/Hexamine) par mesure de traction sur les caractéristiques mécaniques des fibres comportant de la cellulose. L'essai a été réalisé sur des matières en lin et en kénaf.

Lors de la réalisation des biocomposites tannins et fibres naturelles, les fibres ont un aspect qui laisse supposer qu'elles sont soit attaquées, soit brulées chimiquement. Le but de cette partie est de vérifier que la résine mise en œuvre n'a pas d'interactions négatives sur la fibre et si oui dans quelles conditions. Un doute était également soulevé à cause de l'utilisation de la soude qui pourrait interagir avec la cellulose des fibres. Les solutions alcalines diluées n'ont en principe pas d'actions préjudiciables sur la cellulose, même à ébullition. Par contre à forte concentration et à température élevée les bases détruisent les chaines de cellulose.

Cette étude permettra de valider des conditions d'essais et de process acceptables. On ne cherche pas ici à quantifier l'adhésion de la résine sur la fibre. La mesure sera faite sur un appareil de traction classique munis de mords pour gros fils et rubans. Un appareil de traction pour fibres individuelles (de type Favimat) permettrait de faire une analyse sur les fibres individuelles, mais nécessiterait la fabrication d'un nombre très important d'éprouvettes (Supérieur à 50) pour être représentatifs avec les fibres naturelles (valeurs de résistances dispersées). De plus, la réticulation de la résine déposée sur la fibre peut poser un problème, il sera très délicat d'imprégner de résine les fibres individuelles puis de les mettre sous presse chauffante délicatement sans les détériorer.

Le stélomètre (appareil destiné à mesurer la ténacité des fibres de type coton) n'a pas non plus été choisi, car l'espace entre les mords de l'étau est très faible (inférieur à 2 mm) et ne permet pas de déposer la résine. En finalité l'essai est donc réalisé sur une mèche préparée au banc à broches (en filature, c'est l'étape d'affinage d'un ruban en une mèche très régulière et fine avant l'étape de filature finale).

1.1 - Matériel et méthodes :

La résine utilisée pour cette étude est la résine tannin/hexamine à 45 % de tannins de mimosa (extrait sec) qui est principalement utilisée dans le cadre de cette thèse.

Tannins (sulfités) :	129 g	
Eau :	107 g	
Solution aqueuse de Soude à 33% :	38 **g**	(25,46g d'eau)
Hexamine à 30%:	26 g	(18,2g d'eau)
TOTAL :	300 g	
pH :	10,45	
% tannin réel :	43 %	

Tableau 1 Préparation de la résine témoin.de tannin à 45 %

Calcul de la concentration effective de soude dans la résine :

Masse molaire de la soude : 40 g/mol

38g de soude à 33% donne 12,54 g de soude soit 0,31 mol et 25,46 g d'eau.

La quantité d'eau totale est donc de 140,26 g soit une concentration en soude de 2,05 mol g/l. La concentration de soude est finalement très faible et ne devrait donc pas avoir une influence négative sur la résistance des fibres. Le pH donne la valeur de 10,5 ($pH=14 + \log[OH^-]$).

1.1.1 Fibres utilisées pour cet essai

La première fibre choisie est la fibre de lin raffiné préparée sous la forme d'une mèche provenant d'une filature spécialisée en fibre longue. Cette mèche de 2 g/m pour laquelle le minium de torsion a été appliqué (une torsion trop importante empêcherait la résine de rentrer au cœur de la matière). La composition de la fibre a été contrôlée. La cellulose est le composant principal de cette fibre étudiée.

La deuxième fibre choisie en complément est la fibre de kénaf (Kénaf de grade B). Ces fibres se présentent sous la forme de faisceaux de 7,3 g/m en moyenne, avant d'être coupées pour réaliser le process textile. Il est donc possible de les tester, dans cette configuration de présentation en faisceaux bruts, également en résistance à l'appareil de traction.

Le test n'a pas été réalisé sur les autres matières comme le chanvre, car il n'est pas encore possible de les préparer sous la forme d'une mèche avec les équipements à disposition.

Fibre	Cire (graisse et huile)	Minéraux (tanin amidon)	Pectines	Lignine	Hémicellulose	Cellulose
Lin R	1,5	4,1	1,5	8,1	20,1	65
Kénaf B	0.1	2.2	18.6	14.7	9.8	54.6

Tableau 2 composition chimique du lin testé

1.1.2 Mode d'imprégnation des éprouvettes et préparation des éprouvettes :

5 séries d'échantillons de mèches de 8 cm ont été préparées par imprégnation manuelle avec un petit rouleau à peinture de 1 cm. La résine est déposée au centre de l'échantillon de mèche sur une longueur de 0,5 cm. Les fibres doivent être abondamment imprégnées et dé-bullées, en veillant à ne pas détériorer leur placement. Les éprouvettes ainsi réalisées sont placées dans un papier sulfurisé avant d'être réticuler dans la presse à plateau chauffant.

1.1.3 Caractérisation des éprouvettes de fibres imprégnées de résine

Il sera nécessaire de régler l'écartement des machoires de l'appareil de traction à une longueur la plus petite possible, pour éviter un glissement des fibres et suffisamment grande pour ne pas abimer la résine déposée. La longueur de 10 mm entre les mords est donc avantageusement choisie.

Nous avons reporté les paramètres de réglages de l'appareil de traction pour ces tests dans le tableau suivant.

Force Max		10 daN	10 daN
Vitesse de traction de l'essai :		10mm/min	35mm/min
Longueur (espace entre les mords) :		10 mm	10 mm
Pré-tension**:**		non	non
échantillons par essais		5	5

Tableau 3: Paramètres du Dynamomètre

1.1.4 Analyses et discussions :

Les résultats des tests de traction sur la mèche imprégnée ont été synthétisés dans les tableaux suivants.

Type		Séchage en presse	Force à la rupture N	Ecart type	A% à la rupture
Mèche lin affiné		Pas de résine	40.84	19,3	5.11
Mèche lin affiné		Froid (1semaine)	74,5	21,19	17,83
Mèche lin affiné		110°C 30 min	89.23	12,7	8.88
Mèche lin affiné		150°C, 30 min	80.6	14,47	7.89
Mèche lin affiné	0,2	150°C ,1h	74.33	19,1	10.28

Tableau 4 : Essais de traction réalisés sur mèche de lin 2 g/m

Type	Séchage en presse	Force maximale N	Ecart type	A% à la rupture	Force à la rupture N
Kénaf grade B	sans résine	410,4	-	7,16	399,0
Kénaf grade B	Froid (1semaine)	673,6	53,3	4,10	314,8
Kénaf grade B	110°C 30 min	909,2	297,6	4,20	734,0

Tableau 5 Essais de traction réalisés sur faisceaux de Kénaf de 7,3g/m

La mèche de lin sans résine possède une force à la rupture moyenne de 40,84 N. En laissant la fibre réticuler à l'air libre, on obtient un matériau plus résistant. L'apport de température permet d'augmenter la résistance par une meilleure réticulation de la résine. La résistance optimale est obtenue avec une cuisson à 110°C (durée 30 min). Au-dessus de cette température, les résistances obtenues diminuent, sans doute par la détérioration des fibres par l'effet de la température. Les allongements à la rupture suivent la même tendance, puisque l'allongement est le plus faible pour les process de 30 minutes à 110°C et 150°C.

La composition de la fibre de kénaf diffère un peu de celle du lin analysé ; le taux de cellulose en particulier est moins important (69% pour le lin contre 54,6% pour le kénaf) et le kénaf comporte plus de lignine et surtout de pectine (de 5% pour le lin à 18,6 pour le kénaf). Ces tests donnent une augmentation nette de la résistance du faisceau de fibres en passant d'une force maximale de 410,4 N à 909,2 N après réticulation de la résine. Un temps de contact long de la résine à froid ne semble pas dégrader la matière puisque l'on observe également une augmentation de la force maximale de rupture à 673,6 N. Une observation au microscope complémentaire n'a pas permis de détecter de dégradation particulière. Figure ci-dessous.

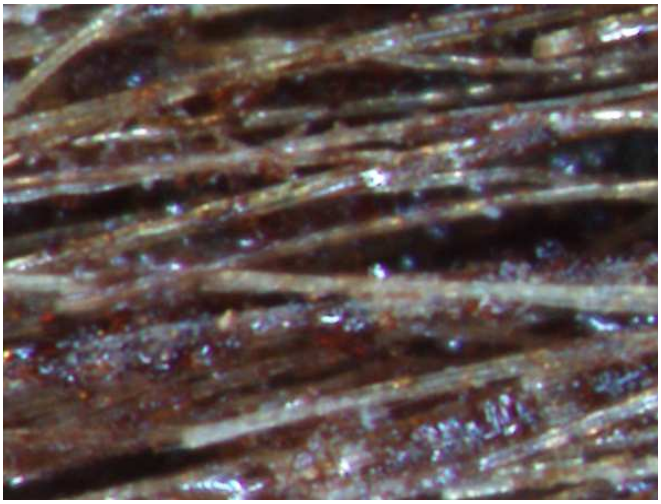


Figure 1 Vue au binoculaire x40 fois de la résine appliquée.

Conclusion sur ces essais :

On redoutait une attaque chimique des fibres cellulosiques (représentées ici par les fibres de lin et de kénaf) soit par les tannins, soit par le caractère basique de la résine et en particulier de la soude qui la compose. Avec un pH de 10,4 les tests ne semblent pas montrer de détérioration de la fibre par la résine puisque la préparation et la mesure des éprouvettes de mèche de lin imprégnées de résine de tannin permet de montrer une augmentation de la force à la rupture.

En finalité, la composition de la résine tannin choisie appliquées sur la matière végétale testée ne devrait pas diminuer la résistance des fibres et donc on peut l'espérer, celles des biocomposites.

2 PREPARATION DES RENFORTS DE LA PREMIERE SERIE DE COMPOSITES

Lors des premiers essais, seules les fibres les plus fines de lin étaient cardables, c'est-à-dire qu'un voile de qualité sortait de la machine, les autres fibres étaient trop dégradées par la machine. L'ensemble des écartements entre les cylindres a été vérifié pour pouvoir passer des fibres de grand diamètre en attendant de disposer de garnitures aux caractéristiques plus adaptées (qui seront montées pour la deuxième série de composites)

2.1 Réglage du cardage et production des voiles

En réalité, il n'a pas été possible de trouver un réglage correct pour cette série qui permette de faire ressortir les fibres intactes. La cause en est la vitesse trop importante de certains organes, ainsi que les garnitures beaucoup trop fines pour les fibres testées. Nous avons travaillé en

réduisant progressivement la vitesse du tambour principal tout en essayant de produire un voile d'aspect le plus homogène. Sur cette série, nous avons monté le cylindre à garnitures (nommé random) entre le tambour principal et le cylindre peigneur pour augmenter le poids de voile et le brouillage des fibres. Ce cylindre est asservi avec une vitesse supérieure au peigneur.

Fibres	Vitesse Tambour (Tours/min)	Vitesse Peigneur (%)	Vitesse entrée (%)	Conditions de la sale HR% T°C	Commentaires
Chanvre non roui (P7)	90%	160	94	28 58	Bon cardage, voile satisfaisant Bourrages Beaucoup de poussières
Chanvre roui	80	185	75	47 32	Trop de chènevottes, blocage de la carde
Chanvre non roui (P12)	91	160	96	28 58	Bon cardage, voile satisfaisant Bourrages sous la carde
Kénaf P3	90	200	32	62 29,6	Ensimage (Agatex à 7%) Bon cardage voile de qualité mais très volumineux Beaucoup de poussières
Jute P4	90	160	90	50 32	Voile lourd mais manque de régularité, peu de déchet sous la carde
Jute P8	90	160	78	61 27	Beau voile mais très fragile fibres faciles à carder
Jute P20 100 p/cm²	90	200	70	48 37,6	Beau voile mais très fragile fibres faciles à carder
Lin/Kénaf P9	90	180	58	35 52	Ensimage (Agatex 7%)
Lin/Chanvre roui	90	200	53	51 33	Beaucoup d'anas avec le chanvre Arrêts de carde Le voile a très peu de tenu
Lin A	90	178	38	52 35	Bon cardage manque de régularité de poids de voile Bourrage à l'entrée

Tableau 6 Principaux réglages pour la carde

2.2 Consolidation par aiguilletage

Le principe particulier de l'aiguilletage consiste donc à créer un enchevêtrement des fibres grâce à des aiguilles munies de crochets (barbes) qui vont traverser le matelas de fibres rentrant dans la machine. Un bon aiguilletage doit préserver les caractéristiques mécaniques des fibres et donc le type d'aiguilles et leur montage sont des paramètres particulièrement importants.

Une série de renfort a été réalisée avec les premiers réglages de la carde. Les voiles sont produits par la carde et le nappeur superpose de 30 à 100 voiles pour former le mat près à être aiguilleté. Dans cette étude nous avons préparé une première série de biocomposites et une première étude sur la résistance des renforts nontissés après aiguilletage.

Les résultats des mesures sur ces renforts avant transformation en biocomposites donnent des premières valeurs intéressantes en particulier sur les valeurs d'aiguilletage (en pointes/cm²) à ne pas dépasser. Ces valeurs sont regroupées dans le tableau ci-dessous. Ainsi, avec le chanvre, on observe une baisse rapide des caractéristiques au-dessus de 50 p/cm². On remarque une perte de près de 25 % à 100 p/cm² alors que la masse surfacique a été fortement augmentée (pratiquement doublée). Avec la fibre de kénaf pour laquelle la densité d'aiguilletage a été réduite dès le départ de 50 à 30 p/cm² pour ménager au maximum les fibres plus fragiles, on obtient une augmentation des valeurs de résistance proportionnelle à l'augmentation de poids. Enfin avec le jute, on observe une stabilisation de la résistance (à 48 et 45 N) et de l'allongement à la force max (à 19,2 et 17,66 %) quand on passe à la valeur de densité d'aiguilletage de 66 p/cm². Il est possible que l'augmentation de poids compense la détérioration des fibres par un aiguilletage trop intensif. Cette première démarche a ensuite permis de réaliser une première série de biocomposites, objet des discussions suivantes.

Fibre et Densité d'aiguilletage	Masse surfacique en g/2	Ecart Type	Coefficient de variation %	Force max en N	Allongement à la force max en %
Chanvre (P7) 50p/cm²	985	56 ,7	5,7	234,3	66,5
Chanvre (P12) 100p/cm²	1657	225,1	13,6	172,4	12,8
Kénaf P3 33p/cm²	392	37,4	9,5	23,2	28,8
Kénaf P2/3 100 p/cm²	1384	222,2	16,0	62,7	15,3
Jute P4 33p/cm²	232	25,1	10,8	18,3	48,9
Jute P8 66 p/cm²	534	81,4	15,2	48,2	19,2
Jute P20 100 p/cm²	1101	62,0	5,6	45,7	17,6
Lin A 33 p/cm²	346	21,5	8,5	-	-
Lin/Kénaf P9 100 p/cm²	397	33,5	8,4	-	-
Lin/Chanvre 100 p/cm²P6	938	43,7	4,7	-	-

Tableau 7 Propriétés mécaniques des renforts réalisés

3 DISCUSSION SUR LES COMPOSITES DE MASSE SURFACIQUE FAIBLE (200 à 300g/m²)

3.1 Discussion sur les matériaux résine tannin naturelle et fibre Kénaf (P3) (200 à 300 g/m²)

Les résultats des mesures pour cette classe de composites sont reportés dans le tableau suivant :

	Masse fibres (g/m²)	Teneur en fibre (%)	Epaisseur (mm)	Densité	Contrainte flexion MOR (MPa)	MOE Flexion (MPa)	Flèche à la rupture (mm)	Contrainte traction MOR (MPa)	MOE Tract (MPa)	Allgt Max (%)
P3b	203	0,16	1,1	1,13	24,3	1696	11,7	12,23	664	5,8
P3a	260	0,19	1,5	0,93	25,0	1940	5,5	7,48	663	2,8
P3c	253	0,21	1,0	1,22	28,3	2765	8,6	4,71	581	2,1

Tableau 8 Propriétés générales des composites de la première série P3

3.1.1 Commentaires sur l'aspect général :

Sur les vues en coupe (grossissement 35 fois), les biocomposites P3a et P3c semblent bien imprégnés puisque la couleur est homogène sur toute l'épaisseur. En revanche, P3b est légèrement moins imprégné au milieu puisque l'on y voit une zone plus claire.

Sur les vues de faces de P3a, les faces supérieures et inférieures sont semblables, on peut observer des différences d'imprégnation en surface avec des zones creuses et des petites zones constituées de résine pure bien aplaties par la presse. Ces zones de résine bien aplaties par la presse sont contenues entre des fibres de surface et font environ 0,30 mm à 0,40 mm de diamètre. On observe encore mieux ce phénomène avec un grossissement de 220 fois.

Par contre si l'on observe la surface des composites P3b et P3c, les fibres sont moins apparentes. Les zones creuses sont moins étendues et la surface semble moins hétérogène.

Ces zones de résine bien aplaties résultent d'un surplus de résine réticulée en surface et peuvent aussi suggérer une moins bonne imprégnation au cœur qu'il faudra confirmer par une vue en coupe. Les résultats d'observation des coupes montrent une bonne imprégnation pour P3a et P3c et une imprégnation qui semble moins importante pour le matériau P3b. Il semble donc qu'un unique examen de la surface ne soit pas suffisant pour juger de la qualité d'imprégnation.

Si l'on s'intéresse aux autres propriétés et notamment la densité, le composite P3b a en finalité une densité située entre les deux autres (P3a et P3c).C'est de plus, le matériau le moins chargé en fibres (16%) et donc celui qui contient le plus de résine (84%). Avec une densité intermédiaire et une forte teneur en résine, on pourrait penser qu'il est bien imprégné, ce qui n'est pas le cas. Finalement la densité et la teneur en résine (ou en fibres) ne sont pas non plus des critères suffisant pour juger de la qualité d'imprégnation.

D'ailleurs pour le confirmer, P3a est le composite le moins dense avec une densité de 0,93, un taux de fibres moyen à 0,19 et le poids de fibres le plus important à 260 g/m². Pourtant ce composite est d'après les observations visuelles parfaitement imprégné avec les zones plates en surface qui témoignerait d'un surplus de résine.

P3c a eu la même préparation que P3a mais avec une compression plus importante qui le ramène à une épaisseur de 1mm contre 1,5 mm pour P3a. Ce composite P3c présente donc une densité plus importante avec une bonne teneur en fibres (21%).

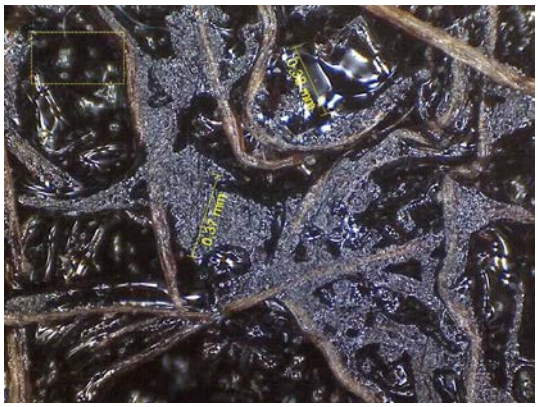


Figure 2 P3at grossissement 220 fois face 1

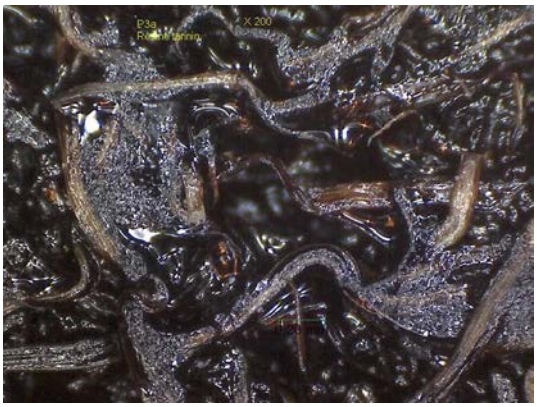


Figure 3 P3at grossissement 220 fois face 2

Figure 4 P3at en coupe grossissement 35 fois

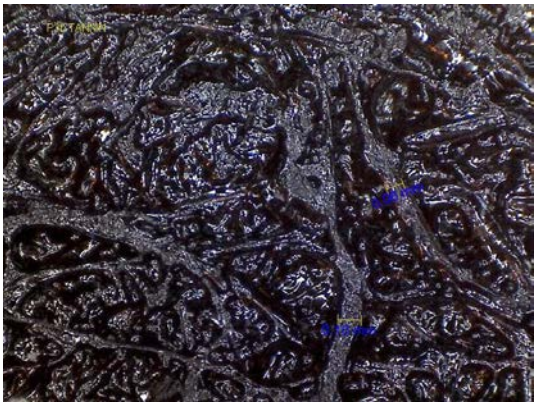


Figure 6 P3b vue de la face supérieure

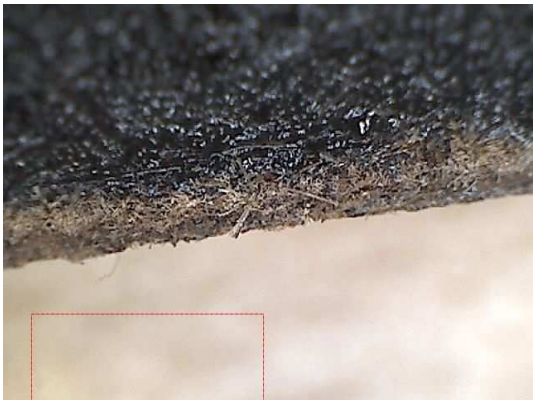


Figure 5 P3b Vues en en coupe grossissement x 35

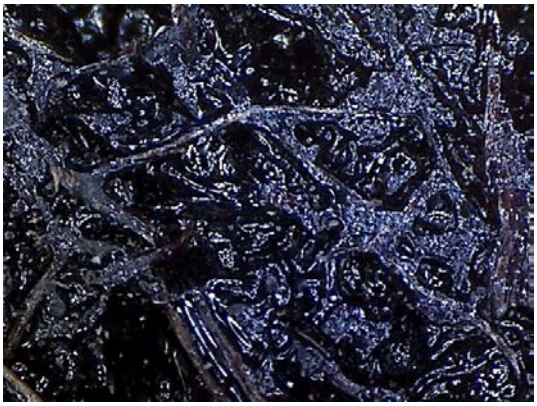


Figure 8: P3c Agrandissement 220 x

Figure 7 P3c en coupe Agrandissement 35 x

La qualité d'imprégnation à cœur du renfort apparait à ce stade de l'étude très importante à suivre et donc à contrôler notamment par une observation. Ainsi à densité constante, on peut trouver un composite plus chargé en résine en surface et moins à cœur, ce qui risque d'influencer les propriétés mécaniques, en particulier les modules d'élasticité.

3.1.2 Propriétés mécaniques

3.1.2.1 Propriétés mécaniques en flexion

En termes de contrainte et de module d'élasticité pour cette classe de composites (situé entre 200 et 300 g/m² de fibres), on remarque directement que plus la teneur en fibres s'accroit, plus les caractéristiques mécaniques en flexion augmentent. Ainsi, la contrainte de flexion (MOR) passe de **24,3 MPa** pour le composite P3b à 16% de fibres à **28,3 MPa** pour le composite P3c à 21% de fibres, avec pour P3a une valeur intermédiaire à 25 MPa pour 19% de fibres.

Les mêmes observations sont faites pour le module d'élasticité (MOE) : si la teneur en fibres de ces composites augmente, le MOE augmente progressivement de 1696 MPa en passant par 1940 MPA pour le composite P3a à 2765 MPa pour le composite P3c qui s'avère donc être le plus performant de cette série.

Par contre, la flèche à la rupture ne semble pas suivre cette variation logique. On aurait pu attendre une valeur intermédiaire entre 11,7 et 8,6 pour le matériau P3a. Il n'en est rien puisque la flèche obtenue est nettement inférieure aux 2 autres. Sans aller plus loin dans l'interprétation, on peut aussi remarquer que le composite P3a a une épaisseur nettement plus importante, ce qui se traduit par une densité nettement plus faible que celle des 2 autres.

Le composite le moins résistant pour ces caractéristiques mécaniques est donc le P3b. L'imprégnation de résine observée plus faible à cœur de ce matériau est certainement l'un des paramètres expliquant le plus faible module d'élasticité et donc également la valeur importante de la flèche à la rupture de 11,7 mm, ce qui en fait un matériau plus souple.

3.1.2.2 Propriétés mécaniques en traction

Comme en témoigne le tableau 2 précédent, le module de la contrainte en traction semble diminuer lorsque la teneur en fibres augmente. Le maximum est atteint pour P3b avec 12,23 MPa. Ce composite P3b est un composite particulier, car c'est celui qui a le taux de fibres le moins important, mais les caractéristiques en traction les plus performantes. Il sera intéressant de savoir si cette amélioration provient du fait que les fibres sont moins imprégnées au cœur

du matériau et apportent un maximum de résistance alors même que le taux de fibres et la quantité de fibres sont inférieurs aux deux autres composites (203 g/m²). Si l'on regarde les allongements, avec 5,81% ce composite P3b obtient également une valeur bien supérieure (le double) aux deux autres et témoigne donc d'un comportement mécanique en traction particulier.

La densité ne semble pas un paramètre conditionnant les caractéristiques mécaniques en traction pour ces composites.

Le module d'élasticité en traction est resté lui à peu près constant entre 580 et 660 MPA.

3.2 Comparaison avec une autre résine : Discussion entre résine naturelle et résine synthétique pour la fibre Kénaf

Il est intéressant de comparer l'influence de la nature de la résine sur les propriétés finales du composite et donc de comparer la résine naturelle (à base de tannin et d'hexamine comme durcisseur) utilisée ici (composite P3a) et une résine commerciale. Pour cela, nous avons mis en œuvre un composite à base fibres de kénaf imprégné par infusion de résine synthétique du commerce Resoltech 1050. Ce composite est nommé P3Ra.

Les 2 composites suivants sont mis en œuvre à partir d'un même poids de renfort fibreux et comparés avec une même épaisseur finale. Les résultats sont reportés dans le tableau suivant :

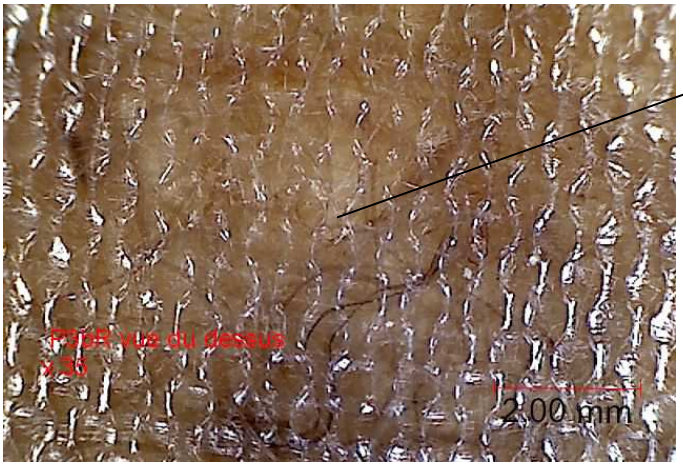
	Masse fibres (g/m²)	Teneur en fibre (%)	Epaisseur (mm)	Densité	Contrainte flexion MOR (MPa)	MOE Flexion (MPa)	Flèche à la rupture (mm)	Contrainte traction MOR (MPa)	MOE Tract (MPa)	Allgt Max (%)
P3a	260	0,19	1,5	0,93	25,0	1940	5,5	7,5	663	2,8
P3aRa	268	0,18	1,5	1,01	83,0	4388	7,84	21,8	972	4,0
résine	-	-	-	1,17	90,2	3178	nd	59,4	3307	3,0

Tableau 9 Propriétés générales des composites de la première série P3a avec époxy

3.2.1 Commentaires sur l'aspect visuel :

Pour les composites à base de résine chimique (transparente), on peut bien observer les fibres non seulement en surface, mais également dans la profondeur. Ainsi, on constate que les renforts semblent bien imprégnés et il n'y a absolument pas de microbulles d'air. On peut donc en conclure que la fibre se mouille bien avec cette résine et ce process de préparation. Sur le cliché en vue du dessus, on peut bien observer une zone moins chargée en fibres qui apparait plus claire. Les stries visibles en surface sont dues au tissu drainant la résine. Ce tissu qui est réalisé par la technique du tricotage chaîne marque la résine en surface.

Figure 9 Vue en coupe de P3Ra



Zone plus transparente qui est donc légèrement moins chargée en fibres.

Figure 10 Vue de en surface du composite à résine chimique P3Ra

3.2.2 Commentaires sur les résultats mécaniques :

On constate que la densité finale du composite à base de résine est légèrement plus importante que celle du composite à résine naturelle (+7%).

A masse de fibres initiale identique (le nontissé de fibres de kénaf peut être considéré comme homogène) et à teneur en fibres similaires dans le composite final, on constate que les performances mécaniques des composites à matrices chimiques sont nettement supérieures à celles que l'on obtient en utilisant la matrice biosourcée. Toutefois les variations observées ne sont pas les mêmes selon que l'on s'intéresse aux propriétés en traction ou en flexion. En s'intéressant uniquement aux systèmes P3a et P3Ra, et en terme de module d'élasticité, le gain en flexion est d'un facteur supérieur à 2,5 avec la résine chimique contre à peine 1,5 en traction. La différence est encore plus prononcée lorsque l'on confronte les valeurs obtenues à celles relatives à la résine.

L'ajout de fibres de kénaf à la résine augmente son module d'élasticité en flexion d'environ 56 % tandis que la contrainte de rupture en flexion diminue légèrement. Par contre, une résine chargée en fibres voit son module d'élasticité en traction divisé par un facteur supérieur à 3,4.

Ces résultats sont en accord avec la discussion précédente où l'on avait remarqué que le module en flexion est plus sensible à la nature et donc l'hétérogénéité de l'échantillon.

4 DISCUSSION SUR LES COMPOSITES DE RENFORT DE MASSE SURFACIQUE MOYENNE

(300 à 500g/m²)

4.1 Discussion entre résine naturelle et résine synthétique pour une deuxième famille de fibre: Lin bR et Lin bt

	Masse fibres (g/m²)	Teneur fibre (%)	Epaisseur (mm)	Densité	Contrainte flexion (MPa)	MOE Flexion (MPa)	Flèche à la rupture (mm)	Contrainte Trac MOR (MPa)	MOE Traction (MPa)	Allgt Max %
Linbt	364	0,29	1,1	1,1	41,65	4030	11,61	8,38	711	2,38
LinbR	325	0,25	1,2	1,1	108,88	4847	12,84	43,00	1344	5,67
résine	-	-	-	1,17	90,20	3178	nd	59,4	3307	3,00

Tableau 10 Propriétés des composites Lin bR et Lin bt

4.1.1 Généralités

L'échantillon de composites de **Lin bt** est comparé à l'échantillon de **Lin bR.** Ces deux systèmes ont été choisis pour leurs densités finales très proches (1,1 et 1,2) et leurs épaisseurs proches avec 1,1 mm et 1,2 mm.

Les échantillons sont fabriqués à partir du même renfort. La variation du poids de renfort entre les échantillons est inférieure à 15%, ce qui reste acceptable pour le type de process utilisé dans cette gamme de poids de nontissés. En terme d'épaisseurs, les 2 procédés utilisés nous donnent un écart de 0,1 mm: 1,10 mm pour le composites résine naturelle et réalisé par thermocompression et 1,20 mm pour le composite dont la matrice chimique est mise en œuvre via la technique de l'infusion qui compresse moins les fibres.

Le composite à base de résine chimique LinbR est plus épais (1,2 mm) et légèrement plus lourd avec 1326g/m² au final que le composite préparé à partir de résine naturelle dont la masse surfacique est de 1250g/m2 et qui présente une épaisseur de 1,1 mm. Ces valeurs expliquent la densité identique au final des deux composites.

4.1.2 Commentaires sur l'aspect visuel :

Les clichés réalisés (grossissement x 200 et x 35) pour ces deux types de composites ont été reproduits ci-dessous.

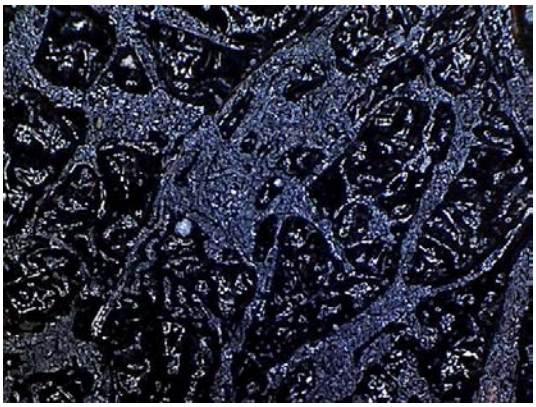


Figure 11 Lin bt vue en surface avec agrandissement 200 fois

Figure 12 Lin bt vue en coupe grossissement 200 fois

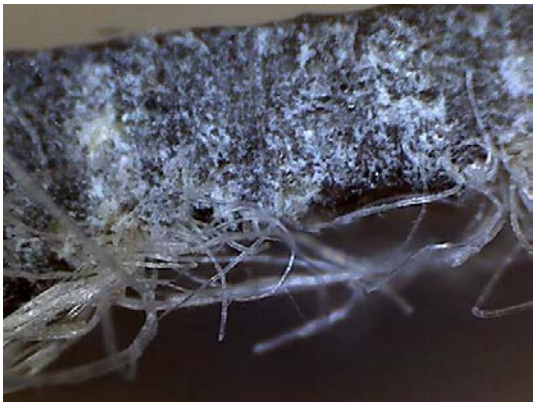


Figure 13 Lin bR en coupe

4.1.3 Composite à résine biosourcé Lin bt :

Ce composite semble bien imprégné. En surface, les fibres sont bien liées sans surplus de résine. On observe seulement une différence très minime de couleur entre l'intérieur et la surface du composite, et sur la vue en coupe on constate que le matériau est parfaitement imprégné à cœur sans aucun phénomène de strates. Les fibrilles claires qui apparaissent sur cette coupe proviennent uniquement de l'outil de coupe utilisé lors de la préparation des éprouvettes pour l'analyse au microscope.

4.1.4 Composites à résine synthétique Lin bR:

On ne remarque pas de bulles d'air à l'intérieur du composite ce qui est un gage d'une bonne maîtrise du process d'infusion de résine.

Dans cette plage de poids avec la fibre de lin utilisée et malgré la transparence de la résine on ne peut plus distinguer de zone plus ou moins chargée en fibres. Cela vient du fait que le renfort est réalisé avec plus de voiles de carde superposés dans le process textile au nappeur et donc le renfort fibreux est bien plus épais et beaucoup plus homogène.

Par contre, en utilisant une table lumineuse, on peut remarquer que les trous réalisés par l'aiguilleteuse dans le sens Z (vertical) au cours de la consolidation restent présents dans le composite. Si l'on revient sur l'aspect visuel du nontissé (donc sans résine), on peut comparer les diamètres des trous sur le composites et sur les nontissés. On remarque une diminution de ces diamètres de 0,85 mm à 0,5 mm environ (figure 14 et 15). Cette diminution vient du fait que l'on écrase le renfort par compression de la bâche à vide lors du process de fabrication du composite par infusion. On remarque également que les fibres autour des trous et dans le trou ne semblent pas cassées par l'aiguilleteuse. On peut observer également au niveau de chaque trou un puits bordé de fibres entières. C'est un bon point, car si ce trou est bien une source de défaut et de concentration de contraintes dans le composite, on peut aussi penser que la concentration de fibres à cet endroit renforce particulièrement le matériau et va aussi disposer des fibres ou parties de fibres dans le sens Z (vertical). Ce puits réalisé par l'aiguille a pour autre avantage de créer un canal vertical capable de conduire la résine et donc être un facteur favorable pour une bonne imprégnation et diffusion dans le renfort.

En plus du risque de casse de la fibre dans les sens X et Y par l'aiguille, ce phénomène de création de trou (ou puits) va diminuer la longueur de fibre dans ce même plan du composite. Il est également possible d'ajouter en remarque complémentaire, que sur la face inférieure, on

ne voit pas les trous d'aiguilles. L'aiguille ne traverse pas trop profondément, ce qui était recherché au départ dans le but de préserver au maximum les fibres.

En conclusion, ce phénomène est peut être une explication aux faibles valeurs en traction et bonnes valeurs en flexion atteinte par ces matériaux.

Figure 14 nontissé lin vue de dessous : pas de trous visibles

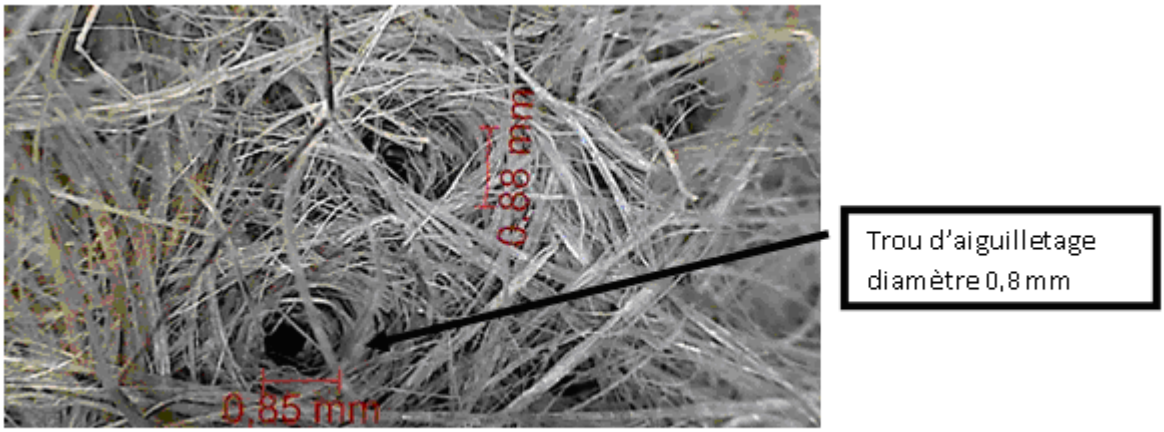


Figure 15: Nontissé lin vue de dessus

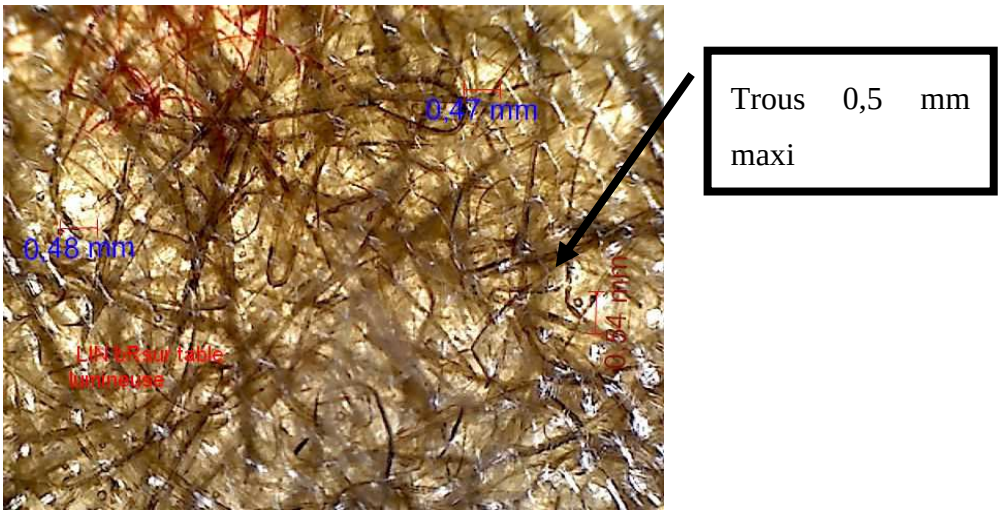


Figure 16 Composite Lin bR Observé sur table lumineuse

4.1.5 Analyses et discussions des caractéristiques mécaniques :

En flexion, les modules d'élasticité (MOE) sont très similaires pour les 2 matériaux Lin bR et Lin bt avec un écart de seulement de 13% : 4030 MPa pour le composite à base de résine naturelle contre 4847 MPa pour le composite à base de résine synthétique. Cette valeur de module obtenue avec la résine « base tannin » est au-dessus de la résine synthétique pure et proche des composites fibres/résine chimique. C'est encourageant et largement au-dessus des systèmes kénaf/tannin réalisés précédemment.

Ce résultat n'est pas surprenant car les fibres de lin sont généralement plus résistantes que les fibres de kénaf, ce qui sera confirmé dans le chapitre sur la mesure des caractéristiques des fibres. Ici, les fibres de lin semblent vraiment apporter des propriétés mécaniques par rapport à la résine seule (au moins en flexion), alors que l'on pouvait s'interroger pour les systèmes précédents. Ce composite, au niveau du module de flexion ouvre donc de bonnes perspectives.

A densité égale et avec la différence d'épaisseur des matériaux de 0,1mm, le pourcentage de renfort lin dans le système résine naturelle tannin, est plus important que dans le composite à résine synthétique. En d'autres termes, la résine tannin étant moins dense, on a donc plus de fibres que dans le composite chimique. Les fibres étant plus performantes que dans le système Kénaf, elles peuvent ici apporter une amélioration du module de flexion.

Les remarques sont similaires pour les contraintes en flexion, pour lesquelles on dépasse les 40 MPa soit plus de 50% de plus que les systèmes kénaf/tannin. Avec le composite Lin et résine chimique on obtient une valeur supérieure à 100 MPa, ce qui est au delà de la valeur de la résine seule, et donc on augmente bien cette caractéristique par l'incorporation des fibres naturelles de lin.

Les flèches à la rupture sont pratiquement égales avec 11,61 mm pour le lin/tannin Lin bt et 12,84 mm en moyenne pour le composite chimique LinbR.

En ce qui concerne les résultats relatifs aux tests de traction, les performances du composite biosourcé restent en deçà de celles caractérisant les systèmes basés sur la résine synthétique. (résine pure, kénaf/résine chimique, lin/résine chimique) que ce soit pour les modules de ruptures MOR ou le module d'élasticité MOE.

Ainsi, en terme de contrainte à la traction, on trouve une grande différence avec 63% d'écart en faveur du composite à base de résine chimique. De même, on obtient un module d'élasticité en traction inférieur de 47 % avec la résine tannin par rapport au chimique et un

module de rupture en traction de 81% inférieur au composite lin / résine chimique et résine seule.

En traction, les fibres jouent donc difficilement leur rôle de renfort. C'est le même phénomène que celui observé précédemment, où les composites les plus performants en flexion comme le P3at et P3aR réalisés avec le kénaf subissaient un abattement de leurs performances en traction.

Cependant ces composites à base de lin, LinbR et Lin BT restent meilleurs que les composites à base de kénaf.

En ce qui concerne les allongements à la rupture, ceux–ci sont faibles et montrent que le domaine plastique reste peu étendu, ce qui est en bon accord avec les propriétés intrinsèques du lin.

4.2 Discussions entre 2 composites à base de résine chimiques et renfort lin

Pour confirmer les bonnes propriétés obtenues avec une matrice synthétique, nous avons préparé 2 nouveaux matériaux similaires aux précédents. Nous avons veillé à atteindre les mêmes épaisseurs et les mêmes densités. La masse surfacique finale pour composites est de 1330 g/m².

	Masse Fibres (g/m²)	Teneur fibres (%)	Epaisseur (mm)	Densité	Contrainte Flexion (MPa)	MOE Flexion (MPa)	Flèche à la rupture (mm)	Contrainte Traction MOR (MPa)	MOE Traction (MPa)	Allgt Max %
LinaR	312	0,23	1,2	1,12	109,1	5125	10,12	30,5	1244	3,96
LinbR	325	0,25	1,2	1,11	108,9	4847	12,84	43,0	1344	5,67
résine	-	-		1,17	90,2	3178	Nd	59,4	3307	3,00

Tableau 11 Propriétés des composites LinaR et bR

En comparant linaR et linbR en Flexion, on remarque une bonne reproductibilité du process et l'on peut pratiquement dire que les 2 matériaux sont identiques surtout pour les contraintes et modules en flexion et traction.

Pour LinaR le Module d'élasticité est légèrement supérieur (+7%). Cette donnée ce traduit dans la valeur de flèche à la rupture qui est inférieure d'environ 2mm, puisque la contrainte en flexion MOR en traction est restée la même stable au-dessus des 100 MPa à 109 MPa.

Ensuite en ce qui concerne la traction, le LinaR est inférieur à LinbR en traction que ce soit pour le MOE Module d'élasticité ou en contrainte ramené à l'épaisseur MOR traction. Comme précédemment, on a une dégradation avec les valeurs de traction vis-à-vis de la résine seule encore plus marquée.

On peut donc en conclure que l'on a bien une bonne reproductibilité des caractéristiques avec les fibres végétales de lin et la résine synthétique.

4.3 Discussion entre résine naturelle et résine chimique pour le jute avec P8bt et P8aR

L'objectif de ce paragraphe est de discerner si les observations relatives au lin sont transférables à une autre fibre (la fibre de jute) et dans la même gamme de poids (300 à 500 g/m²).

	Masse fibres (g/m²)	Teneur fibres (%)	Epaisseur (mm)	Densité	Contrainte flexion (MPa)	MOE Flexion (MPa)	Flèche à la rupture (mm)	Contrainte Traction MOR (MPa)	MOE Traction (MPa)	Allgt Max (%)
P8bt	444	0,23	1,6	1,21	24,40	1543	7,93	9,7	469	6,30
P8aR	478	0,23	2	1,05	93,09	4660	4,70	27,8	730	6,40
résine	-	-		1,17	90,20	3178	Nd	59,4	3307	3,00

Tableau 12 Propriétés des composites P8bt et aR

4.3.1 Commentaires sur l'aspect visuel

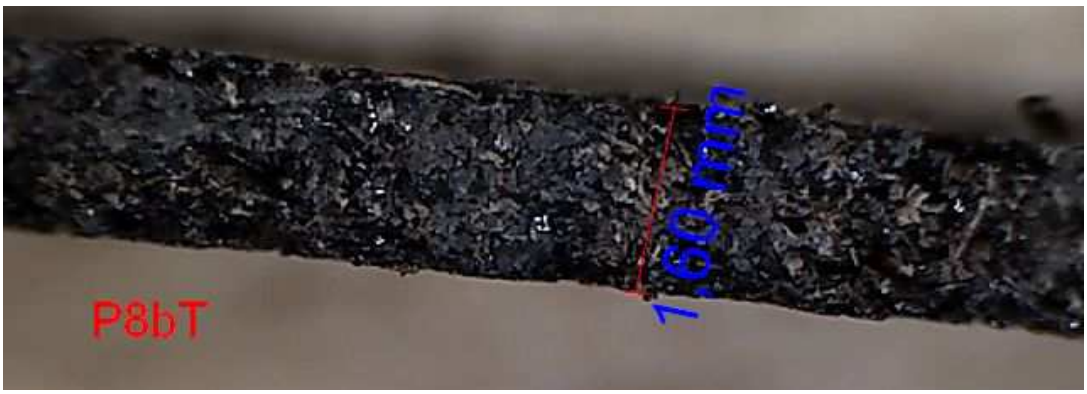


Figure 17 P8bt en coupe

Le composite P8bt est très bien imprégné car on n'observe aucun changement de couleur dans l'épaisseur du matériau, ce qui laisse à penser que le matériau est bien homogène.

4.3.2 Commentaires sur les résultats mécaniques :

Les composites ont été réalisés à partir du même renfort de jute P8. Avec ici au final les mêmes pourcentages de renfort soit 23% de fibres en poids. Les épaisseurs obtenues sont supérieures à celles mesurées sur les systèmes précédents avec 1,6 mm pour le composite P8bt et 2 mm pour le composite P8aR. Les densités obtenues sont également différentes et l'on note une densité plus élevée pour le composite naturel P8bt : 1,21 contre 1,05 pour P8aR.

Si l'on examine les résultats obtenus pour la contrainte de flexion, la présence de la fibre dans le composite P8aR semble apporter une amélioration par rapport à la résine seule puisque que l'on est au-dessus de 90MPa. Pour le module d'élasticité en flexion, on note une augmentation de plus de 40%. En revanche, on assiste de nouveau à un abattement très fort des valeurs en traction. Ainsi pour le module d'élasticité, le composite est quasiment deux fois moins rigide que la résine seule. La contrainte en traction est divisée par 4,5 par rapport à la référence matrice. On retrouve donc le même phénomène que celui mis en évidence dans la partie précédente où nous avions montré que les composites à base de lin sont beaucoup moins bons en traction qu'en flexion.

4.4 Discussion entre résine naturelle et la famille de fibre jute P8

	Masse fibres (g/m²)	Teneur fibres (%)	Epaisseur (mm)	Densité	Contrainte flexion (MPa)	MOE Flexion (MPa)	Flèche à la rupture (mm)	Contrainte Traction MOR (MPa)	MOE Traction (MPa)	Allgt Max (%)
P8ct	338	0,19	1,0	1,08	33,58	2662	5,70	10,54	552	4,3
P8at	373	0,22	1,5	1,13	33,96	3248	6,17	11,82	689	2,8
P8bt	444	0,23	1,6	1,21	24,40	1543	7,93	9,70	469	6,3

Tableau 13 Propriétés des composites P8 at, bt et ct

4.4.1 Commentaires sur l'aspect visuel :

Dans cette famille de composites, on compare les matériaux réalisés à partir de plusieurs renforts de fibres de jute. Cette fibre qui avait un bon comportement à la carde, semble bien s'imprégner. L'observation en coupe au microscope montre en effet (voir figures ci-dessous) que l'imprégnation a lieu à cœur pour les 3 systèmes préparés. Les matériaux finaux présentent donc un aspect bien homogène.

Même si l'examen en coupe demeure primordial, cette famille de composites a un taux de fibres moyen de 21% soit 79% de résine, ce qui pourrait présager une bonne imprégnation.

On remarque cependant, par examen des photos en coupe que P8at est bien moins compact que le P8bt, ce qui est validé par le calcul de densité qui donne 1,21 pour P8bt contre 1,13 pour P8at, les deux composites ayant sensiblement le même taux de fibres. P8ct se situe quant à lui entre les 2.

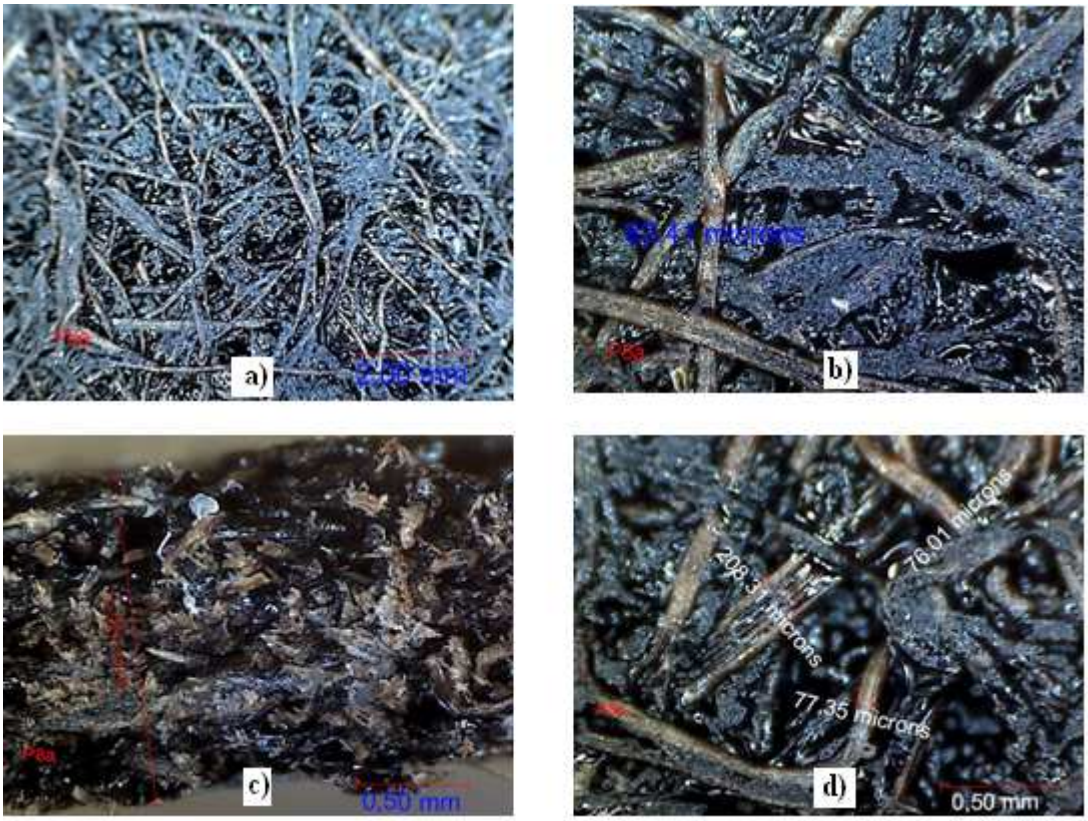


Figure 18 vues de P8at, avec a) vue de face (x35), b) et c) vue de face (x200), d) vue en coupe (x200)

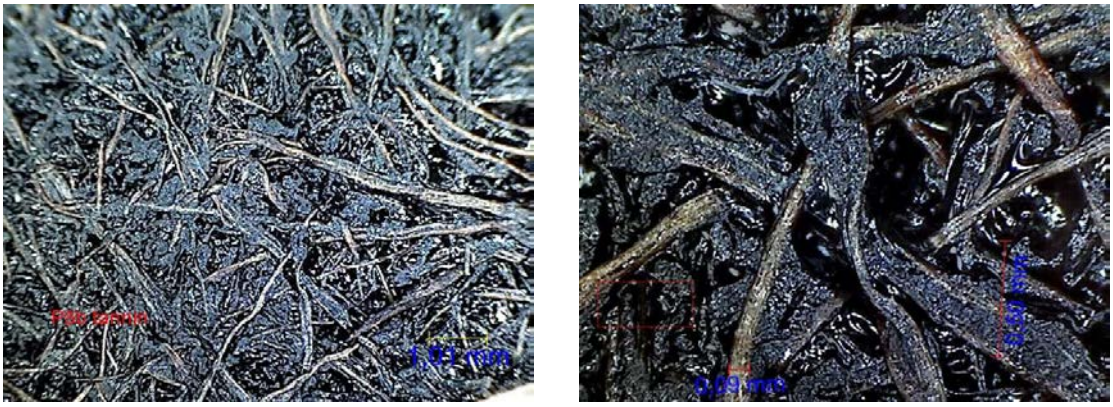


Figure 19: P8bt en surface grossissement 35 et 220 fois

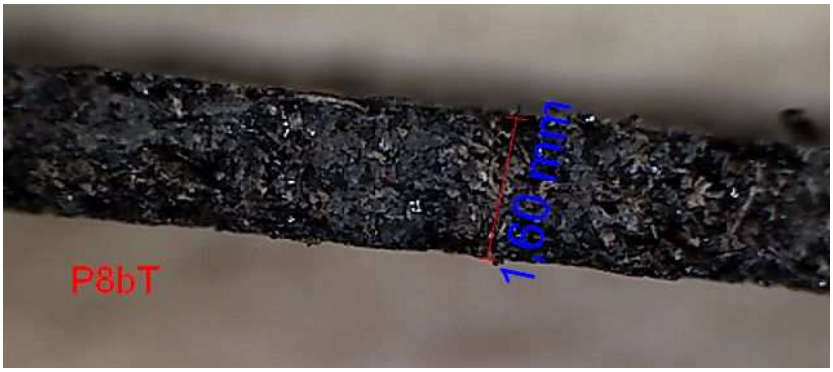


Figure 20 Fig P8bt en coupe grossissement 30 environ

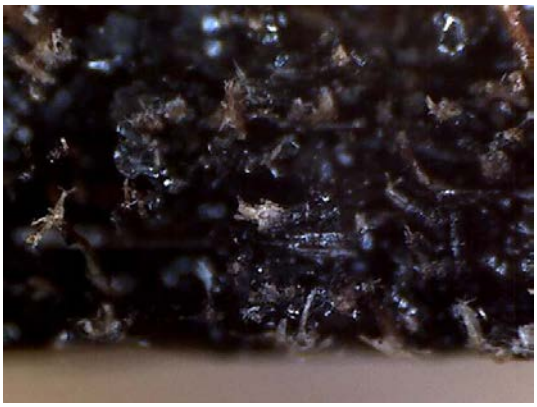


Figure 21: P8bt en grossissement 220 fois

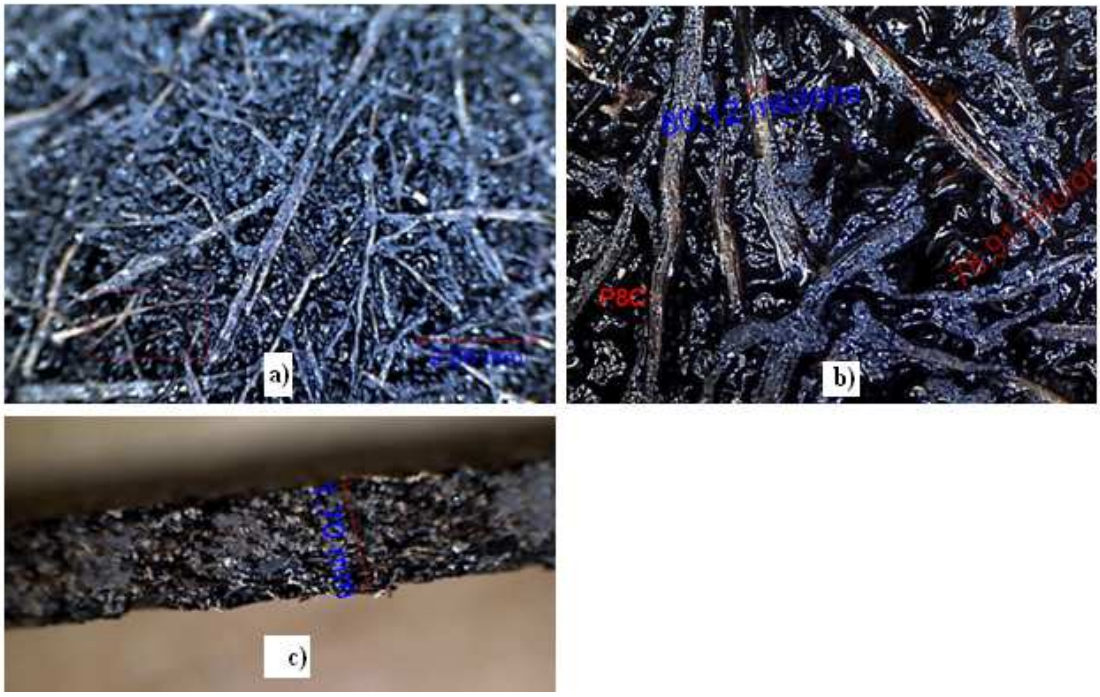


Figure 22 biocomposite P8ct a) vue de face (x35), b) vue de face (x200) , c) vue en coupe (x 35)

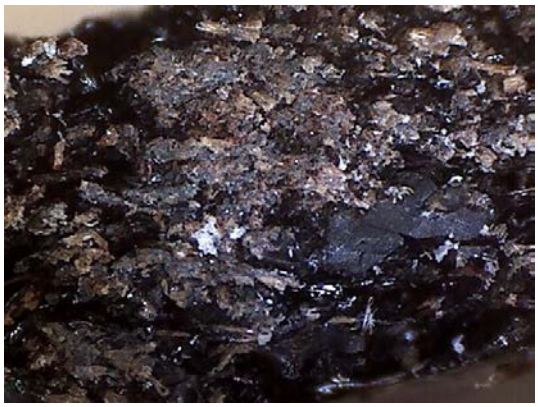


Figure 23: P8ct en grossissement 220 fois

4.4.2 Analyses et discussions des caractéristiques mécaniques :

4.4.2.1 Valeurs en flexion :

Le meilleur module d'élasticité en flexion (MOE) est obtenu pour le composite P8at (3248 MPa) pour lequel on obtient également les meilleurs résultats en termes de contrainte de flexion (MOR de 34 MPa).

S'agissant du système P8ct, les valeurs obtenues restent comparables mais sont légèrement inférieures à celles du composite précédent. C'est moins le cas pour le système P8bt pour lequel les MOE et MOR sont nettement inférieurs aux valeurs précédentes. Le matériau semble moins résistant mais plus souple puisque la flèche à la rupture est nettement accrue : voisine de 8mm contre approximativement 6 mm pour les composites précédents.

4.4.2.2 Valeurs en traction :

Les mêmes observations peuvent être faites pour le composite P8at. Si les MOR restent comparables, avec les 3 systèmes, c'est le composite P8at qui présente le module d'élasticité le plus important et l'allongement à la rupture le plus faible. On constate d'ailleurs que pour ces systèmes, plus le MOE est élevé, plus le MOR semble l'être, tandis que l'allongement maximum varie en sens inverse.

Dans notre process, avec ce taux de fibres compris entre 0,19 et 0,23, l'autre caractéristique qui différencie ces composites est la densité. Cette densité aurait donc une influence importante sur les caractéristiques mécaniques du composite. D'après ces résultats, on peut

donc envisager l'hypothèse d'une densité idéale proche des 1,13. A titre de remarque, c'était déjà le cas avec les systèmes précédents (voir résultats en traction du système P3b). Avec ces paramètres, on optimise à la fois les résultats en flexion et en traction.

Au-dessus de cette valeur de 1,13 le matériau est peut-être trop écrasé par la presse et les fibres semblent perdre leurs propriétés mécaniques.

4.5 Discussion entre les Lin at, bt, ct (en résine tannin)

Les résultats des mesures pour cette famille de composites sont synthétisés dans le tableau suivant :

	Masse fibres (g/m²)	Teneur fibres (%)	Epaisseur (mm)	Densité	Contrainte flexion (MPa)	MOE Flexion (MPa)	Flèche à la rupture (mm)	Contrainte Traction MOR (MPa)	MOE Traction (MPa)	Allgt Max (%)
Linbt	364	0,29	1,1	1,14	41,65	4030	11,61	8,38	711	2,38
Linbt	387	0,28	1,1	1,24	26,08	2493	9,33	6,28	528	2,11
Lin ct	341	0,29	1,1	1,05	33,55	2100	12,16	11,90	558	5,68

4.5.1 Commentaires sur l'aspect visuel :

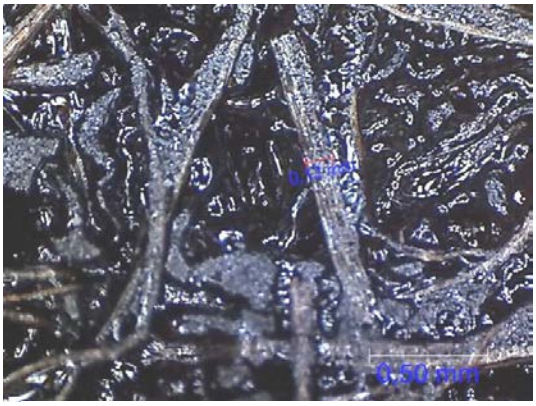


Figure 25 Lin at (x200)

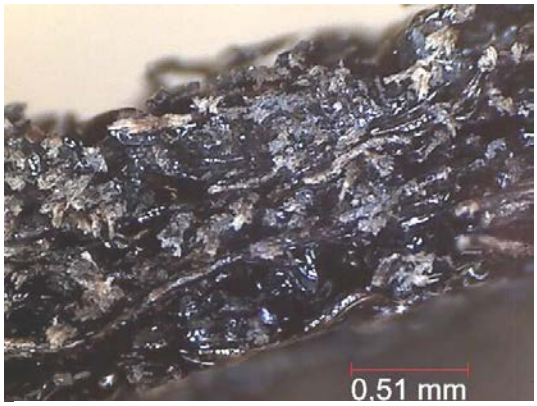


Figure 24 Lin at en coupe (x200)

Figure 27 Lin ct (x200)

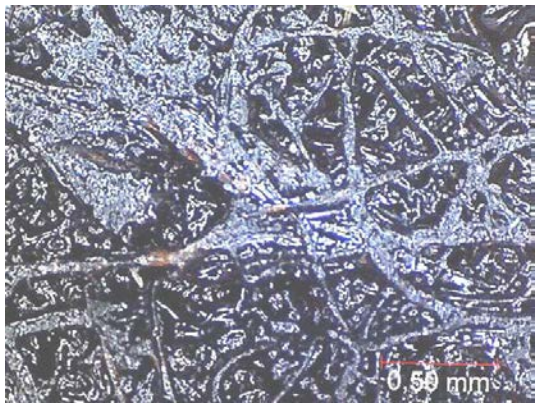


Figure 26 Lin bt (x200)

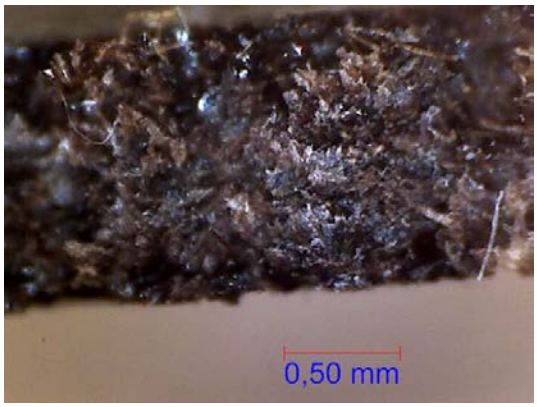


Figure 28 Lin ct en coupe (x200)

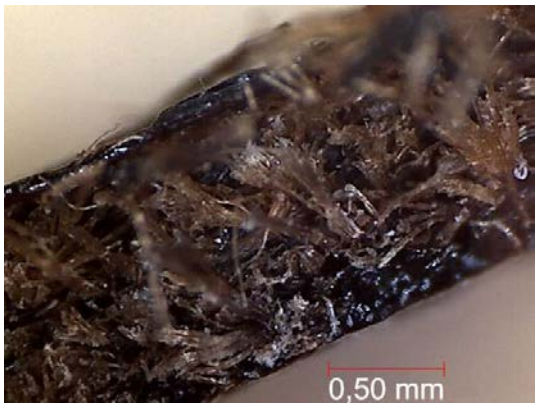


Figure 29 Lin bt en coupe (x200)

Pour ces trois composites, on remarquera une bonne imprégnation de la fibre en surface, la résine mouille les fibres. Par contre en vue de coupe, on constate que la fibre n'est pas autant imprégnée. On peut remarquer sur les échantillons bt et ct une couleur plus claire et donc une imprégnation plus faible au centre. Cela n'est pas visible sur l'échantillon A.

4.5.2 Commentaires sur les caractéristiques mécaniques :

Pour ces trois composites, les masses spécifiques de renfort sont comprises entre 341 et 387 g/m² soit une valeur moyenne de 364g/m² +/- 6,3% et l'on a donc une variation inférieure à 10% qui est généralement déjà considérée comme très acceptable pour ce type de nontissés (cardés-nappés) produits sur ligne industrielle. La teneur en fibre est quasi constante (0,28 à 0,29). Ce qui varie c'est donc la densité.

4.5.2.1 En flexion

La contrainte de flexion ramenée à l'épaisseur passe par un maximum (41,65 MPa) pour une densité de 1,14.

Il en va de même pour le module de flexion, et la valeur obtenue (4030 MPa) est très encourageante, puisqu'elle constitue la meilleure valeur obtenue jusqu'alors.

4.5.2.2 En traction

Concernant la traction, on retrouve la meilleure valeur de module pour le composite Linbt , c'est-à-dire celui de densité de 1,14.

Par contre le composite le plus performant en terme de contrainte à la traction (MOR de 11,90 MPa) est le composite Lin ct qui est le moins dense (1,05) et qui est issu du mat dont la masse spécifique est la plus faible (341 g/m²).

Le composite Lin AT bénéficie de la masse de fibre la plus importante amenant à la densité la plus forte des trois composites. En termes de contrainte à la flexion et traction ramenée à l'épaisseur on trouve les résultats les plus bas avec ce composite Lin At. A ce stade, on pourrait donc de nouveau émettre l'hypothèse qu'il y a un bien optimum en lien avec la densité du composite et bien sûr la qualité d'imprégnation visible sur les photos en coupe.

Globalement, sur cette famille de biocomposites en lin, on observe un passage par un maximum de quelques propriétés pour une densité de 1,14, toutes choses égales par ailleurs (teneur en fibres, masse spécifique et épaisseur).

4.5.3 Réalisation d'un mélange de fibres pour des composites dans la classe 300 à 400 g/m² en utilisant le lin et le kénaf

Pour cette série, nous avons réalisé un mélange de fibres dans le process textile en utilisant le lin et le kénaf dans le but d'atteindre les meilleures caractéristiques. Ce mélange se comporte bien à la carde et l'on obtient un voile bien régulier et un aiguilletage aisé. De plus, on ne relevait que peu de glissement dans la phase d'aiguilletage, c'est-à-dire qu'au regard du process, ce nontissé possède déjà une bonne tenue.

Pour réaliser ces composites, nous avons utilisé le même renfort P9 que nous avons imprégné et compressé à différentes épaisseurs dans le but d'obtenir plusieurs densités. Le temps de compression et les températures de process sont les mêmes pour les trois composites.

Les résultats sont synthétisés dans le tableau ci-dessous :

	Masse fibres (g/m²)	Teneur fibres (%)	Epaisseur (mm)	Densité	Contrainte flexion (MPa)	MOE Flexion (MPa)	Flèche à la rupture (mm)	Contrainte Traction MOR (MPa)	MOE Traction (MPa)	Allgt Max (%)
P9bt	361	0,26	1,2	1,15	44,22	3355	6,30	13,17	1006	3,54
P9at	378	0,26	1,9	0,77	16,07	800	8,90	10,41	421	4,26
P9ct	385	0,26	1,1	1,36	30,08	1796	12,57	9,94	667	6,40

Tableau 14 Propriétés des composites P9at,bt et ct

4.5.3.1 Commentaires sur l'aspect visuels de ces composites :

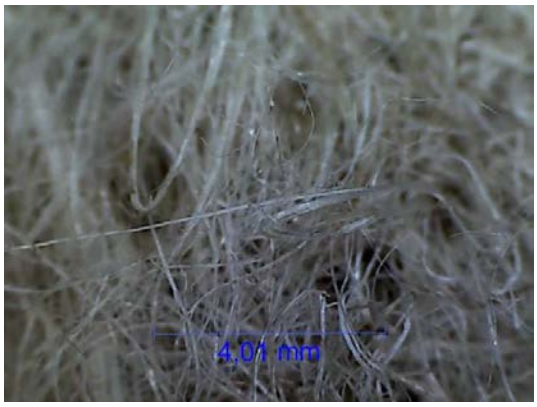
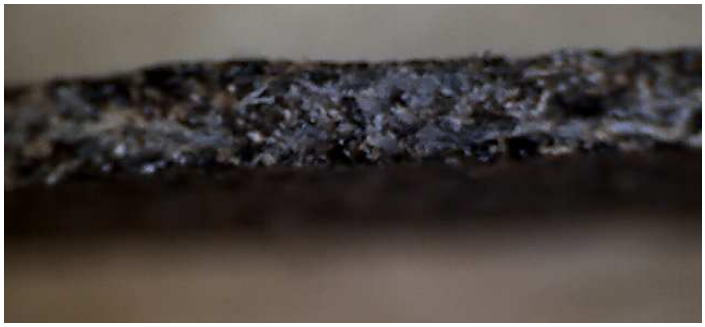


Figure 30 nontissé P9



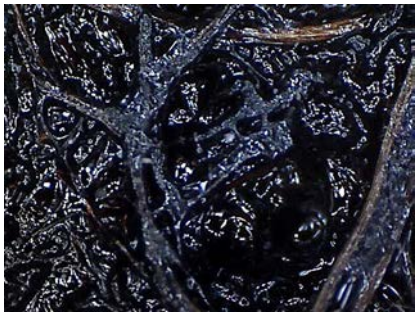


Figure 31 Nontissé P9at vue de face (x200) et en coupe (x35)

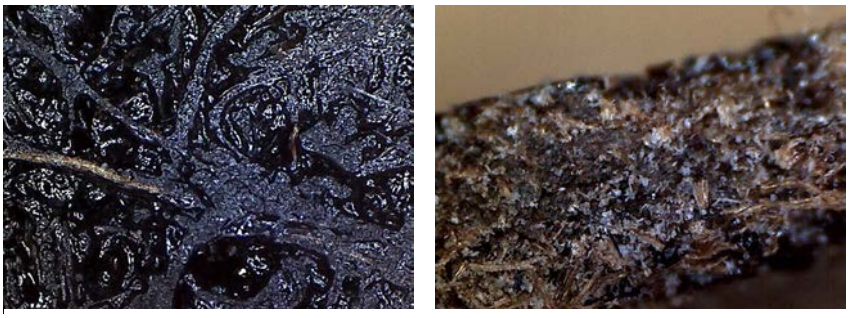


Figure 32 Composite P9bt vue de face (x35) et en coupe (x 200)

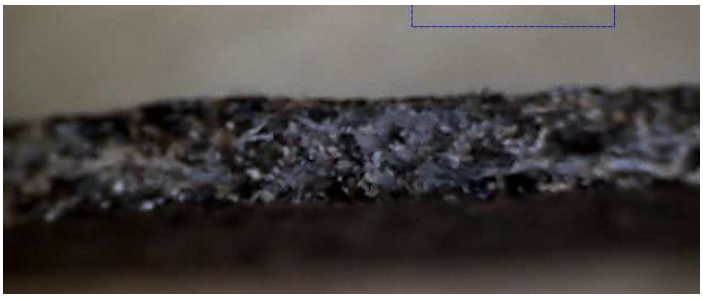


Figure 33 Composite P9bt en coupe (x30)

Figure 34 Composite P9ct en vue de face (x 30)

Figure 35 Composite P9ct en coupe (x30)

Les 3 composites sont bien imprégnés à cœur. Il n'y pas de variation de couleur. On peut noter une différence entre le composite P9ct et les autres en regardant les états de surface. Ce dernier est plus lisse avec des petites plaques de résines réticulées en surface témoignant d'une saturation en résine. En d'autres termes, la résine en surplus est venue ou restée en surface. Etant donné que l'on a apparemment une bonne imprégnation à cœur, ce surplus de résine réticulée en surface apporte surtout un caractère esthétique. Elle ne témoigne, dans ce cas, pas d'une mauvaise pénétration et imprégnation dans la fibre.

4.5.4 Discussion sur les résultats mécaniques :

Les masses spécifiques des nontissés initiaux sont quasiment identiques.

Les taux de fibres sont rigoureusement constants (26% en masse) dans le composite final et l'on a donc fait varier l'épaisseur afin de disposer de 3 densités différentes et de valider l'hypothèse précédente de la densité idéale vers 1,13 déterminée avec le composite réalisé avec la fibre de jute P8.

4.5.4.1 En flexion :

En termes de résultats en flexion et en traction, le composite P9bt réalisé à la densité de 1,15 se révèle être nettement supérieur aux deux autres.

Ainsi pour les caractéristiques de flexion, le MOR est de 44,22 MPa soit près de 47% plus résistant que le composite P9ct à la densité de 1,36. Le module d'élasticité en flexion de P9bt est lui de 3355MPa soit 86% plus rigide que le P9bt. La flèche à la rupture pour ce composite P9ct devient aussi très importante à 12,57 mm. Le matériau final étant très dense, les fibres semblent trop écrasées et donc on obtient un matériau final qui reste souple. La différence avec le composite P9at de densité à 0,77 est encore plus importante, puisque le MOR est pratiquement trois fois plus faible que le P9bt et de même que le MOE (800 MPa au lieu de 3355 MPa).

4.5.4.2 En traction

La densité réglée à 1,15 s'avère également le meilleur compromis puisque le composite P9bt montre les meilleurs résultats pour les valeurs en traction. Ainsi, le MOR est près de 30 % supérieur à celui des deux autres composites avec une valeur de 13,17MPa. Pour le MOE, on est également bien supérieur puisque le composite P9bt est en moyenne deux fois plus rigide que les deux autres. Ce qui est intéressant, c'est que le matériau est performant en flexion et traction, mais que comme pour les composites précédents, les différences, qui sont certes dans ce cas précis importantes, sont néanmoins moins marquées dans le domaine de la traction.

4.5.5 Influence de la nature des fibres pour des composites dans la classe 300 à 500 g/m²

Pour une fibre donnée, tous les résultats précédents semblent montrer que la densité du matériau final est un paramètre essentiel. Elle traduit vraisemblablement un taux d'écrasement des fibres et l'on peut supposer que si l'écrasement est trop important, on risque d'altérer les propriétés mécaniques des renforts et donc du composite final.

Si l'on veut tenter d'évaluer l'influence de la nature des fibres, il est donc préférable de travailler à densité quasi constante. Dans le tableau suivant, nous avons regroupé les résultats obtenus dans la caractérisation de 3 composites, basés sur 3 natures de renforts différents : Lin, jute et mélange lin/kénaf (densité voisine de 1,14) pour lesquels, la masse surfacique initiale en fibres est elle aussi, à peu près constante (variation inférieure à 5%).

Les résultats sont synthétisés dans le tableau ci-dessous :

	Masse fibres (g/m²)	Teneur fibres (%)	Epaisseur (mm)	Densité	Contrainte flexion (MPa)	MOE Flexion (MPa)	Flèche à la rupture (mm)	Contrainte Traction MOR (MPa)	MOE Traction (MPa)	Allgt Max (%)
Lin bt	364	0,29	1,1	1,14	41,65	4030	11,61	8,38	711	2,38
P8at (Jute)	373	0,22	1,5	1,13	33,96	3248	11,64	11,82	689	2,8
P9bt (Lin kénaf)	361	0,26	1,2	1,14	44,22	3355	6,3	13,17	1006	3,54

Tableau 15 : Propriétés des composites pour la classe de renfort de 300° à 500g/m²

Le composite P8at qui est le plus épais est aussi celui qui a légèrement moins de fibres. Il présente la plus faible contrainte de flexion avec une valeur de 33,96 MPa (MOR).

Cette valeur inférieure est probablement liée à la quantité légèrement plus faible de fibres.

Par contre, ce composite possède une contrainte en traction située entre les 2 autres composites avec une valeur de 11,82 MPa : Cette valeur est supérieure à la valeur de Linbt qui est de 8,38Mpa (soit une différence de 41% en faveur de P8at), et inférieure de 10,25% à celle de P9bt.

On voit donc qu'il n'y a pas forcement une corrélation entre les deux types de résistances à la traction et à la flexion pour ces composites et qu'un composite plus résistant en flexion pourra être légèrement moins bon par rapport à un autre composite en traction.

Le composite P9bt composé de lin et de kénaf en mélange a la même densité et une teneur en fibres située entre les deux autres composites. Les contraintes obtenues pour ce matériau en traction et flexion sont supérieures à celles des deux autres composites : 44,22 MPa en flexion et 13,17 MPa en traction. Nous avions déjà remarqué que le renfort de ce composite se comportait bien en cardage, ce qui pourrait expliquer ces résultats : les propriétés des 2 fibres seraient alors associées pour amener à des caractéristiques plus intéressantes.

On remarque aussi que la valeur de flèche à la rupture est nettement diminuée pour ce composite en mélange P9bt par rapport aux deux autres. On observe ainsi une diminution de 47% de la valeur de flèche lors du test de flexion pour une contrainte quasiment identique.

Les modules d'élasticité de P9bt en mélange lin/kénaf sont meilleurs que ceux du lin seul.

Le composite mixte lin/kénaf s'imprègne correctement puisque avec une densité classique (1,14) et le taux de fibres reste dans les valeurs normales également (26%).

On pourrait donc avancer la raison suivante à ce résultat : Le mélange lin/kénaf fonctionne mieux lors de sa préparation à la carde. Les nontissés réalisés sont probablement plus homogènes avec moins de défauts.

5 DISCUSSION SUR LES COMPOSITES DE RENFORT DE MASSE SURFACIQUE ELEVEE

(Supérieure à 800 g/m²)

5.1 Discussion pour le mélange LIN/CHANVRE avec résine naturelle et résine chimique P6at , P6bt et P6R

5.1.1 Généralités et commentaires sur l'aspect visuel des mélanges de fibres Lin et chanvre

Le mélange de ces fibres a été choisi car nous avons constaté qu'elles se mélangeaient bien dans nos opérations de préparation et que ces mélanges facilitent aussi la marche de la carde. L'intérêt est aussi économique puisque les fibres de chanvre sont moins coûteuses. Nous avons également remarqué aussi que ce mélange de fibres se mouillait particulièrement bien, ce qui nous permettait d'envisager un composite avec un ratio fibre/ matrice plus important.

Le process par infusion que nous avons utilisé amène à réaliser des composites beaucoup plus épais. En effet, en partant d'un renfort identique en termes de masse spécifique et donc d'épaisseur, nous avons obtenu un composite résine quasiment 2 fois plus épais et donc comportant la moitié de renfort. Le poids obtenu avec le composite avec résine chimique est donc logiquement deux fois plus lourd et a finalement une densité qui reste relativement proche pour les deux matériaux (822 et 888).

Pour ce composite avec résine chimique, la valeur de taux de fibres, est de 0,29 ce qui est légèrement supérieur aux valeurs des composites avec résine chimique précédemment réalisés avec les autres fibres et dans les classes de masse surfacique de 200 à 300g/m², 300 à 400 g/² et de 400 à 500 g/m² puisque la valeur se situait entre 0,16 et 0,23 environ avec un maximum pour le LinRb à 0,25. Il y a donc aussi une augmentation du taux de fibres ce qui est intéressant et cette fois contrairement au composite en résine naturelle, les fibres semblent mieux mouillées, c'est-à-dire que la répartition de la résine dans le composite est plus homogène. Sur la figure suivante, on observe les trous d'aiguilletage qui permettent certainement de canaliser la résine dans le matériau pour l'amener au sein des fibres. Ce phénomène est intéressant surtout si on envisage de monter en poids de renfort et surtout en épaisseur.

Concernant les teneurs en fibres, on obtient avec les composites naturels P6at et P6bt des valeurs plus importantes que pour les composites naturels réalisés avec les autres fibres dans les classes de poids inférieurs. Ces valeurs sont intéressantes dans le sens où elles se rapprochent des valeurs obtenues avec un système composite classique où l'on cherche à travailler, en principe, avec un mélange aux environs de 50% de renforts et donc 50% de matrice.

Au moment du process d'imprégnation, les mats semblaient bien s'imprégner et nous avons relevé une bonne affinité avec la résine nous laissant espérer un ratio résine et fibres optimal.

Cependant, comme observé sur les photos, la teneur de fibres semble supérieure au cœur du composite, ce qui suggère que nous avons formé un type de matériau sandwich avec une âme composée de plus de fibres et de peaux extérieures avec un rapport de résine plus important.

Dans ce process, le taux de fibres obtenu est très haut pour un composite réalisé avec la résine naturelle de tannin. Le pourcentage de renfort obtenu (supérieur à 46 % et jusqu'à 57%) est une valeur recherchée au départ, mais malheureusement obtenue à cause d'une mauvaise imprégnation à cœur que l'on observe ensuite en découpant le matériau.

Les caractéristiques des composites lin/chanvre/tannin et lin/chanvre/résine synthétique sont reportées dans le tableau suivant :

	Masse fibres (g/m²)	Teneur fibres (%)	Epaisseur (mm)	Densité	Contrainte flexion (MPa)	MOE Flexion (MPa)	Flèche à la rupture (mm)	Contrainte Traction MOR (MPa)	MOE Traction (MPa)	Allgt Max (%)
P6at	898	0,46	2,0	0,98	27,1	1412	7,3	6,96	356,7	5,42
P6bt	933	0,57	2,0	0,82	28,6	1028	13,5	5,25	363,2	3,09
Moyenne P6t	915	0,51	2,0	0,90	27,9	1220	10,4	6,10	359,0	4,25
P6R	985	0,29	3,8	0,88	68,1	2668	4,2	26,77	1516,0	3,65
Résine	-	-		1,17	90,2	3178	Nd	59,40	3307,0	3,00

Tableau 16 Propriétés des composites en renfort P6 lin et chanvre

Commentaires sur l'aspect visuel de P6at

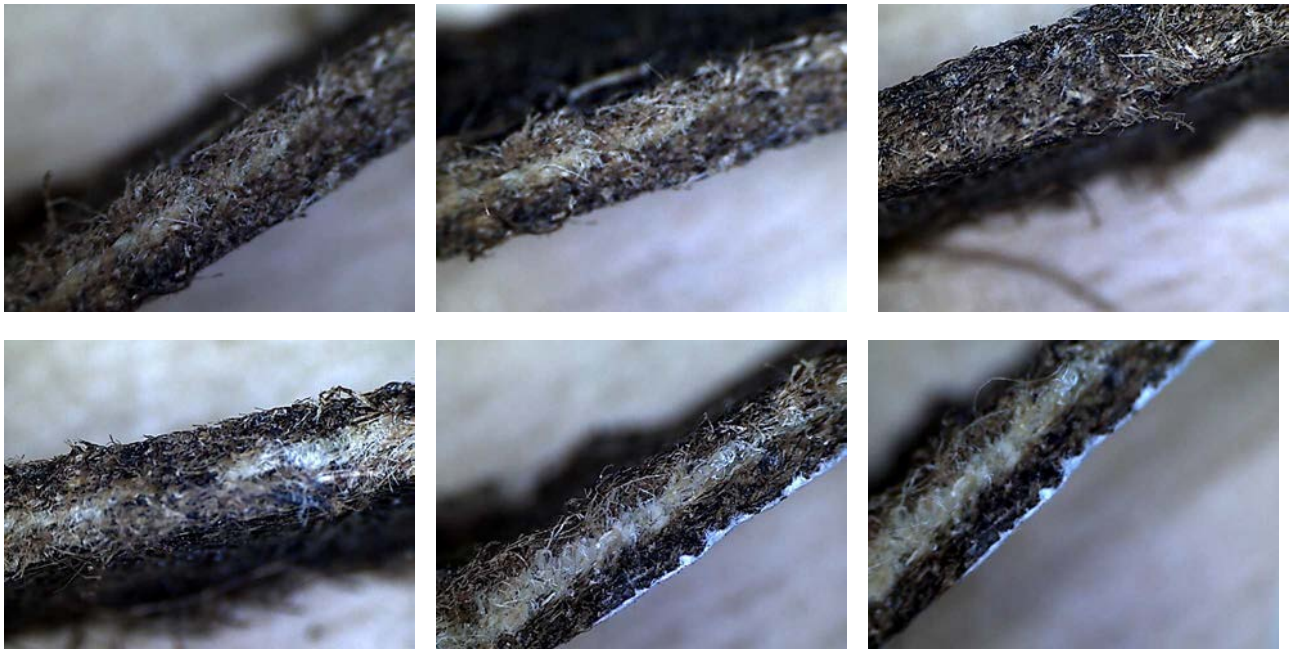


Figure 36 6 vues en coupe de P6at grossissement à 50 x

On observe sur la plupart des coupes réalisées sur le composites P6at une zone bien plus claire au cœur de la matière liée à une imprégnation plus faible.

On a donc dans cette zone claire un taux de fibres plus important. En surface du composite le taux de résine est supérieur.

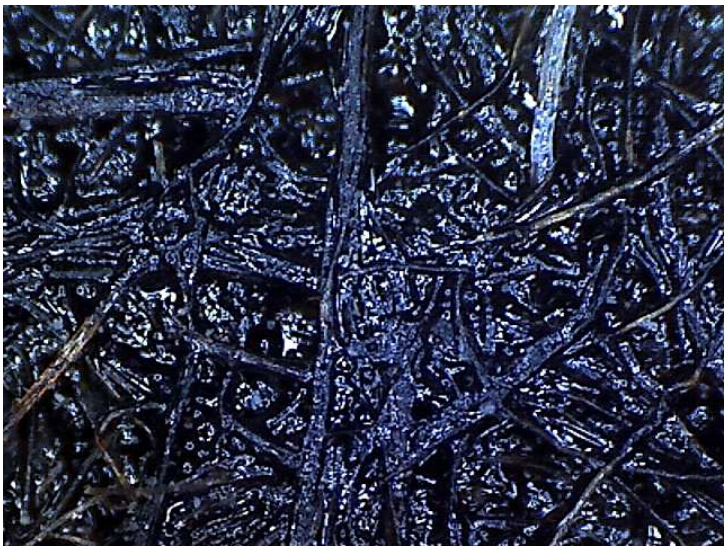


Figure 37 P6at grossissement 200 x

Sur la figure ci-dessus, le composite P6at est observé non pas en coupe mais en surface. On confirme ce que l'on a observé précédemment puisque que l'on remarque que les fibres sont très bien imprégnées par la résine naturelle. On peut en conclure que le taux de résine est en surface très important, en tout cas bien supérieur à ce qu'il n'est au cœur du matériau.

Commentaires sur l'aspect visuel de P6bt

Figure 38 : 2 vues de P6bt Grossissement 50 fois en coupe

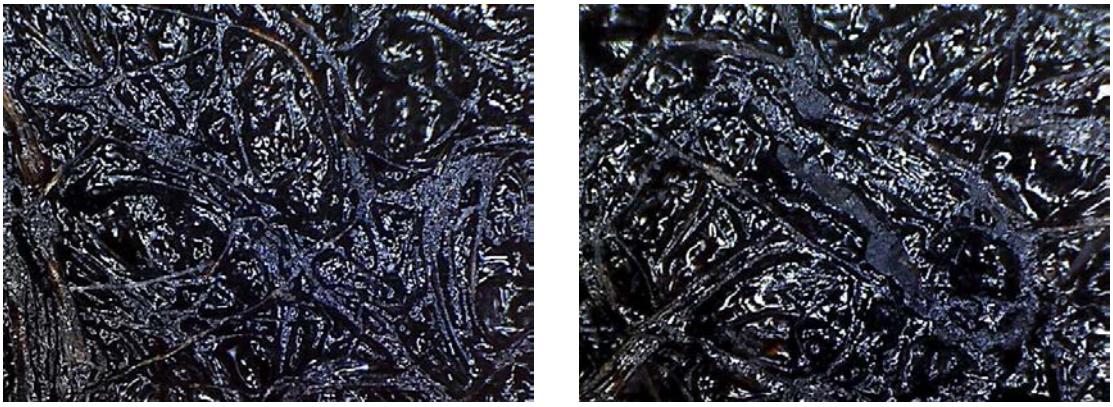


Figure 39 2 vues de P6bt grossissement 200 fois vue surface

Pour la version P6bt du composite, on observe en coupe le même phénomène de zone plus claire au centre résultant d'un taux de fibre supérieur. En surface on observe une très bonne imprégnation des fibres.

Commentaires sur l'aspect visuel du composite P6R (lin/chanvre avec résine chimique)

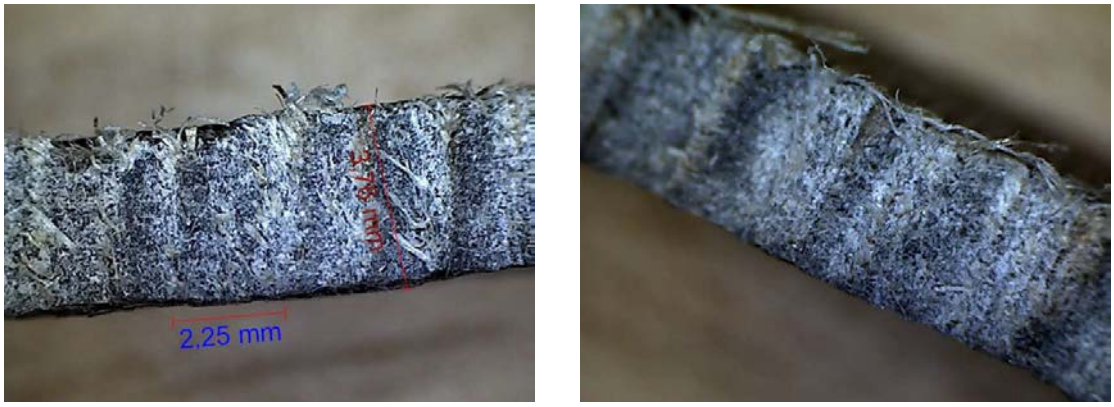


Figure 40 2 vues en coupe de P6 R en grossissement 30 fois

Sur P6 R on observe des zones blanches verticales. Ces zones correspondent à un changement de taux de fibres et coïncident avec les trous d'aiguilletage du renfort qui sont visibles grâce à la transparence de la résine.

En vue de face sur la figure suivante il est également possible d'observer ces trous d'aiguilletage répartis régulièrement (tous les 3,5 mm) et confirme que ces zones blanches verticales ne sont pas une conséquence du travail de l'outil de découpe des échantillons.

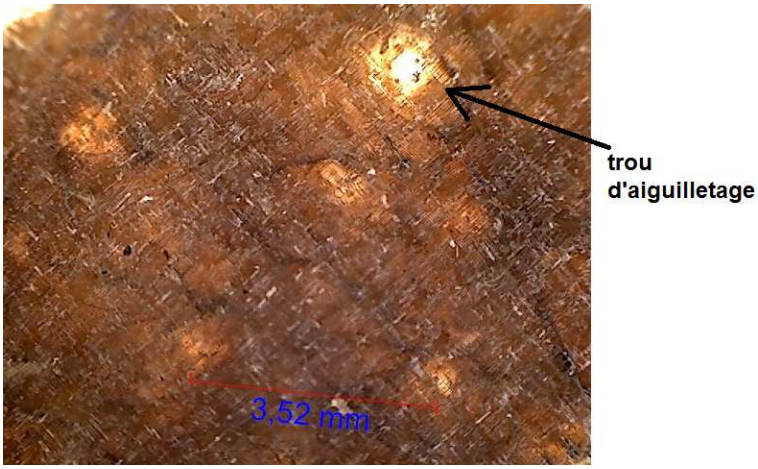


Figure 41 Vue en surface de P6R grossissement 40 fois

5.1.2 Analyses et résultats des tests mécaniques

Au niveau des résultats mécaniques, les valeurs obtenues pour les composites à matrice naturelle sont bien inférieures aux valeurs obtenues avec le composite à matrice chimique.

En flexion, on obtient une valeur de contrainte à la rupture (MOR : 27,86 MPa) inférieure de 41% à celle du composite synthétique, ainsi qu'un module (MOE flex) de 45,7 % inférieur à la référence « composite chimique » avec une valeur de 1220 MPa pour les deux composites « naturels ».

En terme de traction, on obtient une contrainte (MOR Traction) moyenne de 6,1 MPa pour les P6t, soit près de 5 fois moins que son homologue à matrice synthétique. Pour le module d'élasticité, on obtient une valeur moyenne de 359 MPa pour les 2 composites naturels ce qui correspond à une dureté quasiment 10 fois plus faible que la valeur obtenue avec la résine chimique et approximativement 4 fois plus faible que celle du composite P6R fibres naturelles / résine chimique.

Les valeurs sont également bien inférieures à ce que l'on avait obtenu avec des systèmes moins chargés en fibres, puisque les MOE en flexion étaient de l'ordre de 3000 à 9000 MPa (contre 1220 MPa ici) et les MOE en traction de l'ordre de 600 à 1000 MPa (contre à peine 360 ici).

En conclusion, le taux de fibres plus important pour les composites en résine naturelle peut résulter d'une imprégnation relativement plus faible au cœur du matériau.

En surface on observe une plus forte imprégnation par rapport au cœur qui est constitué essentiellement de fibres.

Les mats sont trop lourds ou trop épais pour permettre à la résine d'atteindre le cœur du nontissé. En conséquence, les résultats mécaniques sont dégradés à cause de cette zone moins imprégnée.

Même si la densité obtenue est très faible, ce qui est intéressant parce que le matériau devient léger, les caractéristiques mécaniques sont beaucoup trop faibles pour des applications structurelles. On pourrait par contre envisager une utilisation en panneaux isolants thermiques ou acoustiques.

5.1.3 Discussion pour le mélange LIN/CHANVRE avec résine naturelle en double couche pour obtenir un composite très lourd.

5.1.3.1 Généralités

Pour tout de même évaluer l'affinité de la résine tannin avec le mat Lin/chanvre, on a reproduit un mat très peu aiguilleté que l'on a assemblé ensuite pour former un mat très épais en double couche. Ce mat est nommé P5. On espère avec cette matière avoir une bonne accessibilité de la résine aux fibres puisque ce nontissé est moins écrasé que le nontissé P6 réalisé avec aiguilletage plus sévère pour les fibres. Il sera probablement plus perméable.

Le composite P5t est donc plus épais (valeur moyenne de 8,12 mm (selon la norme NF EN ISO 9073-2) contre 5,7 mm pour le nontissé P6. Il présente une masse surfacique de 1930 g/m². Ce composite à une épaisseur après pressage de 3,0 mm.

Pour comparaison, nous avons également reportés les résultats moyens relatifs aux systèmes en simple épaisseur P6 (moyenne)

Le tableau suivant synthétise l'ensemble des résultats :

	Masse fibres (g/m²)	Teneur fibres (%)	Epaisseur (mm)	Densité	Contrainte flexion (MPa)	MOE Flexion (MPa)	Flèche à la rupture (mm)	Contrainte Traction MOR (MPa)	MOE Traction (MPa)	Allgt Max (%)
P5t	1930	0,53	3,0	1,2	62,0	2646	6,04	19,7	533	6,60
Moyenne P6t	915	0,51	2,0	0,9	27,9	1220	10,40	6,1	359	4,25

5.1.3.2 Commentaires sur l'aspect visuel

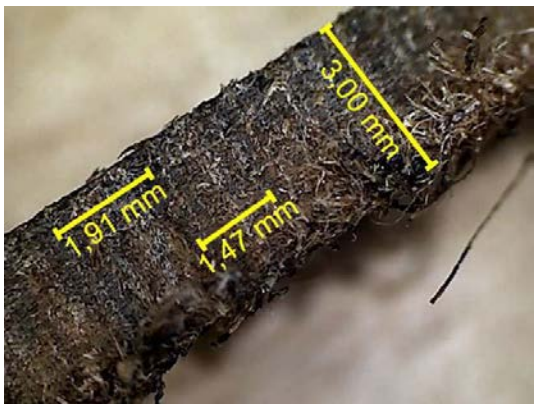


Figure 42 vue en coupe de P5t

(grossissement 35 x)

Sur la vue en coupe de ce composite, on observe que cette fois l'aspect est beaucoup plus homogène que pour les deux composites P6at et P6bt précédents. On obtient bien une imprégnation à cœur mieux réalisée et l'on pourra donc espérer de meilleurs résultats mécaniques. On peut également observer la marque des aiguilles dans ce composite puisqu'il y a des zones transversales plus sombres et d'autres plus claires. La distance correspond approximativement à la distance inter coups d'aiguilles.

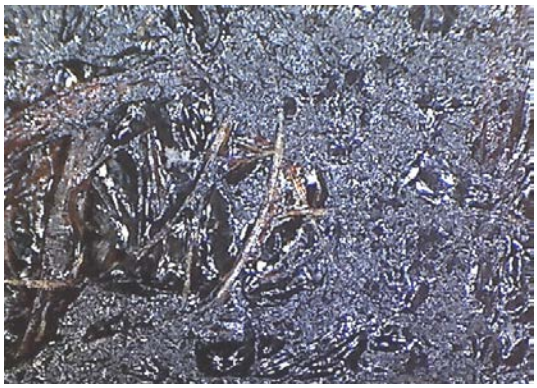


Figure 43 Vue en surface de P5t grossissement 200 fois

La vue en surface nous montre une bonne imprégnation : La surface couverte par la résine est importante et la couleur est très foncée. L'imprégnation en surface est donc a priori supérieure à l'imprégnation à cœur du matériau.

Ce composite a, rappelons-le, une masse spécifique double par rapport aux systèmes précédents et un pourcentage de fibres très voisin (50%). Malgré une épaisseur plus importante, sa densité est plus élevée que les systèmes P6t.

5.1.3.3 Commentaires sur les résultats mécaniques :

Par rapport à la série précédente constituée des mêmes fibres (P6), la densité obtenue ici est augmentée à 1,2 (soit 33% d'augmentation) et l'ensemble des caractéristiques mécaniques MOE et MOR en traction et flexion sont nettement améliorées. A ce stade, on observe donc une augmentation sensible des MOR et MOE en flexion et traction.

5.1.3.4 En flexion

En termes de résultats en flexion, le composite P5t réalisé à la densité de 1,2 se révèle être nettement supérieur à la moyenne des P6.

Ainsi pour les caractéristiques de flexion, le MOR est de 62,01 MPa soit près de 2,5 fois plus résistant que les systèmes P6t (densité 0,9). Le module d'élasticité en flexion de P5t est lui de 2646 MPa soit plus de 2 fois plus rigide que les P6t. La flèche à la rupture pour ce composite est plus faible témoignant d'un matériau bien rigide.

Bien que le matériau final soit plus dense, les fibres ne semblent pas trop écrasées et donc le matériau final reste performant.

5.1.3.5 En traction

Le composite P5t montre les meilleurs résultats pour les valeurs en traction. Ainsi, le MOR est augmenté de plus de 3 fois avec une valeur à 19,71 MPa.

Pour le MOE, on est également bien supérieur puisque le composite P5t est en moyenne 1,5 fois plus rigide que les P6. Ce qu'il est intéressant de remarquer, c'est que le gain est encore une fois plus important en flexion qu'en traction.

Malgré une imprégnation qui semble légèrement supérieure en surface, ce matériau présente des propriétés mécaniques intéressantes, en tout cas nettement supérieur au système précédent. Cela confirme l'intérêt de travailler sur l'aiguilletage pour améliorer la perméabilité et donc l'imprégnation.

Ce système P5t nous a permis de mettre en évidence que la résine pouvait correctement mouiller un matelas de lin plus chanvre à partir du moment où celui-ci présentait une perméabilité suffisante et que les fibres n'étaient pas trop écrasées par l'aiguilletage.

6 DISCUSSION POUR LE COMPOSITE CHANVRE P7 (NON ROUI) AVEC RESINE NATURELLE POIDS DE RENFORT ENTRE 1000 ET 1200 G/M²

Pour ces composites, en partant d'un poids de fibres très proches, nous avons fait varier la densité en jouant sur la compression et sur la quantité de résine. Tous ces matériaux ont été préparés un aiguilletage le plus léger possible et en double épaisseurs. Ainsi pour le P7at avec une masse de fibres légèrement plus importante et un taux de résine légèrement plus important que P7bt, on obtient une densité de 1,2.

P12bt a les mêmes caractéristiques que P7bt en termes de masses de fibres, mais a un taux de résine plus important qui le ramène à la plus grande densité.

Les résultats mécaniques pour cette série sont transcrits dans le tableau ci-dessous.

	Masse fibres (g/m²)	Teneur fibres (%)	Epaisseur (mm)	Densité	Contrainte flexion (MPa)	MOE Flexion (MPa)	Flèche à la rupture (mm)	Contrainte Traction MOR (MPa)	MOE Traction (MPa)	Allgt Max (%)
P7bt	1052	0,52	2	1,02	24,10	1130		5,39	312	2,83
P7at	1154	0,48	2	1,20	32,43	1607		9,52	576	7,69
P12bt	1064	0,43	3	0,83	14,40	882		11,60	425	7,29

Tableau 17 Propriétés mécaniques des composites à base de P7et de P12

6.1.1 Aspect visuel

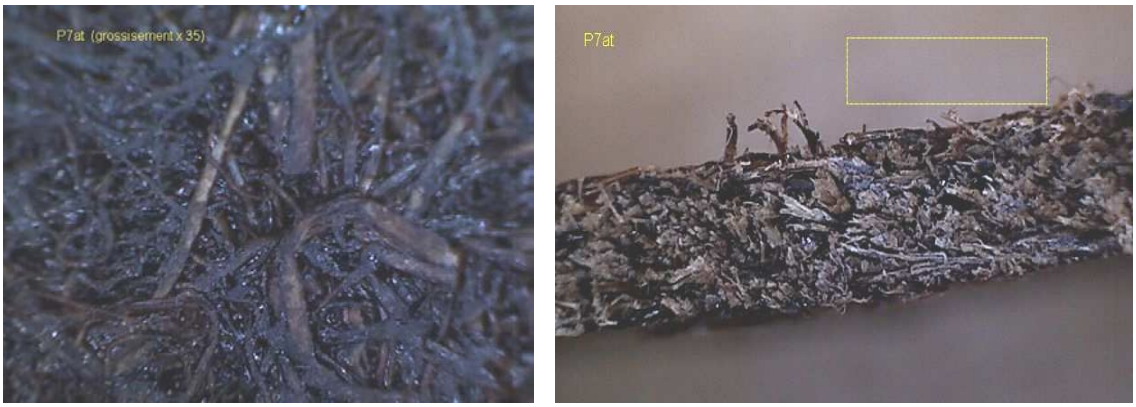


Figure 44 P7at vue de face (x 200) et en coupe (x35)

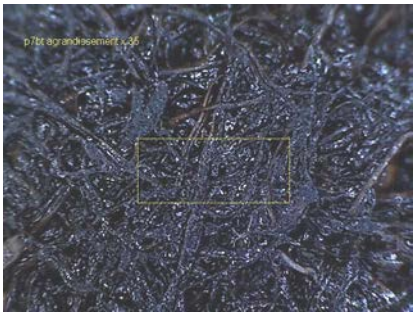


Figure 45 P7bt vue de face (x200) et en coupe (x35)

Les 2 composites P7 semblent imprégnés de manière homogène. Nous n'observons pas de zone bien lisse en surface témoignant d'un excès de résine ou d'une remontée de résine.

La couleur est globalement beaucoup plus claire sur les vues en coupe que sur les composites précédemment étudiés. Cela peut s'expliquer par une imprégnation plus faible et bien répartis dans les fibres.

Figure 46 P12bt vue de face et coupe (x35)

Le matériau P12bt est lui aussi imprégné de manière homogène et à cœur mais semble un peu plus chargé en résine en surface. Si l'on n'observe pas de petites plaques de résines en surface témoignant d'un excès manifeste de résine, on peut tout de même observer une petite épaisseur plus sombre formant une couche de 0,3 mm environ. Cette couche de résine pourrait peut être expliquer le taux de fibres mesuré pour ce dernier qui est légèrement plus faible que les deux autres matériaux (43%).

6.1.2 Commentaires sur les propriétés mécaniques

6.1.2.1 En flexion :

Pour ces trois composites, les masses spécifiques de renfort sont comprises entre 1052 et 1064 g/m² et donc quasi constante avec moins de 10% de variation. Les taux de fibres sont importants avec des valeurs entre 0,43 et 0,52.

Le composite chanvre le plus performant est le composite P7at pour lequel on obtient un MOE en flexion de 1607 MPa et une contrainte en flexion de 32 MPa. Par rapport au matériau P7bT préparé avec un taux de fibres légèrement supérieur (0,58 contre 0,48) mais une densité inférieure (1,02 contre 1,2), les résultats en contraintes sont nettement inférieurs (24,1 contre 32,45 en contraintes) et 1130 MPa contre 1607 MPa en MOE de flexion.

6.1.2.2 En traction :

Pour cette série on retrouve également le meilleur résultat pour le module en traction toujours avec le composite P7at réalisé avec la densité 1,2 avec une valeur de 1607 MPa. Cependant pour la contrainte, c'est le composite P12bt qui est le plus performant avec un MOR de 11,60 MPa qui a une densité très faible à 0,83. Cela peut-être expliqué par le fait que les fibres sont moins sollicitées lors du pressage et restent plus performantes pour l'essai de test de traction.

6.2 Discussion sur l'influence de la densité des composites réalisés

L'ensemble des composites a été réalisé dans une plage d'épaisseur de 1 mm à 5 mm. Les différentes densités obtenues sont comprises entre 0,8 pour les composites les plus légers à 1,85 pour les plus lourds. Pour les biocomposites à base de tannins, la moyenne obtenue est de 0,83 ±0,21 mm d'épaisseur et la densité moyenne de 1,12 ± 0,21. Les composites chimiques sont moins dispersés en termes de densité. La valeur moyenne de densité est de 1,07 ± 0,13, avec une épaisseur de 2,62 ± 1,32. Cela s'explique par le procédé utilisé (l'infusion) pour laquelle on applique une pression beaucoup moins importante qu'avec la presse chauffante.

A la vue de ces résultats, on ne peut pas dégager de tendance. Il semblerait que les résultats sont imposés par le process.

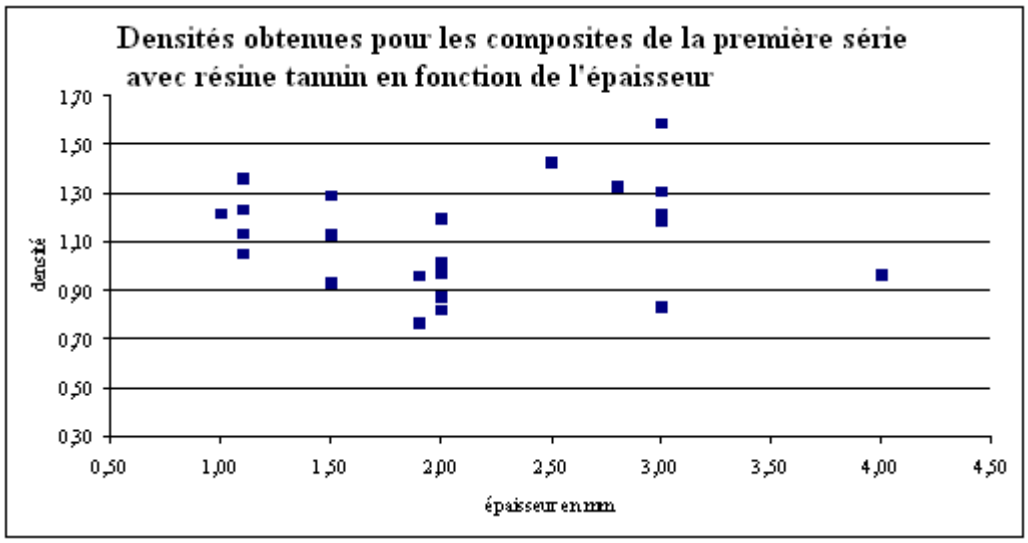


Figure 47 densités obtenues pour les composites tannin en fonction de l'épaisseur

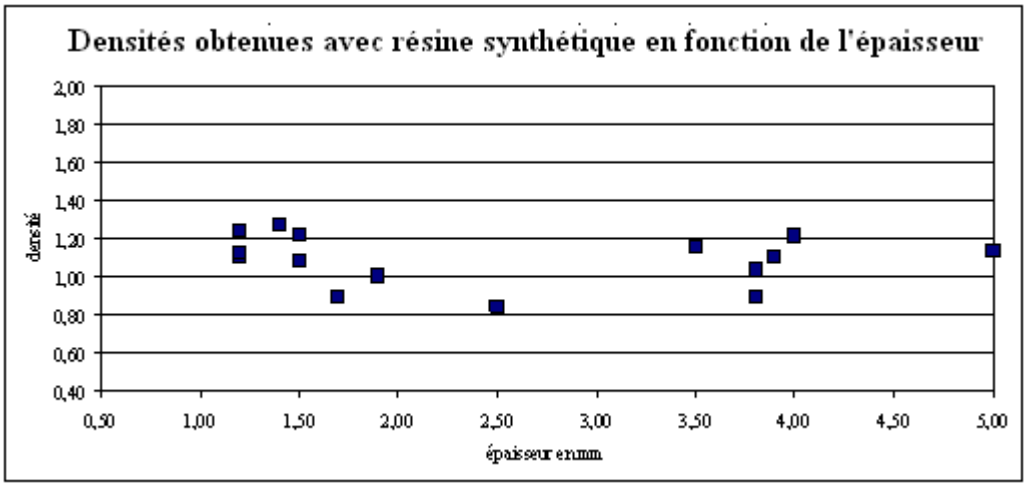


Figure 48 densités obtenues pour les composites époxy en fonction de l'épaisseur

6.3 Discussion sur la densité et modules d'élasticité en traction

Dans les composites, il est intéressant de comparer les propriétés mécaniques à densité égale.

Reprenons les composites P5t et P6t (mélange de lin et de chanvre). Si l'on ramène la densité de ces composites à la valeur unitaire, le MOE flexion du composite P5t passerait de 2645 à 2205 MPa tandis que celui des systèmes P6t augmenterait de 1220 à 1355 MPa. Malgré cette correction, la différence reste supérieure à 60% entre les deux matériaux.

Si l'on procède de la même façon pour la contrainte MOR (MOR ramenée à la densité unitaire), on obtiendrait 52,60 MPa pour P5t contre 30,95 pour la moyenne des P6t, soit une amélioration de plus de 50%.

Si on ramène les contraintes à une densité de 1, le MOR en traction serait de 6,77 MPa pour la moyenne des P6t et passerait à 16,42 MPa pour le P5t soit une augmentation de près de 142%.

S'agissant des propriétés en traction, le gain est d'approximativement 223 % en passant de 6,1 pour la moyenne des P6t à 16,42MPa pour le P5t pour la contrainte en traction MOR et de 48,46% en passant de 359 à 533 MPa pour le MOE.

Sur le graphique ci-dessous, nous avons reporté l'ensemble de valeurs obtenues au test de traction en fonction de la densité obtenue des composites. L'information qui semble se dégager est que les valeurs les plus élevées seraient atteintes pour une densité comprise entre de 0,95 et 1,25.

Ensuite, nous avons refait la comparaison entre le module de traction ramené à la densité de 1 et les valeurs de densité correspondantes pour l'ensemble des composites de cette première série. Même si les valeurs sont très dispersées, on peut observer que finalement ces valeurs restent généralement comprises dans une même plage entre 300 et 700 MPa. Les composites dont la densité est inférieure à 1 montrent logiquement un module d'élasticité spécifique en augmentation, tandis que les biocomposites de plus forte densité (supérieure à 1) montrent globalement une élasticité spécifique équivalente, certainement liée à une réponse mécanique légèrement supérieure du fait de plus grande densité apportée par le process.

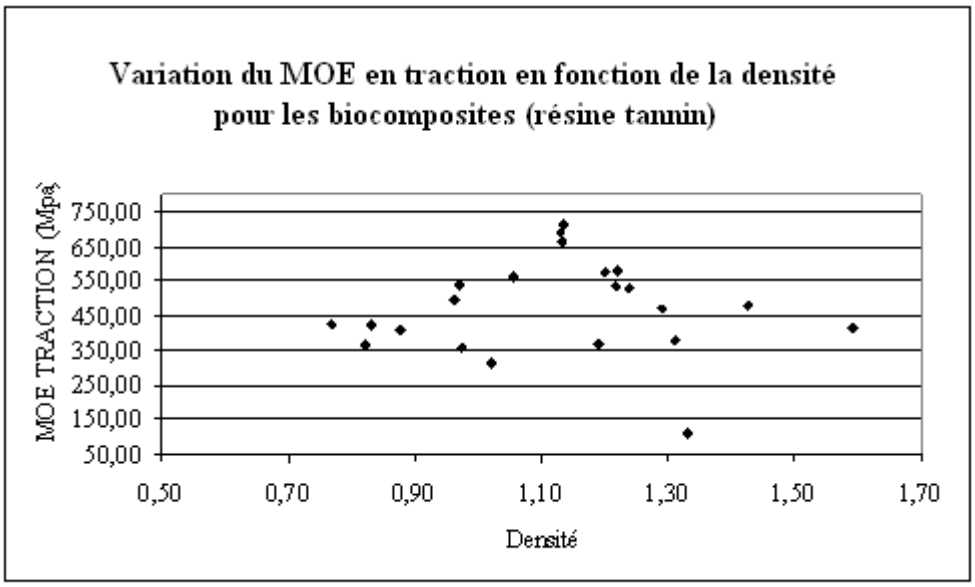


Figure 49 Variation MOE en traction en fonction de la densité pour les biocomposites (résine tannin)

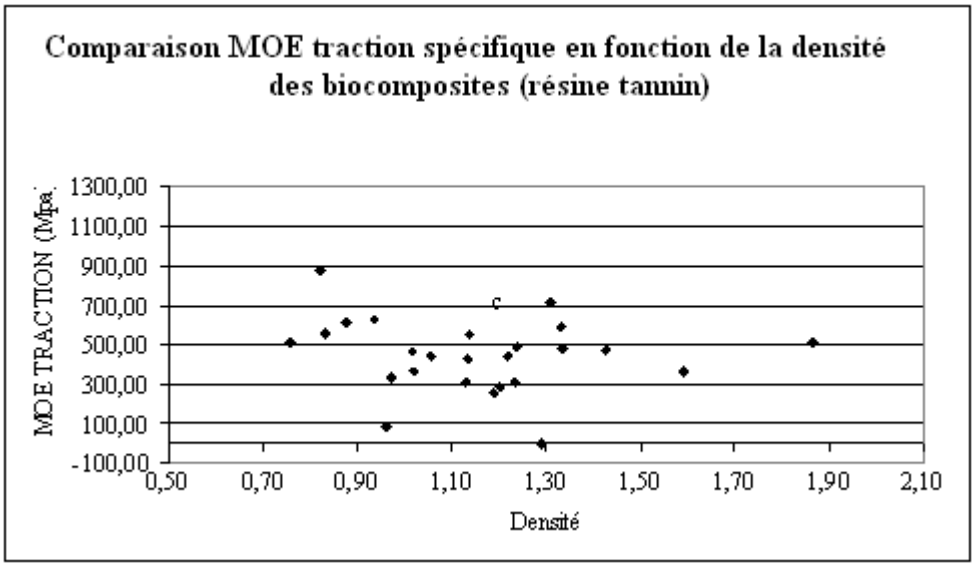


Figure 50 Comparaison MOE SPECIFIQUE en traction en fonction de la densité

6.4 Discussion sur la densité et modules d'élasticité en flexion

Nous avons reporté les résultats de Module d'élasticité (MOE) en flexion obtenus avec les biocomposites par rapport à leur densité. Comme pour la campagne des essais en traction, les valeurs sont extrêmement dispersées, mais il semblerait, que le MOE en flexion passe par un maximum pour une valeur de densité comprise entre 1,1 et 1,2.

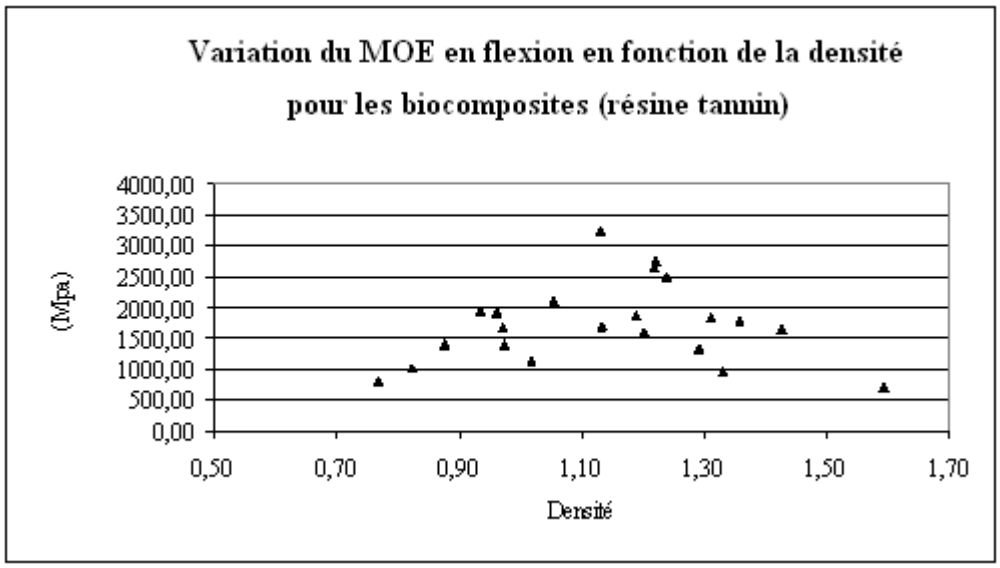


Figure 51 Variation du MOE en flexion en fonction de la densité

7 CONCLUSION GENERALE ET PISTES D'AMELIORATIONS POUR CETTE PREMIERE SERIE

Cette étude nous a permis de préparer nos premiers biocomposites par imprégnation de résine naturelle et par infusion de résine chimique. Cette première série est caractérisée, et permet de dégager les pistes principales d'amélioration du process et présente les premiers résultats de composites préparés à partir de fibres de lin, chanvre jute et kénaf.

Les résultats qui semblent les plus prometteurs sont obtenus notamment avec la fibre de lin et avec la résine chimique et naturelle. Les tests de résistance en flexion et en traction ont été réalisés. (Les meilleurs résultats sont illustrés dans le tableau ci-dessous). Sur les éprouvettes réalisées par infusion et thermocompression, les taux de fibres atteignent des valeurs entre 25 et 30%. Il semblerait que la valeur idéale de densité soit proche des 1,1, puisque l'on obtient les plus hautes valeurs de contrainte avec ces densités.

	Masse fibres (g/m²)	Teneur fibre (%)	Epaisseur. (mm)	Densité	Contrainte de flexion (MPa)	MOE Flexion (MPa)	Flèche à la rupture (mm)	Contrainte Traction (Mpa)	MOE Traction (Mpa)
Linbt tannin	364	29	1,1	1,1	41,65	4030	11,61	8,38	711
LinbR (epoxy)	325	25	1,2	1,1	108,88	4847	12,84	43,00	1344

Tableau 18 Comparaison des composites en renfort Lin résine naturelle et résine Epoxy

Les mélanges lin / kénaf et lin / chanvre, forment des combinaisons de fibres permettant la production d'un mat plus performant. Il semblerait également qu'une densité proche de 1,1 soit optimale

Les matériaux pourraient gagner en performance si le taux de fibres pouvait être augmenté, avec la matrice naturelle ou la matrice chimique, en restant dans une densité raisonnable pour trouver un bon compromis rapport poids / réponse mécanique.

S’agissant du process utilisant la résine naturelle et la thermocompression, les fibres nous paraissent fragilisées par rapport à des fibres brutes. Il s’agira peut être d’optimiser le process pour préserver au mieux les propriétés des fibres. Pour cela, nous baisserons la température des presses dans une étude complémentaire d’impact de la soude sur les fibres cellulosiques.

Pour cette première série de composites, l’imprégnation a été réalisée au contact. Parallèlement nous avons par mis en route le process d’imprégnation sur le foulard de laboratoire (présenté dans la partie 2 Mat et Méthode). Ce nouveau procédé nous permettra une imprégnation optimisée et proche d’un système industriel.

S’agissant du process fibres, cardage et aiguilletage, ces essais nous ont permis de dégager des pistes importantes d’amélioration pour optimiser les renforts avant l’imprégnation. Tout d’abord l’objectif principal va être de bien stabiliser la qualité de production des mats afin d’envisager une amélioration des renforts répercutée ensuite sur les performances des composites. Pour cela nous avons travaillé sur l’entrée de la carde et la chargeuse en particulier. Ensuite, les modifications effectuées sur la carde (modifications des vitesses et des garnitures décrits dans la troisième partie) vont probablement permettre une amélioration globale de la qualité et reproductibilité des mats et en principe un travail des fibres moins agressif permettant de mieux en préserver les propriétés mécaniques. Avec ce process expérimental de production des renforts qui est maintenant au point, nous pourrons maintenant caractériser les mats et donc mettre en relation leurs caractéristiques avec les propriétés des composites préparés. Pour réaliser cette étude, plusieurs possibilités s’offrent à nous. Soit une optimisation parfaite de chaque réglage du process fibre (principalement carde et aiguilletage) pour chaque fibre, soit la recherche d’un compromis avec fixation des paramètres quelle que soit la fibre. L’inconvénient de cette première option est de très fortement augmenter les facteurs d’influence. Ne connaissant pas quels sont les paramètres optimaux réellement nécessaires pour le liage des fibres à l’aiguilleteuse, nous ne pourrons pas déterminer, (à moins de multiplier énormément les expériences et les échantillons) l’origine réelle des phénomènes entre le type de fibre et les propriétés du composite. Une étude plus approfondie de l’aiguilletage devrait être réalisée avec une caractérisation mécanique du composite final réalisé en fonction uniquement des paramètres d’aiguilletage sur un poids de voile le plus stabilisé possible.

Partant des informations de cette première série de composites, pour la suite de cette thèse, il a donc été choisi de fixer un seul réglage de carde et un seul type d’aiguilletage pour l’ensemble des fibres. Pour la carde, cela est possible, car les modifications mécaniques nous

permettent maintenant d'ajuster un réglage polyvalent adapté aux fibres présentées dans cette thèse. Pour l'aiguilletage, un liage minimum sera appliqué avec l'utilisation d'une seule aiguille. Une nouvelle étude par la suite permettrait de déterminer un niveau d'aiguilletage optimal pour un type de fibre bien précis, un type de renfort et une densité finale bien précise. Pour l'étape suivante, nous avons donc éliminé un certain nombre de fibres et sélectionné de nouvelles. Ces fibres (qui ont déjà été présentées dans la partie 2 Matériels et méthodes) seront en principe bien adaptées pour la suite de cette étude.

Cinquième Partie

RESULTATS ET DISCUSSIONS
DEUXIEME SERIE DE COMPOSITES PROCESS FIBRE OPTIMISE

1- PARTIE PRELIMAIRE : REALISATION DES RENFORTS

Cette première partie préliminaire traite des renforts nontissés préparés avec la ligne optimisée et de l'expérience acquise lors de la préparation de la première série de biocomposites et traitée dans le chapitre précédant.

Dans cette nouvelle série, nous avons donc trouvé un compromis de paramètres permettant de réaliser des renforts comparables, notamment en termes de poids à 800 g/m². Dans le but de limiter les facteurs d'influence, les réglages ont été changé au minimum, afin de pouvoir ensuite discuter des origines des variations observées sur les renforts et ensuite sur les composites. Ces variations seront alors en principe, plus liées aux caractéristiques et aux propriétés de fibres introduites dans le système plutôt qu'à des modifications des paramètres machines.

Pour les réglages généraux de cette nouvelle série, l'idée est de complètement baisser la vitesse des organes en particulier de la carde, pour préserver au maximum les caractéristiques mécaniques des fibres. Cette possibilité est maintenant réalisable grâce aux multiples améliorations apportées à la machine, en particulier le montage de moteur à commande individuelle.

Pour cette deuxième série, nous avons commencé avec le LIN R que nous n'avions pas encore utilisé dans la première série. Ensuite, nous avons préparé les deux autres renforts en lin, puis les chanvres et enfin le kénaf. Les réglages de carde ont été affinés pour chaque type de fibre de façon à produire un voile de qualité. Ainsi, en particulier, la vitesse d'entrée est adaptée au poids de la nappe d'entrée (qui arrive par la cheminée d'alimentation). Les vitesses des balayeurs et des travailleurs sont restées constantes et asservie à la vitesse du tambour. Pour toutes les fibres, l'aiguilletage est resté strictement le même.

Mini glossaire pour le référencement des composites réalisés : Les matériaux réalisés sont nommés en rappelant leur fibre d'origine suivant le glossaire ci-dessous :

Fibre	Renfort	Composite résine tannin	Composite résine Epoxy
LIN D	LIN DM	LIN DT	LIN DE
LIN R	LIN RM	LIN RT	LIN RE
LIN A	LIN AM	LIN A T	LIN A E
CHAN 1	CHAN 1M	CHAN 1T	CHAN 1E
CHAN 2	CHAN 2M	CHAN 2T	CHAN 2 E
KENAF B	KENAF BM	KENAF BT	KENAF BE

Tableau 1 Glossaire des matériaux 2ème série

1.1- Essai avec le Lin affiné : LIN R

1.1.1- Préparation de l'essai

Ces fibres de lin LIN R ont été préparées spécialement pour la réalisation des biocomposites dans le but d'obtenir les meilleures caractéristiques possibles avec une fibre naturelle. Les fibres sont arrivées au laboratoire sous la forme de mèches (roving) enroulées en une centaine de paquets de 2kg. Ces fibres sont déroulées et coupées à la coupeuse à la longueur de 60 mm puis conditionnées dans la salle en humidité. Au moment des essais, l'humidité dans la salle d'essai était redescendue à seulement 37% pour 16,4°C, mais la fibre étant mesurée à 10,5% HR, il a été décidé de lancer l'essai. Plusieurs séries d'essais ont été réalisées avant d'aboutir aux réglages N°5 qui sera utilisé pour la production des renforts de LIN R que l'on peut nommer LIN RM et en suite des composites LIN RT ou LIN RE en fonction de la nature de la de résine.

1.1.2- Réglages spécifiques effectués sur la carde et le nappeur :

La fibre préparée uniquement avec la coupeuse est très dense. Le contrôle de la nappe d'entrée de carde (via la cheminée de carde) donne une épaisseur normale à 80 mm. Cependant, le contrôle de la masse surfacique de cette nappe d'entrée nous donne une valeur de près de 8000 g/m², ce qui est considérable, surtout que la cheminée a été réglée pour amener le minimum de matière. De ce fait pour ne pas risquer de bloquer la machine, la valeur d'alimentation est réglée au minimum (6%). Les travailleurs se chargent énormément (voir cliché ci-dessous). Compte tenu du risque important du blocage de la carde, il a été décidé de stopper cet essai et d'opérer à une ouverture préliminaire des fibres pour diminuer la densité du matelas d'entrée. Nous mettons en route l'ouvreuse BONINO équipée des nouvelles douves plus grosses, adaptée aux fibres naturelles. Avec cette machine, les fibres ne semblent pas trop dégradées et peuvent être envoyées dans la chargeuse de carde. La masse surfacique à l'entrée est maintenant de 1850g /m² ce qui est plus de 4 fois inférieur à la valeur précédente. Pour le réglage final (N°5), la vitesse du peigneur est fortement ralentie pour augmenter la masse surfacique du voile de sortie. Nous diminuons aussi la vitesse du communicateur, afin de ménager les propriétés mécaniques des fibres. On augmente aussi légèrement la vitesse du tambour principal (GT à près de 20 tours /min), dans le but d'amener plus de fibres au peigneur. Pour le travail de cette fibre, les écartements entre cylindres réglés après le changement des garnitures sont conservés sur la carde.

Le nombre de voile est progressivement augmenté à 30 puis 45 couches, mais seulement 28 voiles seront nécessaires pour obtenir le poids visé autour de 800g/m²

		Entrée	briseur	AVT	Com	GT	Peigneur	Production	Nappeur
	Fibre	Réglage entrée Poids de la nappe en g/m²	Vitesse (Trs/min	Trs/min	Trs/min	Trs/min	Vitesse en Trs/min Ou %	Vitesse en m/min %	Nb couches
1	LIN R	6 8000	22,0	11,0	43,0	16,0	1,22 30	3 10	15
2	LIN R	6 8000	22,0	15,0	43,0	16,0	- 25	3 10	20
3	LIN R	30 1850	22,0	15,0	43,0	16,0	- 25	3 10	30
4	LIN R + ouverture BONINO	35 1850	22,0	15,0	43,0	16,0	- 20	3 10	45
5	LIN R + ouverture BONINO	10 1980	40,0	19,5	11,4	30,0	0,32 -	3 10	28

Tableau 2 synthèse des réglages pour LIN R

Figure 1: vue des travailleurs avec la fibre LINR non ouverte

1.1.3- Réglages spécifiques effectués avec l'aiguilleteuse :

L'aiguille de type C a été montée en ne remplissant pas complètement la planche à aiguille afin de pouvoir rester sur une valeur d'aiguilletage faible à 50 coups /cm². Avec ce montage, la cadence de frappe sera suffisamment rapide pour faciliter le dégagement (on peut dire débourrage dans le langage textile) des aiguilles du matelas qui commence à être épais dans la gamme de poids ciblée

N°ESSAI		LIN R 5
Type d'aiguille		C (Grosse)
Nombre d'aiguilles		1500
Longueur des aiguilles	pouces	3,5
Densité de pénétration	p/cm²	50
Profondeur de pénétration	mm	9
Distance	mm	26,1
Etirage de sortie	%	-15%

Tableau 3 Réglage l'aiguilleteuse pour LIN R

1.2- Essai avec la fibre de lin LIN D

Les fibres livrées en big-bag se sont avérées beaucoup trop compactées pour une utilisation directe dans la carde. Une opération d'ouverture légère sur la l'ouvreuse Bonino a été réalisée. Le conditionnement de l'air ambiant donne une valeur de 18,6°C et 55% d'HR et le contrôle des fibres nous donne une HR de 10% qui nous autorise à démarrer l'essai. Les réglages sont pratiquement les mêmes que pour le LIN R. Le voile de sortie obtenu est de qualité et très homogène.

		Entrée	briseur	AVT	Com	GT	Peigneur	Production	Nappeur
	Fibre	Réglage entrée Poids de la nappe en g/m²	Vitesse (Trs/min	Trs/ min	Trs/ min	Trs/ min	Vitesse en Trs/min Ou %	Vitesse en m/min %	Nb couches
1	LIN D	30 5212	40	19,5	11,4	30	0,32 -	3 10	28
2	**LIN D** **+ ouverture BONINO**	**30** **300**	**40**	**19,5**	**11,4**	**30**	**0,32** **-**	**3** **10**	**28**

Tableau 4 Synthèse des réglages pour LIN D

1.3- Essai avec la fibre de lin LIN A

Le conditionnement de l'air donne une valeur de 18,2°C et 58% d'HR et le contrôle des fibres nous donne une HR de 10% . Un passage d'ouvreuse est réalisé. Le poids de voile sort à 26.2 g/m². Cette fibre que nous avions déjà travaillée pour la première série de composites et qui est constituée d'étoupes de lin traitées par un affinage complémentaire permet la préparation d'un voile très satisfaisant d'un point de vue homogénéité.

		Entrée	briseur	AVT	Com	GT	Peigneur	Production	Nappeur
	Fibre	Réglage entrée Poids de la nappe en g/m²	Vitesse (Trs/min	Trs/ min	Trs/ min	Trs/ min	Vitesse en Trs/min Ou %	Vitesse en m/min %	Nb couches
	LIN A + ouverture BONINO	30 300	40	19,5	11,4	30	0,32 -	3 10	28

Tableau 5 synthèse des réglages pour LIN A

1.4- Essai avec les chanvres CHAN 1 et CHAN 2 Roui : CHAN 1

1.4.1- Préparation de l'essai

Les fibres de chanvre CHAN 1 et CHAN 2 sont livrées sous la forme d'une balle de fibre de 200 kg. Elles sont compactées mais déjà bien ouvertes et ne collent pas entre-elles. Une ouverture complémentaire ne semble pas nécessaire. Le taux d'humidité relevé dans les balles est de 10%. Le taux d'humidité des fibres conditionnée est de 10,5% avec un taux d'humidité de la salle à 70% HR et 18°C.

Pour le travail de ces deux types de fibres, les écartements entre cylindres réglés après le changement des garnitures sont conservés sur la carde.

1.4.2- Réglage de la carde et du nappeur

Dans le tableau ci-dessous nous avons répertorié les réglages nous permettant d'aboutir à une bonne marche machine. Le réglage (N°6) est ensuite utilisé pour produire le renfort utilisé pour les composites en CHAN et le dernier (N°7) avec CHAN 2.

Chanvre non roui CNR – Fibres ouvertes par 1 passage sur Bonino avec douves											
		Entrée	brise ur	AVT	Com	GT	Peigneur	Producti on	Nappeur	Producti on	Nappeur
	Fibre	Réglage entrée en % Poids de la nappe en g/m²	Vitesse en Tours /min				Vitesse en Trs/min Ou %	Vitesse en Trs/min Ou %	Nb couches	En %	Nb couches
1	**CHA 1**					14,5		2,5	2,5		
2	CHA 1	20 320	10,0	11,0	-	40,0	4,0 -	2,5	2,5	7,8	
3	CHA 1	20 320	23,0	11,0	43,0	15,0	1,9 -	2,5	2,5	2,6	30
4	CHA 1	20 320	23,0	11,0	43,0	15,0	1,8 -	2,5	2,5		30
5	CHA 1 + Ouverture Bonino	60 320	23,0	11,0	43,0	16,0	1,2 30	2,5	2,5	2,0	15
6	CHA 1 + Ouverture Bonino	65 338	23,0	11,	43,0	30,0	1,2 30	2,5	2,5	2,0	22
7	CHA 2+ Ouverture Bonino	70 -	23,0	11,	43,0	30,0	1,2 30	2,5	2,5	2,0	18

Tableau 6 Réglages des essais réalisés les chanvres

Commentaires sur ces réglages effectués :

Réglage N°2 : Le peigneur se charge très peu, le voile de sortie est très léger et on a encore un problème de vitesse entre RTB et AVT. AVT tourne trop vite ce qui génère une casse des fibres. Réglage N°3 : on ralentit encore les organes pour charger le voile de sortie. Les pignons de détacheurs sont modifiés pour ralentir le détacheur et limiter le phénomène de carotte entraînant des défauts de voile.

Réglage N°4 : changement du pignon du détacheur : passage de 48 à 44 dents. Le voile de sortie est très léger mais se tient. La qualité est maintenant correcte.

Réglage N°5 : Le voile est plus homogène et de poids plus important. La vitesse du peigneur est maintenant réglé à 1,22 tours / minutes, ce qui est lent mais permet la production d'un voile bien chargé. Ainsi, on divise par 2 le nombre de couches au nappeur : Le poids de voile qui passe de près

de 14 g/m² à 34g/m², permet de diminuer les couches de voile au nappeur. Sur les clichés ci-dessous, on remarque que les organes sont bien chargés en fibres , quasi idéalement. Sur le dernier cylindre travailleur et le tambour, le principe d'une fibre transportée par une dent est pratiquement obtenu.

Figure 2 pour le réglage 5 de la fibre CHAN1 : a) vue des travailleurs b) matelas d'entrée c) vue du tambour principal

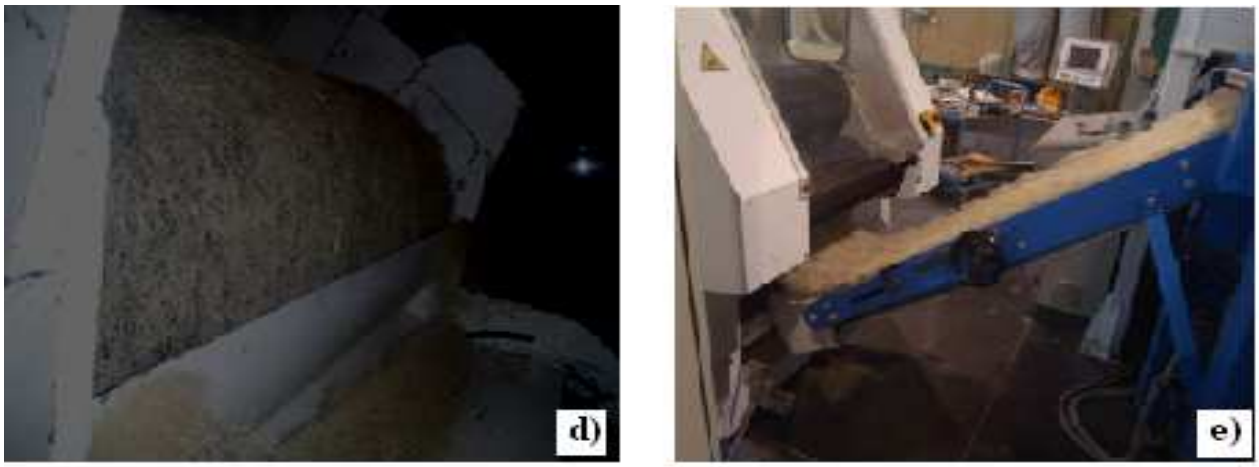


Figure 3 d) vue du dernier travailleur e) voile de sortie

1.4.3- Liage par aiguilletage

Les paramètres d'aiguilletage précédents sont conservés pour cette fibre. Les clichés ci-dessous illustrent cette étape. Avec : a) entrée du mat dans l'aiguilleteuse, b) sortie et c) aiguilles

Figure 4 : Aiguilletage du CHAN 2 (essais N°5)

1.5- Essai avec le kénaf

Les conditions de la salle lors des essais étaient satisfaisantes avec 19°C et 62 % d'humidité relative. La fibre avec ces réglages se carde convenablement sans avoir besoin de rajouter d'ensimage. Le problème est venu du nappeur. Le nombre de couches maximal a été atteint pour cette fibre (avant d'avoir un bourrage), ce qui nous a obligé à nous satisfaire d'un poids légèrement inférieur à celui attendu. Le liage par aiguilletage est réalisé avec les mêmes paramètres que toutes les autres fibres.

Kénaf B – Fibres ouvertes par 1 passage sur Bonino avec douves											
		Entrée	briseur	AVT	Com	GT	Peigneur	Production	Nappeur	Production	Nappeur
	Fibre	Réglage entrée (%) Poids de la nappe en g/m²	Vitesse en Trs/min					Vitesse en m/min	Nb couches	En %	Nb couches
1	KENAF B	55 1418	23,0	11,0	43,0	28,0	1,48	2,5	2,5	2,0	56

Tableau 7 Réglages pour le kénaf

2- ETUDE SUR LE CHANVRE

2.1- Les fibres

Les fibres de chanvre sélectionnées proviennent du site de défibrage BAFA en Allemagne. L'idée première est de comparer 2 fibres préparées mécaniquement au teillage de façon identique, mais qui ont un rouissage différent. Environ 1 semaine pour le chanvre vert nommé « CHAN 1 » et plus de 3 semaines pour le chanvre roui nommé « CHAN 2 ».

2.1.1- Examen au microscope

2.1.1.1- Fibres CHAN1 et CHAN2 avant cardage

Entre les 2 chanvres CHAN 1 et CHAN 2, en vue longitudinale, on remarque que les fibres sont de tailles relativement différentes.

En coupe, il semble que les fibres CHAN 2 sont de diamètres plus homogènes. Les diamètres des fibres CHAN 1 semblent plus importants car les fibres CHAN 2 sont moins condensées en faisceaux.

On peut observer sur le cliché de CHAN 1 en vue longitudinale de la matière organique en surface de la fibre, composée certainement de pectine non éliminée lors de l'opération de teillage après récolte.

Ces clichés ne permettent pas de mettre en évidence la présence de lumen pour ces fibres.

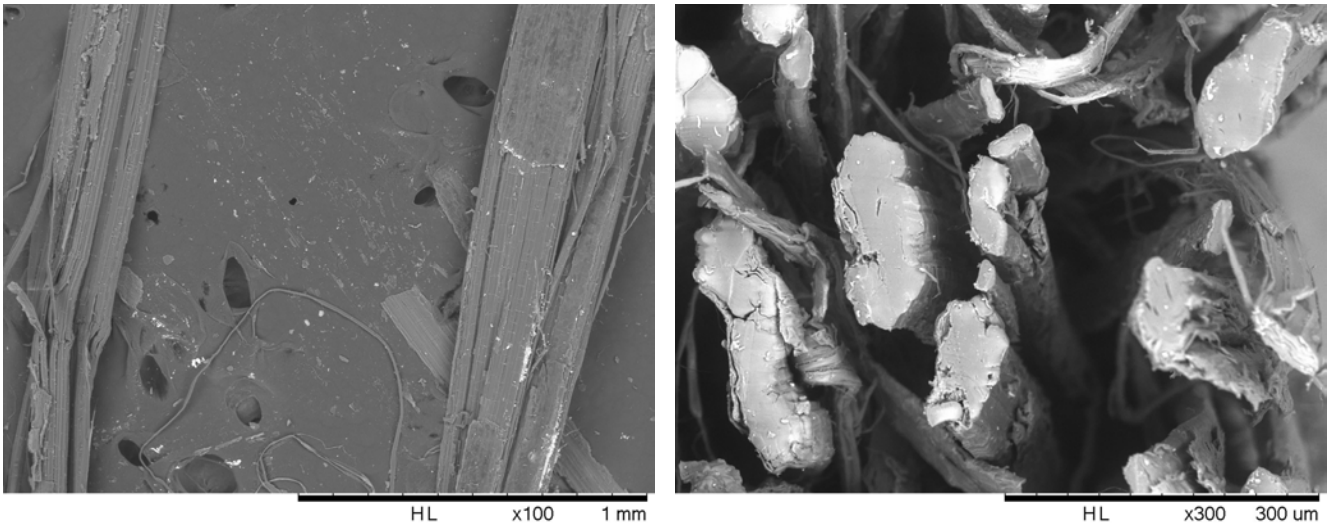


Figure 5 CHAN 1 en vue longitudinale et en coupe avant cardage

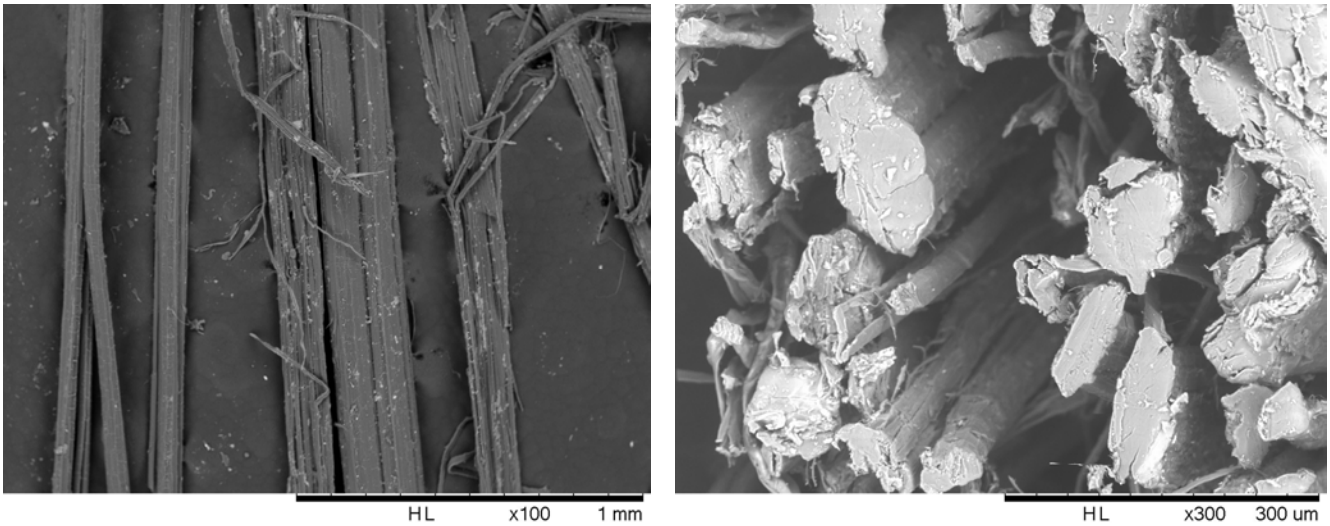


Figure 6 CHAN 2 en vue longitudinale et en coupe avant cardage

2.1.1.2- Fibres après ouverture et cardage

Après cardage, on peut observer une amorce de séparation des faisceaux de fibres notamment sur le cliché de la section de CHAN1. L'individualisation des fibres se confirme sur la vue longitudinale, avec une certaine augmentation du nombre de fibres individuelles. Dans le sens longitudinal, on peut observer aussi des endommagements d'origine mécanique pouvant aller depuis la déformation de la fibre, jusqu'à sa rupture qui conduira vraisemblablement à une diminution de longueur.

Les fibres semblent nettoyées des couches de surface et du bois observables avant cardage.

En sortie de carde, on remarque que les fibres sont plus individualisées avec un phénomène de séparation des gros faisceaux en fibres fines. Ce phénomène est bien visible sur le cliché en coupe ci-dessous.

Par contre, on peut également observer des amorces de ruptures et des fissures transverses à la fibre et liées au travail mécanique des organes de carde.

Les observations sont sensiblement les mêmes pour le chanvre ayant subit un rouissage (résultat non présentés ici).

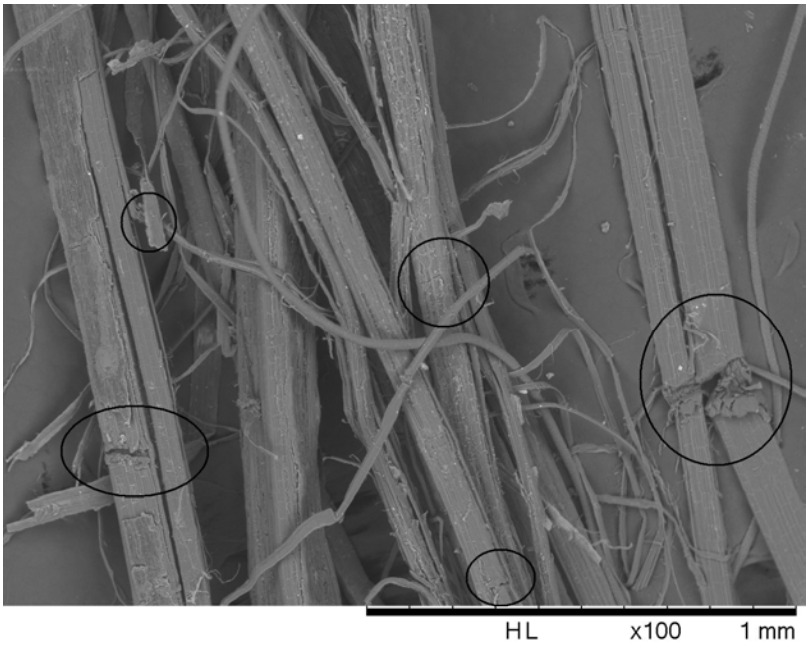
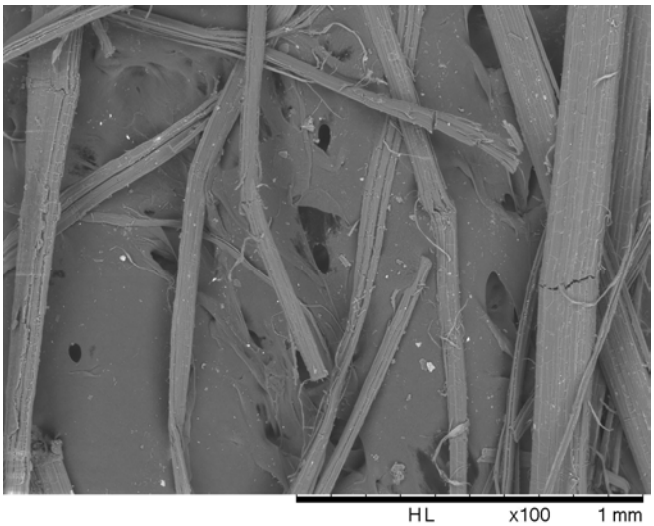


Figure 5 : Amorces de rupture sur CHAN 1



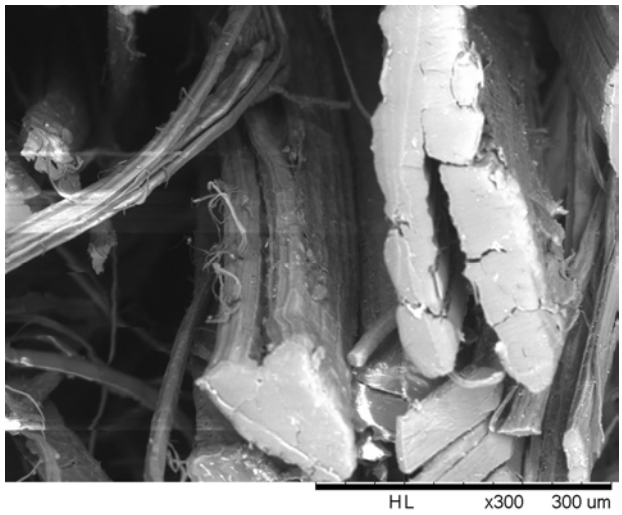


Figure 6 : CHAN1 en vue longitudinale et en coupe après cardage

2.1.2- Propriétés générales

2.1.3- Caractéristiques physiques :

Nous avons reporté dans le tableau suivant quelques grandeurs caractéristiques physiques des fibres avant et après opération de cardage.

		Balle	Entrée carde	Sortie Carde
Longueur Moyenne (mm)	Chanvre non Roui	-	38,0	39,4
	Chanvre Roui	-	27,0	34,0
Longueur Max observable (mm)	Chanvre non Roui	-	140,0	65,0
	Chanvre Roui	-	97,0	50,0
Diamètre moyen (µm)	Chanvre non Roui	70,0	53,4	52,0
	Chanvre Roui	42,0	39,6	33,0

Tableau 8 Longueur des fibres CHAN 1 (non roui) et CHAN 2 (roui)

S'agissant des longueurs, avec la méthode de mesure utilisée, le cardage conduit à un léger raccourcissement des fibres. La variation s'observe à la fois sur la longueur moyenne, mais aussi sur la longueur maximum observable. Globalement, les fibres sont plus courtes en sortie de carde. Cela confirme les observations au microscope et on peut imaginer que certaines fibres sont sectionnées ou que les faisceaux sont défibrillés en fibres plus courtes dans l'opération de cardage. On n'observe pas de différences flagrantes entre les deux familles de fibres, même s'il semble que les fibres de chanvre non rouies soient plus sensibles au travail de la carde.

En ce qui concerne les diamètres, on constate que le diamètre moyen des fibres non rouies est supérieur aux diamètres des fibres rouies de plus de 60%, ce qui n'était pas forcément détectable sur un simple cliché. L'opération de rouissage va favoriser l'élimination des pectines. Lors de l'opération de teillage qui suit la récolte, les fibres les plus rouies vont donc plus facilement s'individualiser, ce qui explique la variation observée.

2.1.4- Caractéristiques chimiques

Dans le tableau suivant, nous avons reporté les taux des différents constituants des fibres :

	CHAN 1 (Chanvre non roui)	CHAN 2 Chanvre roui
Cires	5,3	5,1
Minéraux	4,7	4,8
Pectines	4	2,4
Lignines	7,6	13,2
Hémicellulose	10,6	10,6
Cellulose	67,8	63,9

Tableau 9 Composition chimique des fibres de chanvre

Entre les deux qualités de fibres, on constate que le rouissage diminue le taux de pectine de 40%, tandis que le taux de cires est peu affecté, ce qui demeure logique. Ce qui est plus surprenant, c'est que le taux de lignine du chanvre roui est nettement supérieur à celui de la plante exempte de rouissage. En conséquence, comme le taux d'hémicellulose est constant, le taux de cellulose du chanvre non roui est nettement supérieur à celui du chanvre roui. Comme le rouissage n'est pas sensé affecter les taux de lignines dans le sens observé, il est probable que la plante, même si elle a été récoltée la même année et qu'elle provient du même fournisseur, ne soit probablement pas issue du même cultivateur. Dans le cas du chanvre roui, le taux des lignines est d'ailleurs anormalement élevé puisqu'il est légèrement supérieur à la valeur extrême reportée dans la littérature[1] pour les fibres de chanvre (entre 2,8 et 13 avec une moyenne à 6). Les autres taux restent dans la fourchette des valeurs attendues pour ce genre de fibres.

2.1.5- Propriétés mécaniques

Dans le tableau ci-dessous, nous avons regroupé les résultats obtenus en termes de propriétés mécaniques pour les 2 chanvres précédemment décrits. A titre de comparaison, nous avons également reporté les grandeurs caractéristiques tirées de la littérature.

	CHAN 1 (non roui)	**CHAN 2 (roui)**	**Littérature**
Contrainte de Rupture (Mpa)	817 (±366)	852 (±372)	310 à 1110 (700 en moyenne)
MOE (Gpa)	23,97 (±12,84)	36,04 (±29,51)	3 à 90
CV MOE (%)	54	82	-
Allongement %	3,97 (±1,70)	5,13 (±1,65)	1,3 à 6 (3)

Tableau 10 : Propriétés mécaniques des fibres de chanvre CHAN 1 et CHAN 2

Nos valeurs mesurées restent en accord avec les valeurs tabulées et les fibres que nous avons utilisées sont plutôt de bonne qualité du point de vue propriétés mécaniques.

Il est difficile de se prononcer sur une comparaison absolue entre chanvre roui et chanvre non roui compte tenu des écarts types obtenus sur les mesures. Cependant, on peut tenter de comparer les valeurs moyennes.

S'agissant de la contrainte de rupture, il semble que le rouissage améliore légèrement la propriété, l'écart sur la valeur demeure faible et l'écart type identique.

[1]**Industrial Application of Natural Fibres** / Jörg Mûssig Editor pp 300-305 (2010)

S’agissant du MOE, on constate que le chanvre roui semble être légèrement plus performant. Cependant, on peut toutefois remarquer que sur ce type de fibres, les écarts types sont beaucoup plus importants, ce qui se traduit par une forte augmentation du coefficient de variation CV (passage de 54 à 82%). Ce coefficient qui est le rapport entre l’écart type et la valeur moyenne, permet de faire des comparaisons de dispersion entre des séries de grandeurs différentes.

En ce qui concerne l’allongement de rupture (allongement à la force maximale), la valeur moyenne est bien supérieure dans le cas du chanvre roui CHAN 2 et l’écart type est très comparable.

Ces légères augmentations paraissent logiques, puisque le chanvre roui est légèrement plus riche en cellulose, ce qui confère à la fibre un module d’élasticité, un allongement et une contrainte de rupture importants, en partant du principe que l’angle de fibrillation reste constant au cours du rouissage.

En outre, le rouissage a pour effet de diminuer le diamètre des fibres. Nous l’avons d’ailleurs mis en évidence sur les clichés et les mesures de diamètres dans les paragraphes précédents. Le rouissage complété par le teillage tend à individualiser les fibres en supprimant les matières organiques inter fibrillaires et autour de la fibre. Ce qui est conservé, c’est donc en principe, la partie structurelle et l’on augmente donc globalement l’ensemble des propriétés mécaniques. Une augmentation à la fois du module et de l’allongement n’est donc dans ces conditions pas contradictoire, puisque le diamètre moyen diminue.

Figure 7: Vue en coupes des fibres CHAN 2

2.2- Les renforts

2.2.1- Propriétés générales

Pour chacun des mats préparés à partir des fibres précédentes, nous avons mesuré l'épaisseur, la masse surfacique, ainsi que la perméabilité à 100 Pa.

Les résultats sont présentés dans le tableau ci-dessous :

	CHAN 1M (non roui)	**CHAN 2M (roui)**
Épaisseur (mm)	4,79	4,32
Masse surfacique (g/m²)	780,4 (±34,4)	815,8 (±20,2)
CV%	4,41	2,48
Perméabilité à 100 Pa (l/m²/s)	678,3 (±66,7)	387,0 (±59,7)
Coefficient K	32,5	16,7

Tableau 11 Propriétés générales des renforts en chanvre

A partir des valeurs de perméabilité mesurées et de la loi de DARCY abordée dans la partie 2, nous pouvons accéder au coefficient de perméabilité K

Loi de Darcy :

$$Q = K . S . \Delta \frac{H}{L} \qquad K = \frac{Q . L}{S . \Delta H}$$

Avec :

Q = Débit volumique (l/s)

K : Coefficient de perméabilité du milieu poreux

S : Surface de la section étudiée (m²)

ΔH : Perte charge entre l'entrée et la sortie de l'échantillon au perméabilimètre à air

L : Longueur de l'échantillon (épaisseur dans notre cas)

Comme notre valeur de perméabilité est exprimée en l/m²/s, la formule se simplifie pour donner

K = perméabilité x épaisseurs /100

Dans la préparation des mats, nous nous sommes attachés à travailler à masse surfacique constante à 10% près. Pour une qualité de fibres donnée, nous sommes dans l'intervalle de confiance fixé

puisque dans les 2 cas nous obtenons une valeur moyenne très proche de 800 g/m² et un écart type ramené à la moyenne (CV) de moins de 5 %. On peut d'ailleurs noter que la reproductibilité est meilleure dans le cas du chanvre roui, puisque l'écart type est plus faible. Au cours de l'opération de cardage, nous avons remarqué que le chanvre roui se travaillait beaucoup mieux et nous avons observé une meilleure tenue du voile de fibres à la sortie de la carde et avant le nappeur, ce qui pourrait expliquer cette tendance.

Avec les mêmes réglages et à masse surfacique quasiment constante, le travail de l'aiguilletage ne compresse pas la matière CHAN1M non rouie de la même manière que le chanvre CHAN 2M roui. En conséquence, le mat préparé à partir du chanvre CHAN 1 est légèrement plus épais. Sans aller plus loin dans l'interprétation, on peut émettre l'hypothèse que les fibres de chanvre roui ayant un diamètre inférieur à celles des fibres de chanvre non roui seront plus tassées au cours de l'opération d'aiguilletage, pour laquelle, on le rappelle, les réglages sont conservés d'une fibre à une autre. On pourrait également avancer l'hypothèse que le matelas fabriqué à partir des fibres non rouies a tendance à regonfler après aiguilletage. Enfin, une autre hypothèse consisterait à penser que les aiguilles entrainent moins de fibres de chanvre non roui puisque leur diamètre est plus gros.

S'agissant de la perméabilité, les résultats sont tout à faits cohérents puisque à masse spécifique constante, la perméabilité augmente avec l'épaisseur du matériau. De plus, la section des fibres du chanvre CHAN 1 non roui étant plus importante, on peut concevoir que la perméabilité du matériau final le soit aussi.

2.2.2- Propriétés mécaniques

Comme décrit dans la partie expérimentale, nous avons caractérisé les propriétés mécaniques des nontissés, à la fois en flexion et en résistance à la rupture (traction).

Pour mémoire, le test en flexion consiste à mesurer la longueur nécessaire pour qu'un angle de flexion que crée une bandelette de 20 mm de large de nontissé sous l'action de son propre poids atteigne 45°.

L'ensemble des tests est réalisé dans le sens travers par rapport à la sortie machine. L'ensemble de ces résultats est reporté dans le tableau ci-dessous.

	CHAN 1M (non roui)	CHAN 2M (roui)
Flexion (cm)	13,15 (±1,89)	12,03 (±1,77)
Force Rupture (N)	89,72 (±45,96)	38,19 (±10,92)
Contrainte Rupture (MPa)	0,37 (±0,19)	0,18(± 0,05)

Tableau 12: Propriétés mécaniques des renforts en chanvre

Si on s'intéresse aux résultats en flexion, en prenant en compte les écarts types, il est difficile de conclure car les domaines de valeurs se recouvrent. Par contre, si on examine les valeurs moyennes, le mat à base de chanvre CHAN 1 non roui semble plus rigide. En effet, il faut avancer le matériau de plus de 1 cm en moyenne, pour parvenir au même angle de flexion.

Concernant les forces de rupture, les résultats confirment les mesures précédentes mais de façon beaucoup plus nette : La force de rupture du mat CHAN 1M est plus de deux fois plus grande que celle caractérisant CHAN 2M. Ce résultat semble surprenant puisque les contraintes de rupture et les modules d'élasticité des deux familles de fibres sont très comparables. C'est pourquoi nous avons tenté de ramener l'intensité de cette force aux propriétés intrinsèques du matériau.

Si l'on ramène à la masse surfacique, on n'observe pas de variation notable puisque les deux matériaux ont des masses surfaciques quasiment identiques.

L'étude de la résistance des matériaux impose souvent de ramener les forces à la section de l'échantillon. C'est ce que nous avons fait, sachant que la largeur des éprouvettes est de 50mm. On obtient 0,37 MPa et 0,18 MPa respectivement pour le chanvre roui et le chanvre non roui. L'écart reste important et le matériau CHAN1M montre encore de meilleures propriétés avec ce choix de paramètre.

Pour comprendre cette variation, nous avons effectué un test manuel de déchirure sur le nontissé. Le résultat est clair, il s'avère que le nontissé CHAN 2M se déchire beaucoup plus facilement, et l'on observe un glissement caractéristique des fibres non observable pour le matériau CHAN1M.

Une explication pourrait venir de la présence plus importante de pectine en surface pour le chanvre CHAN 1 qui limiterait le glissement des fibres en agissant comme un adhésif.

On pourrait également penser que la souplesse des fibres de chanvre roui CHAN 2 est plus grande (hypothèse validée à plus grande échelle par le test de flexion du nontissé) et que donc le matériau est moins résistant au test de traction puisque les fibres s'orientent très facilement dans le sens de la contrainte. Ce phénomène s'observe lors de l'essai de traction.

2.3- Les composites à matrice biosourcée à résine tanin

2.3.1- Propriétés générales

Après leur mise en forme suivant le protocole décrit dans la partie expérimentale, les composites ont été caractérisés et nous avons déterminé quelques propriétés générales reportées dans le tableau suivant.

	CHAN 1T(non roui)	CHAN 2T (roui)
Epaisseur (mm)	1,44 (±0,12)	1,40 (±0,06)
Densité	1,03 (±0,10)	1,03 (±0,09)
Taux de fibres (%)	55,1	58,8
Masse surfacique (g/m²)	1415,5 (±139,9)	1387,3 (±116,3)

Tableau 13 Propriétés générales biocomposites en chanvre

Le processus semble reproductible vis-à-vis de l'épaisseur et de la densité obtenues. L'écart type est plus important dans le cas des composites fabriqués à partir du chanvre CHAN1M mais cela peut s'expliquer par le fait que le matériau initial est légèrement plus épais.

Les 2 autres caractéristiques varient dans le sens attendu. Une augmentation de la masse spécifique entraine une augmentation de l'épaisseur puisque la densité est identique.

Le fait que l'on obtienne une densité proche de 1 est intéressant pour des applications à ces composites, car cela les classe dans la catégorie des matériaux composites légers.

Le taux de fibres est supérieur à 50%, valeur proche de celles des composites de la première série préparés à base de chanvre. Ce taux est par contre très nettement supérieur à ceux des composites réalisés avec les autres fibres dans cette même première série.

Nous sommes parvenus ici à préparer des composites à quasiment 60% de fibres, ce qui montre que finalement, l'optimisation des process de fabrication des mats et d'imprégnation n'était pas inutile. On peut aussi remarquer que le composite le plus riche en fibres correspond au non tissé le moins perméable, ce qui semble logique.

2.3.2- Propriétés mécaniques

Dans cette campagne de mesure, la densité moyenne des matériaux est toujours de 1,03, mais elle varie légèrement selon que l'on travaille avec CHAN 1T ou CHAN 2T et en flexion ou en traction.

C'est la raison pour laquelle, les variations calculées entre les deux familles de fibres sur une grandeur normale, ne sont pas toujours identiques à celles calculées sur des grandeurs spécifiques à cause de cette variation de densité (relevée sur les éprouvettes individuelles).

2.3.2.1- En traction

Dans le tableau suivant, nous avons regroupé quelques caractéristiques mécaniques des matériaux réalisés avec CHAN1T et CHAN 2T et la résine biosourcée. Le terme spécifique désigne des grandeurs ramenées à la densité. Pour compléter cette discussion, nous avons rajouté la valeur de contrainte de rupture des nontissés utilisés en renfort.

	CHAN 1T (non roui)	**CHAN 2T (roui)**
Contrainte normale (MPa)	30,30 (±6,55)	32,31(±7,46)
Contrainte spécifique (MPa)	27,33 (±3,10)	31,68 (±8,89)
MOE (MPa)	4011 (±698)	4209 (±607)
MOE spécifique (MPa)	3805 (±324)	4119 (±810)
Contrainte Rupture (MPa) du mat	0,37 (±0,19)	0,18(± 0,05)

Tableau 14 : Propriétés mécaniques en traction des composites en chanvre

Comme pour les fibres et les nontissés, les écarts font que les domaines de valeurs se recouvrent, ce qui montre que l'effet du rouissage n'est pas spectaculaire sur les composites. Cependant, si on s'intéresse uniquement aux valeurs moyennes, l'opération de rouissage semble apporter un léger mieux. Les écarts types sont globalement plus importants pour les matériaux fabriqués à partir du chanvre roui, montrant une moins bonne homogénéité des éprouvettes.

Les valeurs ramenées à la densité mettent plus en valeur la différence entre les deux composites puisque le MOE est augmenté de plus de 8%, contre à peine 5% sur les valeurs normales.

S'agissant de la contrainte, sa valeur normale est augmentée de plus de 6% lorsque l'on travaille à base de chanvre roui et la variation est beaucoup plus nette sur la contrainte spécifique avec une augmentation de près de 16%.

Le résultat notable est que la résistance du matériau final ne suit pas la résistance du matériau dont il est issu. Ainsi, le nontissé à base de chanvre roui avait beau avoir une contrainte de rupture bien

inférieure à celle du mat à base de chanvre non roui, la transformation en composite confère à celui-ci de meilleures propriétés.

On peut en tirer une conclusion partielle qu'il faudra confirmer. Un nontissé qui présente des propriétés mécaniques en termes de contraintes de rupture ne donne pas forcément un composite à propriétés similaires. On comprend alors le rôle de la matrice. Dans le mat à base de fibres CHAN2 les fibres glissaient les unes par rapport aux autres. Une fois enrobées dans la matrice, la cohésion des fibres est améliorée, tout comme le transfert de contrainte.

Les résultats les plus encourageants avec ces systèmes est que l'on obtient des modules au-dessus de 4 GPa en normal et en spécifique, c'est-à-dire très largement supérieurs à ceux de la première série. La constatation est la même pour les contraintes en rupture.

Les optimisations conjuguées entre le travail de préparation du renfort et l'imprégnation, nous ont donc permis d'aboutir à des matériaux biosourcés performants qui supportent la comparaison avec des composites fibres naturelles / matrice thermoplastiques commercialisés[2,3].

2.3.2.2- En flexion

Dans le tableau suivant, nous avons regroupé quelques caractéristiques mécaniques en flexion des matériaux réalisés avec CHAN1 et CHAN 2 et la résine biosourcée. Pour compléter cette discussion, comme précédemment pour la traction, nous avons rajouté la valeur de contrainte de rupture des deux mats utilisés en renfort et la valeur de flexion.

	CHAN 1T (non roui)	**CHAN 2T (roui)**
Contrainte normale (MPa)	62,4 (±10,5)	75,6 (±10,7)
Contrainte spécifique (MPa)	60,93 (±7,91)	72,97 (±11,32)
MOE (MPa)	5051 (±681)	5492 (±649)
MOE spécifique (MPa)	4786 (±749)	5293 (±633)
Contrainte Rupture (MPa) du mat	0,37 (±0,19)	0,18 (± 0,05)
Flexion (mm) du mat	13,15 (±1,89)	12,03 (±1,77)

Tableau 15 Propriétés mécaniques en flexion des composites en chanvre

[2]O.Faruk, A.K.Bleddzki, H.Fink, M.Sain, **Biocomposites reinforced with natural fibers: 2001–2010** Prog Polym Sci (2012)
[3]CELC http://mastersoflinen.com/technicaldatabase

Pour les propriétés en flexion, comme pour les tests en traction nous pouvons observer que les écarts types font que les domaines de valeurs se recouvrent et que l'on est bien dans des familles de matériaux très proches. Cependant les valeurs moyennes des propriétés mesurées sont cette fois nettement supérieures pour le chanvre roui CHAN2.

Ainsi, la valeur de la contrainte normale est augmentée de plus de 21%, en passant de 62,4 MPa à 75,6 MPa. Si nous ramenons cette valeur à la densité, la variation est la même (près de 20%) puisque les densités sont très proches.

En ce qui concerne les modules d'élasticité, nous retrouvons également une amélioration en passant de CHAN 1 à CHAN 2, puisque le MOE spécifique s'accroit de 4 786 MPa à 5293 MPa soit près de 11 % d'augmentation. La variation est du même ordre de grandeur pour les MOE pris en valeurs normales.

Par rapport à ce que nous avons observé avec les tests d'efforts en traction, nous pouvons donc remarquer que le fait de passer de CHAN 1 à CHAN 2 a un impact non négligeable sur les propriétés en flexion.

En outre, et comme précédemment, on constate que le classement des performances des mats en flexion n'est pas transposable à celui des composites puisque CHAN2M apparaissant moins performant que CHANV 1M ce qui n'est pas le cas des composites.

Conclusion partielle

Pour ces matériaux réalisés avec les fibres de chanvre, nous obtenons déjà des caractéristiques intéressantes et nettement supérieures à celle la première série.

La moyenne des modules d'élasticité atteint, pour les matériaux réalisés avec les 2 chanvres, une valeur supérieur à 4 GPa en traction et 5,2 GPa en flexion.

Les valeurs de contrainte sont également plus intéressantes, avec une moyenne de 31 MPa pour la contrainte normale en traction et 69 MPa pour la contrainte normale en flexion.

Le matériau réalisé avec le chanvre roui (CHAN 2) présente les meilleures propriétés mécaniques, en particulier dans le domaine des tests de flexion. Il semble difficile de conclure de manière absolue sur la cause exacte de cette amélioration puisque plusieurs paramètres ont évolués entre les 2 matériaux, par exemple le taux de fibres qui pourrait être un paramètre très important. Les propriétés finales sont vraisemblablement liées à la qualité d'imprégnation et donc liées également à la qualité du mat, mais aussi aux qualités intrinsèques des fibres.

2.3.3- Clichés MEB des faciès de rupture

Pour aller plus loin dans les investigations nous avons examiné les faciès de rupture des composites au microscope électronique à balayage. Ces images sont réalisées sur les éprouvettes après rupture en flexion en grossissement 100 et 300.

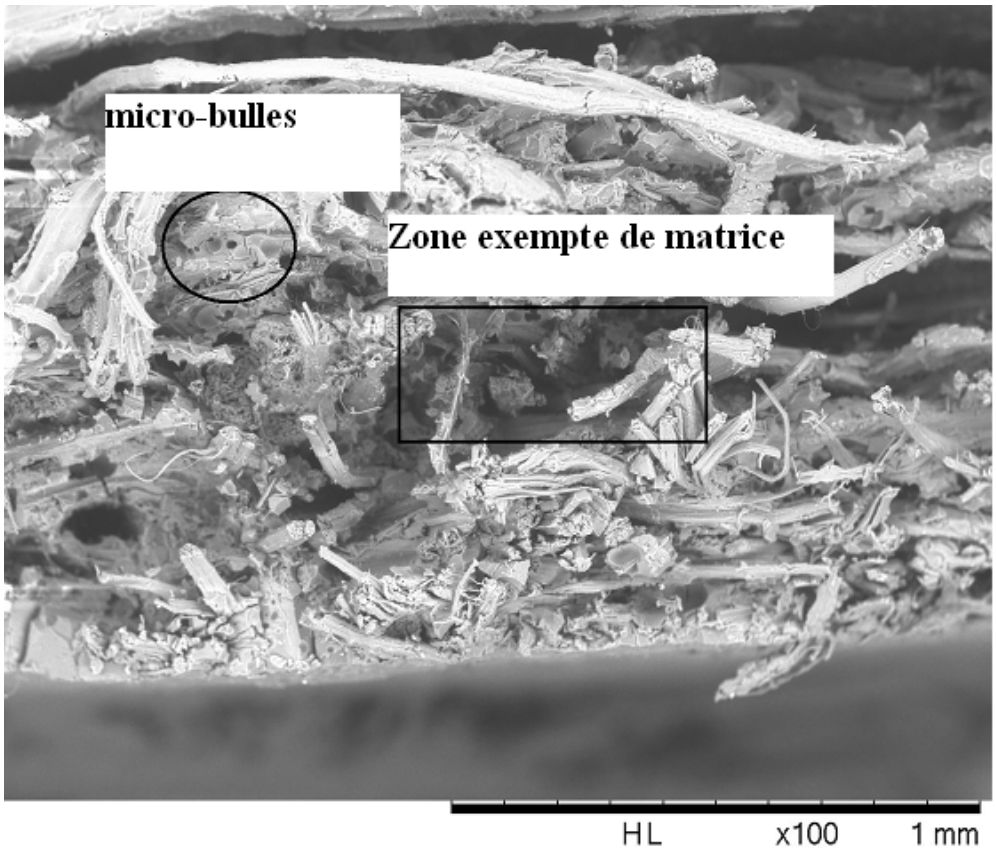


Figure 8 vue du composite CHAN 2T

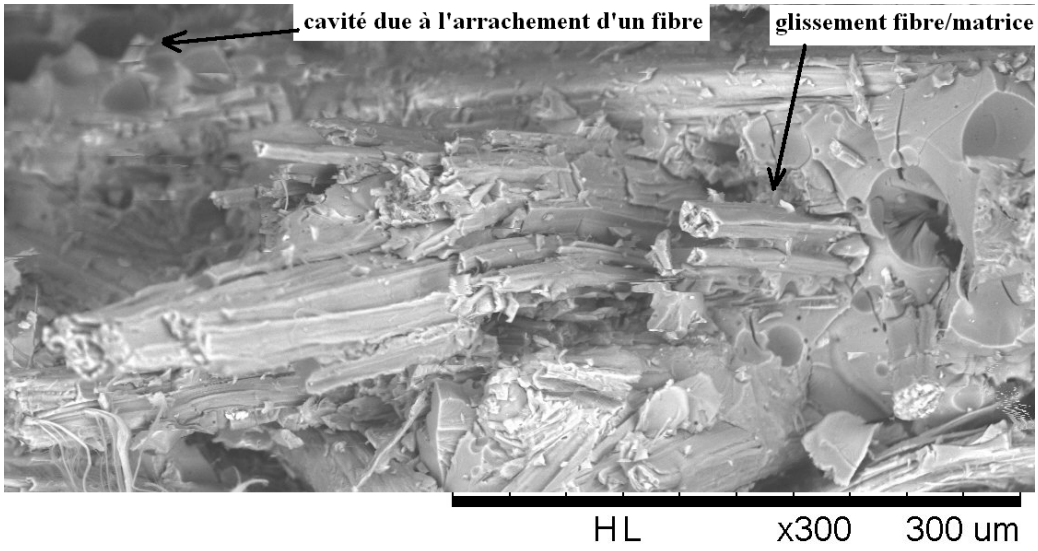


Figure 9 vue du composite CHAN 2T

Cette technique ne nous a pas permis de donner une explication sur les différences de propriétés entre les deux familles de composites CHAN 1 roui et CHAN 2 roui avec résine naturelle. Cependant, les clichés apportent un certain nombre d'informations importantes. Tout d'abord, l'imprégnation ne semble pas homogène. Il y a des grandes zones sombres qui laissent à penser qu'il y a un manque de résine. Ensuite, s'agissant des zones noires plus petites, nous pouvons distinguer deux familles, l'une constituée de taches très petites pouvant correspondre à la formation de micro-bulles ou inclusions, et d'autres plus étendues qui pourraient être le résultat d'un arrachement des fibres de la matrice. C'est d'ailleurs ce que l'on observe sur le deuxième cliché, où l'on voit distinctement des fibres et/ou des paquets de fibres qui ressortent de la surface de rupture et qui sont propres et lisses à l'endroit même où il y a de la matrice. Ces fibres arrachées à la matrice que l'on peut remarquer par un simple examen visuel traduisent un glissement des fibres et donc une adhésion insuffisante entre les deux constituants du composite. La qualité de l'interface pourrait être optimisée notamment par des traitements sur la fibre. Ces traitements pourraient être des traitements chimiques classiques en milieu alcalin par NaOH [4,5,6,7] d'éthérification ou encore d'acétylation[8]. Si ces traitements sont connus pour effectivement améliorer l'interface fibre/matrice notamment en effectuant un nettoyage de la fibre et en augmentant la rugosité de surface, une exposition trop importante à leur action (concentration, durée ou température) peut entraîner une dégradation significative des propriétés mécaniques des fibres[9,10]. Des interfaces ont également été développées pour améliorer la compatibilité fibre / matrice, en particulier pour les matrices polypropylène[11,12,] ou PLA. Une étude complémentaire sur les propriétés mécaniques des fibres après traitements serait nécessaire pour valider l'intérêt du traitement. L'idéal serait de pouvoir conserver un caractère biosourcé à ces matériaux et pourrait consister à appliquer des traitements

---

[4] M.S.Islam, K.L.Pickering, N.J.Foreman, **Influence of alkali treatment on the interfacial and physico-mechanical properties of industrial hemp fibre reinforced polylactic acid composites**, Elsevier, Composites: Par A 41 596-603(2010)

[5] A.Sirvaitiene, V.Jankauskaite, P. Bekampiene, A.Kondratas, **Influence of Natural Fibre Treatment on Interfacial Adhesion in Biocomposites**, Fibres & Textiles in Eastern Europe; 21 (2013)

[6] D. Sedan,C. Pagnoux, A. Smith ,T. Chotard, **Mechanical properties of hemp fibre reinforced cement: Influence of the fibre/matrix interaction**, Journal of the European Ceramic Society 28 183–192 (2008)

[7] S. Hamzaa, H. Saada, B. Charrier, N. Ayeda, F. Charrier-El Bouhtouryba, **Physico-chemical characterization of Tunisian plant fibers and its utilization as reinforcement for plaster based composites**, , Industrial Crops and Products 49 357– 365 (2013)

[8] A.K Mohanty, M.Misra and L.T.Drzal, **Surface modifications of natural fibers and performance of the resulting biocomposites** : An overview , Composite Interfaces, Vol.8, No.5, pp. 313-343 (2001)

[9] B.Mutnuri, C.Aktas,J.Mariott, M.Bilec, H.Gangarao, **Natural Fiber Reinforced Pultruded Composites, Composites 2010,** American Composites Manufacturers Association, Las Vegas, Nevada, USA (February 9-11, 2010)

[10] A. K. Bledzki, 1 H.-P. Fink, K. Specht**, Unidirectional Hemp and Flax EP- and PP-Composites:Influence of Defined Fiber Treatments** InterScience (www.interscience.wiley.com), DOI 10.1002/app.20712, (2004)

[11] K.L.Pickering, GW.Beckermann, S.N.Alam, N.J.Foreman, **Optimising industrial hemp fibre for composites**, ELSEVIER, Composites Part A:applied science and manufacturing (38) pp 461-468 (2007)

[12]T. Huber, J. Müssig, **Fibre matrix adhesion of natural fibres cotton, flax and hemp in polymeric matrices analyzed with the single fibre fragmentation test,** Volume 15, Issue 2-3, pages 335-349 (2008)

physiques à la fibre: UV, ultra-sons, plasma, Corona. Dans une étude parallèle, nous avions mis en évidence qu'un traitement de ce type appliqué sur les fibres de lin améliorait les propriétés mécaniques de composites préparés à partir de nontissés et de la même résine naturelle[13].

2.4- Les composites à matrice synthétique

Comme décrit dans la partie 2 Matériels et Méthodes Composites, nous avons donc préparé des composites sur la même base de renforts, mais en choisissant une matrice synthétique de type époxy.

Les objectifs de cette démarche étaient multiples. Tout d'abord, nous souhaitions examiner la réaction des fibres avec une autre matrice vis à vis des paramètres notamment de mouillabilité et de facilité d'imprégnation. Ensuite, nous souhaitions disposer d'un comparatif en termes de propriétés mécaniques par rapport aux matériaux entièrement biosourcés, sachant que les résines époxy sont les résines les plus utilisés pour réaliser des composites hautes performances.

2.4.1- Propriétés générales

Après leur mise en forme suivant le protocole décrit dans la partie expérimentale, les composites ont été caractérisés et nous avons déterminé quelques propriétés générales tabulées dans le tableau suivant.

	CHAN 1E (non roui)	**CHAN 2E (roui)**	**Résine E**
Épaisseur (mm)	3,79 (±0.11)	3,42 (±0.05)	-
Densité	1,12 (±0,03)	1,07 (±0,08)	1,10
Taux de fibres (%)	22,7	24,8	-
Masse surfacique (g/m²)	4228,7 (±149,3)	3644,7 (±42,0)	-

Tableau 16 propriétés générales des composites avec résine époxy

Les épaisseurs des deux composites sont relativement proches et nettement plus importantes que les systèmes à base de résine naturelle avec plus de 3mm ici contre 1,4 mm précédemment. Cela s'explique par le process de mise en œuvre qui ne fait pas intervenir de presse. Toutefois, il est intéressant de noter que l'épaisseur finale est inférieure à celle du renfort dont il est issu. Cela peut

[13] A. Pizzi,R. Kueny, F. Lecoanet,B. Massetau,D. Carpentier, A.Krebs, F.Loiseau, S.Molina, M.Ragoubi, **High resin content natural matrix–natural fibre biocomposites**, Industrial Crops and Products ,Volume 30, Issue 2, Pages 235–240 –(2009)

s'expliquer par le fait que l'infusion de résine s'effectue en dépression, ce qui a tendance à légèrement écraser le mat de fibres. La contrainte exercée, même si elle est faible fait perdre approximativement 1 mm d'épaisseur par rapport au mat initial. Comme précédemment, on peut remarquer que c'est le composite issu de la fibre CHAN 1 qui est légèrement plus épais, ce qui peut s'expliquer par le fait que le matériau initial l'est aussi.

Les valeurs de densité sont difficilement comparables entre les matériaux puisqu'elles demeurent très proches de la valeur initiale de la matrice à 1,10.

S'agissant des pourcentages massiques en chanvre, les systèmes préparés ici sont nettement moins riches en fibres que les systèmes réalisés précédemment en résine naturelle. Nous retrouvons des taux similaires à ceux reportés dans l'étude préliminaire.

On peut noter que le taux de fibres du matériau à base de chanvre roui CHAN 2 et résine époxy est légèrement supérieur à celui du matériau basé sur le chanvre non roui

Concernant la masse surfacique finale, l'écart semble important, mais cela peut s'expliquer par le fait que l'épaisseur finale du composite à base du chanvre non roui CHAN 1T est plus importante (11,5%) que celle du composite à base du chanvre roui CHAN 2T. Si l'on ramène la masse surfacique à la même épaisseur, nous obtenons des valeurs quasiment identiques en prenant en compte les écarts type.

2.4.2- Propriétés mécaniques

Ces composites n'étant pas l'objectif central de cette thèse, nous avons procédé uniquement aux tests mécaniques en traction. Les résultats sont tabulés ci-dessous :

	CHAN 1E	**CHAN 2E**	**Résine E**
Contrainte normale (MPa	45,9 (±5,0)	47,6 (±4,8)	59,4
Contrainte spécifique (MPa)	41,1 (±3,8)	44,4 (±4,8)	54
MOE (MPa)	3759 (±658)	3358 (±429)	3307
MOE spécifique (MPa)	3365 (±551)	3135 (±436)	3006

Tableau 17 Propriétés mécaniques des composites chanvre et époxy

Le résultat le plus flagrant est que si l'on tient compte des écarts type, le renfort ne semble pas jouer un rôle essentiel dans les propriétés mécaniques. Au contraire, si nous nous intéressons à la contrainte de rupture, les matériaux composites sont de 12 à 15 % moins performants que la résine

seule. S'agissant des autres grandeurs, en prenant en compte les écarts types, il est difficile de conclure sur les effets du rouissage. Si l'on rajoute le fait que la densité n'est pas diminuée lorsque l'on ajoute les fibres, le seul intérêt que l'on pourrait voir à la réalisation de ces composites est l'éventuelle réduction du coût. Toutefois, si l'on s'intéresse uniquement aux valeurs moyennes, il apparaît que les matériaux à base de chanvre CHAN 1 présentent un module d'élasticité en traction légèrement supérieur à la résine et au composite à base de CHAN 2.

C'est un résultat quelque peu surprenant que le renfort ne contribue pas de façon significative à l'amélioration des propriétés mécaniques. Nous pouvons peut être supposer que le taux de fibres est trop bas pour que le renfort puisse exercer son rôle de transfert de contraintes.

2.4.3- Examen des facies de rupture au MEB

Nous avons examiné les facies de rupture pour avoir une idée de la qualité d'adhésion ou de l'interface entre la fibre et la matrice. Ces clichés figurent ci-dessous.

Dans le cas des composites à base de chanvre non roui CHAN 1E, les clichés apportent un certain nombre d'informations. Tout d'abord, ils confirment que la proportion de fibres reste faible et qu'elles ont tendance à se regrouper laissant de grandes zones exemptes de renfort. Cela laisse supposer une mouillabilité modérée pouvant être la conséquence d'une viscosité encore trop importante de la résine.

De plus, les clichés mettent en évidence que la fibre glisse le long de la matrice, ce qui montre un manque flagrant d'adhésion entre les deux constituants du composite. Ce phénomène est bien surveillé sur les systèmes de composites à fibres de carbone et résine époxy où l'on a bien mis en relation les performances et les mécanismes des modes de ruine avec le niveau d'adhésion fibre matrice [14]

Dans le cas des systèmes à base de chanvre roui CHAN 2E, les clichés sont quelques peu différents. Même si la teneur en fibres reste faible, les fibres semblent moins regroupées. Ce que l'on retrouve sur ces clichés, ce sont les gros faisceaux déjà notés au cours de l'observation des fibres brutes.

Les fibres sont plus grosses et semblent moins regroupées par paquets, globalement le composite semble plus homogène. Mais, la remarque la plus intéressante cette fois est que l'on observe la rupture de certaines fibres sans glissement. Ce qui traduit probablement une interface de meilleure qualité. Cela pourrait expliquer la légère amélioration discernable sur les MOE. Sans aller trop loin dans l'interprétation, nous pourrions faire l'hypothèse que les lignines présentes en surface du

[14] L.T.Drzal, M.Madhikar, **Fibre-matrix adhesion and its relationships to composite mechanical properties**, Journal of Material Science 28(3), pp 569-610 (1993)

chanvre non roui CHAN 1 E jouent un rôle dans la qualité de l'interface fibre matrice. Ce résultat reste évidemment à confirmer. Enfin, si vraiment il y a un effet du rouissage sur les propriétés mécaniques, c'est sur un matériau plus chargé en fibres que l'on aurait probablement pu le mettre en évidence.

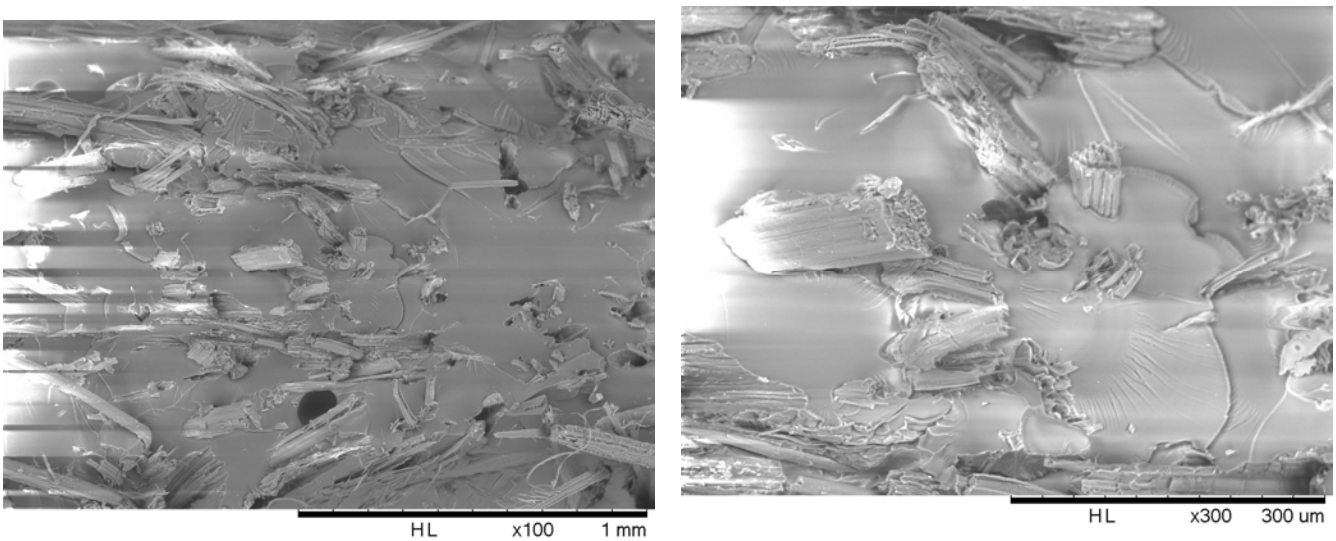


Figure 8 : vue du composite CHAN 1 E

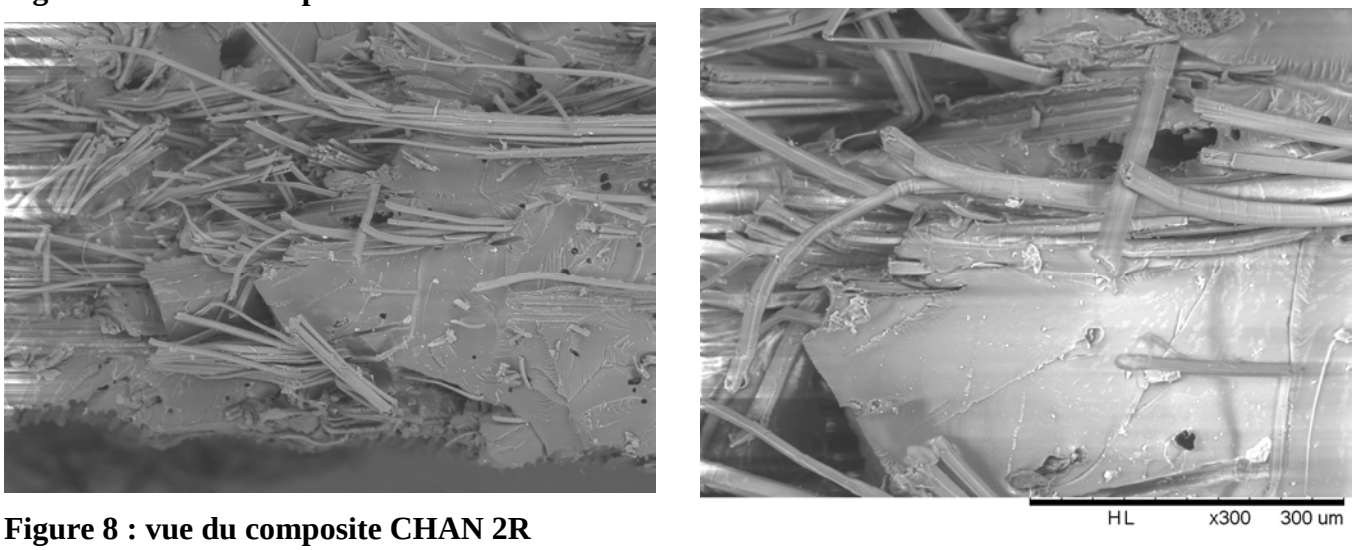


Figure 8 : vue du composite CHAN 2R

3- ETUDE SUR LE LIN

Les 3 types de lin utilisés dans cette partie proviennent de la région Normandie mais de fournisseurs différents. Les fibres ont été préparées de manières différentes pour obtenir des prix et des qualités distincts avec pour objectif de disposer de fibres techniques et adaptées à notre ligne de cardage.

La matière la plus coûteuse que nous avons fait préparer est le lin LIN R avec un affinage très poussé et une partie préparation de la fibre dite au « mouillé » afin de préserver la qualité des fibres lors de l'affinage en augmentant leur ténacité et leur capacité d'allongement par l'action de l'eau. Cette fibre est certainement la fibre qui est déjà la plus travaillée avant cardage. La matière la moins coûteuse et en principe la moins travaillée est le lin LIN A qui est composés d'étoupes de teillage, avec un léger affinage pour pouvoir passer correctement sur la carde. Enfin, avec le lin LIN D qui se situe entre les deux au niveau tarif, l'objectif est de disposer de fibres très régulières pour une application composite et préparées en ménageant au maximum les propriétés mécaniques.

3.1- Les fibres

3.1.1- Examen au microscope

3.1.1.1- Fibres avant cardage

- Lin LIN D

En vue longitudinale, le diamètre des fibres semble bien homogène. Si l'on observe une fibre individuelle son diamètre est également bien régulier sur toute la longueur.

Les faisceaux sont bien rectilignes, ce qui témoigne d'une certaine rigidité de la matière.

En vue de coupe, les observations nous montrent que les fibres sont réunies en amas formant des faisceaux de fibres. Le nombre de fibres constituants ces faisceaux est relativement important, et on peut comptabiliser jusqu'à une vingtaine de fibres par faisceaux. Cette vue en coupe confirme également que les fibres sont de diamètres bien homogènes.

- Lin LIN R

Tout d'abord sur la vue longitudinale, les fibres de cette qualité semblent beaucoup plus fines et très bien individualisées par rapport à la qualité précédente. Elles apparaissent bien propres et

fines, avec cependant, au centre, un plus gros faisceau de fibres non individualisées qui semble avoir échappé au process d'individualisation lors des étapes de préparation de la matière.

A droite, sur la vue en coupe, on observe que les fibres sont bien individualisées avec uniquement quelques faisceaux pouvant compter de 6 (en bas à droite) à 10 fibres environ (en haut à gauche du cliché).

- Lin LIN A

Sur les clichés du lin A avant cardage, on peut observer que cette qualité de matière est moins homogène en terme de diamètre que les deux qualités précédentes. Sur la vue longitudinale, on peut repérer des fibres individualisées et d'autres regroupées en faisceaux.

Les fibres sont également bien moins rectilignes que les deux qualités précédentes. On observe aussi plus de poussières sur le cliché, témoignant d'une matière moins nettoyée que les précédentes.

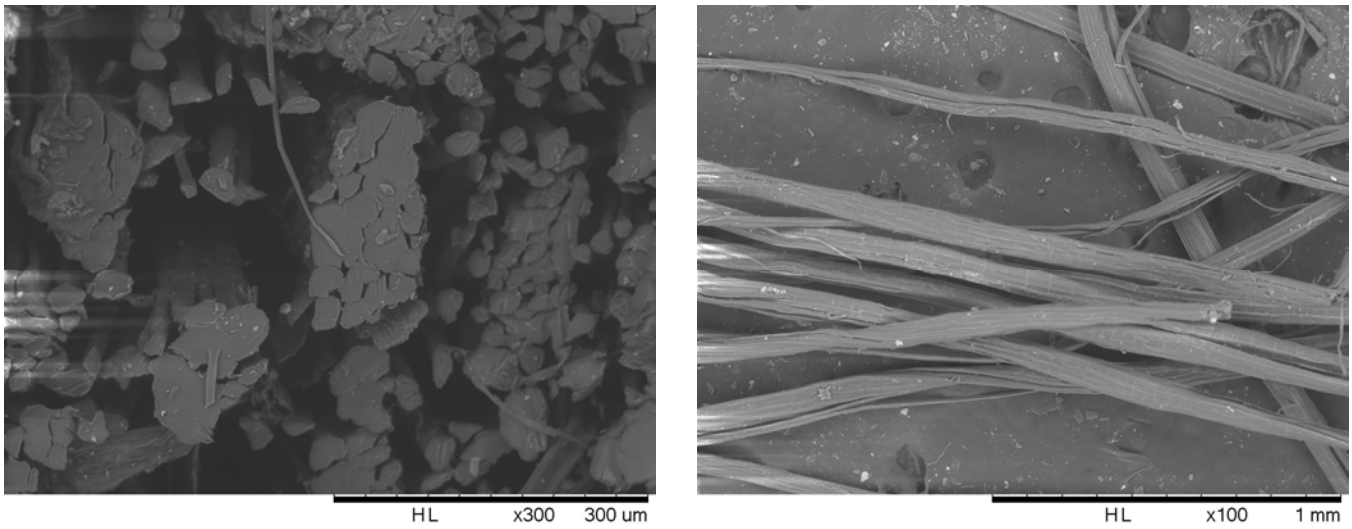


Figure 10 LIN D en vue longitudinale et en coupe avant cardage

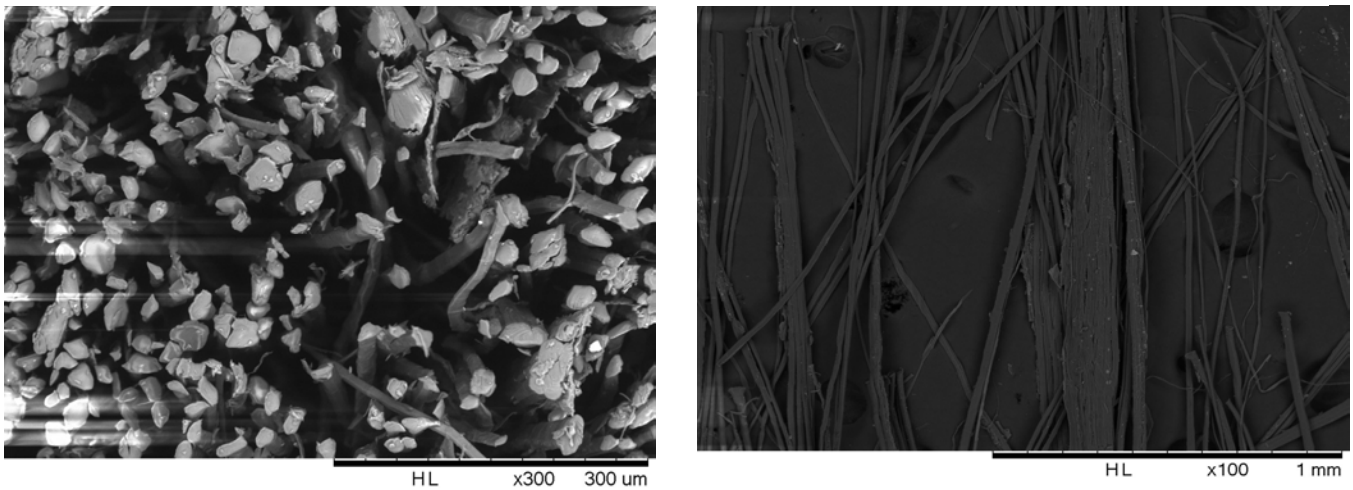


Figure 11 LIN R en vue longitudinale et en coupe avant cardage

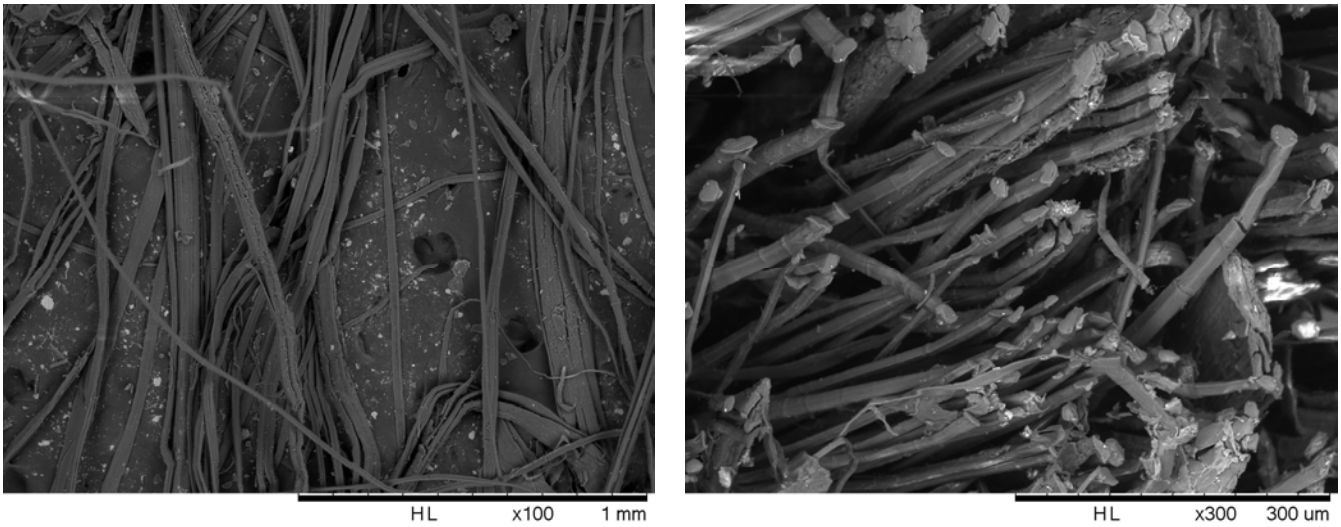


Figure 12: LIN A en vue longitudinale et en coupe avant cardage

3.1.1.2- Fibres après cardage

- LinD

  Après cardage, une grande partie des faisceaux observables avant cardage ont été séparés en fibres individuelles. Sur le cliché en vue longitudinale, nous pouvons observer que 5 faisceaux seulement ne sont pas défibrillés. Les fibres individuelles sont bien régulières en termes de diamètres, à l'échelle d'observation utilisée, peu de défauts sont visibles. Nous ne décelons pas non plus d'endommagement particulier ou d'amorce de rupture, au contraire des fibres de chanvre étudiées précédemment. Ces fibres semblent maintenant plus souples puisqu'elles sont moins rectilignes que sur le cliché avant cardage.

- Lin R

  Sur ces clichés, les fibres sont maintenant pour cette qualité très individualisées par rapport aux clichés avant cardage. Ainsi, nous n'observons pratiquement plus de faisceaux de fibres condensées. De même, que pour la qualité « Lin D », nous n'observons pas d'amorce de rupture que ce soit sur la vue en coupe ou longitudinale.

- Lin A

  Cette matière semble la moins homogène car nous observons une grande variation des diamètres des fibres individuelles. L'opération de cardage semble toutefois dans une certaine mesure affiner la matière, mais des faisceaux de fibres restent observables.

  En vue longitudinale, si un certain nombre de fibres semblent bien individualisées, il reste des faisceaux non défibrillisés ou seulement en partie. Nous pouvons également déceler des

fibrilles de très petites longueurs (environ 200 µm) qui peuvent provenir d'un travail trop agressif de la carde.

Sur la vue en coupe, il est moins évident de juger du niveau d'individualisation des fibres. Par contre, il est possible d'observer un début de séparation d'une grosse fibre située au milieu dans la partie supérieur du cliché en coupe. Cette fibre semblerait avoir subi un début de cisaillement dans le sens de la longueur et commencerait donc à se séparer en deux.

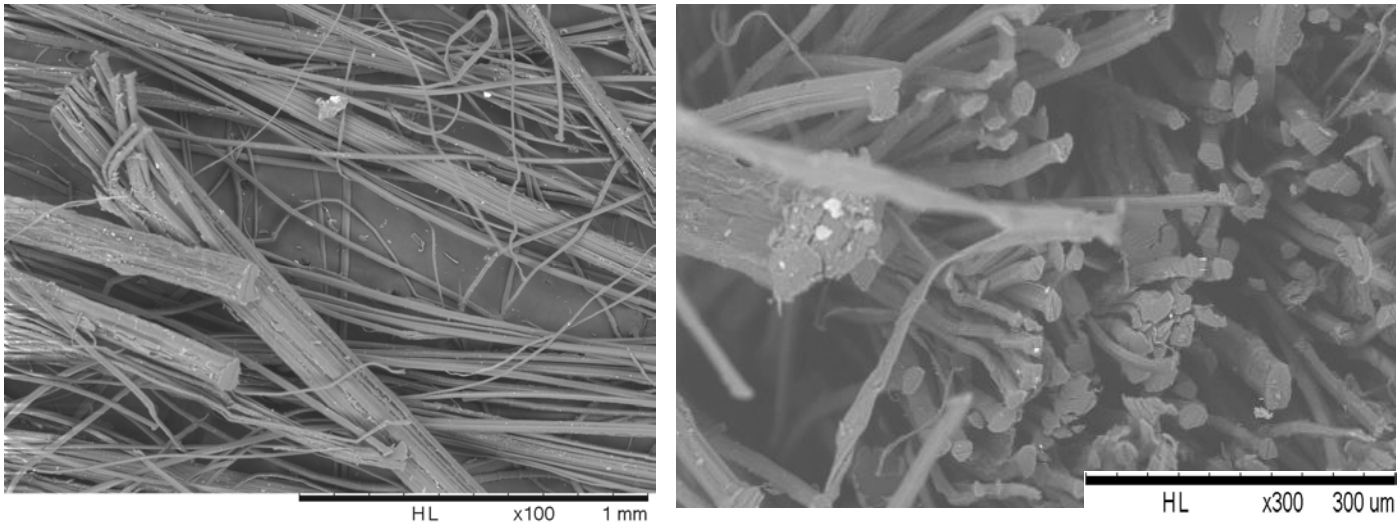


Figure 13 LIN D en vue longitudinale et en coupe après cardage

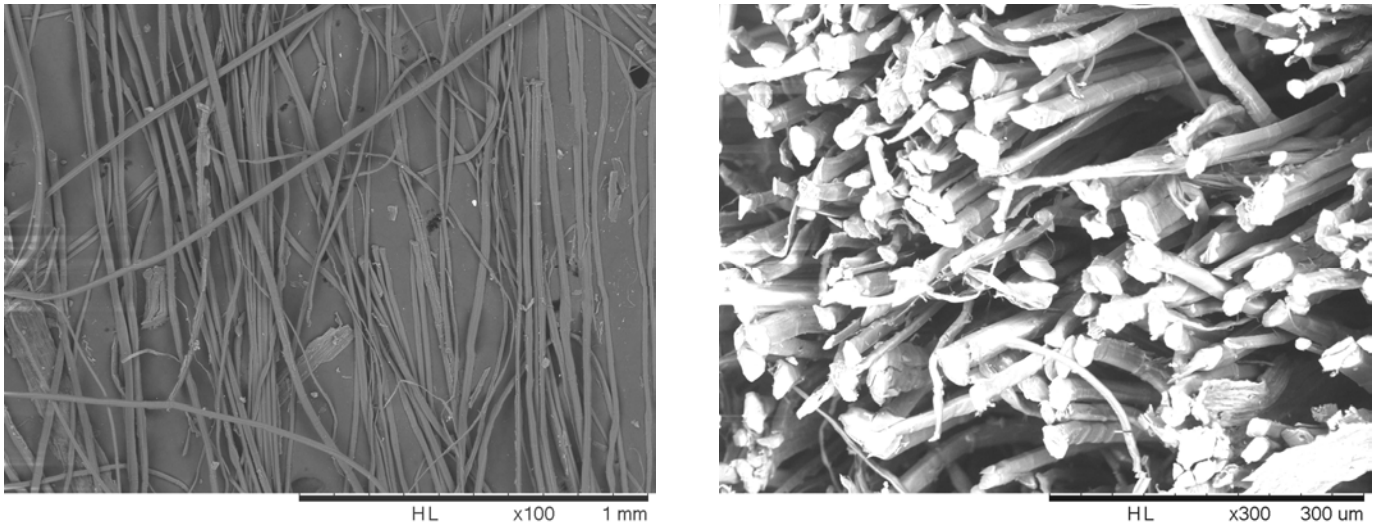


Figure 14 LIN R en vue longitudinale et en coupe après cardage

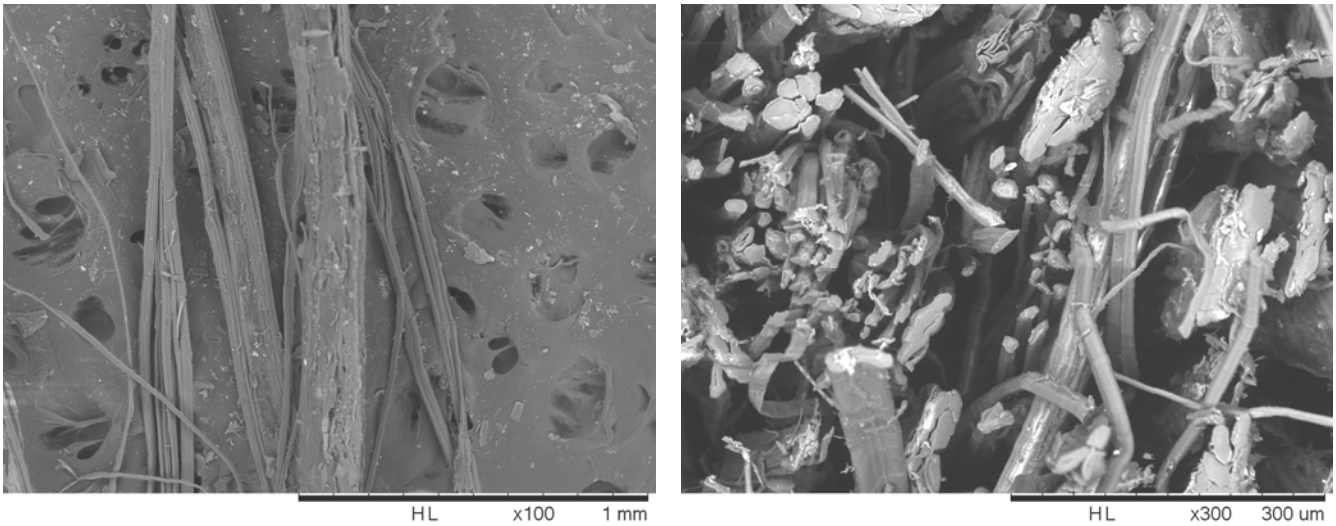


Figure 15 LIN A en vue longitudinale et en coupe après cardage

3.1.2- Propriétés générales

3.1.2.1- Caractéristiques physiques :

Nous avons reporté dans le tableau suivant quelques grandeurs caractéristiques physiques des fibres avant et après opération de cardage.

		Balle	Entrée carde	Sortie Carde
Longueur Moyenne	LIN R			39,2
	LIN A			41,9
	LIN D		47.2	45,6
Longueur Max observable	LIN R			60,0
	LIN A			63,0
	LIN D			60,0
Diamètre moyen (µm)	LIN R		21,4	21,8
	LIN A		31,6	12,7
	LIN D		32,2	17,4

Tableau 18 Caractéristiques physiques des fibres de lin

Concernant les diamètres, le lin R se trouve obtenir le diamètre moyen le plus faible à 21,4 µm, en entrée de carde, alors que Lin D et Lin A obtiennent des valeurs proches avec 32,2 et 31,6 µm. On peut déjà donner une explication à ces valeurs par le niveau de préparation complémentaire effectué sur Lin R (raffiné) qui permet à cette matière d'obtenir une valeur de finesse exceptionnelle avec des fibres pratiquement toutes unitaires. Lin D et Lin A conservent en entrée de carde tous les deux

relativement plus de faisceaux de fibres ce qui conduit à un diamètre moyen plus important. Si en sortie de carde, le diamètre moyen des fibres de Lin R est quasiment identique à la valeur à l'entrée de la carde, pour les deux autres fibres, l'effet d'affinage est beaucoup plus sensible, puisque l'on divise par deux quasiment la moyenne. Concernant les longueurs des fibres qui sont mesurées manuellement (sur 60 fibres) en sortie de carde, elles sont comparables avec des moyennes proches entre 39 et 45 mm.

3.1.3- Caractéristiques chimiques :

Dans le tableau suivant, nous avons reporté les taux des différents constituants des fibres (en %):

	Lin D	**Lin R**	**Lin A**
Graisses et Cires	3,5(±0,2)	1,1(±0,4)	2,7(±0,1)
Minéraux, tanins	2,3(±0,3)	4,1(±0,8)	2,3(±0,2)
Pectines	1,5(±0,2)	1,5(±0,2)	1,6 (±0,3)
Lignines	11,6(±1,8)	8,1(±1,0)	14,8 (±1,0)
Hémicelluloses	18,3(±3,9)	20,1(±0.9)	12,7 (±1,1)
Cellulose	62,8(±1,3)	65,1(±0,8)	65,9 (±1,3)

Tableau 19 Comparaison des constituants des fibres de lin

Entre les 3 types de fibres on peut constater que les taux de cellulose et d'hémicellulose sont comparables (moyenne entre 62,8 et 65,9), excepté pour le lin A dont le taux d'hémicellulose est en – dessous, mais compensé par un taux de lignines le plus important des 3 fibres (14,8%). Ce taux de lignine est d'ailleurs bien plus élevé pour nos fibres que ce qui est relevé dans la littérature[15] (compris entre 1 à 5%), soit au minimum deux fois moins que les taux du Lin D et Lin R et trois fois pour le lin A.

Il paraît donc difficile de tirer des conclusions à ce niveau puisque les fibres ne sont pas issues de la même récolte et ne sont pas travaillées de la même façon.

[15] **Industrial Application of Natural Fibres** / Jörg Mûssig Editor

3.1.4- Propriétés mécaniques

Dans le tableau suivant, nous avons reportés les caractéristiques mécaniques obtenues sur les fibres de lin étudiées. A titre de comparaison, nous avons également reporté les grandeurs caractéristiques tirées de la littérature[15].

	Lin D	**Lin R**	**Lin A**	**Littérature**
Contrainte de Rupture (MPa)	894 (±341)	788 (±263)	736 (±372)	343-1500 (700 en moyenne)
CV%	38	33	51	-
MOE (GPa)	38,5(±14,8)	33,9 (±22,6)	21,6 (±13,6)	8 à 100 (70)
CV MOE (%)	38	67	63	54
Allongement %	3,54 (±1,30)	3,68(±1,81)	3.41 (±1,48)	1,2 à 4

Tableau 20 Propriétés des fibres de lin

Concernant les contraintes, les valeurs obtenues restent bien en accord avec les valeurs trouvées dans la littérature, puisque nous obtenons pour les trois fibres des valeurs légèrement supérieures à la moyenne tabulée. C'est sur le lin LIN D que l'on obtient la valeur moyenne la plus importante avec une contrainte de 894 MPa, alors que la fibre qui obtient la valeur de contrainte la plus faible est le Lin A avec 736 MPa, soit une différence de 18%. Le Lin R se place entre les 2 fibres avec une valeur de 788 MPa, soit une différence de 11 % avec le Lin D. Concernant les écarts types, ils sont relativement importants et il y a recouvrement des valeurs lorsque l'on en prend compte. Cependant, nous pouvons quand même relever que pour le Lin LIN R l'écart type obtenu est nettement inférieur aux 2 autres. Etant donné que les fibres ont des moyennes de contraintes différentes, il est également intéressant de rapporter cet écart type à la moyenne pour obtenir le coefficient de variation. Cela confirme nos remarques précédentes puisque l'on obtient le meilleur résultat pour le lin LINR avec un CV de seulement 33%, contre 38% pour la fibre LIN D, et enfin, nous confirmons avec un CV de 51 % que la fibre LIN A est la matière dont les fibres sont les moins régulières en termes de contrainte de rupture. Ces résultats sont conforment à nos attentes, puisque la fibre Lin R est issu d'un process poussé de préparation visant à augmenter en particulier sa régularité en masse pour pouvoir l'introduire dans des matériaux haut de gamme. A l'opposé, la fibre LIN A est une matière constituée d'étoupes de lin, c'est-à-dire que les fibres les plus longues présentes dans la matière d'origine ont été écartées pour être utilisées pour des applications textiles. Le Lin D avec un CV% de 38% est finalement proche du Lin R pour la régularité mais obtient une valeur de contrainte supérieure certainement en lien avec le process spécifique de préparation visant à ménager au maximum ses caractéristiques mécaniques et aussi bien entendu aux conditions de culture seulement connues du fournisseur.

Concernant les valeurs de modules d'élasticité, elles suivent parfaitement les valeurs de contrainte. Ainsi la valeur de module la plus importante est obtenue par la fibre LIN D avec un module de 38,47 GPa nettement supérieur aux 2 autres fibres. Le lin LIN A obtient la valeur de module la plus faible, avec une différence de près de 47% par rapport au lin D. Le lin R est plus proche du lin A avec un écart de 4,57 GPa soit une différence d'un peu plus de 11%. Là aussi, ces valeurs paraissent logiques, puisque le Lin R a subi un process de préparation et d'affinage très poussé afin de disposer d'une matière utilisable dans le domaine très exigeant de la filature textile, où l'on recherche des propriétés de souplesse et où donc des fibres à bas module peuvent être intéressantes. A l'opposé, la fibre LIN D avec un module d'élasticité plus élevé est donc plus rigide et donc a priori beaucoup plus intéressante pour la réalisation de matériaux composites. La faible valeur relative du module d'élasticité du LIN A est plus étonnante car cette fibre est déjà utilisée à notre connaissance pour la réalisation de matériaux composites de grande diffusion, comme des panneaux de garnissage de porte de voiture (Nous pouvons émettre la remarque que ce type de panneaux ne sont en fait généralement pas structurels).

Si l'on compare aux modules trouvés dans la littérature[1], les valeurs que nous avons trouvées sont plutôt basses. Sans remettre en cause ses valeurs, qui dépendront beaucoup du prélèvement des fibres et du protocole de mesure, nous voyons tout l'intérêt ici d'avoir refait nos propres mesures. Si l'on prend comme référence les travaux des équipes du Pr C.BALEY[116], on constate que les modules d'élasticité que nous avons obtenus sont comparables à celles qu'il rapporte sur lin (voir tableau ci-dessous N°21 : entre 57,0 et 68,2 GPa. Ces valeurs sont certes supérieures aux nôtres, mais une première explication peut être donnée : les mesures ont été réalisées sur des fibres élémentaires. Ainsi, les diamètres mesurées sont compris entre seulement 13,6 et 17,8 µm contre 53,92 à 73,23 µm en moyenne avec nos fibres. Une seconde explication, est que, outre les différences génétiques, les fibres ont été prélevées sur la plante au laboratoire afin d'en préserver au maximum les caractéristiques mécaniques, contrairement aux nôtres qui proviennent de process de défibrage et de nettoyage nettement plus agressifs. Enfin, nous pouvons faire une remarque complémentaire sur les écarts type des modules d'élasticité : Certes les moyennes de nos propres fibres de lin sont inférieures, mais en tenant compte des écarts types de nos mesures nous observons que les valeurs maximum atteintes seraient bien en adéquation avec la littérature et les données publiées par le Pr C.Baley.

En conclusion pour les observations sur les modules d'élasticité, les valeurs que nous avons relevées nous paraissent conformes car nous avons mesuré des fibres ayant subi des process industriel de défibrage et de nettoyage relativement agressifs. De plus, nos analyses ont porté sur les fibres telles qu'elles se présentaient c'est-à-dire en fibres élémentaires, mais aussi en faisceaux fibres qui présentent de moins bonnes propriétés.

En ce qui concerne les valeurs d'allongement relevées par le Favimat, celles-ci sont parfaitement conformes à la littérature (écart en-dessous de 4% en moyenne). Cependant, nous pourrions également observer que nous nous trouvons en présence de fibres plutôt élastiques puisqu'en tenant compte des écarts types, nous dépassons la gamme de valeurs habituelles de 1,2 à 4 % d'allongement. Nous pouvons émettre la réserve suivante, c'est que, comme pour les valeurs de modules d'élasticité, ces valeurs d'allongement seraient plus importantes en principe si nous nous attachions à ne mesurer que les fibres individuelles.

Variété	Diamètre (µm)	MOE (GPa)	Contrainte (MPa)	Allongement de rupture (%)
Hermes 2003	19.6±6.7	68.2±35.8	1454±835	2.3±0.6
Ariane 2003	23.0±5.7	54.1±15.1	1339±486	3.3±0.8
Agatha 2003	21.3±6.3	57.0±29.0	865±413	1.8±0.7

Tableau 21 Propriétés mécaniques de quelques fibres de lin[16]

3.2- Les renforts

3.2.1- Propriétés générales

Pour chacun des mats préparés à partir des fibres précédentes, nous avons mesuré la masse surfacique, ainsi que la perméabilité à 100 Pa et l'épaisseur, à partir de laquelle nous avons déterminé le coefficient de perméabilité K fonction de ces deux paramètres.

Les résultats sont synthétisés dans le tableau ci-dessous :

	LIN DM	**LIN RM**	**LIN AM**
Epaisseur (mm)	4,21	4,44	4,47
Masse surfacique (g/m²)	755,4 (±39,6)	825,5 (±40,6)	797,5 (±29,0)
CV%	5,24	4,93	3,64

[16] K. harlet ,C. Baley , C. Morvan , J.P. Jernot , M. Gomina , J. Breard, **Characteristics of Herme`s flax fibres as a function of their location in the stem and properties of the derived unidirectional composites**,Elsevier, Composites: Part A 38, pp1912–1921 (2007)

Epaisseur ramenée à 800g	4,46	4,30	4,48
Perméabilité à 100 Pa (l/m²/s)	392,7 (±74,5)	148,1(±24,7)	286,3 (±30,0)
Coefficient K	16,5	6,6	12,8

Tableau 22 Propriétés des renforts en lin

Comme pour les renforts à base de chanvre, dans la préparation des nontissés, nous nous sommes attachés à travailler à masse surfacique constante à 10% près de la valeur cible 800g/m². Pour une qualité de fibres donnée, nous sommes dans l'intervalle de confiance fixé puisque dans les 3 cas nous obtenons une valeur de CV proches des 5 %.

Avec les mêmes réglages et à masse surfacique quasiment constante, nous pouvons observer que le travail de l'aiguilletage compresse les matières de manière quasiment identique. Pour plus de précision, si l'on ramène l'épaisseur à la masse surfacique prévue de 800g/m², nous obtenons des valeurs pratiquement similaires pour les lins LIN DM et LIN AM, alors que lin RM se trouve très légèrement en-dessous avec une différence de seulement 3,5%. Nous pourrions émettre l'hypothèse que ce tassement légèrement plus important provient de la plus grande finesse et de la moindre rigidité des fibres de LIN RM.

En ce qui concerne les valeurs moyennes de perméabilité, nous pouvons observer une grande disparité entre les 3 matières qui est également confirmée par l'absence de chevauchement en prenant en compte les écarts types. Ainsi, le matériau qui offre la plus grande perméabilité à l'air est le lin DM. Avec une valeur de 392 l/m²/s, ce renfort présente une perméabilité de près de 35% supérieure au renfort Lin AM.

Plusieurs explications pourraient être avancées pour expliquer cette plus grande perméabilité :

- Lin DM est le matériau le plus léger. Sa masse surfacique est bien dans la tolérance de 800 g/m² ±10% mais il est environ 9% plus léger que le renfort le plus léger c'est-à-dire le renfort préparé avec le LIN R.
- Même si la variation est minime par rapport aux 2 autres, la valeur d'épaisseur du LIN D est la plus faible. Peut-être que ce paramètre favorise la perméabilité bien que nous aurions tendance à penser le contraire étant donné qu'une épaisseur plus faible à masse surfacique constante, augmenterait mécaniquement la densité de la matière et donc le compactage des fibres.

- Concernant les diamètres, un premier indice est que pour les fibres de LIN D, ce paramètre est le plus élevée avant carde. Ensuite, si l'on observe la configuration des fibres après cardage (et donc juste avant l'aiguilletage) sur les clichés en vue en coupe et longitudinale, nous pouvons observer que les fibres, même si elles sont beaucoup plus individualisées sont encore regroupées par paquets. Ce phénomène pourrait avoir une grande importance pour expliquer cette valeur de perméabilité haute malgré la bonne densité du matériau. A contrario, les fibres de LIN RM sont les plus fines avec un diamètre moyen avant cardage de 21,42 µm et déjà très bien individualisées.
- Une dernière explication pourrait provenir de la nature des aiguilles et en particulier de la taille des barbes d'aiguilles. En effet, l'observation visuelle des renforts réalisés montrent un phénomène d'embarquement de paquet de fibres sur les renforts de lin LIN DM Ce phénomène est absolument absent avec le lin RM. De même que pour les 2 remarques précédentes, cette hypothèse serait une explication à la haute perméabilité du matériau malgré sa densité légèrement supérieure.

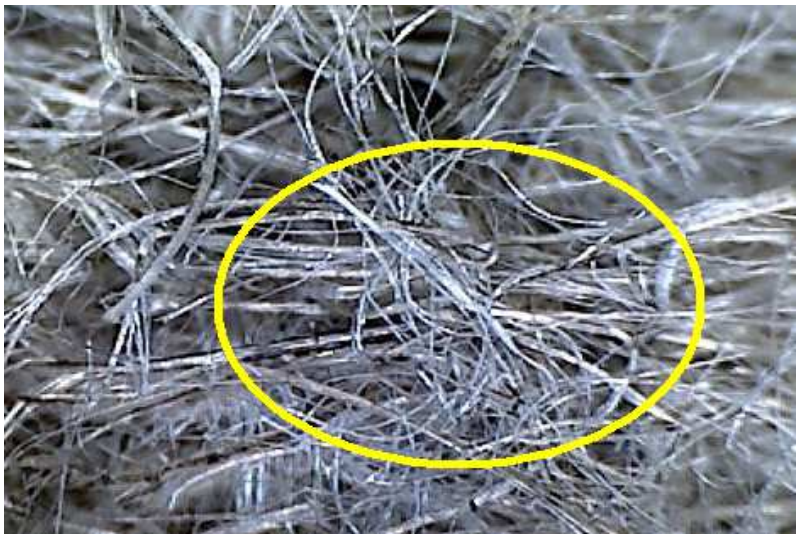


Figure 16 Renfort LIN D : vue du dessus (x35)

3.2.2- Propriétés mécaniques

Comme décrit dans la partie expérimentale, nous avons caractérisé les propriétés mécaniques en traction et en flexion des nontissés réalisés avec strictement le même process dans le but de pouvoir les comparer entre eux.

Pour mémoire, le test en flexion consiste à mesurer la longueur nécessaire pour qu'un angle de flexion que crée une bandelette de 20 mm de large de nontissé sous l'action de son propre poids atteigne 45°.

L’ensemble des tests est réalisé dans le sens travers par rapport à la sortie machine. L’ensemble de ces résultats est reporté dans le tableau ci-dessous

Référence :	**LIN DM**	**LIN RM**	**LIN AM**
Flexion (cm)	17,54 (±0,90)	18,72(±1,50)	17,74(±1,30)
Force Rupture (N)	202,24 (±42,24)	487,19 (±132,19)	319,90 (±58,15)
Contrainte Rupture (Mpa)	0,96	2,19	1,43
Allongement à la Force Max %	35,77	48,68	41,06
MOE contrainte / allongement (kPa)	26,86	45,08	34,86

Tableau 23 Propriétés des renforts en lin

Tout d’abord, par rapport aux résultats du test de flexion, nous pouvons affirmer que les valeurs pour les 2 matériaux LIN DM et LIN AM sont très proches. Le LIN RM est un peu plus rigide puisque il est nécessaire de faire avancer ce matériau de plus de 1 cm en moyenne pour obtenir le même angle de flexion. La différence avec le matériau LIN DM le moins rigide est de 6,3%, ce qui peut nous laisser dire que globalement nous sommes bien dans une même classe de matériaux aux propriétés similaires.

Concernant les forces de ruptures mesurées sur des éprouvettes de largeur 50 mm, les valeurs sont beaucoup plus différenciées, avec des moyennes très éloignées les unes des autres, avec respectivement 202 N, 319 N et 487 N pour les renforts LIN DM, LIN AM et LIN RM. Le renfort préparé avec la fibre de lin LIN R montre une valeur de plus du double du renfort LIN DM et nous pouvons également faire la remarque qu'il n'y a aucun recouvrement des valeurs lorsque l’on prend en compte les écarts types pour ces deux derniers matériaux.

Pour pouvoir comparer plus aisément les matériaux, nous pouvons ramener cette force de rupture à la section du matériau préparé et ainsi déterminer la valeur de contrainte de rupture en MPa. Les résultats obtenus montrent les mêmes variations, puisque les épaisseurs, comme nous l'avions vu précédemment sont très similaires : La contrainte de rupture du LIN RM était deux fois plus élevée (à 2,19 MPa) que celle de LIN DM (0,96 MPa). Le renfort à base de LIN A se place de nouveau entre les deux avec la valeur intermédiaire de 1,43 MPa

Lors des essais de traction, une valeur intéressante à observer avec les matériaux souples est le coefficient d'allongement de l'éprouvette au moment de la force maximale. Cette valeur va donner une idée de la capacité au renfort à résister à la déchirure. Dans ce cas encore les valeurs données vont dans le même sens avec la valeur la plus importante pour LIN RM et la plus faible pour le renfort à partir de LIN D. Dans le domaine de la résistance des matériaux le module d'élasticité est utilisé et peut également être mis en place pour un matériau souple. Ce paramètre en le mettant en relation avec la force de rupture ou la contrainte permet de donner une valeur corrélative à la valeur de flexion et nous permettre de faire des comparaisons entre matériaux possédant des valeurs d'allongement à la rupture différents. Ainsi, les valeurs de module d'élasticité calculées par le rapport de la contrainte sur l'allongement des renforts à base de lin, donnent respectivement pour le LIN RM : 45,08 kPa , pour le LIN AM : 34,86 kPa et pour le LIN DM : 26,86 kPa. Ici encore les résultats obtenus montrent que le matériau le plus performant est le LIN RM tandis que le renfort LIN A est le moins bon.

Plusieurs hypothèses peuvent expliquer ces différences observées au cours des tests en traction :

- Tout d'abord, l'on peut reprendre les hypothèses avancées précédemment pour expliquer les valeurs de perméabilité et en particulier le phénomène d'embarquement des fibres en paquets visibles sur le renfort en lin LIN DM.
- A contrario, nous pouvons remarquer la supériorité en termes de qualité d'aiguilletage du LIN RM. Les fibres sont très bien entremêlées avec une régularité exceptionnelle. Il est évident que les fibres LIN R sont les plus adaptées pour le travail de l'aiguilleteuse et des aiguilles choisies en particulier. Sur le cliché suivant, il est possible d'observer la configuration prise par les fibres assurant une cohésion importante de matériau. Sur ce LIN RM, la qualité des liaisons réalisées par l'aiguilletage est remarquable : les fibres forment des cercles autour des trous d'aiguilles ce qui apporte de la cohésion au matériau.

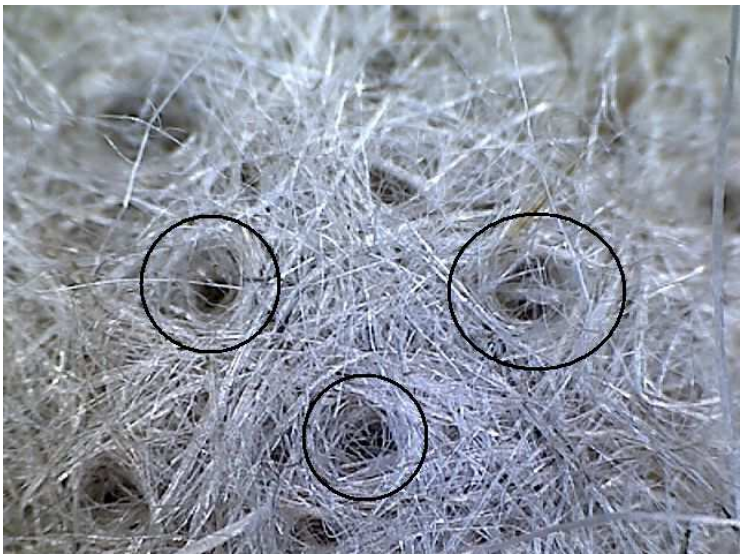


Figure 17 Renfort à partir du LIN R (x35)

- Ensuite, comme nous l'avions déjà observé précédemment avec les matériaux à base de chanvre, les essais de traction réalisés vont finalement mettre plus en valeur la cohésion du nontissé et la friction des fibres entre elles plutôt que la résistance à la rupture des fibres individuelles. En effet, compte tenu de l'architecture des nontissés réalisés (les fibres sont pliées et nouées dans le nontissé par l'aiguilleteuse) et de l'écartement entre les mords choisi (150 mm donc très supérieur à la longueur initiale des fibres), les extrémités des fibres ne pourront pas être simultanément prises par les mords opposés. Il ne faut pas non plus omettre que l'objectif est de faire un renfort qui soit facilement imprégnable ou infusable de résine. Nous avons donc volontairement choisi de limiter le nombre de coups d'aiguilles par cm² pour obtenir un matériau qui ne soit pas trop compact. Il découle de ces paramètres, que lors de l'essai de traction, nous observons en pratique, un glissement des fibres, puis une rupture du nontissé sans forcément observer de rupture des fibres individuelles.

En conclusion de ces observations, nous pouvons donc poser comme hypothèse qu'en réalité pour ce type de renfort et avant application d'une résine, la résistance intrinsèque des fibres et en particulier leurs propriétés en traction dans le sens longitudinal n'ont pas en réalité d'influence significative sur la résistance du matériau fibreux. C'est plutôt la résistance au glissement des fibres par le mode d'entremêlement des fibres à l'aiguilletage, de leur état de surface et de la rigidité des fibres dans le matériau qui sont approchés.

3.3- **Les composites à matrice biosourcée**

Avant toute caractérisation, nous avons simplement observé les matériaux au microscope grossissement x 200. Sur ces clichés, nous pouvons voir qu'il n'y a pas de surplus de résine en

surface. La surface des biocomposites semble composée d'une couche superficielle avec des fibres certes bien imprégnées, mais nous pouvons noter également des zones sans matrice, laissant à penser qu'il n'y a pas eu de remontée de résine jusqu'à la surface. L'imprégnation réalisée semble avoir permis d'atteindre un taux de fibre optimal. Les trois composites réalisés en lin présentent un aspect d'état de surface similaire, le biocomposite LIN DT semblant légèrement plus lisse. Les faces endroits et envers sont semblables pour l'ensemble de ces biocomposites.

Figure 18: Vue biocomposite LIN DT (x200)

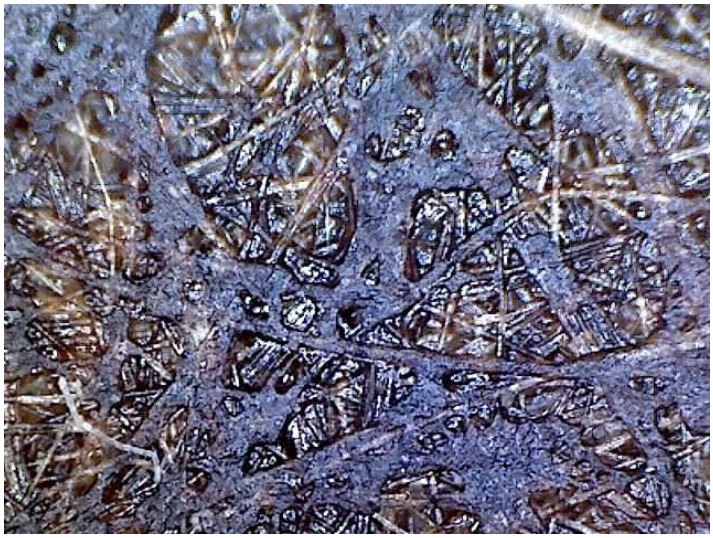


Figure 19: Vue biocomposite LIN RT (x200)

Figure 20: Vue du biocomposite LIN AT (x200)

3.3.1- Propriétés générales

Après leur mise en forme suivant le protocole décrit dans la partie expérimentale, les composites ont été caractérisés et l'on a déterminé quelques propriétés générales reportées dans le tableau

suivant. Ces valeurs sont les moyennes de résultats effectués sur 10 plaques de composites découpées en 13 échantillons soit 130 valeurs par matière.

	LIN DT	**LIN RT**	**LIN AT**
Epaisseur (mm)	1,40 (±0,17)	1,21 (±0,06)	1,31 (±0,03)
CV%	5,00	4,96	2,29
Densité	0,95 (±0,08)	1,03 (±0,01)	1,05 (±0,08)
Taux de fibres (%)	57,1	62,1	59,4
Masse surfacique (g/m²)	1323,2 (±106,2)	1330,23 (±103,4)	1342,6 (±80,6)
CV%	8,0	7,8	6,0
Perméabilité à 100 Pa (l/m²/s) du mat	392,7 (±74,5)	148,12 (±24,7)	286,31 (±30,0)

Tableau 24 Caractéristiques générales des biocomposites de la série 2 en fibres de lin (D, R, A)

Le process d'imprégnation, de pré-séchage puis de pressage à chaud permet de produire des matériaux avec une bonne reproductibilité. Ainsi, la masse surfacique des composites obtenue est quasi constante et voisine des 1330 g/m². Les écarts types restent très raisonnables avec un maximum pour le lin DT (±106 MPa) qui aboutit finalement au le CV le plus important 8%.

Si l'on examine les CV des renforts fibreux (avant la transformation en composites) ceux-ci étaient inférieur à 5 % avec déjà la valeur la plus importante pour le lin LIN DT. Nous pouvons affirmer ici que le process d'imprégnation et de pressage à une influence minime sur la régularité masse et celle-ci augmente de maximum 3 %.

Les variations d'épaisseur entre familles de composites sont par contre plus importantes que ce que nous avions envisagé. Comme nous avons travaillé avec un système de cales de 1,2 mm, il était prévu de faire ressortir de la presse des composites de cette épaisseur. En pratique, les matériaux sont ressortis plus épais que prévus, les cales ne jouant pas totalement leur rôle de calibration en hauteur. Par contre, nous devons bien remarquer la régularité du process (par famille de composites) comme le montre les faibles écarts type obtenus (entre 0,03 et 0,06) et des CV compris entre 2,3 et 5%.

Les résultats obtenus en termes de masses spécifiques et d'épaisseur nous permettent de calculer la densité de ces composites. Nous avons donc réussi à obtenir des densités très proches de 1 pour les 3 matériaux, ce qui nous permet donc de les classer dans la catégorie des matériaux légers ou encore dans la famille des « composites de basse densité ».

Les taux de fibres sont relativement élevés puisque proches de 60% pour les 3 matériaux. Cette valeur est très importante pour des biocomposites pour lesquels souvent les taux de fibres restent assez bas comme sur la première série réalisée avant optimisation. Il serait intéressant par la suite de déterminer si ce taux n'est maintenant pas trop élevé et d'évaluer un rapport optimal masse spécifique fibre / masse spécifique composite. A l'observation visuelle des composites, nous avions remarqué que les fibres semblaient imprégnées sans surplus de résines. Il est donc possible que nous soyons proches du taux maximum de fibres possible avant dégradation des propriétés mécaniques. La valeur de perméabilité à l'air semble donner une information intéressante puisqu'une faible faveur de perméabilité semble conduire à un composite moins chargé en résine.

3.3.2- Propriétés mécaniques

Comme précédemment pour le chanvre, il existe une variation légère des valeurs de densité entre les éprouvettes testées en traction et en flexion, et c'est la raison pour laquelle, entre les deux familles de fibres pour les valeurs normales, les variations calculés pour les grandeurs spécifiques ne sont pas toujours identiques.

3.3.2.1- En traction

Nous avons regroupés dans le tableau ci-dessous les valeurs obtenues par les essais de traction au dynamomètre et les valeurs spécifiques calculées à partir des densités. Nous avons également reporté les valeurs de force de rupture que nous avions obtenues avec les renforts.

	LIN DT	**LIN RT**	**LIN AT**
Contrainte normale (MPa)	39,1 (±6,3)	64,32 (±5,6)	40,50 (±3,3)
Contrainte spécifique (MPa)	47,7 (±3,9)	59,1 (±5,4)	39,1 (±4,0)
MOE (MPa)	4734 (±1006)	6285(±777)	5431 (±774)
MOE spécifique (MPa)	5217	5693 (±732)	5257 (±873)
Force de rupture (N)	1085,7(±146,5)	1564,0(±151,2)	1055,6 (±95,9)°
Force spécifique de rupture (N) du mat	1 127,1	2 620,4	1 793,0
Contrainte Rupture (MPa) du mat	0,96 (±0,20)	2,19 (±0,60)	1,43 (±0,26)

Tableau 25 Propriétés en traction des biocomposites de la série 2 en fibres de lin

A la vue des résultats obtenus, nous pouvons immédiatement remarquer la supériorité des performances du composite réalisé avec la fibre lin LIN R. La valeur moyenne de contrainte pour ce matériau est de 64,32 MPa soit près de 60% supérieure à la moyenne des deux autres matériaux qui est proche de 40 MPa. Concernant les écarts types, les résultats les plus réguliers sont obtenus pour

le composite préparé avec le lin LIN A pour qui la valeur est proche de 40 MPa et les moins réguliers avec le lin LIN D. Ces résultats se retrouvent avec les coefficients de variation puisque le composite en LIN D présente un CV de 16 % et les deux autres matériaux obtiennent une valeur proche de 8%. Pour affiner la comparaison, la contrainte normale est ramenée à la densité. Les écarts entre les contraintes spécifiques sont alors moins importants puisque le LIN D remonte à 47,66 MPa et le matériau en lin LIN R voit sa valeur diminuer à 59,08 MPa du fait de sa densité. En examinant les contraintes spécifiques, le matériau réalisé avec le lin LIN R reste donc encore bien supérieur aux autres avec cette fois une différence avec le lin LIN D de près de 24 %. Avec le matériau en LIN A, la différence reste importante avec une contrainte spécifique de 50% inférieure à (39,10 MPa).

Concernant les modules d'élasticité, les résultats montrent un avantage très net pour le composite LIN RT qui dépasse la valeur de 6 GPa (6285 MPa). Si nous examinons les domaines d'application des écarts types, ceux-ci restent importants car compris entre 774 et 1006 MPa, mais n'oublions pas que nous travaillons sur des matières naturelles. En détails, les plages des valeurs obtenues en tenant compte des écarts types ne se recouvrent qu'en partie et donc nous pouvons en conclure que les moyennes des modules d'élasticité permettent de bien mettre en valeur la supériorité du matériau réalisé à base de LIN D.

Si l'on rapporte les valeurs du module à la densité, le LIN DT reste toujours le plus performant avec un module spécifique de 5693 MPa. Les deux autres matériaux quant à eux, sont équivalents avec tous les deux un module spécifique de 5200 MPa. Ces valeurs sont déjà très intéressantes et nettement supérieures à celles obtenues dans la première série, puisque nous obtenions des valeurs en dessous des 1000 MPa pour les modules d'élasticité et avec des densités légèrement supérieures (voisine de 1,1). Pour les contraintes, nous avons amélioré les résultats de près d'un facteur de 7 entre l'un des meilleurs composite réalisé en lin (en lin LINAT) lors de la première série (voir tableau avec rappel de quelques propriétés obtenues ci-dessous) et le matériau LIN RT le plus performant de cette nouvelle campagne.

Pour tenter de donner une explication aux valeurs supérieures obtenues dans le cas du composite LIN RT pour ces tests en traction, nous pouvons revenir sur les résultats obtenus avec les renforts. En rappelant tout d'abord simplement les forces spécifiques de rupture. Avec la valeur la plus élevée à 2620 N, le renfort LIN RM est le renfort le plus performant. Pour les deux autres composites, la discussion sur les forces de ruptures ne permet pas de conclure, puisque le composite de fibres LIN AT obtient quasiment la même valeur de contrainte spécifique que le composite LIN DT alors que sa force spécifique de rupture était supérieure de près de 59 % (1793 N contre 1127 N pour le renfort en fibre de lin LIN DM).

Pour analyser entièrement ce phénomène que nous trouvons étonnant, nous avons examiné les valeurs de force de rupture des renforts LIN AM et LIN DM. Ces valeurs n'apportent pas vraiment d'informations puisqu'elles sont quasiment identiques pour les deux matériaux, avec 1085 N et 1055 N respectivement pour LIN DM et LIN AM (ici LIN R est lui au-dessus de 1564 N). Si nous pouvons peut-être nous avancer en émettant l'hypothèse que de très bonnes valeurs de force de rupture ou de contraintes spécifiques (déterminées au test de traction) permettent de départager un composite d'un autre qui aurait obtenu des valeurs très inférieures (comme dans notre cas de 60 % entre LIN AM ou LIN DM et le renfort en LIN RM), il ne semble pas possible de présager d'un résultat particulier entre deux composites réalisés à partir de renforts bénéficiant de propriétés mécaniques en traction proches.

	LIN bt	**LIN at**	**Lin / chanvre P5t**
Contrainte normale en traction (MPa)	8,38	6,3	6,6
Contrainte normale en flexion (MPa)	41,65	26,08	62,01
MOE normal en traction flexion (MPa)	711	528	533
MOE normal en flexion (MPa)	4030	2493	2646

Tableau 26 Rappel de quelques propriétés obtenues lors de la première série

3.3.2.2- En Flexion

Une campagne de test en flexion 3 points a ensuite été effectuée pour caractériser les biocomposites réalisés avec les fibres de lin et la résine naturelle. Les résultats ont été répertoriés dans le tableau ci-dessous. Pour compléter la discussion, nous avons intégré les valeurs de flexion et de contrainte des renforts avant imprégnation.

	LIN DT	**LIN RT**	**LIN AT**
Contrainte normale (MPa)	68,5 (±10,6)	88,1 (±13,9)	57,4 (±10,9)
Contrainte spécifique (MPa)	77,30 (±9,22)	87,80 (±10,61)	57,90 (±10,19)
MOE (MPa)	6006 (±715)	7242 (±1006)	6313 (±985)
MOE spécifique (MPa)	6 432 (±562)	7220 (±797)	6 377 (±935)
Contrainte Rupture du mat (MPa)	0,96 (±0,20)	2,19 (±0,60)	1,43 (±0,26)
Flexion du mat (cm)	17,54 (±0,90)	18,72(±1,50)	17,74(±1,30)

Tableau 27 Propriétés en flexion des biocomposites de la série 2 en fibres de lin (D, R, A)

Pour les propriétés en flexion et en particulier dans le cas de la contrainte normale, si nous examinons les écarts types, nous pouvons constater que les domaines des valeurs se recoupent. En examinant les moyennes, nous pouvons quand même penser que le matériau LIN RT semble supérieur aux deux autres, et en particulier au-dessus de LIN AT, sans avoir d'ailleurs de recouvrement des valeurs des domaines des écarts types. Avec les contraintes spécifiques, nous retrouvons les mêmes tendances puisque LIN RT est donc prêt de 35% supérieur au composite LIN AT. Ces valeurs. sont parfaitement cohérentes avec celles relevées lors de la campagne des essais en traction.

En regardant maintenant les données recueillies avec les modules d'élasticité, les domaines de valeurs se recouvrent, mais là encore, ces résultats laissent à penser que le composite LIN RT est le plus performant des deux séries. La différence entre les moyennes des modules spécifiques LIN DT et LIN RT est de plus de 20% et devrait s'expliquer par une différence au niveau des renforts ou des fibres les constituant. Ainsi, si nous comparons les valeurs obtenues sur le banc du test en flexion, le mat le plus rigide s'avère être le mat réalisé en lin LIN R avec une valeur près de 1 cm supérieure aux deux autres soit près de 6,2%.

Par contre, les différences entre les moyennes des modules spécifiques des composites réalisés avec lin D et lin A ne sont pas flagrantes puisque que l'un obtient une différence de seulement 5,1%

En revenant sur les propriétés en flexion des renforts en LIN DM et LIN AM avant imprégnation nous n'avions pas observé de différences très marquantes, puisque les résultats aux tests de flexion donnaient des valeurs très proches avec 17,7 (+- 0,9) et 17,5 cm (+- 1,3) respectivement pour les biocomposites LIN AT et LIN DT soit une différence pas très significative de seulement 1,1%. Nous pouvons donc conclure ici sans en faire une généralité, qu'un faible écart sur les valeurs de flexion mesurées entre deux renforts devrait aboutir également à des biocomposites dont les modules d'élasticité en flexion sont très proches (cas du LIN DT et AT). Dans la continuité, un biocomposite préparé avec un renfort dont la valeur au test de flexion serait importante devrait aboutir à un biocomposite avec des propriétés d'élasticité en flexion plus performantes. (cas du lin LIN RT). Cette remarque ne s'appliquerait toutefois qu'aux matériaux à base de lin puisque dans le cas des matériaux précédents, mais n'aurions pas pu dégager de corrélation nette.

3.3.2.3- Analyse des faciès de rupture en flexion

Après rupture en flexion, les faciès des biocomposites de lin ont été examinés au MEB. Les grossissements par 100 et 300 montrent des différences importantes entre les 3 types de matériaux.

Tout d'abord, nous pouvons observer sur le biocomposite LIN DT une présence importante de la matrice qui est bien visible. sur le bas du cliché en grossissement × 100, une couche relativement uniforme d'une épaisseur très fine d'environ 0,01mm. Cette couche correspond à une légère remontée de résine en surface. Ensuite, sur la moitié inférieure de ce même cliché, nous pouvons observer que peu de fibres restent visibles car elles ont été arrachées de la partie de l'échantillon observé (A l'inverse, sur la partie supérieure, beaucoup de fibres restent visibles car elles se sont détachées de l'autre partie de l'éprouvette testée, et sont restées en place sur la partie d'éprouvette observée au MEB) Ces fibres, en étant arrachées ont laissé des cavités, signe d'une mauvaise adhésion matrice / fibre. Sur le cliché en grossissement × 300, il est possible de repérer un trou de diamètre d'environ 30 µm qui semble correspondre à l'emplacement d'une fibre arrachée sans rupture. Il est possible aussi de visualiser les fissures en cisaillement de la matrice. Les plus grandes zones sombres de diamètre d'environ 100 µm semblent être causées par des bulles d'air lors de l'opération de pressage. Ces cavités révèlent une certaine porosité du composite qui peut être à l'origine de concentrations de contraintes et donc d'une baisse des performances mécaniques. Les fibres arrachées qui sont observables sur la partie supérieure semblent lisses et en bon état, et donc peuvent mettre également en évidence le peu d'adhésion avec la matrice.

En ce qui concerne les composites réalisés à partir du renfort en lin LIN RT, les clichés sont plus difficilement descriptibles. En effet, la matrice est peu visible, et masquée par les très nombreuses fibres élémentaires qui sont restées en surface et ne semblent pas cassées. En revanche, en haut à droite du cliché, un certain nombre de fibres semblent rompues au même niveau, ce qui témoignerait probablement d'un phénomène de rupture de type cohésive dans cette zone. Globalement, les fibres paraissent relativement lisses (peut être quand même moins que pour le biocomposite précédant LIN DT), traduisant également une mauvaise adhésion fibre matrice ou alors une résistance bien plus grande de la fibre par rapport à la résistance de la matrice.

Enfin, les clichés obtenus avec les fibres LIN A montrent un composite très homogène. Nous ne relevons pas pour ce matériau de fibre protubérante, ce qui signifie que la majorité des fibres ont une bonne adhésion à la matrice et que la rupture se réalise peut-être de manière plus cohésive et donc l'interface serait de meilleure qualité. Nous n'observons pas de zones avec de la matrice pure. Les fibres semblent en finalité imprégnées au minimum pour se coller les unes aux autres. Nous avons l'impression que le taux minimum de matrice (et donc maximum de fibres) est ici atteint.

En conclusion partielle sur les observations au MEB des faciès de rupture, il est possible d'associer nos interprétations sur la qualité d'imprégnation avec les taux de fibres des biocomposites. Ainsi, le biocomposite LIN DT qui semblerait le plus imprégné de résine affiche effectivement le taux de

fibres le plus faible. A l'opposé, le biocomposite LIN DT dont la matrice n'est pas vraiment observable sur le faciès de rupture (mais aussi peut-être cachée par les protubérances des fibres) est le moins imprégné avec un taux de fibres très important à 62%. Entre les deux, se place le composite LIN AT dont les fibres sont cassées très régulièrement et pour lequel nous avons peut-être ici le niveau d'imprégnation le plus adapté avec un taux de fibres à 59 %. Dans l'évaluation des taux de fibres, une remontée de résine est observable en surface, mais ce phénomène semble à peu près équivalent sur les trois biocomposites (voir vue des biocomposites page 247). Le rapport avec les constituants chimiques des fibres permet d'envisager des pistes, mais ne permet pas de conclure. Ainsi, la fibre LIN A semble avoir une très bonne cohésion avec la matrice puisqu'il est difficile de les différencier et qu'il semble que des points de matrice[17] soit rester coller sur les plus grosses fibres visibles sur le facies de rupture. Les 2 autres fibres affichent une adhésion plus faible[18] puisque les ruptures ne sont pas cohésives. La particularité de la fibre A au niveau chimique par rapport aux deux autres est son taux de lignines supérieur aux deux autres .Confirmer que la lignine joue un rôle fondamental nécessiterait bon nombre de réalisations qui dépasseraient le cadre de cette thèse'[19,20,23] .

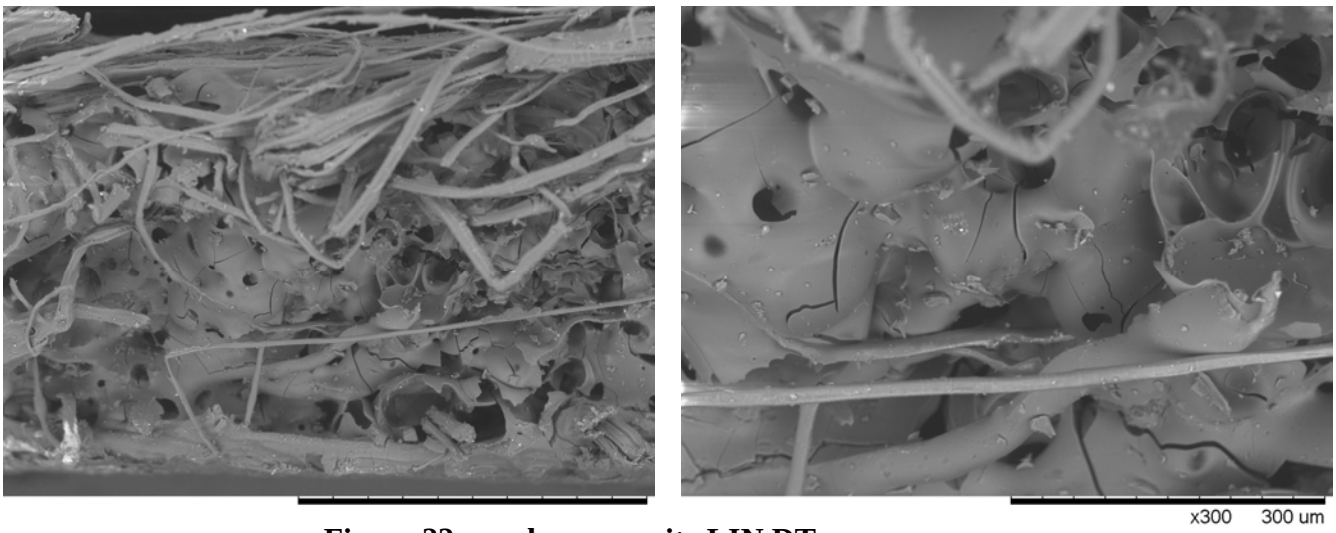


Figure 22 vue du composite LIN DT

[17] P.J. Herrera-Franco, A. Valadez-Gonzalez, **A study of the mechanical properties of short natural-fiber reinforced composites**, Elsevier, Composites Part B 36 (2005) pp597-608

[18] T.J.Keener, R.K.Stuart, T.K.Brown, **Maleated coupling agents for natural fibre composites**, Elsevier, Composites : Part A 35 p360 (2004)

[19] K.Van de Velde,P. Kiekens, **Influence of Fibre and Matrix Modifications on Mechanical and Physical Properties of Flax Fibre Reinforced Poly(propylene),** Macromol. Mater. Eng. , 286, 237–242 (2001)

[20] M. Baiardo, E.Zini, M.Scandola, **Flax fibre–polyester composites**, Composites: Part A 35 703–710 (2004)

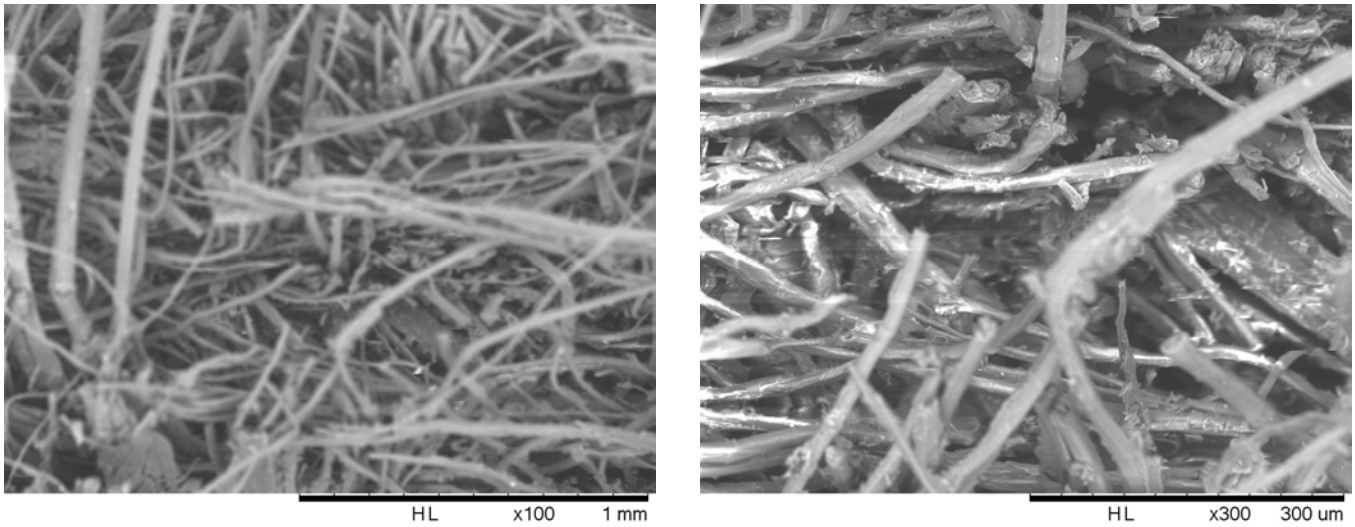


Figure 23 vue du composite LIN RT

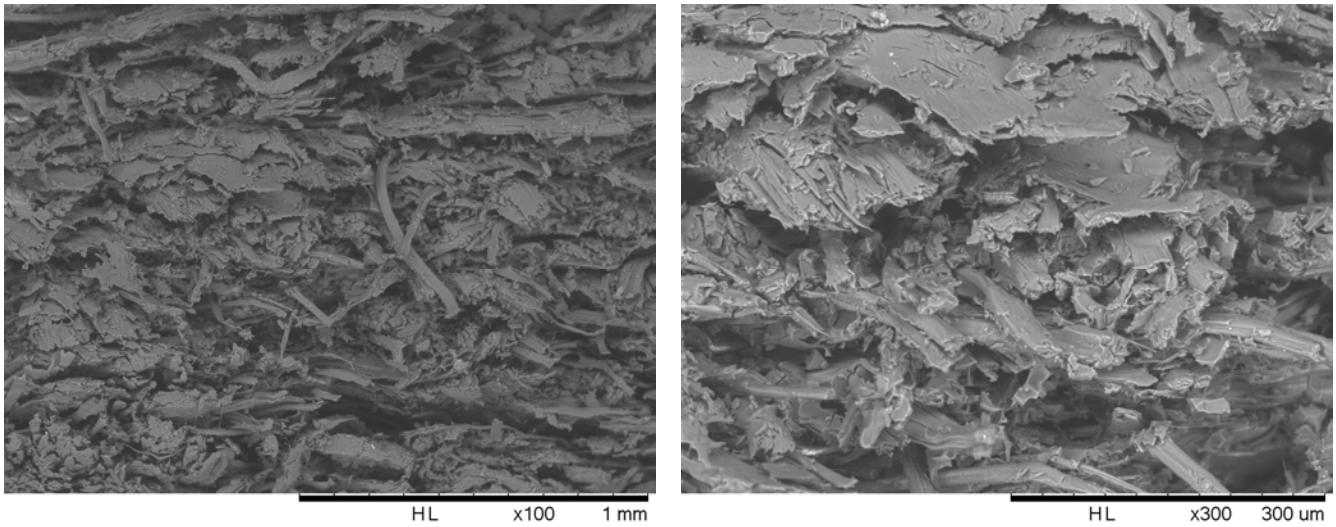


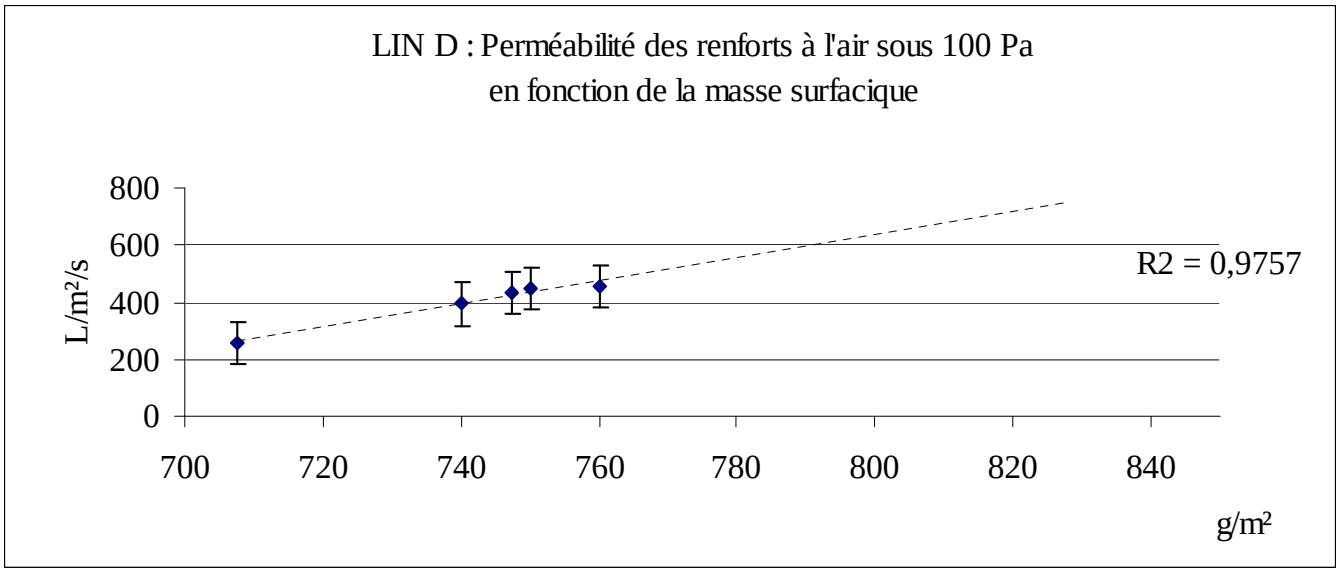
Figure 24 vue du composite LIN AT

3.3.2.1- Discussion complémentaire sur LIN D

Cette discussion en comparant Cette discussion en comparant les perméabilités nous incite à revenir sur l'analyse des renforts réalisés avec la fibre LIN D. Nous avions vu que le renfort LIN DM présentait une valeur de perméabilité à l'air supérieure aux autres renforts en lin (393 l/m²/s). Nous avions vu également que les renforts LIN DM et le biocomposite LIN DT obtenait des propriétés mécaniques les plus défavorables alors que la caractérisation des fibres individuelles présentait des caractéristiques intrinsèques prometteuses. Nous avions ainsi pu mesurer avec la fibre LIN D la meilleure moyenne en contrainte (894 MPa), le meilleur module d'élasticité (38,5GPa), et nous avions la meilleure régularité puisque le CV du MOE de LIN DM était le plus bas de toutes les fibres testées avec 38,5%. Nous avions eu également un très bon comportement lors du cardage. Par contre, en termes de liage des fibres à l'aiguilletage, nous avons donc observé, sur les échantillons du renfort LIN DM des amas de fibres regroupées et un phénomène d'embarquement des fibres. Pour compléter cette première analyse nous avons donc représenté sur la figure ci-dessous les valeurs de perméabilité à l'air pour les renforts en LIN DM en fonction de la masse spécifique. Nous voyons qu'avant d'atteindre notre valeur cible de 800g/m², nous obtenons une corrélation suivant une loi normale entre la perméabilité à l'air mesurée à 100 Pa et la masse surfaciques des échantillons. Cependant cette relation est à l'opposé de ce qui est habituellement observé, puisque nous aurions en principe plutôt une baisse de la perméabilité à l'air avec l'augmentation la masse surfacique du renfort. Les valeurs au-dessus de 780 g/m² aboutissent à une baisse de la perméabilité, ce qui revient à une tendance logique. Tout montre donc avec ce renfort LIN DM, qu'avec l'augmentation de la masse surfacique, il se crée ,jusqu'à une certaine limite, un phénomène qui favorise le passage de l'air. Si nous tenons compte des observations visuelles, nous pensons donc que lors de l'aiguilletage, les aiguilles peuvent se surcharger en fibres. Avec des fibres qui peuvent être relativement glissantes, il va se créer un alignement ou une architecture fibreuse particulière favorisant le passage d'air. En conclusion partielle, ce phénomène propre au lin LIN D et pour ce process d'aiguilletage, serait une explication aux valeurs de perméabilité anormalement hautes avec

des répercussions sur l'ensemble des valeurs mécaniques, puisque celles-ci sont, nous l'avons vu en-deça des valeurs auxquelles nous aurions pu nous attendre.

Figure 25 Perméabilité à l'air des renforts LIN DM en fonction de la masse surfacique



3.3.2.2- Conclusion partielle

Ces travaux de préparation de renforts avec trois fibres de lin aux caractéristiques et propriétés bien différentes ont abouti à la réalisation de biocomposites que l'on peut clairement différencier par leurs propriétés mécaniques.

Ainsi le biocomposite le plus performant pour tous les paramètres étudiés est le biocomposites LIN RT. Entre les deux autres biocomposites LIN DT et LIN AT, le matériau LIN DT s'avère être le plus performant (globalement) pour l'ensemble des valeurs de contraintes, tandis que le biocomposite LIN AT est seulement légèrement plus performant avec comme base de comparaison les modules d'élasticité. La différence notable entre ces deux composite LIN DT et LIN AT (et également avec la série LIN RT) est la plus faible densité de la série DT, ce qui lui permet d'afficher des modules spécifiques en moyenne équivalents ou légèrement supérieurs aux biocomposites AT. Cette densité inférieure à 1 classe donc cette série dans la catégorie des matériaux légers.

Si l'on compare nos matériaux au Lin / PP réalisé par injection et dont les valeurs ont reportés dans le tableau ci-dessous, nos biocomposites sont donc relativement performants avec un très net avantage si l'on considère plus particulièrement les modules de nos matériaux qui sont pratiquement deux fois plus performants que ces systèmes qui ne sont que partiellement biosourcés. Il faut aussi

noter que dans cette publication, la fibre de lin utilisée a été traitée pour améliorer son adhésion avec le PP (2% de la masse finale) et que le PP étant pétrosourcé, ce matériau est certes un biocomposite mais uniquement partiel puisque composé à 60% de produits non biosourcés.

	PP/LIN 58/40	**LIN DT**	**LIN RT**	**LIN AT**
Contrainte normale en traction (MPa)	42	39,1 (±6,3)	64,32 (±5,57)	40,50 (±3,28)
MOE normal en traction (MPa)	3200	4734 (±1006)	6285 (±777)	5431 (±774)
Contrainte normale en felxion (MPa)	67	68,5 (±10,6)	88,1 (±13,9)	57,4 (±10,9)
MOE normale en flexion (Mpa)	3400	6 432 (±562)	7 220 (±797)	6 377 (±935)

Tableau 28 Comparaison de quelques propriétés obtenues sur un composites PP/Lin[2]

Par rapport aux renforts avant imprégnation, la conclusion partielle principale que nous pouvons avancer concerne la relation entre la résistance des renforts et celles des biocomposites. Ainsi, avec un aiguilletage équivalent, un renfort nettement plus résistant (contrainte et module en traction) semble permettre la préparation d'un biocomposite plus performant. Ensuite, pour des renforts plus proches au niveau des propriétés, la différence sur le matériau final sera moins évidente, d'autant plus que les fibres constituant le renfort peuvent plus ou moins glisser les unes par rapport aux autres. Par contre, la perméabilité à l'air semble donner une indication pertinente sur le taux de fibres final, puisqu'une faible valeur de perméabilité nous permet d'obtenir un biocomposite affichant une faible teneur en matrice. Si l'on remonte aux qualités des fibres, le facteur qui semble le plus départager les biocomposites est le diamètre des fibres, puisque le biocomposite le plus performant est réalisé avec les fibres de diamètre avant cardage le plus petit, avec environ 21µm. Les fibres les plus performantes d'un point de vue de leurs propriétés mécaniques intrinsèques (LIN D), ne permettent pas d'aboutir en finalité au meilleur biocomposite. Le diamètre des faisceaux reste peut être trop important, ne permettant pas une bonne optimisation des performances. La longueur utilisée défavorise peut être aussi l'architecture du matériau. Le fait que les étoupes de lin, constituées par les fibres LIN A comprennent une partie de fibres légèrement supérieures semblent composer le fait que les propriétés intrinsèques de ces fibres LIN A soient légèrement en dessous d'un point de vue mécanique.

3.4- **Les composites à matrice synthétique**

Comme décrit dans le chapitre matériel et méthode et de la même manière que les composites à base de chanvre, nous avons préparé des composites à base de nontissés lin réalisés suivant le même protocole de cardage et d'aiguilletage,mais avec une résine de type époxy.

3.4.1- Propriétés générales

Les propriétés générales ont été reportées dans le tableau ci-dessous.

	LIN DE	**LIN RE**	**LIN AE**	**Résine**
Epaisseur (mm)	2,67 (±0,04)	3,05 (±0,28)	3,01 (±0,10)	-
CV%	1,5	9,2	3,3	-
Densité	1,10 (±0,02)	1,15 (±0,03)	1,10 (±0,03)	1,10
Taux de fibres (%)	22,2 (±0,2)	23,81 (±2,1)	20,53(±0,7)	-
Masse surfacique (g/m²)	2950,5 (±25,5)	3493,9 (±309,5)	3302,0 (±118,5)	-
CV%	0,9	8,9	3,6	-

Tableau 29 Propriétés générales des renforts en lin

La première remarque qui vient à l'esprit, c'est que ces composites sont nettement plus épais que les précédents, alors que le mat de départ est similaire. De plus, nous observons un plus grand écart sur les épaisseurs obtenues que précédemment. La variation entre le composite le plus fin et le plus épais est de près de 1,3 mm soit la valeur de l'épaisseur des biocomposites réalisés par pressage. Au niveau des écarts types, ce paramètre est relativement stable (± 0,04 et ± 0,10 mm) pour la série LIN DE et LIN AE, mais il est un peu plus important pour le composite LIN RE (0,28 mm).

Ces épaisseurs plus importantes sont logiques et s'expliquent par le process d'infusion qu'il est nécessaire d'utiliser avec la résine époxy choisie.

Si nous examinons les masses surfaciques des composites obtenus, celles-ci affichent une plus grande disparité. Le composite obtenu le plus léger est le LIN DE avec une masse spécifique de

2950 g/m². Le composite à base de lin LIN AE présente une masse spécifique moyenne de 3302 g/m² et enfin avec 3492 g/m², le composite LIN RE possède une masse spécifique nettement au-dessus des deux autres près: de 18% par rapport au composite en LIN DE et 5,8% comparé au LIN AE.

Maintenant, si nous observons les valeurs relatives aux densités, celles-ci sont en finalité bien stables et très proches les unes des autres pour les trois composites avec une valeur voisine de 1,1. Les écarts types sont également très proches et sont compris entre 0,02 et 0,03.

Concernant les taux de fibres, les valeurs obtenues sont nettement moins importantes que pour les biocomposites à base de résine naturelle.

3.4.2- Propriétés mécaniques

Ces composites n'étant pas l'objectif principal de ces travaux, nous avons réalisé uniquement une campagne de mesure des résultats mécaniques en traction. Les résultats ont été retranscrits dans le tableau ci-dessous.

	LIN DE	**LIN RE**	**LIN AE**	**Résine**
Contrainte normale (Mpa	47,1 (±1,28)	54,25 (±6,6)	57,8 (±2,60)	59,4
Contrainte spécifique (Mpa)	42,7 (±1,56)	74,3 (±9,04)	52,75 (±1,10)	54
MOE (Mpa)	3869 (±293)	5203 (±686)	3975 (±320)	3307
MOE spécifique (Mpa)	3505 (±285)	4542 (±632)	3624 (±218)	3006

Tableau 30 Propriétés mécaniques des composites lin / Epoxy

Le premier résultat intéressant est que globalement ces systèmes s'avèrent avoir une réponse mécanique très différente des biocomposites. Le composite le plus performant est celui préparé avec LIN R, comme précédemment et il montre une contrainte spécifique à 74,3 MPa et un module d'élasticité spécifique à 4452 MPa.

En termes de contraintes normales, nous observons également une amélioration par rapport aux systèmes à résine naturelle, avec comme précédemment, un avantage pour le composite à base de LIN R. Les contraintes normales obtenues avec ces systèmes fibres naturelles et époxy sont à peine au niveau de celles de la valeur de la résine donnée par le fournisseur dans le cas du lin LIN

RE et très en-dessous pour les deux autres matériaux. La présence des fibres naturelles dans ces composites amène donc à des matériaux avec une réponse mécanique plutôt faible par rapport à la matrice seule et nous pouvons en conclure que les fibres naturelles ne jouent pas vraiment pleinement leur rôle de renfort pour ce paramètre.

Par contre, si l'on s'attarde maintenant à examiner les modules, nous nous apercevons que ceux-ci sont finalement nettement moins bons que les systèmes avec résine naturelle. En effet, pour les trois composites à résine synthétique, les modules sont compris entre 3869 et 5203 MPa, contre des valeurs comprises entre 4734 et 6285 MPa pour les biocomposites précédents. La moyenne des modules d'élasticité des composites à résine synthétique est de 4349 MPa contre 5483 MPa pour les composites entièrement biosourcés, l'avantage de ces derniers est donc relativement important puisque le gain est proche de 26%.
Le système LIN RE, s'avère obtenir les valeurs les plus élevées des trois systèmes, mais sa valeur de 5203 MPa reste comme pour les deux autres inférieure à son équivalent en biocomposites. Cela est très positif et encourageant, car cela prouve que nous pouvons réaliser des biocomposites plus performants que des systèmes hybrides avec résine chimique de haute performance.

Analyse des faciès de rupture :

Comme précédemment, les éprouvettes utilisées en traction sont observées au MEB avec un grossissement de 100 et 300 fois.

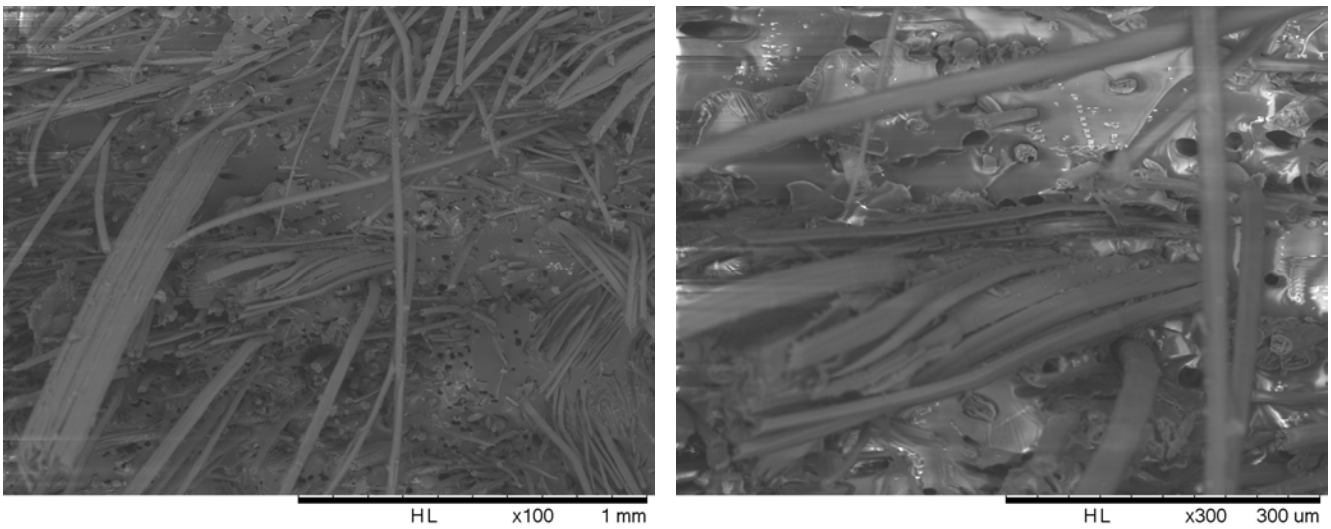


Figure 26 vue du composite LIN RE

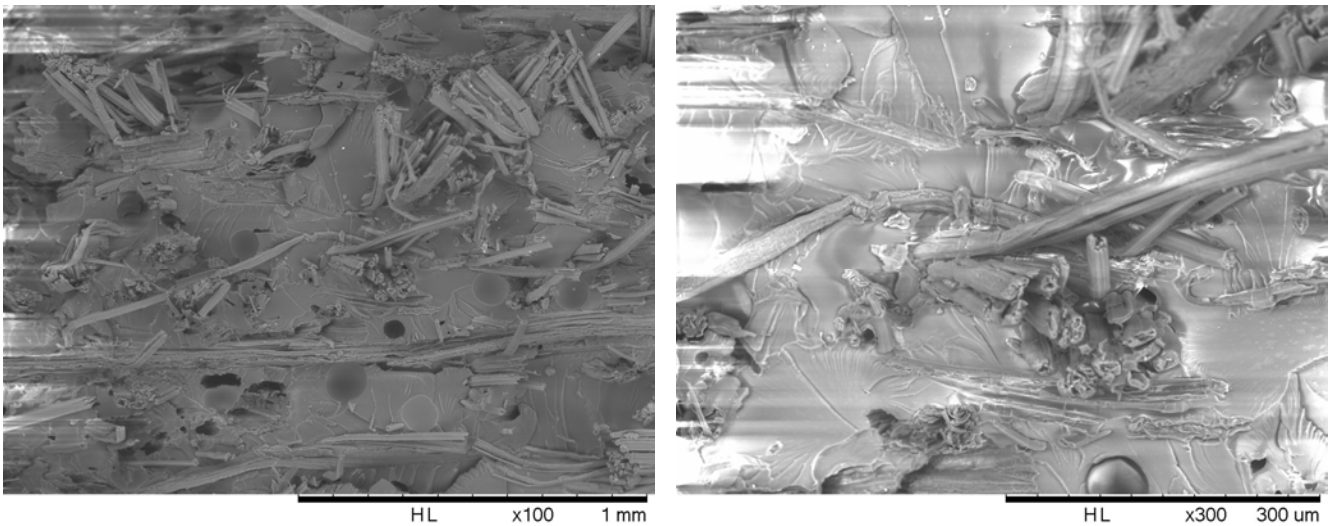


Figure 27 vue des composites LIN AE

L'examen des clichés relatifs aux éprouvette LIN RE met en évidence une répartition bien homogène de la matrice. Les fibres sont très bien individualisées et enrobées de résine, sans avoir de grande zone exemptes de fibres. On n'observe pas de cavités qui correspondent à des bulles d'air. Par contre, il est possible de noter de nombreuses cavités qui correspondent à des fibres arrachées. De plus, nous observons que les fibres ne sont pas cassées, lors de la séparation des deux parties de l'éprouvette après l'essai de traction. Nous sommes donc de nouveau dans le cas d'une rupture non cohésive. Les fibres ont glissées dans la matrice au lieu de se rompre et sont de plus complètement exemptes de matrice. Ce phénomène est une indication d'un mode de rupture par manque de cohésion avec la matrice. Le potentiel des fibres n'est pas utilisé à plein. Cela nous a paru étonnant,

car lors de la préparation de ces composites, nous avions l'impression d'une très forte affinité de la résine avec les fibres. Le process semblait permettre un bon mouillage des fibres, les fibres semblaient même s'imbiber à cœur, au contraire de ce que l'on peut observer notamment avec les composites à fibres de verre.

Ces analyses de faciès de rupture nous ont donc montré qu'il n'y a pas de pénétration de résine dans la fibre. Si tel avait été le cas, l'adhésion fibre / matrice serait certainement plus importante.
Si nous examinons maintenant les faciès de rupture du composite LIN AE, celui-ci semble moins homogène que le précédent. La distance entre deux fibres semble plus variable. Il est possible d'observer de grandes zones de matrice sans fibres pouvant atteindre 300 µm de longueur. Ces grandes zones sans fibres permettent d'observer le cisaillement de la résine époxy pure. Sur ces faciès, il est cette fois possible de déceler les cavités correspondant à des bulles d'air et donc créant de la porosité dans le composite. Ces cavités peuvent avoir un diamètre important, certaines atteignant à 0,1mm.

Si nous nous intéressons maintenant aux fibres, plusieurs particularités sont observables.
Tout d'abord, nous pouvons remarquer que les fibres se présentent dans la matrice en faisceaux ou en fibres individuelles. Cela correspond aux caractéristiques de la matrice initiale. Nous pouvons donc en conclure que la carde (et dans une certaine mesure l'aiguilletage) n'achève pas complètement la séparation des fibres en fibres élémentaires.
Ensuite, les ruptures des fibres semblent beaucoup plus nettes. Nous observons beaucoup moins de fibres non rompues. Au contraire, qu'elles soient élémentaires ou en faisceaux , elles semblent s'être bien rompues au même niveau.

Il semblerait donc dans ce cas, que nous soyons bien dans le cas d'une rupture cohésive. Les fibres ne sont pas détachées de la matrice et il n'y a pas de cavités créées par extraction de fibres avec glissement. C'est un bon point, car même si ce composite n'est pas le plus homogène, et le plus performant, nous voyons qu'il est donc possible d'obtenir un matériau avec une adhérence fibre / matrice sans réaliser de traitement chimique préalable.

4- ETUDE SUR LE KENAF

4.1- Les fibres

4.1.1- Examen au microscope

4.1.1.1- Fibres avant cardage

Les fibres de kénaf KENAF B semblent avant cardage déjà bien individualisées et très régulières en termes de section. Il est quand même possible de déceler un début d'individualisation plus poussée sur quelques fibres (3ème fibre en partant de la droite par exemple).

On remarque dans la vue en coupe qu'une majeure partie des fibres présente des cavités ou canaux dans le sens de la longueur.

Avant cardage on observe des points blancs sur les fibres. Il s'agit de poussières.

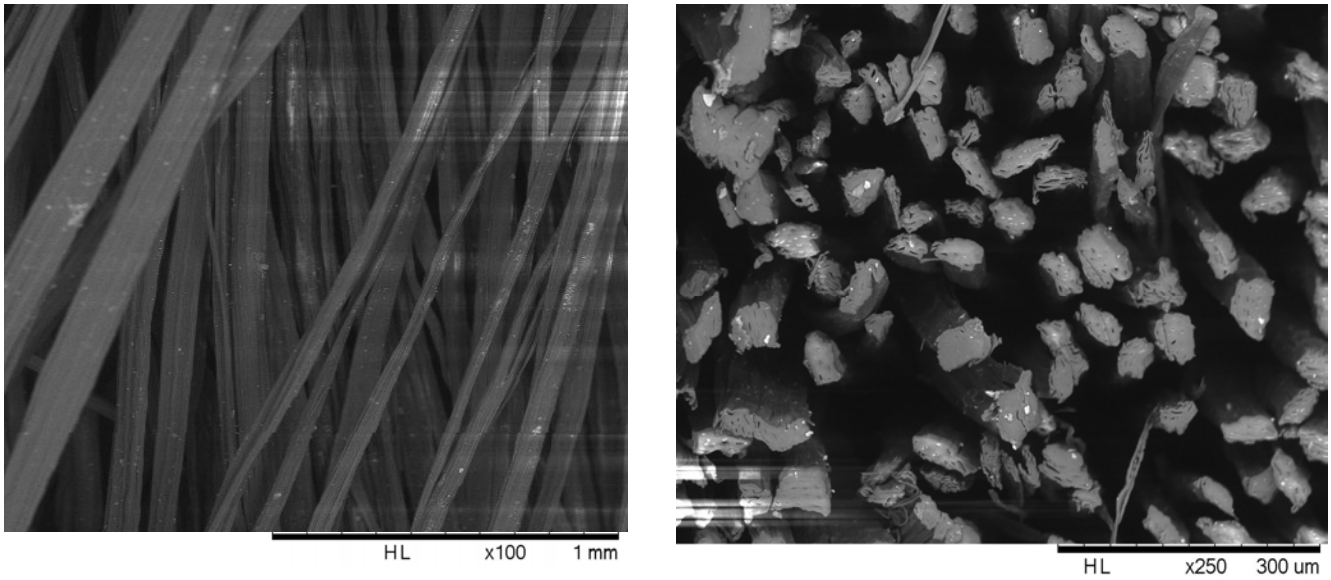


Figure 28 KENAF B en vue longitudinale et en coupe avant cardage Fibres après cardage

Après cardage, le diamètre des fibres ne semble par avoir été modifié de manière significative. Il est possible de comptabiliser un peu plus de fibres fines que sur les clichés avant cardage, mais ce phénomène n'est pas flagrant.

Sur la vue en coupe, il est toujours possible d'observer la particularité de cette fibre KENAF B, à savoir des cavités dans le sens longitudinal de la fibre. Suite au cardage, il ne semble donc pas que les fibres se soient séparées en plusieurs parties à cause de ces cavités.

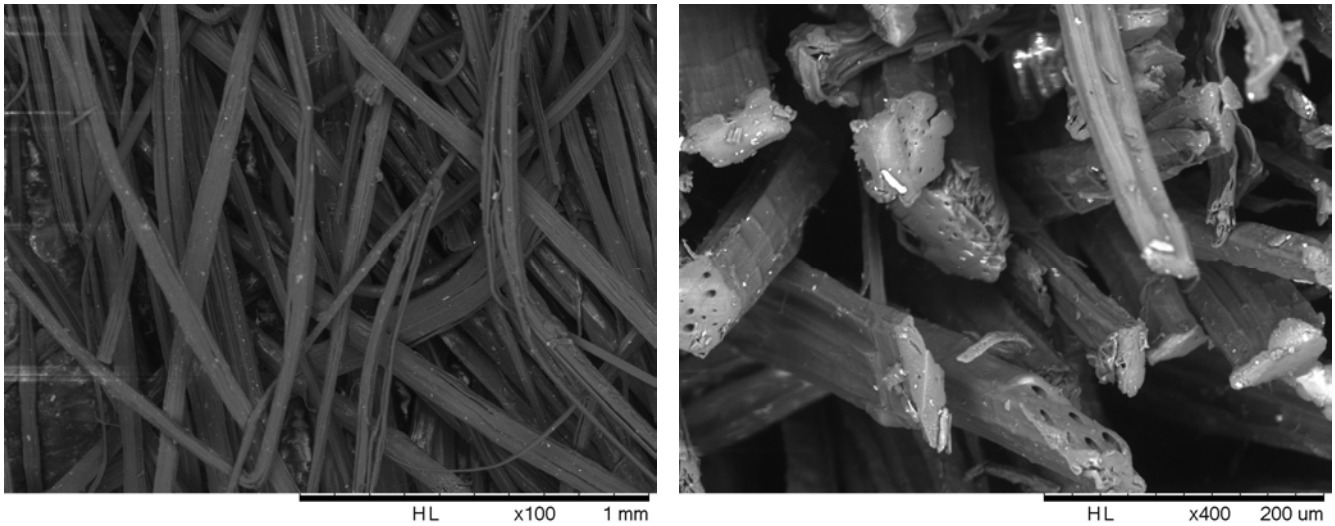


Figure 29 KENAF B en vue longitudinale et en coupe après cardage

4.1.2- Propriétés générales

Nous avons reporté dans le tableau suivant quelques grandeurs caractéristiques physiques des fibres avant et après opération de cardage.

	Balle	Entrée carde	Sortie Carde
Longueur Moyenne		60mm*	28,4mm
Longueur Max observable		60mm*	40,0mm
Diamètre moyen (µm)	-	44,1 (±12,5)	43,6 (±14,7)

*données fournisseur

Tableau 31 propriétés physiques des fibres de kénaf

En ce qui concerne les diamètres, on constate que le diamètre moyen des fibres à l'entrée de la carde est de 44,1µm. Nous avons pu disposer aussi d'une valeur de diamètre après passage sur une mini carde de laboratoire. Cette valeur a été calculée sur uniquement 300 fibres, mais montre qu'il n'y a pas une diminution réellement significative des diamètres, ce qui confirme les observations au microscope.

Par contre, concernant les longueurs, la diminution est très nette pour cette qualité de fibre, puisque l'on passe d'une longueur de coupe 60 mm à une longueur moyenne de 28mm. Cette longueur est encore acceptable pour la réalisation d'un matériau fibreux cardé.

Dans le tableau suivant, nous avons reporté les taux des différents constituants des fibres :

	KENAF D	Données littérature
Graisses et Cires	0,1	_
Minéraux, tanins	2,2	_
Pectines	18,6	2 (2)
Lignines	14,7	9 à 19 (18)
Hémicelluloses	9,8	20 à 21 (21)
Cellulose	54,6	36 à 72 (44)

Tableau 32 propriétés chimiques des fibres de kénaf

Cette qualité de fibre comporte un taux de cellulose relativement bas (54,6%) en bon accord avec les valeurs trouvées dans la littérature[1] qui donne une teneur comprise entre 36 et 72%. Le taux des hémicelluloses est lui étonnamment plus faible que les valeurs relevées dans la littérature (entre 20 à 21%) avec seulement 9,8%. Le taux de lignines (14,7%) est lui bien dans la plage de valeurs tabulées (de 9 à 19 %). Par contre, concernant le taux de pectine, les valeurs obtenues ici sont vraiment dans un ordre de grandeur très différent des données trouvées dans la littérature. Cet écart s'expliquerait peut être par la présence des cavités qui serait en fait les lumens de fibres élémentaires. Ces fibres élémentaires seraient fortement soudées les unes aux autres par ces pectines qui n'auraient pas été éliminées au cours du rouissage à l'eau appliqué aux tiges.

4.1.3- Propriétés mécaniques

Dans le tableau suivant, nous avons reporté les caractéristiques mécaniques obtenues avec la fibre KENAF B. A titre de comparaison, nous avons également reporté les grandeurs caractéristiques tirées de la littérature.

	KENAF B	Littérature
Contrainte de Rupture (MPa)	585 (±291)	180-1191 (700)
CV%	50%	-
MOE (GPa)	41,9 (±19,4)	22-128 (55)
CV MOE (%)	46%	-
Allongement %	1,56 (±0,82)	1,6-6,9 (3)
Densité apparente :	-	1,2-1,4

Les tests de résistance au dynamomètre Favimat donnent une contrainte de rupture en-dessous des autres fibres à 585 MPa. Si nous examinons les écarts types obtenus, ils semblent restreints pour une fibre naturelle, notamment pour la contrainte avec ±291 MPa. Cependant, si nous ramenons cet écart type à la moyenne des contraintes obtenues, le CV obtenu est de 50 %, ce qui nous amène finalement au niveau des matières les moins travaillées et préparées comme les deux catégories de chanvre et le lin LIN A. Par contre, les résultats au niveau du module d'élasticité mettent en valeur la particularité de cette fibre, c'est-à-dire sa bonne rigidité puisqu'elle affiche un MOE à 41,9 GPa. L'écart type pour ce paramètre est également très limité pour une fibre naturelle, avec "seulement" 19,4 GPa, ce qui ramené à la moyenne, nous donne un CV qui peut supporter la comparaison avec les autres matières. Ainsi, avec 46%, soit l'une des meilleures valeurs, ce CV est un peu au-dessus du LIN D qui affiche 38%, et bien en-dessous de toutes les autres fibres pour lesquelles les CV sont compris entre 54 et 82%. Ce résultat, sur le module d'élasticité, est confirmé par la valeur d'allongement de rupture obtenue à l'appareil de traction avec un allongement moyen de seulement 1,56% (±0,82). Cette fibre parvient au résultat le plus bas, plus de deux fois inférieur à l'ensemble des autres fibres. Si nous comparons maintenant les valeurs obtenues à la littérature, nous sommes bien dans la plage des valeurs relevées[1]. Pour la contrainte, nous obtenons une valeur inférieure à la moyenne des valeurs couramment citées (585 MPa contre 700 MPa en moyenne des valeurs tabulées). De même pour le MOE, puisqu'avec 41,9 GPa, nous sommes aussi légèrement en-dessous des valeurs couramment citées (55 GPa). Sans vouloir faire ici une critique des données et des protocoles utilisés pour les résultats que nous avons relevés dans la littérature, nous voyons bien l'intérêt d'utiliser un même protocole qui soit le plus précis possible. Nous pensons que pour atteindre les hautes valeurs indiquées dans la littérature, les fibres utilisées ont été systématiquement extraites avec un protocole de laboratoire qui ménage au maximum les propriétés mécaniques, contrairement aux nôtres qui ont subies un process industriel. De plus, pour calculer les contraintes et les modules, dans notre cas, nous avons utilisé une méthode beaucoup plus précise (Mesures des sections par MEB et logiciel de mesure d'image des fibres testées) que les méthodes classiques donc la section est calculée à partir de la finesse et de la densité de la matière.

Nous avons eu avec cette fibre de kénaf, l'opportunité d'approvisionner une matière qui semble d'une qualité exceptionnelle et d'ailleurs classée B par le fournisseur selon l'échelle de qualité utilisée qui va de A à E et prenant en compte notamment la finesse, la couleur et la propreté de la fibre (ce classement se fait de manière officielle par comparaison visuelle d'une série d'échantillons types). Cette fibre, nous l'avons vu, provient directement d'un rouissage à l'eau réalisé dans le but de préserver au maximum les propriétés et d'un teillage manuel effectué sur place par les cultivateurs. Les fibres sont réceptionnées sous la forme de torons rassemblant plusieurs tiges et

sont ensuite coupées directement sans subir de teillage complémentaire. La seule opération mécanique que la fibre ait subi est la coupe et un passage d'ouvreuse (Bonino). Dans ces conditions, nous pensions pouvoir obtenir les meilleurs résultats (par rapport à la littérature). Ce n'est en définitive pas le cas, mais nos résultats nous semblent cohérents, et en tout cas comparables aux résultats obtenus sur les autres fibres que nous avons travaillées.

Concernant l'allongement de rupture, notre valeur obtenue à 1,56% est très faible. Cette valeur était attendue et logique puisque nous sommes en présence d'une fibre très rigide. Elle est également bien en adéquation avec la littérature. Cela peut s'expliquer par le fait que pour ce paramètre, il n'y a pas besoin de réaliser une mesure de diamètre de la fibre et donc que les méthodes utilisées sont très comparables. Un appareil standard de type dynamomètre adapté à l'échelle de force des fibres est suffisant.

Un paramètre que nous n'avons pas mesuré mais qui est donné par la littérature est la densité. La fibre de kénaf aurait la propriété d'être une fibre naturelle très légère, puisque la plage affichée va de 1,2 à 1,4 de densité. Les fibres de types lin et chanvre ont généralement une densité apparente autour de 1,5, de 1,4 à 1,6, soit une différence pouvant aller jusqu'à 33% par rapport au kénaf. Cette valeur de densité en principe faible, sera un avantage pour les calculs des valeurs spécifiques. Ainsi, par exemple, la différence avec la fibre de lin LIN R plus performante, devient beaucoup moins importante puisqu'en prenant une densité (théorique) de 1,5 pour le lin et 1,3 pour le kénaf (moyenne de la littérature), la contrainte spécifique passe à 525 MPa pour le lin et 450 MPa soit seulement une différence entre les deux fibres de près de 14%. La différence entre les modules d'élasticité est aussi augmentée à la faveur du kénaf qui reste donc bien au–dessus des autres avec un module spécifique qui passe de 41,9 à 32 GPa, à comparer au LIN R, par exemple, qui passe de 33, 9 à 22,6 GPa avec une densité de 1,5. La différence entre les deux matières est donc de près de 50% en faveur du kénaf. Nous sommes donc ici en présence d'une fibre dont les caractéristiques devraient théoriquement permettre de concevoir un biocomposite performant.

4.2- Les renforts

4.2.1- Propriétés générales

Nous avons mesuré l'épaisseur, la masse surfacique, ainsi que la perméabilité à l'air à 100 Pa des nontissés de kénaf réalisés avec le même procédé de cardage que les fibres précédentes.

C'est à partir de la mesure de la perméabilité que nous avons pu déterminer le coefficient de perméabilité K

Les résultats sont synthétisés dans le tableau ci-dessous :

Epaisseur (mm)	6,10 (±1,01)
Masse surfacique (g/m²)	672,50 (±28,17)
CV%	4,19
Perméabilité à 100 Pa (l/m²/s)	772,2 (±272,4)

Tableau 33 : Propriétés générales des renforts KENAF BM

Lors du processus de préparation, nous avons obtenu une épaisseur très importante au maximum des possibilités des deux machines (épaisseurs au nappeur et introduction de l'aiguilleteuse). Nous avons multiplié les couches de voiles afin d'obtenir le poids désiré à 800 g/m² ± 10%. En finalité, nous sommes en-dessous de la limite fixée avec seulement 672 g/m² en moyenne. C'est à ce stade que la différence avec les autres matières fut le plus visible. Le kénaf étant moins dense, il est nécessaire de fabriquer des matériaux très épais (limite en termes de travail sur la machine). Avec les paramètres fixés pour l'aiguilletage, nous avons atteint la limite du process et obtenu l'épaisseur finale la plus importante avec 6,1 mm en moyenne. Dans ces conditions, la perméabilité à l'air est très élevée avec 772 l/m²/s pratiquement au double des renforts en fibres de lin. Cette haute valeur peut s'expliquer par plusieurs facteurs comme notamment le diamètre des fibres plus important et surtout l'épaisseur finale, et donc d'une faible densité avec des fibres peu liées et peu compactées par l'aiguilletage.

4.2.2- Propriétés mécaniques

Comme décrit dans la partie expérimentale, nous avons caractérisé les propriétés mécaniques en traction et en flexion des renforts en fibres de kénaf. Ces valeurs sont répertoriées dans le tableau ci-dessous.

Comme précédemment pour les autres mats, la totalité des tests est réalisée dans le sens travers par rapport à la sortie machine. L'ensemble de ces résultats est reporté dans le tableau ci-dessous ainsi que les grandeurs pouvant être déduites de ces mesures.

Flexion (cm)	19,87 (±0,23)
Force Rupture (N)	29,82 (±12,76)
Contrainte Rupture (MPa)	0,10 (±0,04)
Allongement à la Force Max %	26,90 (±0,12)
MOE contrainte / allongement (kPa)	3,63

Tableau 34 Propriétés générales du renfort KENAF BM

Le renfort réalisé présente en finalité une tenue très faible aux tests mécaniques, puisque la force de rupture atteint seulement 29,8 N. La résistance du renfort est juste suffisante en usant de précaution pour assurer l'enroulage en sortie d'aiguilletage, le transport et l'imprégnation sans avoir trop de déchirement. Les fibres n'offrent qu'une faible résistance en traction les unes envers les autres. La première explication, c'est que, compte tenu de l'épaisseur, l'aiguilletage offre moins d'efficacité : les fibres semblent moins liées. Les barbes des aiguilles vont moins prendre de fibres de la face inférieure du mat. La seconde explication, c'est que les fibres, compte tenu de leur raccourcissement pendant le cardage, sont donc moins liées. Enfin, troisième explication possible, les fibres sont très glissantes les unes par rapport aux autres et n'offrent donc que peu de résistance aux frottements, ce qui fragilise fortement le mat. Les grandeurs qui émanent de ces résultats sont donc logiquement également très faibles. Ainsi, la contrainte de rupture du mat s'élève à seulement 0,10 MPa (valeur qui n'est pas favorisée par l'épaisseur importante du mat). Le module d'élasticité que nous avons calculé par le rapport de cette contrainte par l'allongement présente logiquement une valeur très faible de 3,63 kPa.

La résistance à la flexion est par contre très importante puisque nous obtenons une valeur moyenne à plus de 19 cm. Cette haute valeur s'explique par la rigidité des fibres, caractéristique observable pendant ce test. Les fibres se courbent beaucoup plus tard sous l'effet de leur propre poids sans que leur faible résistance au glissement (vue durant les essais en traction) ne semble influencer ce résultat.

Ces observations sont confirmées par un simple examen au microscope optique (x35). La rigidité des fibres, qui restent pratiquement rectilignes, est bien visible sur le cliché ci-dessous.

Figure 30 Vue du renfort KENAF BM – Grossissement x 35

4.3- Les composites à matrice biosourcée

4.3.1- Propriétés générales

Après leur mise en forme suivant le protocole décrit dans la partie expérimentale, les composites ont été caractérisés et nous avons déterminé comme précédemment quelques propriétés générales reportées dans le tableau suivant.

Epaisseur (mm)	1,42 (±0,14)
CV%	9,86
Densité	1,22 (±0,11)
CV%	9,02
Taux de fibres (%)	41,60 (±0,05)
Masse surfacique (g/m²)	1720 (±190)
CV%	11,09

Tableau 35 Propriétés générales des composites KENAF BR

Le taux de fibres, s'il est en hausse par rapport aux composites réalisés lors de la première série (pour rappel aux environs de 27%) est bien en-dessous de la barre des 50% relevée avec les matériaux précédents, puisque nous obtenons ici une valeur proche de 41 %. En d'autres termes, nous pouvons donc affirmer que le composite est bien chargé en résine. Cette caractéristique expliquerait alors la densité plus élevée obtenue, puisqu'avec une quantité de résine plus importante, la quantité de matière finale à compresser (1720g/m² de résine réticulée et de fibres) est également plus importante. Nous pouvons ajouter à cette discussion, que nous avions observé lors de l'imprégnation de ces composites en kénaf que les renforts fibres ne se « mouillaient » pas aisément selon le vocabulaire propre au monde des composites. C'est-à-dire, que malgré la basse viscosité de la résine, celle-ci progresse lentement à travers les fibres, et il nous a semblé que celles-ci absorbaient littéralement la résine. Cette observation, s'est ensuite confirmée lors de la mesure des masses surfaciques.

4.3.2- Propriétés mécaniques

Dans cette campagne de mesure, la densité moyenne des matériaux est toujours de 1,21(±0,11), mais elle varie légèrement selon que l'on travaille en flexion ou en traction.

4.3.2.1- En traction

Dans le tableau suivant, nous avons regroupé quelques caractéristiques mécaniques du matériau réalisé avec la résine biosourcée. Comme précédemment, le terme spécifique désigne les grandeurs ramenées à la densité. Pour compléter cette discussion, nous avons rappelé la valeur de contrainte de rupture des nontissés utilisés en renfort et les valeurs reprise dans la littérature pour un composite de matrice de Poly-L-Lactic Acid (PLLA) et KENAF[21]. Ce système de composite choisi nous permet de donner une comparaison, même si la matrice, les fibres et le process ne sont pas identiques.

	KENAF B T	**KENAF/ PLLA 50/50**
Contrainte normale (MPa)	45,59 (±10,10)	62
Contrainte spécifique (MPa)	37,34 (±7,20)	-
MOE (MPa)	4760 (±675)	4800
MOE spécifique (MPa)	3844 (±570)	-
Contrainte Rupture du mat (MPa)	0,10 (±0,04)	-

Tableau 36 Propriétés mécaniques des biocomposites en kénaf

[21] T.Nishino,, K. Hirao, M. Kotera, K. Nakamae, H. Inagaki, **Kenaf reinforced biodegradable composite**, ELSEVIER, Composite Science and Technologie 63 pp1281-1286 (2003)

Le composite se révèle intéressant puisque nous dépassons les 40 MPa en contrainte normale. Nous sommes certes en-dessous du niveau de résistance en traction que le composite de référence PLLA et fibres de kénaf, mais ce composite est préparé avec un taux de fibres beaucoup plus important de 70% contre 42% et le renfort réalisé par voie humide par voie papetière qui permet de réaliser un renfort de haute qualité et d'homogénéité mais de très faible épaisseur.

La contrainte spécifique diminue logiquement puisque la densité du composite est supérieure à 1.

Concernant les modules d'élasticité, ceux-ci sont également encourageants et bien supérieurs à ceux du composite PP/LIN qui n'est que partiellement biosourcé. Avec une valeur de à 4760 MPa et même en tenant compte de l'écart type à 675 MPa, nous sommes très au-dessus des valeurs de la première série de biocomposites, puisque nous avions atteint par exemple seulement 1006 MPa pour le mélange lin /kénaf (composite P9BT). De même que pour la contrainte, il est logique que le module d'élasticité spécifique soit en diminution par rapport au module normal du fait de la densité à 1,21.

Si l'on compare la résistance du mat en terme de contrainte de rupture par rapport à la contrainte de rupture normale du composite, le gain apparait vraiment important puisque nous passons de 0,10 à 45,59 MPa, soit une augmentation de plus de 450000%. La résine joue pleinement son rôle, puisque d'un renfort sans pratiquement aucune tenue nous obtenons un composite acceptable.

4.3.2.2- En flexion

Une campagne de test en flexion 3 points a ensuite été effectuée pour caractériser les biocomposites réalisés avec la fibre de kénaf et la résine naturelle. Les résultats sont répertoriés dans le tableau ci-dessous. Pour compléter la discussion, nous avons intégré les valeurs de flexion du renfort avant imprégnation et les valeurs reprise une autre publication sur la réalisation d'un composite PLLA comportant 50% de fibres de kénaf et réalisé par cardage et thermocompression, pour lequel les propriétés ont été mesurées en flexion[22]

Pour cette série de composites, la compression appliquée a été légèrement moins importante, amenant à des densités légèrement en baisse par rapport aux les plaques testées en traction entrainant donc une variation entre les valeurs normales et spécifiques moins importante.

[22] L. Byoung-Ho, K. Hee-Soo, L. Sena, K. Hyun-Joong, J R. Dorgan, **Bio-composites of kenaf fibers in polylactide: Role of improved interfacial** adhesion in the carding process, Composites Science and Technology 69 2573–2579 (2009)

	KENAFB T	PLLA/KENAF (50/50)
Contrainte normale (MPa)	98,8 (±4,4)	52,3(±3,4)
Contrainte spécifique (MPa)	88,6 (±5,5)	-
MOE (Mpa)	6665 (±494)	3400
MOE spécifique (Mpa)	5 968 (±747)	-
Flexion (cm)	19,87 (±0,23)	-

Tableau 37 Propriétés en flexion des biocomposites de la série 2 à base de kénaf

Pour cette campagne de mesures, les résultats sont particulièrement intéressants car nous obtenons des valeurs en contrainte et en élasticité très importantes. Ainsi, pour la contrainte normale, nous sommes quasiment 100 MPa, bien au-dessus des valeurs déjà atteintes et de notre référence en PLLA/KENAF (50/50) qui se trouve seulement à 52,3 MPa. Le module d'élasticité normal est au-dessus de 6 GPa, pratiquement le double de la même référence. Les valeurs spécifiques sont logiquement en baisse puisque nous avons une densité supérieure à 1.

Ces résultats encourageants pour les propriétés en flexion sont à mettre en relation avec les valeurs obtenues sur les renforts notamment sur la valeur de longueur de flexion qui montrait un renfort avec une longueur particulièrement importante à près de 19,9 cm.

Pour remonter plus loin dans la conception du matériau, nous remarquons également que les hautes valeurs obtenues sur la rigidité de la fibre avec 41,9 GPa et son faible allongement de 1,56% semblent se retrouver dans les propriétés du biocomposite final.

4.3.3- Examen des faciès de rupture

Pour aller plus loin dans les investigations nous avons examiné les faciès de rupture des composites au microscope électronique à balayage.

Ces images sont réalisées sur les éprouvettes après rupture en flexion en grossissements 200 et 300.

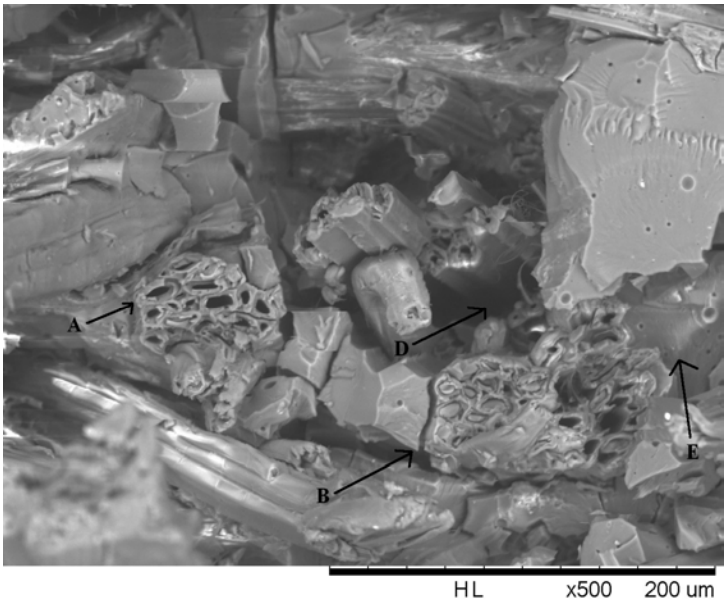


Figure 31 Facies de rupture KENAF T

Ces clichés nous apportent différentes informations qui pourraient donner des explications aux résultats mécaniques. Tout d'abord, nous retrouvons bien l'aspect des fibres brutes avant leur intégration au composite. Les structures composées de plusieurs unités tubulaires sont bien visibles. Nous observons également une répartition fibre/matrice qui semble relativement homogène et donc pas de grandes zones constituées de matrice pure. Les fibres semblent toutes bien entourées de résine. Le taux fibres/matrice semble donc optimal.

En observant maintenant les interfaces fibres / matrice, les faciès montrent beaucoup de ruptures semblant cohésives comme le suggère la zone (A) sur la figure ci-dessus et d'autres zones mais moins nombreuses non cohésives comme semble le montrer la zone (B) sur cette même figure. L'interface fibre-matrice semble donc relativement de bonne qualité. Nous pouvons compléter cette observation par la longueur des extrémités des fibres dépassant du plan de coupe et des cavités créées par l'extraction des fibres lors de la rupture. Ces longueurs sont très courtes, montrant que les fibres se sont rompues sans glissement et en assurant correctement leur rôle de renfort. De même, les cavités résultant d'une extraction de fibres ne sont pas très importantes. Il est possible d'en observer quelques profondes (zone D) mais de manière ponctuelle (zone D sur le cliché figure ci-dessous). Ces zones avec cavités profondes sont clairement des zones en relation avec une mauvaise imprégnation au cours de la compression: Soit un mauvais gainage de résine autour de la fibre, ou soit un amas de fibres très serrées et insuffisamment imprégnées pour permettre à la résine de jouer son rôle de transfert de contraintes, soit une grosse bulle d'air créant une concentration de contraintes.

La zone E semble être un cas particulier où il est possible de distinguer l'empreinte de la queue de fibre.

Sur une vue complémentaire (cliché X 500 ci-dessous), un autre phénomène est mis en évidence et pourrait donner une explication à la densité plus élevé (1,21) obtenue avec ces fibres. En effet, au niveau de la zone F, nous pouvons clairement observer un remplissage des cavités des fibres par de la résine. Comme sur les sections observées, toutes les fibres ne sont pas imprégnées à cœur, il s'emblerait que les cavités des fibres puissent se remplir en partant de leurs deux extrémités ou de défaut le long de la fibre, et sur une certaine longueur. A partir d'une certaine longueur d'avancement de la résine dans les conduits de la fibre, la résine s'immobilise, laissant vide le ou les lumens. Ce phénomène expliquerait donc la possibilité de trouver des secteurs de fibres avec des lumens remplis de résine (G) et d'autres creux (F, ce qui aurait pour conséquence un accroissement de la densité et des propriétés mécaniques.

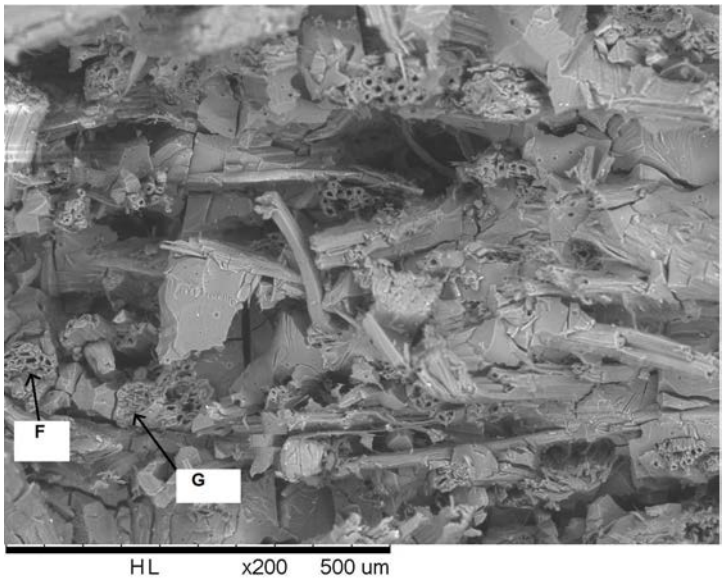


Figure 32 : Faciès de rupture KENAF T

En conclusion sur ces analyses de faciès de rupture, nous pouvons noter que cette fibre de kénaf KENAF type B) semble avoir une bonne adhésion avec la résine puisque les ruptures semblent cohésives. Cette adhésion qui semble correcte est peut être aussi à examiner du point de vue de la composition chimique de la fibre. Enfin, une explication, (mais qui n'est pas forcément la seule) à la densité obtenue est la présence de ces cavités qui se remplissent de résine. Pour encore améliorer ces performances, plusieurs approches pour améliorer les interfaces ont déjà été étudiées pour d'autres matrices utilisées en injection (PLA ou PP principalement) par modification chimique de la surface de la fibre ou en utilisant des agents de couplage de type MAPP , MAPE ou silanes. Cette dernière catégorie semble avoir un intérêt sur les propriétés en flexion, puisque qu'une amélioration de 25% en contrainte en flexion a été mesurée sur un composite kénaf /PLA avec 50% de fibres fonctionnalisées par 1 à 3 % de silane type GPS (Glycidoxypropyl trimethoxy silane). Il serait donc

intéressant de mette en place une nouvelle étude (qui sort du cadre de cette thèse), dans but de préparer un agent de couplage spécifique pour nos résines biosourcées pour encore améliorer les propriétés mécaniques.

4.4- Composites à matrice synthétique

Comme décrit dans le chapitre matériel et méthode de la même manière que pour les compostites à base de chanvre, nous avons préparé des composites à base de nontissés lin réalisés suivant le même protocole de cardage et d'aiguillettage mais sur une base de matrice epoxy.

4.4.1- Propriétés générales

Les propriétés générales ont été reportées dans le tableau ci-dessous. Pour compléter la discussion, nous avons reproduit les données générales concernant le biocomposite KENAFB T.

	KENAFB E	KENAFB T	Résine
Epaisseur (mm)	3,74 (±0,11)	1,42 (±0,14)	-
CV%	2,9	9,8	-
Densité	0,90 (±0,06)	1,22 (±0,11)	1,10
Taux de fibres (%)	17,56 (±1,10)	41,6(±0,05)	-
Masse surfacique (g/m²)	3374,0(±156,1)	1720,7 (±190,0)	-
CV%	4,6	11,1	-

Tableau 38 Propriétés générales des composites KENAFB T

Nous observons tout d'abord une épaisseur bien plus importante, du plus du double, que pour le biocomposite à résine naturelle comme précédemment. Cette augmentation est logique et s'explique pas le process d'infusion qu'il est nécessaire d'utiliser avec la résine époxy choisie.

Si nous examinons la masse surfacique du composite obtenu, celle-ci affiche également une augmentation significative de presque le double, en passant de 1720g/m² pour le biocomposite à 3374 g/m² pour le composite à base de résine synthétique.

Concernant la densité, on constate que la valeur obtenue ici (0,9) est nettement inférieure à celle relative aux biocomposites (1,22) et même en deçà de la valeur de la matrice. Précédemment, nous avons remarqué le caractère poreux de ces fibres notamment grâce aux clichés obtenus en microscopie. Nous avons également rappelé que la densité apparente du kénaf est inférieure à celle des autres fibres végétales, ce qui a d'ailleurs constitué un handicap pour la fabrication de mat de

forte masse spécifique. Si la densité du composite finale est ici inférieure à celle de la matrice, c'est que, probablement, d'une part les fibres ne sont pas comprimées (ce qui est compatible avec le mode de préparation des matériaux fibres/époxy) et que d'autres part, la résine a peut être mal pénétré au sein des porosités fibreuses étant donné sa viscosité. Il est en tous cas difficile d'établir à partir de la comparaison des densités, que l'affinité de la fibre avec la résine chimique est moins bonne, puisque les process de mise en œuvre sont très différents. Par contre, s'ils possèdent de bonnes propriétés mécaniques, ces composites pourraient ouvrir des perspectives intéressantes compte tenu de leur faible densité.

Concernant le taux de fibres, la valeur obtenue est nettement plus basse que pour les biocomposites à base de résine naturelle. Comme pour les autres composites, cela est lié au système d'infusion pour lequel la pression appliquée est basse, et donc l'épaisseur obtenue plus importante avec en finalité un remplissage du volume libre inter-fibres, par beaucoup plus de résine.

4.4.2- Propriétés mécaniques en traction

Comme précédemment et pour les mêmes raisons, nous avons réalisé uniquement une campagne de mesure des résultats mécaniques en traction. Les résultats ont été retranscrits dans le tableau ci-dessous. Pour mémoire, nous avons également reporté les résultats obtenus avec la résine naturelle et ceux relatifs aux composites à matrice biosourcée.

	KENAFB R	**KENAFB T**	**Résine**
Contrainte normale (MPa)	42,51 (±1,08)	45,59 (±10,10)	59,4
Contrainte spécifique (MPa)	47,2 (±3,67)	37,34 (±7,20)	54
MOE (MPa)	2738 (±316)	4760 (±675)	3307
MOE spécifique (MPa)	3049 (±536)	3844 (±570)	3006

Tableau 39 propriétés mécaniques des composites kénaf et résine epoxy

Les performances obtenues avec ce composite à résine synthétique se revèlent être en-dessous des propriétés de la résine pure. Si ces propriétés sont légèrement et logiquement améliorées en calculant les valeurs spécifiques du fait de la densité inférieure à 1, seule la valeur du module d'élasticité spécifique du composite KENAFB R arrive au niveau de la valeur du module d'élasticité spécifique de la résine (d'ailleurs défavorisée par une densité de 1,1). Nous pouvons donc en conclure que globalement, les fibres ne sont dans cette configuration et pour ces propriétés, qu'une source de défauts. Pour compléter, une seconde hypothèse est aussi à prendre en compte: avec un

taux de fibres très bas (à 17,5% en masse), les fibres ne sont peut-être pas en quantité suffisante pour jouer efficacement leur rôle de renfort.

Examen des facies de rupture des composites KENAF R

Sur les faciès de rupture, et notamment le cliché ci-dessous, (en grossissement × 100) nous retrouvons bien l'aspect des fibres brutes (avant cardage mais aussi des fibres visibles dans les biocomposites), avec la présence de plusieurs canaux ou lumens dans le sens longitudinal des fibres. Ces fibres semblent bien réparties dans le composite, et nous pouvons affirmer qu'il est bien homogène. Chaque fibre est bien entourée de matrice, sans que des amas de fibres trop serrées les unes aux autres n'en n'empêchent la progression. Le faible taux de fibres par rapport à la matrice est bien visible sur ce cliché car les distances entre fibres sont relativement importantes (relevées de 0,1 à 0,4 mm sur ce même cliché). On obtient donc un composite bien homogène, ce qui constitue une bonne caractéristique, mais avec des taux en fibres relativement faibles.

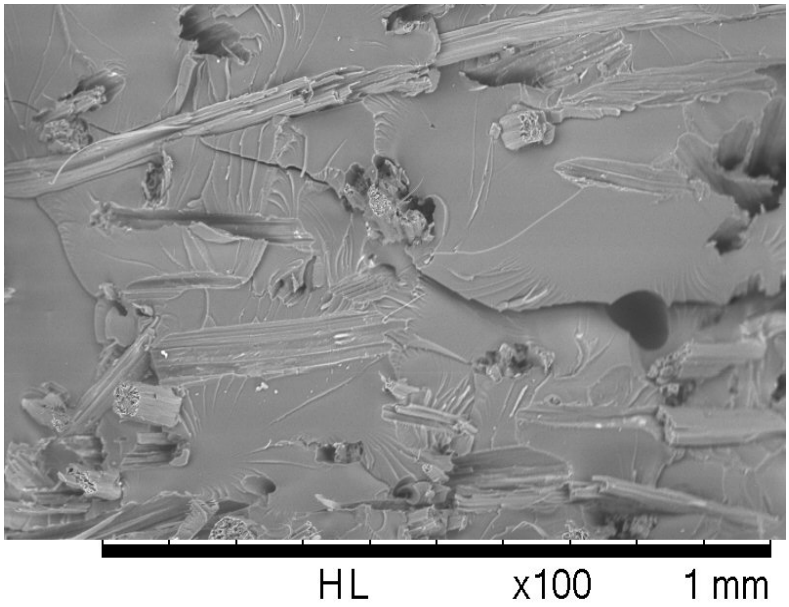


Figure 33 vue du composite KENAF R

Si nous examinons maintenant en détail les interfaces fibres / matrice, nous ne pouvons pas voir d'espace entre les fibres et la résine. Si les fibres ne sont pas rompues exactement au plan de section du composite, nous n'observons pas de grandes longueurs de fibres non rompues qui témoigneraient d'une forte capacité de glissement au moment de la rupture du composite. Il est possible d'observer des cavités résultant de l'extraction des fibres. Celles-ci restent peu profondes. Sur le plus gros

grossissement (x 300), Les fibres qui ne sont pas perpendiculaires au plan de rupture, semblent être déchaussées, laissant apparaître leur empreinte. (exemple de la zone A)

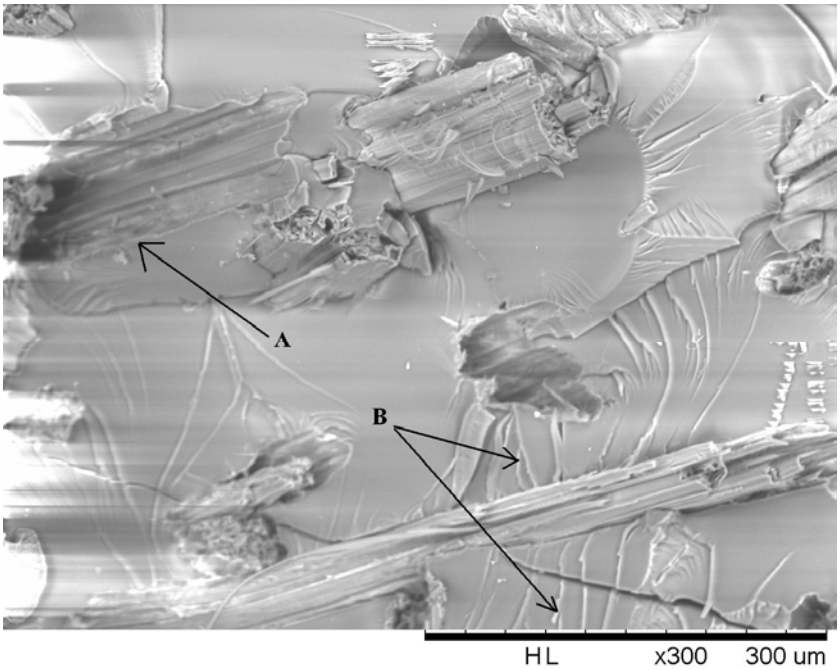


Figure 34: Facies de rupture composite KENAF E

Le composite a cassé de manière franche comme le montre les lignes de cisaillement (exemple B sur le cliché) qui sont pratiquement toutes situées dans un même plan.
Toutes ces observations nous amènent à dire que l'adhérence de la fibre semble correcte avec la matrice, mais que le niveau de réponse mécanique du composite ne peut pas être foncièrement augmenté par la présence des fibres dont le taux est vraisemblablement trop faible pour jouer un rôle significatif.

5- SYNTHESE COMPARATIVE

5.1- Les fibres

5.1.1- Propriétés générales

Concernant la composition chimique des fibres étudiées, les caractéristiques principales ont été regroupées dans le tableau ci-dessous. Les pourcentages de graisse et de cires ont été regroupés avec ceux des sels minéraux, des tanins, des amidons et galactanes. De même, les valeurs en pourcentage en cellulose et hémicelluloses (qui forment le groupe des holocelluloses) ont été regroupées sur une même ligne. Pour ne pas perdre d'informations, les valeurs de ces groupes de composants sont rappelées dans le bas du tableau et nous avons ajouté les moyennes des valeurs

mesurées au laboratoire, afin d'en tirer le coefficient de variation. Les valeurs principales ont également été représentées dans l'histogramme ci-dessous pour faciliter la lecture et la discussion.

% masse	LIN D	LIN R	LIN A	CHAN 1	CHAN 2	KENAF B	MOYENNE	Ecart type	CV%
Pectines	1,5	1,5	1,6	4,0	2,4	18,6	4,9	6,7	137,1
Lignines	11,6	8,1	14,8	7,6	13,2	14,7	11,7	3,2	27,3
Holocellulose	81,1	85,2	78,6	78,4	74,5	64,4	77,0	7,1	9,2
Autres composants :(graisses cires, minéraux tanins amidon galactanes)	5,8	5,2	5,1	10,0	9,9	2,3	6,4	3,0	47,2
Graisses cires	3,5	1,1	2,7	5,3	5,1	0,1	3,0	2,1	70,8
Extrait divers : minéraux tanins amidon galactanes	2,3	4,1	2,3	4,7	4,8	2,2	3,4	1,2	36,4
Hémicellulose	18,3	20,1	12,7	10,6	10,6	9,8	13,7	4,4	32,3
Cellulose	62,8	65,1	65,9	67,8	63,9	54,6	63,3	4,6	7,3

Tableau 40 : Comparaison des constituants des fibres

A la vue de ce tableau, le facteur qui apparaît le plus variable est le taux de pectine avec un coefficient de variation de près 137 %. C'est la fibre de Kenaf qui est à l'orgine de cette valeur importante de CV puisqu'elle affiche un taux de pectine à 18,6 % bien au-dessus de celui des autres fibres. La moyenne des taux de pectines pour les autres fibres, sans le kénaf, serait de 2,2 % seulement. Indépendamment du kénaf, la valeur qui reste supérieure aux autres est celle de la fibre CHAN 2 sans rouissage.

Le deuxième paramètre pour lequel le coefficient de variation est le plus élevé est le pourcentage des composants divers: graisses, cires, minéraux, tanins, amidon et galactanes. Nous trouvons ici une valeur très importante pour 3 fibres : le lin LIN D (5,8%), et les deux fibres de chanvre (près de 10%). Pour toutes les autres fibres, ce taux "autres composants" est plus faible et varie entre 2,3 et 5,2%.

Plus en détail, ce qui se démarque avec le lin LIN D par rapport aux autres fibres, c'est spécifiquement le taux des cires et graisses (ou la part soluble dans le système alcool / toluène) qui atteint 3,5% et est bien supérieur aux autres fibres. Compte tenu de la destination de cette fibre pour les composites, et de l'objectif du producteur d'obtenir les meilleures propriétés mécaniques, nous

savons que cette fibre a fait l'objet d'une préparation spéciale (rouissage et teillage spécifique). Cette préparation spécifique est peut être à l'origine de ce taux de cires et graisses plus élevé.

Toujours pour ce taux des autres composants, le kénaf montre lui le taux le plus faible avec seulement 2,3%. De ces 2,3%, nous quantifions 2,2% d'extraits divers (minéraux, tanins, amidon galactanes) qui est un chiffre proche de la moyenne des autres fibres, puisqu'il est compris dans la limite des écarts types. Par contre, en finalité, le taux des solubles à l'alcool / toluène (cires et graisses) est extrêmement faible, (0,1 %). Les données bibliographiques trouvées ne précisent pas de valeurs pour les cires et les graisses dans le cas de la fibre de kénaf, mais même si nous ne connaissons pas ces valeurs au moment du prélèvement des fibres lors de leur récolte, nous pouvons supposer que les fibres ont été dégraissées totalement par le fait du process de rouissage spécifique au kénaf (dans l'eau) et qui serait suivi d'un lavage utilisant probablement un détergent alcalin avant séchage.

Concernant maintenant le taux de lignine, la moyenne pour les fibres est de 11,7%. L'écart type obtenu est de seulement 3,2% ce qui nous amène à un CV de 27,3 %. Ce taux est donc relativement constant. Comme nous l'avions vu dans la partie consacrée au chanvre, nous trouvions étonnant l'augmentation de cette valeur qui passe de 7,6 % à 13,2 % sans pouvoir donner vraiment d'autres explications qu'une différence liée à la zone de culture, puisque les deux fibres proviennent de la même usine de défibrage. Nous reviendrons sur cette discussion concernant les taux de lignines au moment de comparer les propriétés des composites puisque la lignine est un composé qui possède une température de ramollissement dans un échantillon de bois à l'état sec à environ 195°C, mais de seulement 50°C à partir de 20% d'humidité. Cette propriété de la lignine pourrait avoir une influence sur la réponse mécanique de nos matériaux, puisque ces conditions de température et d'humidité correspondraient largement aux conditions de pressage de nos matériaux lors de l'étape de thermo-compression[23].

Les valeurs les plus importantes pour ce taux de lignine se retrouvent de nouveau avec la fibre de kénaf qui se distingue avec 14,7%, à quasi égalité avec le lin LIN A légèrement supérieur avec 14,8%. Les valeurs les plus faibles sont obtenues pour le CHAN 1 (bien en-dessous de la moyenne et aussi du domaine des écart types) et pour le lin LIN R avec un taux de 10 % qui le positionne par contre très près de la moyenne puisque ce taux se trouve dans l'intervalle délimité par les écarts types de ce paramètre.

[23] M.C.Trouy-Triboulot; P.Triboulot, **Matériau bois: Structure et caractéristiques**, Techniques de l'ingénieur. Construction, vol. CB1, noC925, pp. C925.1-C925.26 (2001)

Finalement, le taux le moins variable de ces fibres est le taux des holocelluloses, puisque le coefficient de variation est de seulement 9,2%. Avec une moyenne à 77,0 %, ce taux ne varie que de quelques points entre les fibres, avec un maximum pour la fibre de lin LIN D et un minimum pour la fibre de kénaf, qui affiche denouveau une valeur distinctive avec seulement 64,4 % d'holocelluloses.

Si nous examinons plus en détail les composantes de cette caractéristique, c'est-à-dire le taux de cellulose et le taux des hémicelluloses, nous pouvons remarquer que le taux de cellulose est un facteur relativement stable avec un coefficient de variation de seulement 8,1% pour l'ensemble des fibres. Les fibres montrant une particularité par rapport à ce taux sont de nouveau le LIN D et le kénaf. Le kénaf tout d'abord, avec son taux bas d'holocelluloses possède également le taux de cellulose le plus bas de toutes les fibres étudiées (54,6%). Son taux d'hémicelluloses (9,8%) est légèrement en-dessous de la moyenne qui se trouve à 11,8%. Ces valeurs sont donc cohérentes les unes par rapport aux autres. Plus étonnant, est le LIN D qui avec son taux d'holocelluloses le plus élevé a aussi le taux cellulose le plus bas (62,8 %), si l'on ne tient pas compte du kénaf. Ce faible taux cellulose est alors compensé par un taux très important d'hémicelluloses, le plus important des fibres étudiées (18,3%). Nous pouvons donc faire la constatation que les taux de cellulose et d'hémicelluloses ne sont donc pas directement indexés à celui des holocelluloses et qu'il semble qu'en plus de la nature des fibres, la provenance puisse avoir à une grande importance sur ces valeurs.

Pour rester sur le taux de cellulose, la fibre la plus riche est le CHAN1 avec 67,8 %. Cette fibre présente (en opposition avec les lins LIN D et LIN R) le taux d'hémicelluloses le plus bas (avec le kénaf) de toutes les fibres, avec seulement 10,6%. La fibre de lin LIN A suit de très près le chanvre CHAN 1 puisque son taux de cellulose est de 65,9% et son taux d'hémicelluloses est de 12,7%.

Ces analyses comparatives ont bien mis en évidence des différences sur les compositions chimiques des fibres étudiées. Ces différences proviennent bien évidemment de la nature des fibres, mais également des traitements de préparation des fibres (rouissage et teillage principalement) qui ne sont pas forcément connus en détails par le transformateur.

Nous allons maintenant essayer de dégager les paramètres mécaniques qui sont influencés par la composition chimique des fibres.

5.1.2- Propriétés mécaniques

Les propriétés mécaniques des différentes fibres ont été rapportées dans le tableau ci-dessous dans le but de pouvoir éventuellement les mettre en relation avec les caractéristiques chimiques.

	LIN D	LIN R	LIN A	CHAN 1	CHAN 2	KENAF
Holocellulose (%)	81,1	85,2	78,6	78,4	74,5	64,4
Hémicellulose (%)	18,3	20,1	12,7	10,6	10,6	9,8
Cellulose (%)	62,8	65,1	65,9	67,8	63,9	54,6
Contrainte de Rupture (MPa)	894 (±341)	788 (±263)	736 (±372)	817 (±366)	852 (±371)	585 (±291)
cv contrainte (%)	38	33	51	45	44	50
MOE (GPa)	38,4(±14,8)	33,9(±22,5)	21,6(±13,6)	23,9(±12,8)	36,0(±29,5)	41,9(±19,4)
cv MOE (%)	38	67	63	54	82	46
Allongement εr%	3,54(±1,3)	3,68(±1,8)	3.41(±1,4)	3,97(±1,7)	5,13(±1,6)	1,56(±0,8)

Tableau 41 Comparaison des propriétés mécaniques des fibres

La fibre la plus performante en termes de contraintes est la fibre LIN D avec 894 MPa. D'un point de vue chimique, cette fibre possède les taux d'hémicelluloses et aussi le taux d'holocelluloses les plus importants des fibres étudiées. Par contre et comme vu précédemment, le taux de cellulose pure est lui, le plus faible des fibres analysées (si on excepte le kénaf).

Si nous regardons les moyennes obtenues (sans tenir compte des écarts types), en terme de module d'élasticité, LIN D est également l'une des plus performantes (38,4 GPa) derrière le kénaf (41,9 GPa). Les remarques sont donc les mêmes que précédemment, c'est à dire que pour la fibre de lin LIN D, les plus grands pourcentages d'holocelluloses et d'hémicelulloses pourraient donc être des indices importants pour prévoir la réponse mécanique d'un matériau fibreux.

Le Kenaf, lui a le meilleur module de rigidité. Donc, pour cette fibre, nous ne pouvons pas mettre directement en relation son haut module et le taux des holocelluloses puisque celui-ci est bien inférieur (seulement 64,4%). Par contre, le point commun entre ces deux fibres pourrait être les taux de cellulose qui sont au plus bas. Dans le même esprit, nous pouvons remarquer également que pour la fibre de chanvre CHAN 2 dont les valeurs en termes de contrainte et de module (σ =852 MPa et MOE = 36 GPa) sont plus élévées que la moyenne (avec σ =778 MPa et MOE = 32 GPa), nous

avons déterminé son taux de cellulose à seulement 63,9%. Il semblerait donc que pour nos applications, un taux bas de cellulose favoriserait la rigidité de la fibre.

Pour tenter de mettre en évidence l'existence d'une possible corrélation, nous avons tracé les pourcentages massiques de cellulose et des holocelluloses en fonction des valeurs de contraintes de rupture pour chacune des fibres. Les résultats sont présentés sur la figure suivante. Globalement, il semble que la contrainte de rupture de la fibre augmente avec le pourcentage en masse des holocelluloses. Toutefois, la modélisation linéaire de cette courbe ne conduit pas à un coefficient de détermination R^2 recevable (<0,8). Le changement de nature de fibre avec les valeurs correspondantes au chanvre sont un facteur n'autorisant pas une corrélation directe. S'agissant de la cellulose, la courbe peut être divisé en 2 zones: dans la première partie, la réponse semble linéaire, puis le taux de cellulose qui s'affaiblit correspond à une contrainte plus élevée. On peut aussi remarquer que si l'on retire le kénaf, il est plus difficile de conclure sur ces variations.

Ces résultats sont bien évidemment à relativiser, notamment par le faible nombre de fibres différentes étudiées et par la présence en particulier du kénaf qui accentue ces tendances. Idéalement, si nous en avions la possibilité, il faudrait également rapporter les valeurs de taux de cellulose à la mesure de l'angle de fibrillation formé par la cellulose pour en évaluer plus précisément l'impact.

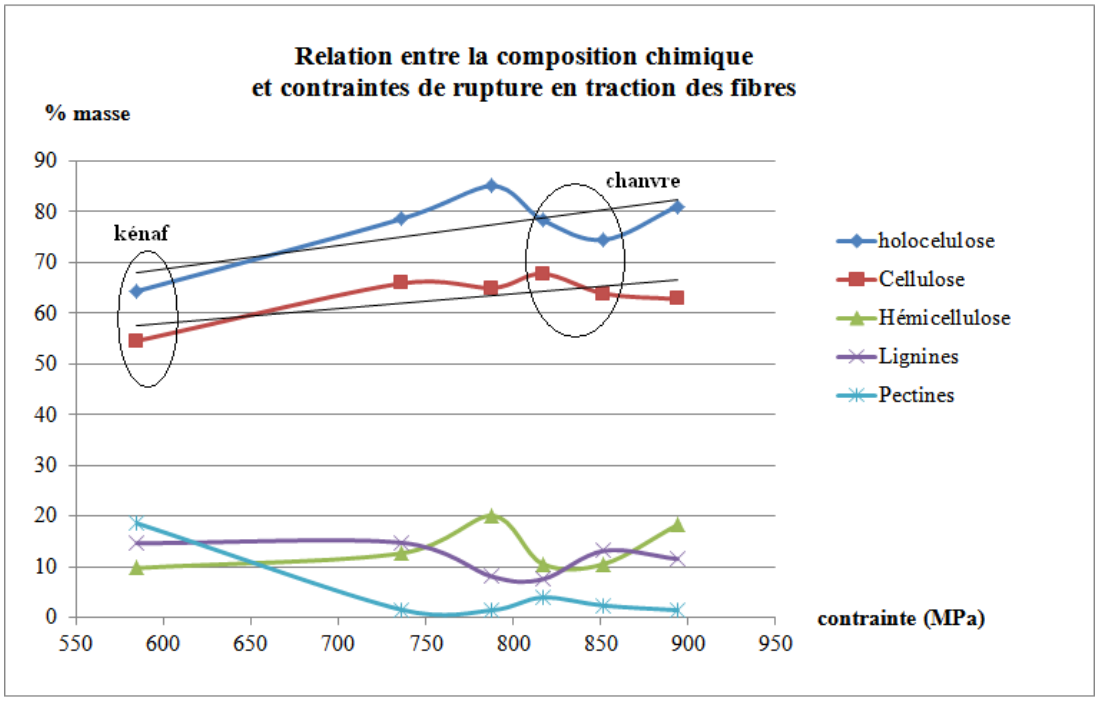


Figure 35 Relation entre la composition chimique et contraintes de rupture des fibres

De la même façon, le tracé des variation des pourcentages en masse de cellulose et holocellulose en fonction du MOE (figure suivante) ne permet pas de conclure sans équivoque, même s'il semble que l'on observe que le MOE diminue lorsque le taux de cellulose et d'holocellulose augmente.

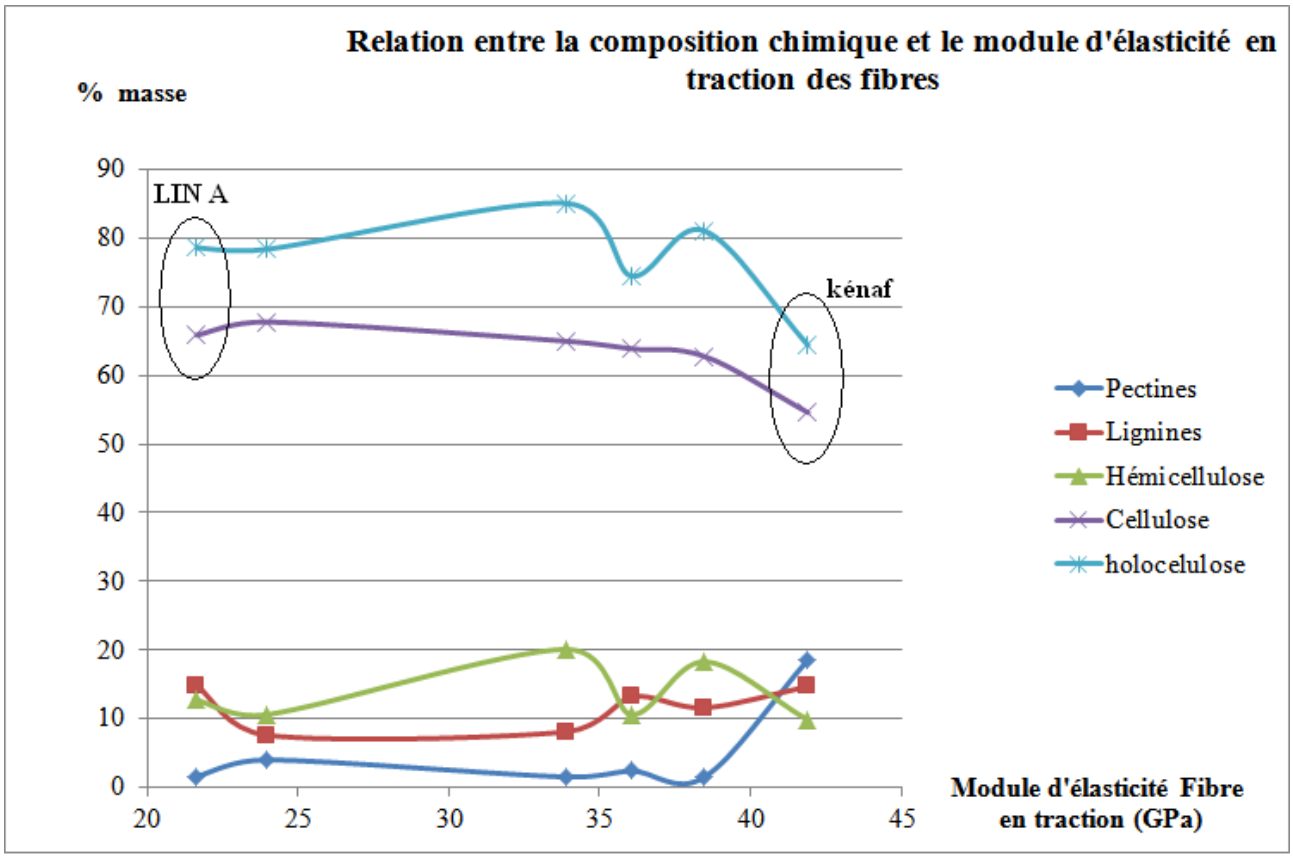


Figure 36 Relation entre la composition chimique et le module d'élasticité en traction des fibres

Par ailleurs, il semble par nos observations visuelles, que la matière LIN A provenant d'étoupes offre une plus grande variabilité au niveau de la composition chimique intrinsèque de ses fibres. Ainsi contrairement aux 5 matières testées, il est probable que la valeur moyenne des compositions mesurée sur la matière brute LIN A ne soit pas exactement représentative des fibres individuelles. Il serait intéressant de refaire une étude complémentaire de composition chimique à partir des fibres testées en mécanique et triées par classe de contrainte ou de module. Cette étude étant très longue à réaliser, nous proposons maintenant pour notre analyse de ne pas intégrer provisoirement les données relatives à cette fibre.

Sur la figure suivante, nous avons reporté la variation du MOE en traction en fonction du taux de lignines. La variation semble plus nette et nous pouvons constater une augmentation significative du MOE en fonction du taux de lignine. Le taux minimum vers 10% permet d'obtenir une fibre au-dessus de 35 GPa.

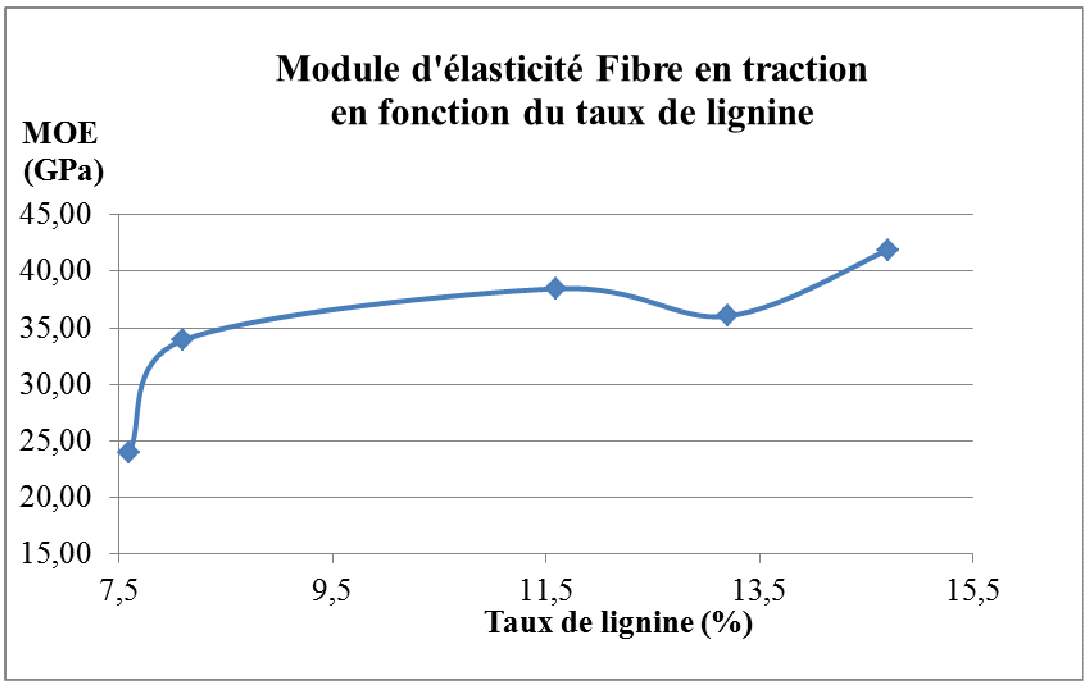


Figure 37 Module d'élasticité Fibre en traction en fonction du taux de lignine

Sur le graphique suivant, nous avons représenté les variations de la contrainte de rupture Fibre en fonction du taux de lignine. Il semblerait que la courbe passe par un maximum, avec les fibres les plus performantes se situant autour de 11% de lignine. Le Kénaf et le lin Lin A sont un peu à part puisqu'avec un fort taux de lignines, la contrainte de rupture est la plus faible.

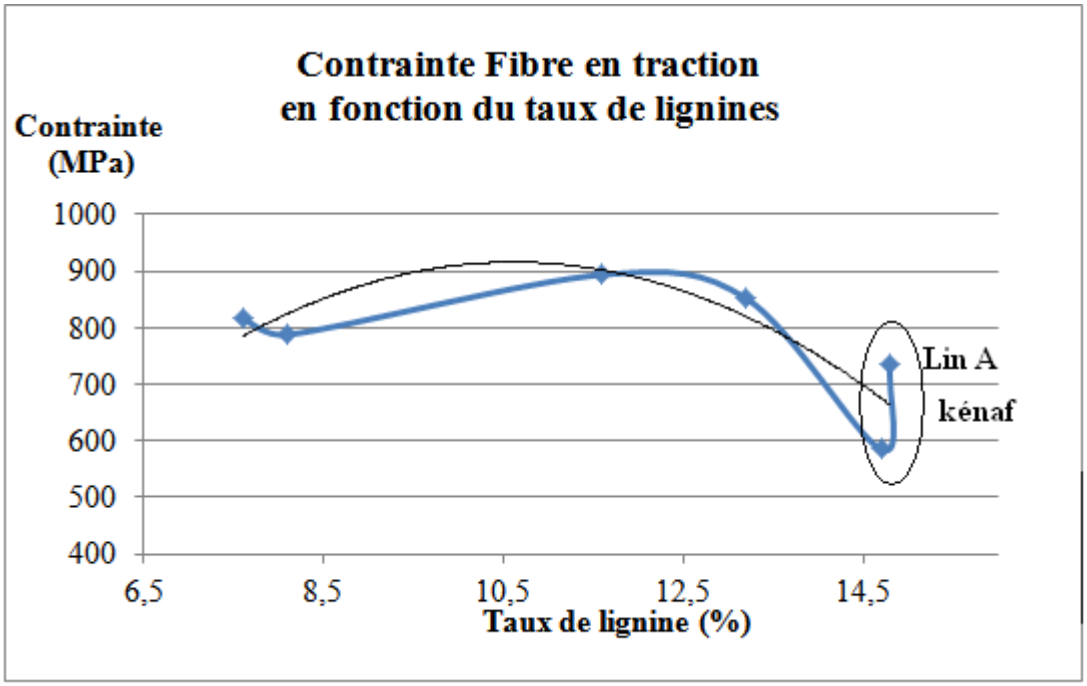


Figure 38 Contrainte Fibre en traction en fonction du taux de lignines

Dans le même ordre d'idée, nous avons regardé la variation de la contrainte et les modules d'élasticité en fonction des taux de pectines relevées, sans pouvoir en tirer de corrélation, les valeurs semblant très aléatoires. Le taux de pectine seul semble être un facteur avec peu d'influence sur ces propriétés, ce qui serait logique.

Si nous traçons maintenant la courbe de l'allongement de rupture en fonction du taux de cellulose (volontairement sur ce graphique nous n'avons denouveau pas représenté la fibre Lin A), malgré les écarts types importants, on peut voir une tendance à la hausse de l'allongement de rupture en fonction du taux de cellulose. Il est aussi possible de faire passer une droite de pente positive à travers les domaines délimités par la plage des valeurs, ce qui tend à montrer l'existence d'une corrélation entre les deux facteurs. Une valeur d'allongement de rupture importante est très intéressante pour des applications textiles où l'on recherche une souplesse et une capacité de travail du matériau final qui peut être donnée par une forte valeur d'allongement en compensation d'une contrainte insuffisante. En revanche, pour nos applications dans le domaine des composites c'est plutôt la rigidité qui est recherchée. Même si nous n'avons pas disposé de beaucoup de valeurs, pour l'établissement de cette tendance, nous voyons donc sur ce graphique, l'intérêt d'explorer les possibilités de fibres inutilisées dans le domaine textile (et aussi de la papeterie) où le taux de cellulose est regardé en priorité. Nous pouvons également retenir de ces résultats qu'une fibre disposant d'un taux de cellulose supérieur à 64% de sa masse a des chances d'avoir une capacité d'allongement proche ou supérieure à 4 %, ce qui est déjà supérieur aux fibres utilisées classiquement dans l'industrie des composites.

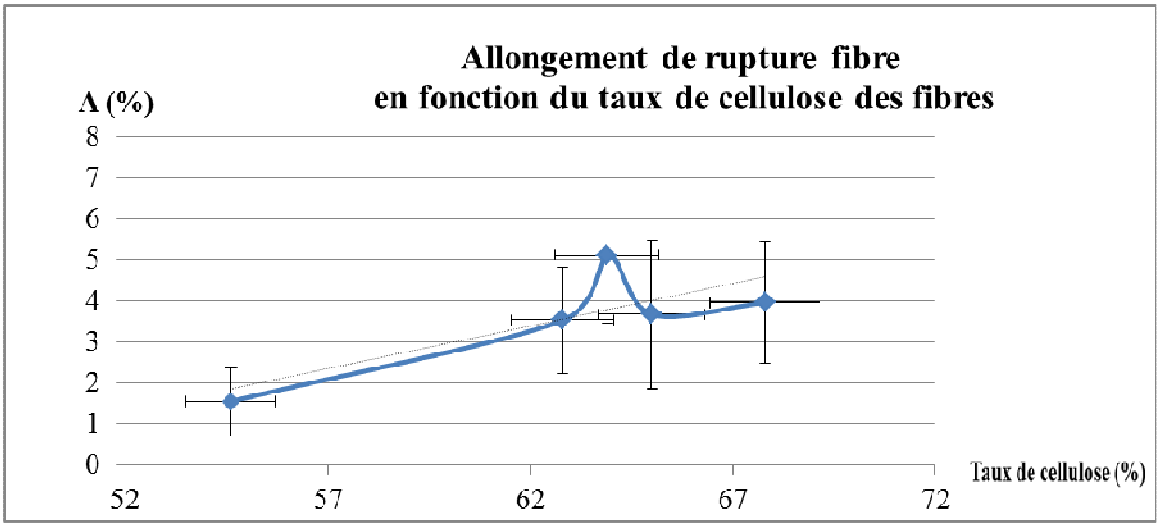


Figure 39 Allongement de rupture fibre en fonction du taux de cellulose des fibres

5.2- Les renforts

5.2.1- Propriétés générales

Dans le tableau ci-dessous, nous avons retranscrit l'ensemble des mesures réalisées sur les renforts afin de pouvoir les comparer les unes aux autres.

	LIN D	LIN R	LIN A	CHAN 1	CHAN 2	KENA F B	MOYENNE
Densité	0,18	0,19	0,18	0,16	0,19	0,11	0,17
Epaisseur (mm)	4,21	4,44	4,47	4,79	4,32	6,10	4,70
Masse surfacique (g/m²)	755,4	825,5	797,5	780,4	815,8	672,5	774,5
Epaisseur ramenée à 800g (mm)	4,46	4,30	4,48	4,91	4,24	7,26	4,90
Force de rupture (N)	202,24	487,19	319,90	89,72	38,19	29,82	194,50
Allongement à la Force Max (%)	35,77	48,68	41,06	31,22	32,63	26,90	36,00
Flexion (cm)	17,54	18,72	17,74	13,15	12,03	19,87	16,50
MOE contrainte / allongement kPa	26,86	45,08	34,86	12,00	5,42	3,63	21,30
Diamètre sortie de carde (µm)	18,0	24,9	21,5	57,3	52,0	34,7	37,3

Tableau 42 Synthèse des propriétés générales des renforts

La méthode de préparation choisie consistant à trouver le meilleur compromis de cardage pour l'ensemble des fibres, puis a réaliser la consolidation avec les mêmes réglages d'aiguilletage montre déjà clairement des différences entre les supports fibreux réalisés pour les valeurs d'épaisseurs notamment mais également des propriétés mécaniques. Considérant ces résultats, nous pouvons aussi remarquer que les familles de fibres se distinguent fortement les unes des autres. Ainsi, si nous examinons les densités obtenues, nous pouvons regrouper en une seule famille les renforts en lin LIN DM, LIN RM et LIN AM avec le chanvre CHAN 2M qui ont tous une densité de 0,19 ou 0,18. Le point commun des fibres les constituant est le fait qu'elles ont reçu un rouissage en terre. Le CHAN 1 est non roui et l'épaisseur obtenue lors de sa préparation est plus importante entraînant une densité plus faible. Le kénaf KENAF BM, aussi est particulier avec une densité de seulement 0,11 liée à la forte épaisseur obtenue en sortie d'aiguilletage, mais également comme vu précédemment à la densité apparente de cette fibre qui nous a conduit à réaliser un nontissé également plus léger du point de vue de la masse spécifique.

Si nous examinons maintenant les caractéristiques mécaniques des renforts, et tout d'abord la force de rupture, nous pouvons distinguer très facilement deux catégories : Force de rupture supérieure à 200 N pour les renforts base de lin et force de rupture <100 N pour les fibres de chanvre et de kénaf

(entre 29 et 89 N) avec la valeur la plus faible pour le kénaf. Les valeurs d'allongement à la force maximale qui sont obtenues pendant le même essai, montrent de nouveau la supériorité des fibres de lin sur les fibres de chanvre et de kénaf. Les valeurs pour les renforts en lin sont supérieures en moyenne à 41,8% contre 31,9% pour le chanvre soit une différence sur ces valeurs de plus de 30%. Ces résultats sont logiques, puisqu'avec une plus grande force de rupture, on peut s'attendre à un plus grand allongement avec ce genre de renforts à fibres coupées dont la tenue (qui est faible) provient essentiellement du fait de d'adhérence des fibres les unes aux autres.

Examinons maintenant, les valeurs des modules d'élasticité de ces renforts calculées à partir de la valeur de contrainte rapportée à l'allongement. Ici nous retrouvons le même phénomène, c'est-à-dire une répartition des valeurs en fonction de la nature des fibres. Ainsi les meilleurs résultats sont obtenus par les renforts en lin, mettant donc la catégorie des renforts en chanvre et de kénaf bien en-dessous.

Si nous considérons maintenant les valeurs de flexion, ici encore, le point commun permettant de classer les matériaux est la nature des fibres, Ces valeurs sont placées sur une échelle de 12,03 cm pour le minimum et au maximum de 19,87 cm avec une moyenne de 16,5cm. La catégorie représentant les valeurs de flexion les plus faibles sont les renforts en chanvre avec une moyenne pour les deux matières de 12,6 cm, tandis que les renforts en lin obtiennent une longueur au-dessus de la moyenne à 18,0 cm soit une différence de 30%. Nous retrouvons ainsi la même différence de 30% entre le lin et le chanvre relevée sur la valeur d'allongement à la force maximale. Enfin, le kénaf lui est très au-dessus des autres matériaux à près de 19,87 cm. Cette fibre se démarque puisque qu'elle possède en même temps la valeur de flexion la plus importante, et la valeur d'allongement la plus faible.

Il ressort de ces observations qu'avec les mêmes paramètres de fabrication, les renforts réalisés à ce stade peuvent être départagés par la nature des fibres les composants. Il s'agit maintenant de tenter de déterminer quels paramètres intrinsèques des fibres vont réellement influencer les résultats obtenus sur les renforts.

Tout d'abord, si nous regardons les valeurs de contraintes de rupture des fibres. Ce paramètre ne semble pas un facteur important susceptible d'influencer les valeurs de résistance des nontissés (force de rupture), puisque pour l'ensemble des fibres de lin et de chanvre, les contraintes de rupture fibre sont comprises entre 736 et 894 MPa (moyenne à 778 MPa) avec un recoupement des domaines en prenant en compte les écarts types (en moyenne de 339 MPa). Le paramètre contrainte semble à ce stade donc équivalent pour l'ensemble des fibres. Une remarque que l'on peut cependant faire pour le kénaf est qu'avec une faible valeur de contrainte par rapport aux autres (585

MPa), cette fibre donne également une valeur significativement basse en termes de force de rupture du renfort, à seulement 29 ,82 N.

Si nous nous attachons maintenant aux modules d'élasticité des fibres, il ne semble pas y avoir une corrélation directe avec la résistance à la rupture des nontissés comme le suggère le graphique ci-dessous où nous avons représenté la force de rupture des nontissés en fonction des modules d'élasticité, puisque la répartition des valeurs semble parfaitement aléatoire.

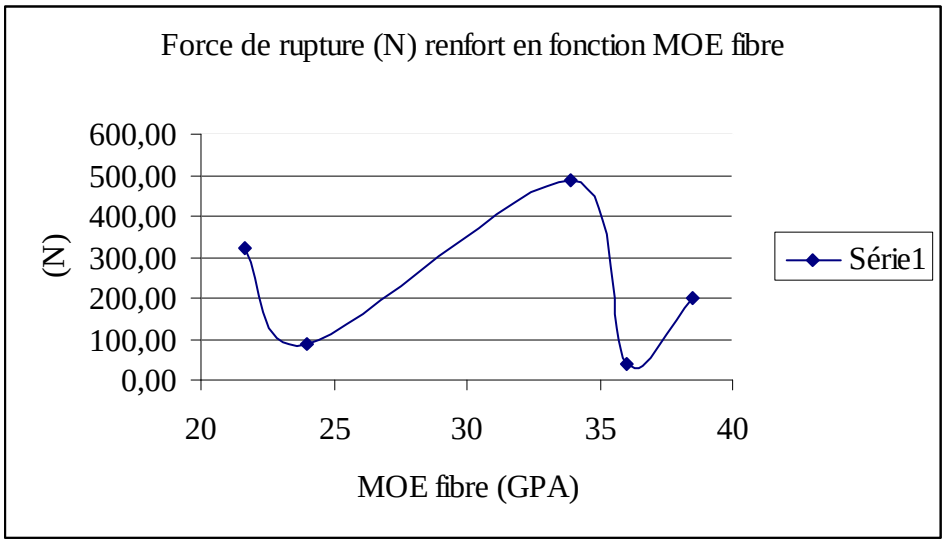


Figure 40 Influence de MOE fibre sur la force de rupture du renfort

Nous avons examiné si le module d'élasticité de la fibre et la valeur de flexion des renforts étaient corrélés. A ces fins, nous avons tracé la valeur de la flexion (en cm) des nontissés en fonction des MOE des fibres sur la figure ci-dessous. On constate une variation qui semble globalement aller vers une augmentation. La tendance est marquée de manière importante par les changements de nature de fibre avec le chanvre. Comme pour les valeurs de contraintes, nous ne pouvons pas affirmer qu'il y a une corrélation effective entre cette propriété intrinsèque de la fibre et son apport à la réponse mécanique du renfort.

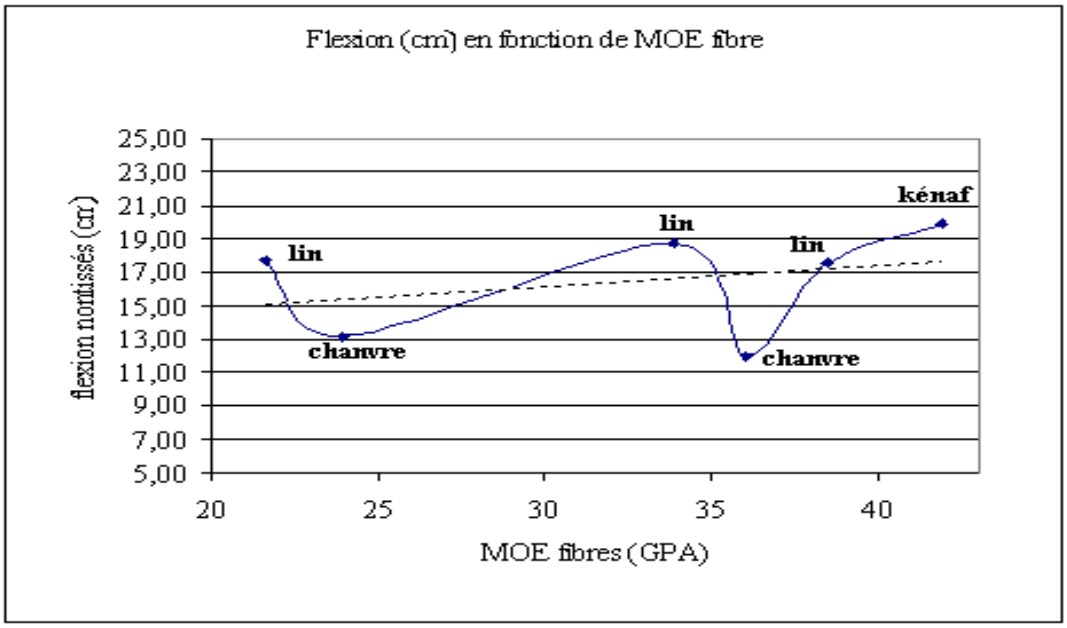


Figure 41 Flexion renfort en fonction MOE fibres

5.2.2- Discussion sur le glissement des fibres dans les nontissés :

Si les propriétés mécaniques intrinsèques (Contrainte et module d'élasticité) des fibres ne semblent pas modifier fondamentalement les propriétés mécaniques des renforts, il est possible que l'état de surface des fibres puisse avoir une influence particulière. Ainsi, un glissement des fibres dans le nontissé aura une importance sur la valeur résistance à la traction du nontissé (Force de rupture) et également sur sa valeur de flexion. Nous avions vu dans la partie dédiée à l'analyse du chanvre, que nous pensions que le rouissage pouvait modifier ces propriétés par une action sur la surface de la fibre. Avec la fibre CHAN 1, le nontissé préparé était d'une épaisseur plus importante que le renfort préparé avec la fibre CHAN 2 très rouie ; pour ce dernier, le glissement des fibres s'est révélé (même avec un simple test manuel) très caractéristique.

Sur le graphique suivant ci-dessous, nous avons positionné les pourcentages du taux d'extractibles à l'alcool toluène du groupe {graisses et cires} des fibres en fonction des résultats de flexion des renforts et en complément la courbe du taux de pectine.

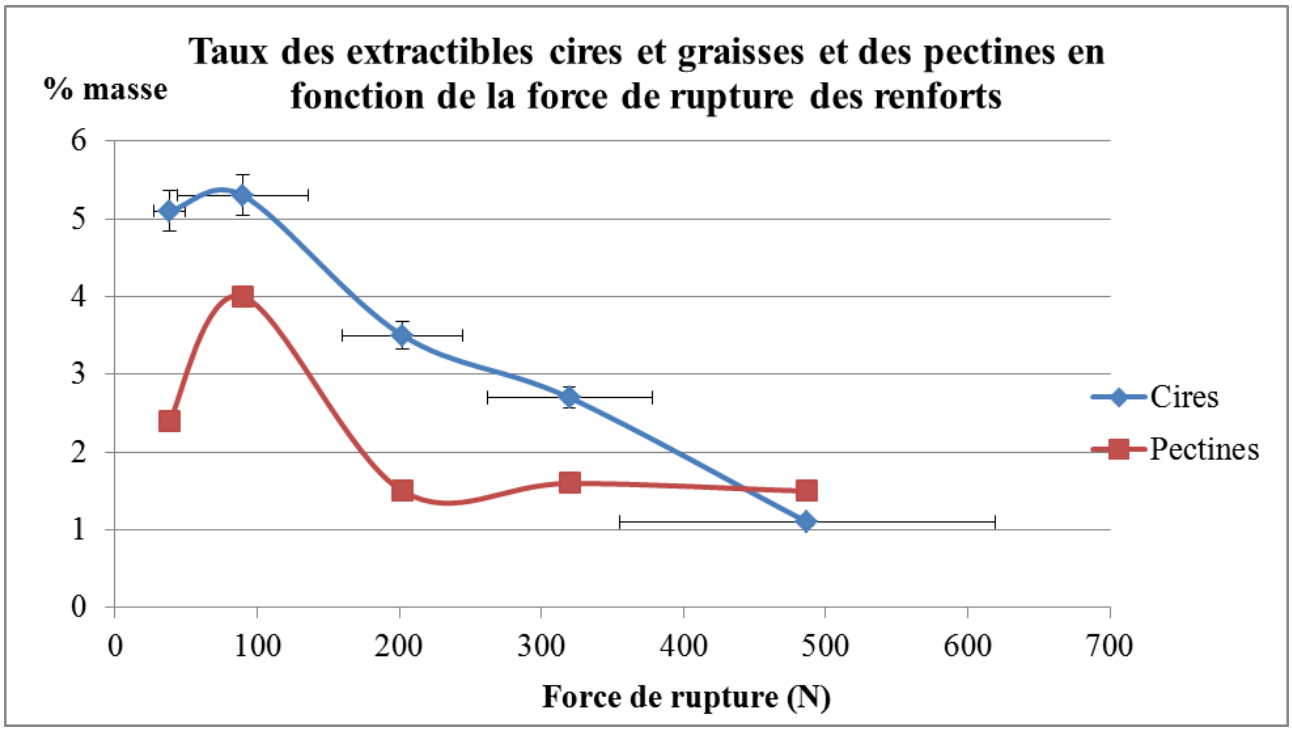


Figure 42 Taux des extractibles cires et graisses et des pectines en fonction de la force de rupture des renforts

Compte tenu du nombre relativement restreint de valeurs, il n'est bien sûr pas possible de tirer des conclusions certaines, cependant, nous pouvons quand même observer une tendance à l'augmentation de la force de rupture lorsque le taux de cires et graisses diminue. Le renfort en kénaf, compte tenu de l'épaisseur obtenu n'a pas été représenté sur ce graphique car il n'est pas vraiment comparable aux mats, ses fibres étant beaucoup plus espacées les unes des autres et donc avec des interactions fibres / fibres faibles.

Concernant le taux de pectine, nous pensions dans un premier temps que ce paramètre pourrait avoir une relation avec le paramètre de force de rupture du nontissé, en faisant baisser le glissement entre fibres entrelacées par l'aiguilletage (notamment avec les chanvres). Pour les autres fibres, il est difficile de se prononcer.

5.2.3- Discussion sur la composition chimique des nontissés :

Pour poursuivre nos investigations sur l'influence de la composition chimique des fibres, nous avons tracé la variation des taux de cellulose, des hémicelluloses et de leur total, c'est-à-dire le taux des holocelluloses, en fonction des valeurs moyennes des forces de traction obtenues avec les nontissés. Ce graphique figure ci-dessous.

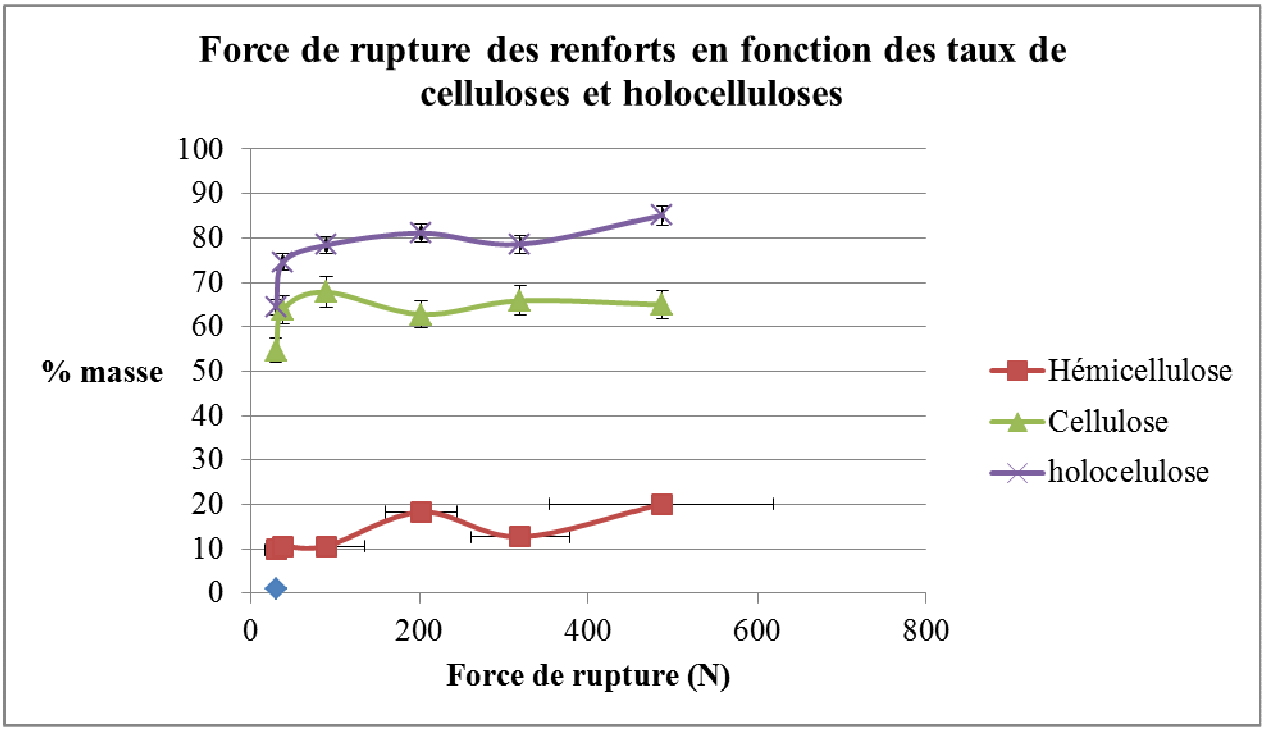


Figure 43 Force de rupture des renforts en fonction des taux de celluloses et holocelluloses

Ce que nous pouvons constater à la vue de ce graphique, c'est une augmentation globale de la force de rupture en fonction du taux des holocelluloses (cellulose + hémicelluloses). Si nous examinons la courbe formée précisément par le taux de cellulose, nous avons également une augmentation de ce taux qui va passer de 54,6% à 69% quand la force de rupture obtenue passe de 29 N à près de 488 N. Cette augmentation n'est pas tout à fait linéaire puisque qu'un creux est observable à 202 N (qui correspond au renfort de LIN DM). Cependant, ce creux semble compensé par une augmentation ponctuelle du taux des hémicelluloses, de telle sorte que le taux global formé par les holocelluloses suit une pente ascendante jusqu'à ce point.

Dans le chapitre précédent, nous avions comparé les contraintes obtenues par les fibres avec leurs compositions chimiques. La corrélation avec les contraintes des fibres semblait dans ce cas plus marquée avec le taux des holocelluloses (cellulose + hémicelluloses) qu'avec simplement le taux de cellulose seul. Pour rappel, la fibre la plus performante en terme de contrainte (LIN D) possède le taux d'holocelluloses le plus élevé (avec la fibre LIN R), tandis que la plus faible en contrainte montre le taux le moins élevé. Les fibres avant cardage ont des valeurs de contraintes assez rapprochées (sauf pour le kénaf) et nous avons vu qu'il est difficile de donner réellement une tendance sur la résistance des nontissés obtenus à partir de ces valeurs. Cependant, l'observation des graphiques ci-dessus semble montrer une relation entre la résistance de rupture du nontissé et directement la composition chimique de la matière. Ainsi, la corrélation avec le taux de cellulose

semble cette fois plus marquée dans le cas de nos fibres. Un fort taux de cellulose semble permettre la préparation d'un nontissé avec une bonne force de rupture. Une explication possible à ce phénomène est le fait que les fibres avec un taux de cellulose ont également un taux d'allongement élevé (voir partie 3.1-2, A% supérieur à 4% pour un taux de cellulose au-dessus de 64%). Cet allongement élevé assure une bonne capacité de travail à la fibre conférant une meilleure résistance aux contraintes des opérations de cardage et d'aiguilletage. A ce stade, il serait intéressant de compléter nos données sur les fibres avant cardage par une série de mesure de contraintes sur fibres après cardage pour bien quantifier le phénomène. En conclusion partielle, le taux de cellulose des fibres semble donc être un point particulier à surveiller dans l'objectif de donner des prévisions de résistance des nontissés.

Considérant maintenant la flexion par rapport au taux de cellulose et d'hémicellulose, nous avons tracé ci-dessous le graphique reprenant les valeurs mesurées sur l'ensemble des fibres. A la vue de cette figure, il ne semble pas y avoir de corrélation directe entre ces deux paramètres et nous ne nous y attarderons pas plus longuement.

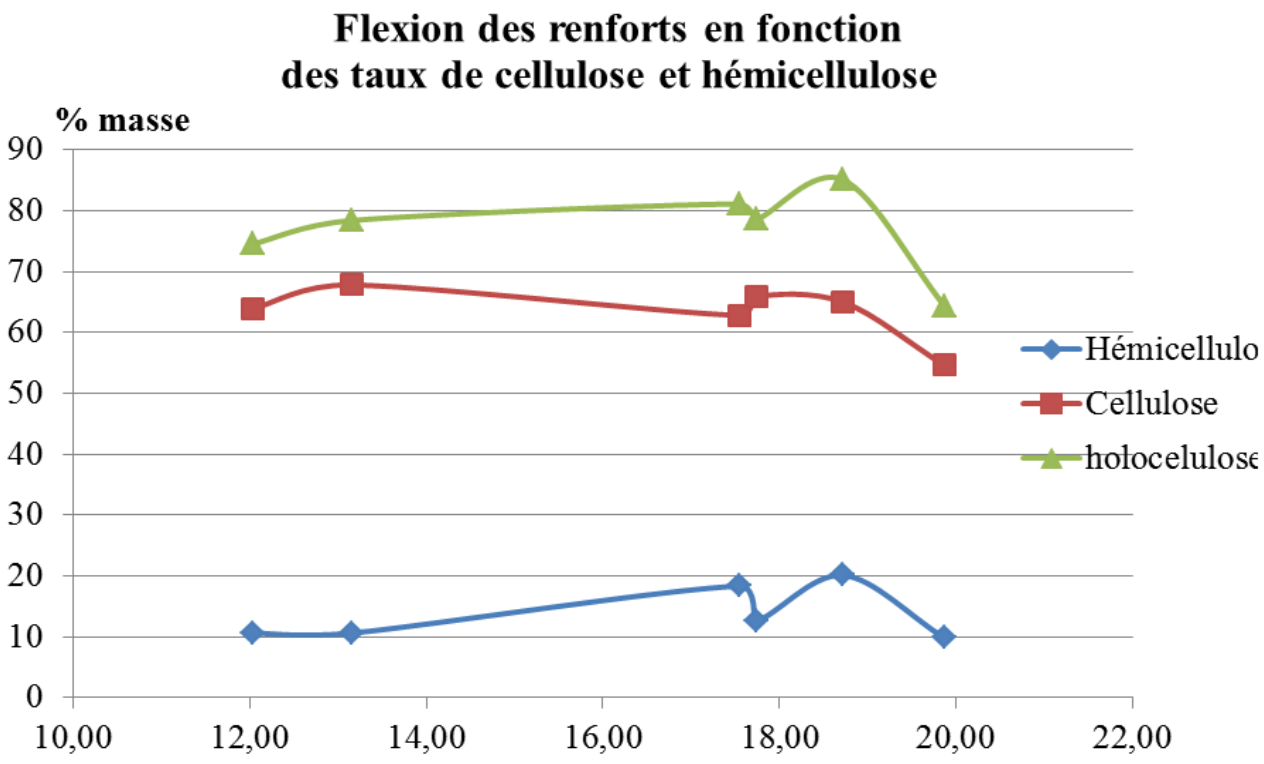


Figure 44 Flexion des renforts en fonction des taux de cellulose et hémicelluloses

Si nous regardons maintenant l'influence du taux de graisses et de cires sur le paramètre flexion des renforts, le graphique suivant nous montre une tendance à une baisse de la valeur de flexion avec l'augmentation du taux de cires. Comme précédemment les renforts réalisés avec la fibre de kénaf sont à part. Les fibres comportant le plus de cires et graisses sont donc celles des groupes des nontissés les moins rigides.

Une étude plus approfondie sur les taux de cires permettrait de vérifier l'hypothèse qu'une augmentation de ce taux permettrait un meilleur travail de cardage grâce à un bon glissement des fibres et faciliterait également l'entrelacement des fibres à l'aiguilletage. Les fibres sont aussi mieux réparties par les garnitures de la carde pour aboutir à un matériau très homogène. Cette caractéristique de glissement liée aux cires et graisses pourrait donc venir en complément de la capacité de travail de la fibre assurée par sa valeur élevée d'allongement

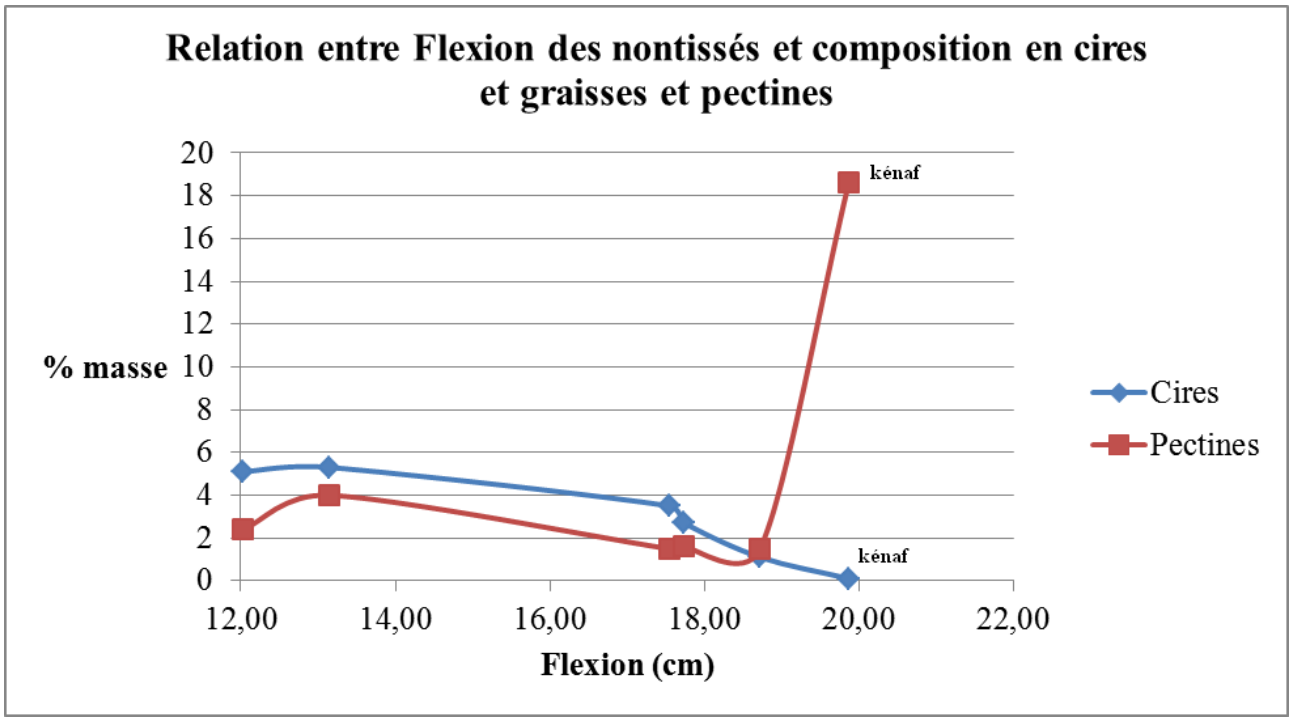


Figure 45 Relation entre Flexion des nontissés et composition en cires et graisses et pectines

5.2.4- Discussion entre diamètre des fibres et résistance de flexion

L'idée de cette discussion est de comparer maintenant les diamètres des fibres et de mettre en relation ce paramètre avec les valeurs de flexion des renforts. Sur le graphique suivant, nous avons tracé les valeurs des diamètres mesurés des fibres en sortie de carde et les valeurs de flexion des nontissés correspondants. Ce que nous pouvons constater à la vue de ce graphique est une répartition par nature des fibres sur la valeur de flexion. Les diamètres les plus petits vont amener

aux renforts la plus grande valeur de flexion. A l'inverse, les diamètres les plus élevés aboutissent à la valeur la plus faible de flexion.

Le même graphique est réalisé avec la force de rupture et amène à la même observation, c'est-à-dire une répartition par nature de fibre. Ainsi, un groupe dont les forces de ruptures sont les plus hautes est composé des fibres les plus fines c'est-à-dire les fibres de lin et un groupe composé des fibres de plus grands diamètres (aux environs de 55 µm) formant les renforts de chanvre montre la plus faible force de rupture (sous la barre des 100 N).

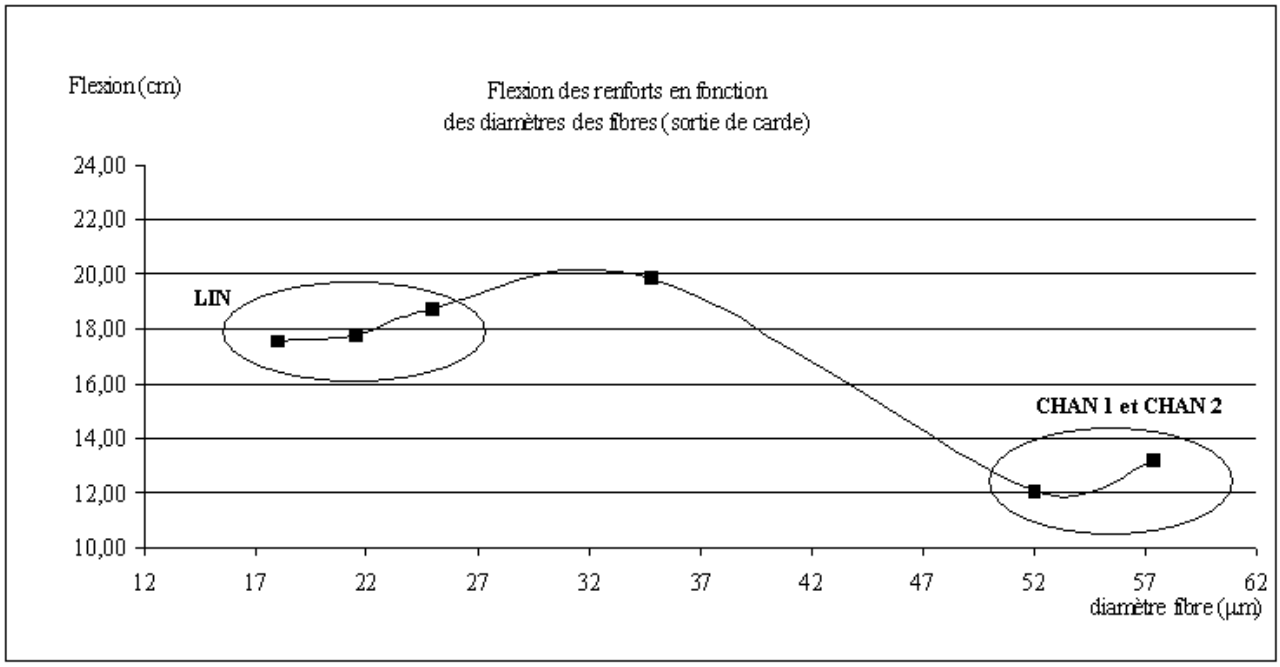


Figure 46 Flexion des renforts en fonction des diamètres de fibres

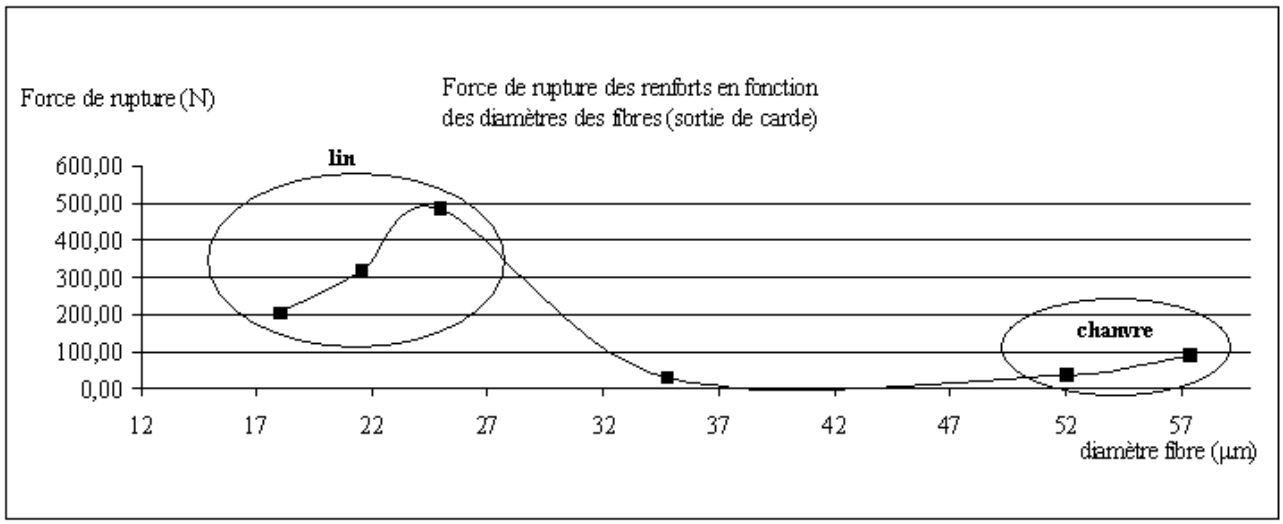


Figure 47 Force de rupture des renforts en fonction des diamètres des fibres (sortie de carde)

Il est possible que la cause de ces différences de flexion par nature de fibre soit en relation avec les paramètres choisis à l'aiguilletage.

A partir des diamètres des fibres mesurés à la sortie de la carde, c'est à dire à l'entrée de l'aiguilleteuse (le nappeur n'ayant pas d'influence sur ce paramètre), nous avons estimé le nombre de fibres entraînées par aiguille, en partant du principe que toutes les barbes rentrent en action. Pour rappel, la densité d'aiguilletage choisie pour cette étude est fixée à 50 coups par cm^2 pour l'ensemble des renforts réalisés. La taille des barbes étant variable nous avons basé le calcul sur la plus petite taille (160 µm). Les 3 barbes de 190 µm peuvent entraîner des fibres supplémentaires de petit diamètre. Donc dans ce tableau, les résultats avec les fibres de petit diamètre sont en principe dans une certaine mesure minimisés.

En toute logique, nous avons un aiguilletage qui sera le plus important avec les fibres mesurées les plus fines. Il s'agit des trois fibres de lin. Suivra ensuite le matelas constitué de kénaf puis enfin les deux matériaux à base de chanvre. La différence est finalement très importante entre les fibres de lin et le chanvre, puisque pour ce paramètre nous avons presqu'un facteur 4 séparant la valeur la plus faible du chanvre (17) à celles la plus élevée (56). Entre les deux chanvres, la différence est peu importante et ne semble pas suffisante pour expliquer la différence de résistance entre les deux renforts. Ces estimations du nombre de fibre emportées par aiguille et par coup en fonction du diamètre de fibres sont en relations avec les propriétés des renforts, puisque les nontissés les plus résistants en termes de forces de rupture ou de contrainte de rupture sont les renforts de lin dont les fibres sont donc les plus liées par l'aiguilletage.

		Réf GB 1002	Réf GB 53017
		Type B Non utilisé (Pour comparaison)	Type C
	Nombre de barbes	9	6
	Total taille de la barbe (µm)	280	160
			190
Type de fibre	Diamètre fibre en µm (En sortie de carde)	Nb de fibres emportées par coup d'aiguille pour une aiguille	
Chanvre théorique	40	63	24
CHAN 1	57	44	17
CHAN 2	52	48	18
Lin théorique	17	148	56
LIN D	18	140	53
LIN R	25	101	38
LIN A	22	117	45
Kénaf théorique	20	126	48
KENAF B	35	72	28

Tableau 43 Estimation du nombre de fibres emportées par une aiguille pour 1 coup d'aiguilletage

5.3- Les composites à matrice biosourcée

5.3.1- Propriétés générales

Dans le tableau suivant, nous avons reporté les données générales importantes concernant les biocomposites à résine naturelle afin de pouvoir les comparer les unes aux autres.

	LIN DT	LIN RT	LIN AT	CHAN 1T	CHAN 2T	KENAF BT	moyenne
Taux de fibres (%)	57,1	62,1	59,4	55,1	58,8	41,6	55,7
Masse surfacique (g/m²)	1323,2	1330,2	1342,6	1415,4	1387,9	1720,7	1420,0
Ecart type (g/m²)	106,2	103,4	80,6	139,9	116,3	190,9	122,9
CV masse %	8,0	7,8	6,0	9,9	8,4	11,1	8,5
Densité moyenne	0,95	1,03	1,00	1,03	1,03	1,22	1,04
Ecart type	0,08	0,01	0,09	0,10	0,09	0,11	0,08
CV densité %	8,4	9,7	9	9,6	8.6	9,0%	6,1
Epaisseur (mm)	1,40	1,21	1,31	1,44	1,40	1,42	1,36
Ecart type (mm)	0,07	0,06	0,03	0,12	0,06	0,14	0,08

Tableau 44 propriétés générales des biocomposites

Les commentaires que nous pouvons faire pour ces données générales concernent tout d'abord les taux de fibres.

Comme nous l'avions vu avec les analyses des composites par famille, nous avons obtenu des taux intéressants pour l'ensemble des biocomposites avec des valeurs au-dessus de 40% et une moyenne de près de 56%. Le biocomposite réalisé avec les fibres de kénaf montre la valeur la plus basse et fait descendre significativement la moyenne générale du taux de fibres. Sans le kénaf, elle serait supérieure à 58%. Le nontissé initial en kénaf étant le plus poreux, ce résultat semble logique avec la matrice qui avait beaucoup d'affinité avec la résine.

Cela nous amène à discuter des masses surfaciques. Là encore, l'ensemble des biocomposites se trouve dans une plage relativement contenue, entre 1300 et 1420 g/m². Cependant, de nouveau le composite en kénaf se distingue avec une masse surfacique de plus de 1720 g/m².

Les écarts types et les coefficients de variation de ce paramètre (masse surfacique) sont relativement constants et restent raisonnables pour l'ensemble des biocomposites préparés. Si nous comparons les coefficients de variation de masse pour les échantillons de renforts, nous observons quand même une dégradation, puisque nous avions en moyenne un CV masse sur les renforts de 4,5 % et qui est à présent passé à un peu moins de 10 % pour l'ensemble des biocomposites. Cette dégradation du CV% montre que nous n'avons pas globalement une compensation des irrégularités de masse des renforts pas le processus d'imprégnation de matrice et de pressage des composites. Cela est logique puisque nous avons obtenu des composites avec un taux de matrice modéré et à priori optimal.

Malgré l'utilisation de cales (ou stopper) pour calibrer les épaisseurs des renforts imprégnés de résine dans la presse à chaud, nous avons mesuré des épaisseurs variant en fonction des fibres et du taux de résine, pour aboutir donc à des densités différentes.

Ces épaisseurs sont contenues dans une plage relativement restreinte, avec un écart type en moyenne de 0,08 mm. Les plus fortes variations sont relevées pour les fibres n'ayant pas subi de rouissage en terre, c'est-à-dire le chanvre CHAN 1T et le kénaf. Par rapport à la moyenne, le chanvre CHAN 1T se trouve au-dessus avec 1,44 de densité alors que le kénaf a l'une des plus faibles valeurs avec seulement 1,36. Mais comme vu précédemment, compte tenu des écarts types, ces différences entre matériaux ne sont pas très importantes et nous sommes bien dans une même catégorie de densité.

5.3.2- Propriétés mécaniques

5.3.2.1- En traction

Les résultats de la campagne des essais en traction ont été reportés dans le tableau ci-dessous.

	LIN DT	LIN RT	LIN AT	CHAN 1T	CHAN 2T	KENAF BT	moyenne
Contrainte normale (MPa)	39,10	64,32	40,50	30,13	32,31	45,59	42,0
Écart type	6,3	5,8	3,2	6,5	7,5	10,1	6,5
Contrainte spécifique (MPa)	39,1	59,1	39,1	27,3	31,7	37,3	38,9
Écart type	6,3	5,4	4	3,1	8,9	7,2	5,8
MOE (MPa)	4734	6285	5431	4011	4209	4760	4905
Écart type	1006	777	774	698	607	675	756
MOE spécifique (MPa)	5217	5693	5257	3805	4119	3844	4655
Écart type	960	732	873	324	810	570	711

Figure 48 Résultat campagne de traction des biocomposites

En termes de contraintes de rupture en traction, il semblerait que deux grandes familles de fibres soient distingables. Ainsi, les biocomposites à base de lin obtiennent en moyenne une contrainte à 48 MPa, tandis que les biocomposites à base de chanvre sont en moyenne à 31,2 MPa. Le biocomposite en kénaf pourrait être rattaché à la famille des biocomposites en lin avec sa valeur de contrainte à 45,6 MPa. Si nous tenons compte des écarts types, les domaines de ces deux familles se recoupent et finalement, les biocomposites sont tous très proches pour ce paramètre de contrainte.

Une fois ramenées en contrainte spécifique, les différences s’amenuisent puisque le biocomposite à base de kénaf est sensiblement plus dense. Cependant, la tendance générale est conservée avec LIN > KENAF >CHAN. Si nous tenons maintenant compte des écarts types des contraintes spécifiques, les domaines se recouvrent entre les composites en chanvre et en kénaf.

S'agissant maintenant des modules d’élasticité, les matériaux à base de lin semblent meilleurs, exception faite peut être du LIN DT qui est à peu près équivalent au kénaf. (4734 MPa et 4760

MPa). Les biocomposites en chanvre semblent en moyenne moins performants. Toutefois, si nous tenons compte des écarts types, ils restent finalement comparables au LIN DT et au kénaf. Le passage au module d'élasticité spécifique en ramenant le MOE à la densité, fait ressortir deux familles : les biocomposites de lin et les autres (chanvre et kénaf).

Si nous nous référons aux résultats des propriétés mécaniques des fibres brutes, il est difficile de trouver une relation entre les MOE obtenus sur les biocomposites et les valeurs de contraintes fibre.

Comme les taux de fibres des biocomposites ne sont pas les mêmes, nous pourrions nous demander ce que donnerait une comparaison des contraintes en pondérant les propriétés spécifiques des fibres par ces taux de fibres. C'est ce que nous avons fait, sans que cela nous conduise à des résultats probants, compte tenu des écarts types importants obtenus sur les propriétés spécifiques des fibres individuelles, et qu'en plus les différences entre les composites ne sont pas si importantes (ce qui d'ailleurs était un de nos objectifs).

Nous pouvons donc à ce stade faire la remarque que beaucoup de transformateurs travaillent aujourd'hui avec le kénaf pour la réalisation de composites, alors que nous avons obtenu de bons résultats avec nos fibres de chanvre et encore de meilleurs avec la fibre de lin.

Par contre, s'agissant des propriétés en contrainte de traction relevées sur les renforts avant imprégnation et thermocompression, il semblerait que les propriétés des renforts soient cette fois en relation avec les propriétés finales des biocomposites, puisque les renforts à base de lin présentaient les plus hautes valeurs de contraintes de rupture (et également une bonne rigidité au test de flexion). Sur la figure ci-dessous, nous avons représenté les variations obtenues pour des contraintes spécifiques des composites en fonction des contraintes obtenues avec les renforts. Sur ce graphique, la corrélation aurait pu être nettement améliorée si nous avions supprimé les données du kénaf dont l'épaisseur finale est importante en sortie d'aiguilletage. Nous pouvons y voir une corrélation intéressante suivant une loi normale de ces deux paramètres.

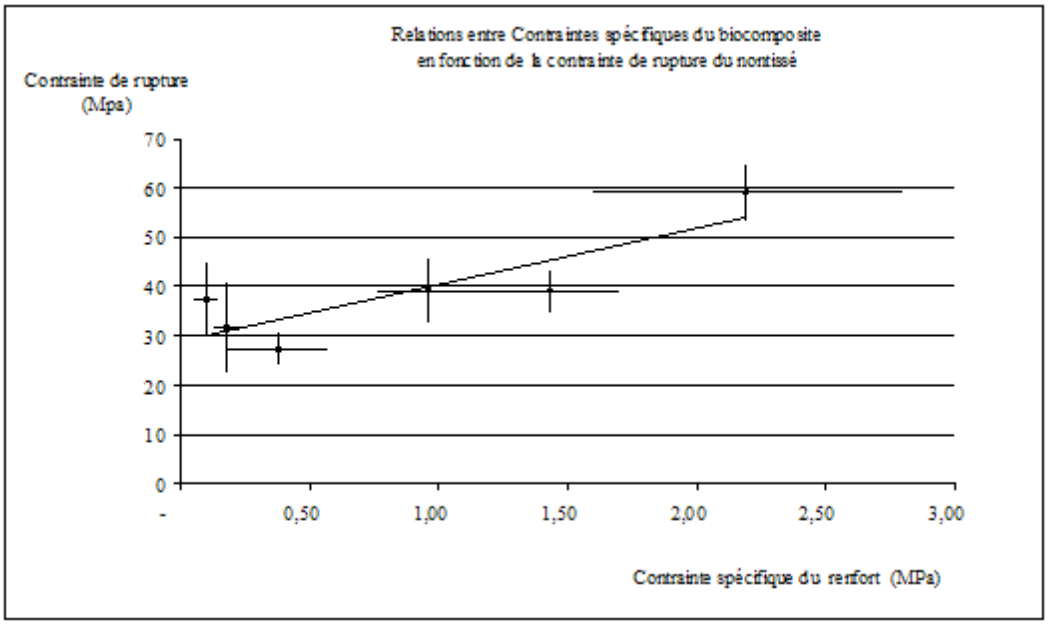


Figure 49 Relation entre contraintes spécifiques des biocomposites et contrainte de rupture des nontissés

Nous avons également mis en relation les valeurs de perméabilité à l'air mesurées sur l'ensemble des renforts et directement la valeur de contrainte spécifique en traction sur le biocomposite. Il se trouve que finalement nous pouvons bien observer une tendance s'approchant d'une loi normale. Cette valeur de perméabilité aurait ainsi l'avantage de faire une synthèse d'un certain nombre de facteurs d'améliorations et de complications comme les caractéristiques propres des fibres (mécanique, morphologie et chimique), le placement des fibres par la carde, le nappeur et enfin l'aiguilletage. Tous ces paramètres auront bien évidemment un impact sur l'imprégnation et l'adhésion avec la matrice.

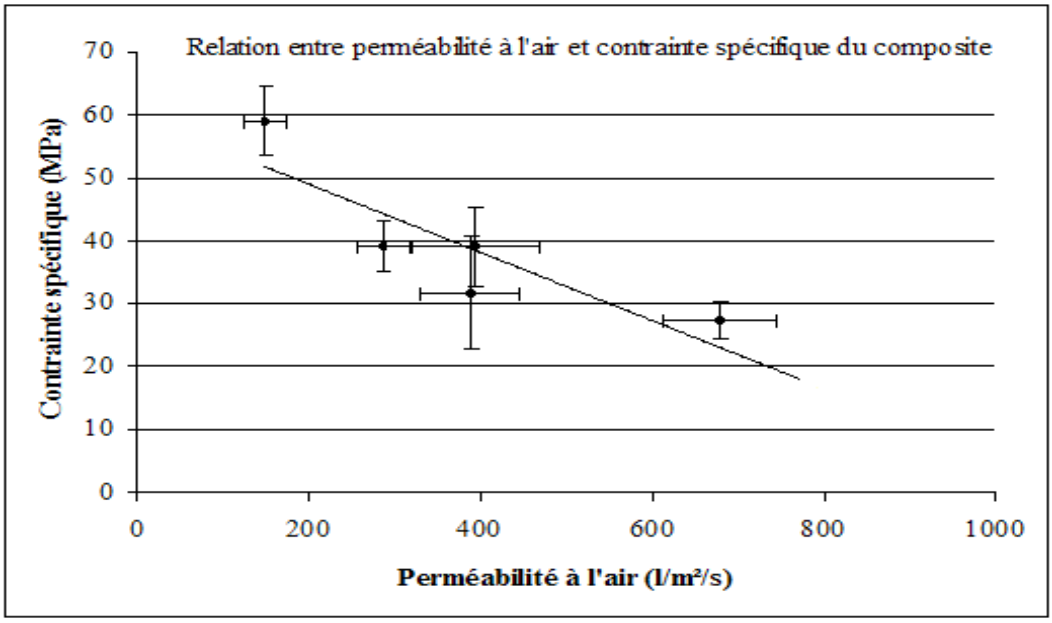


Figure 50 relation entre perméabilité à l'air et contrainte spécifique du composite

Sur le graphique suivant, nous avons de la même manière, représenté les modules d'élasticité obtenus en fonction de la perméabilité à l'air des renforts. La tendance est la même avec une augmentation du module d'élasticité avec la baisse de la perméabilité. Ce test de perméabilité pourra constituer, à terme, un outil intéressant dans l'optique de disposer d'un test non destructif applicable aux renforts.

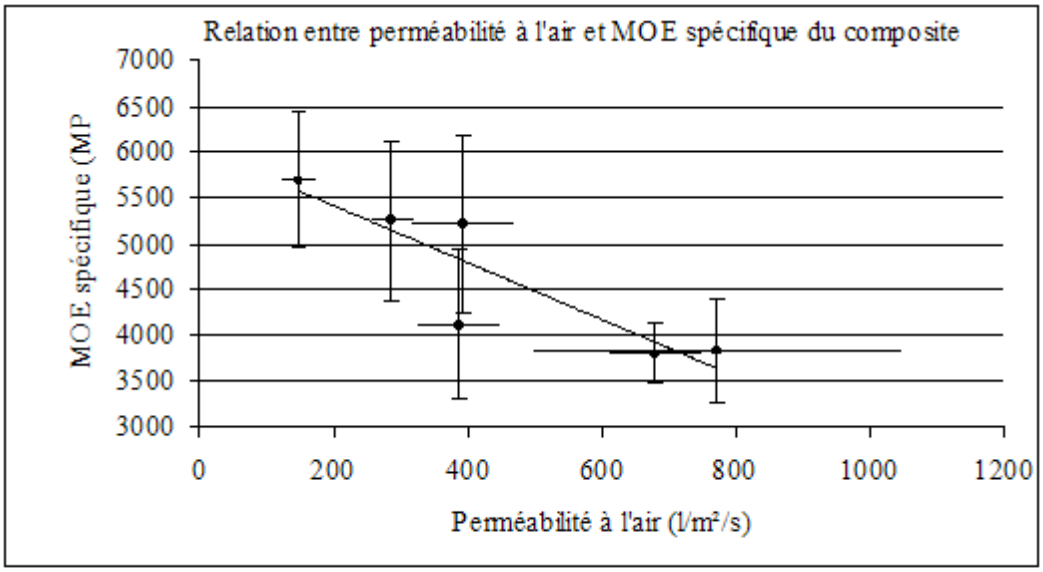


Figure 51 Relation entre perméabilité à l'air et MOE du composite

5.3.2.2- En flexion

Les valeurs obtenues en caractérisation au banc de flexion 3 points pour l'ensemble des biocomposites réalisés avec les six types de fibres ont été reportées dans le tableau ci-dessous.

	LIN D	**LIN R**	**LIN A**	**CHAN 1**	**CHAN 2**	**KENAF B**	**moyenne**
Contrainte normale (MPa)	68,5	88,1	57,4	62,4	75,6	98,8	75,1
Ecart type	10,6	13,9	10,9	10,5	10,6	4,4	10,2
Contrainte spécifique (MPa)	77,30	87,80	57,90	60,93	72,97	88,60	74,3
Ecart type	9,22	10,61	10,19	7,91	11,32	5,53	9,1
MOE (MPa)	6006	7242	6313	5051	5492	6665	6128,2
écart type	715	1006	985	681	649	494	755,0
MOE spécifique (MPa)	6432	7220	6377	4786	5293	5968	6012,7
écart type	562	797	935	749	633	747	737,2

Tableau 45 Résultats en flexion des biocomposites

S'agissant des valeurs obtenues lors des tests de flexion, que l'on s’intéresse aux valeurs de contraintes normales ou aux spécifiques, les familles s’avèrent être beaucoup moins distinguables.

Si l’on considère les domaines des écarts types pour le paramètre contrainte normale, les biocomposites LIN R et kénaf sont les plus performants. Les autres se recoupent avec une distinction entre LIN D plus le chanvre CHAN2 et les plus mauvais : LIN R et kénaf > LIN D et CHAN 2 > LINA + CHAN 1.

Pour les biocomposites LIN R et kénaf qui sont au-dessus des autres, cela semble logique, si nous considérons les propriétés en flexion des renforts avant imprégnation. Ainsi, la moyenne des longueurs de flexion pour ces deux biocomposites est de 19,3 cm, pour aboutir à une contrainte normale moyenne de 93 MPa. Mais cette propriété de flexion n’est certainement pas le seul facteur, puisque les biocomposites LIN A et LIN D dont les renforts ont de bonnes propriétés en flexion ne conduisent pas à des composites les plus performants en flexion.

Quand on passe en spécifique, les biocomposites LIN D et LIN R, CHAN 2 et kénaf ont des domaines de valeurs en commun. Nous pouvons également constater que le biocomposite LIN A et le chanvre CHAN 2 restent les composites les moins performants.

Si nous considérons maintenant les modules d'élasticité, deux grandes familles se distinguent, à savoir d’un côté les biocomposites en chanvre avec le kénaf, et de l’autre côté les biocomposites en fibres de lin. Contrairement à ce qui se passait en traction avec le biocomposites en LIN R, c’est ici le kénaf qui donne de meilleurs résultats.

En rapportant les modules d’élasticité à la densité, les domaines des écarts types se resserrent pour les matériaux en lin. Ils restent sensiblement les mêmes que pour les matériaux en chanvre. Par contre, le kénaf, avec sa densité supérieure aux autres s'éloigne du groupe des biocomposites en lin.

Nous avons tenté de mettre en relation ces variations avec d'autres propriétés mécaniques et plus particulièrement la longueur de flexion des renforts. Nous avons donc positionné les valeurs des MOE des biocomposites en fonction des longueurs de flexion des renforts sur la figure ci-dessous.

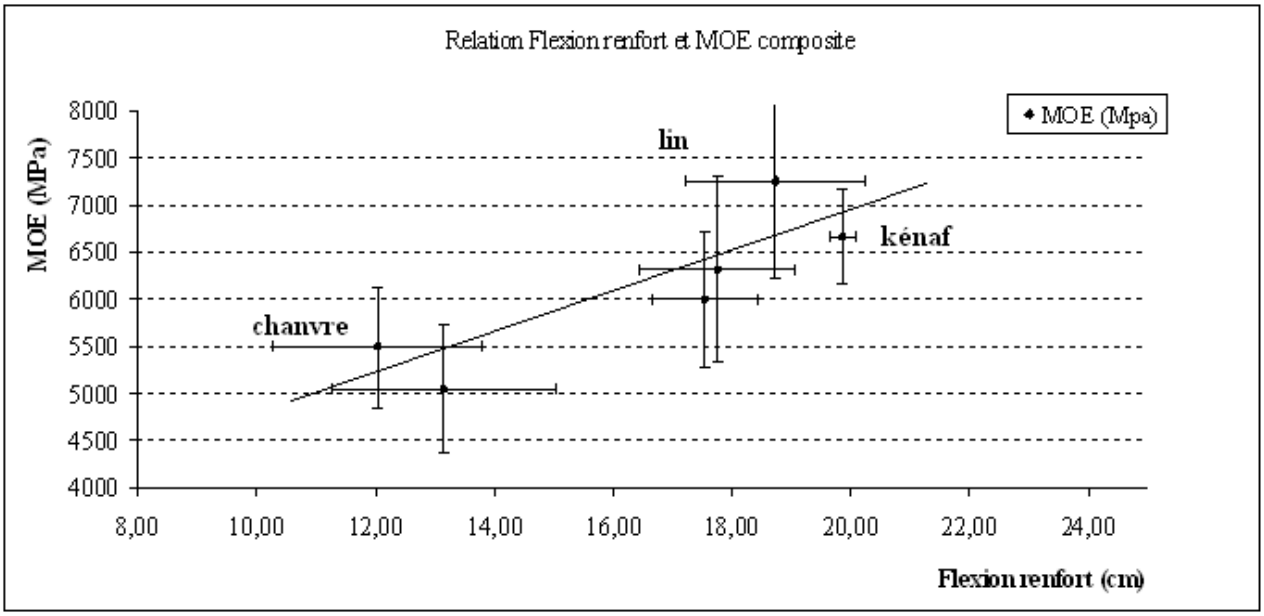


Figure 52 Relation entre flexion du renfort et MOE du composite

Comme nous pouvons le constater, il semble que les deux grandeurs soient corrélées par une loi normale. Même s'il a été réalisé un nombre considérable de tests, il serait intéressant de disposer d'un renfort qui aurait une valeur de longueur de flexion intermédiaire entre les deux familles et confirmer que son MOE soit voisin de 6 GPa. Il serait donc nécessaire de trouver une fibre qui puisse aboutir à un renfort proche de 800 g/m², 16 cm en longueur de flexion et avec une contrainte proche de celle des renforts et pouvant finalement aboutir à un composite dont la masse surfacique soit proche de 1360 g/m² (Moyenne des biocomposites sans le kénaf), d'une densité poche de 1,04 et d'une épaisseur voisine de 1,4 mm.

Il est probable que si à la sortie de l'aiguilleteuse, le renfort basé sur la fibre de kénaf avait subi un écrasement le ramenant à une épaisseur proche de la moyenne des autres renforts (vers environ 4,5 mm), ce nontissé aurait certainement une plus grande rigidité avec une longueur de flexion certainement plus faible. Avec cette supposition, le kénaf serait alors pleinement dans le domaine des biocomposites à base de lin.

5.4- Les composites à matrice synthétique

5.4.1- Propriétés générales

Dans le tableau suivant, nous avons reporté les données générales importantes concernant les composites à résine chimiques afin de pouvoir les comparer les unes aux autres.

	DEHONDT	SAFILIN	AGYLIN	CHANVRE 1	CHANVRE 2	Kenaf	MOYENNE
Epaisseur (mm)	2,67	3,05	3,01	3,79	3,40	3,74	3,28
Ecart type	0,04	0,28	0,10	0,11	0,24	0,11	0,15
CV	1,5%	9,2%	3,3%	2,9%	7,1%	2,9%	0,04
DENSITE MOYENNE	1,10	1,15	1,10	1,12	1,07	0,90	1,07
Ecart type	0,02	0,03	0,03	0,03	0,01	0,06	0,03
CV%	1,8	2,6	2,7	2,7	0,9	6,7	2,9
taux de fibres (%)	22,20	23,81	20,53	22,70	24,83	17,56	21,94
Masse surfacique (g/m²)	2 950,5	3 493,9	3 302,0	4 228,7	3 644,8	3 374,0	3499,0
Ecart Type	25,52	309,48	118,46	149,34	42,05	156,15	133,50
CV %	0,9	8,9	3,6	3,5	1,2	4,6	3,8

Tableau 46 Propriétés générales des composites à résine synthétique

Les composites à base de renfort en lin sont moins épais que les autres. Les nontissés étant relativement proches au départ, il est possible que le lin soit plus sensible au phénomène d'écrasement pour ce type de process.

Les densités sont bien proches les unes des autres, si l'on excepte le cas du kénaf et donc voisine de celle de la résine (1,10). Nous avons déjà donné une explication possible à cette faible valeur de densité obtenue pour le kénaf.

Mis à part le kénaf, la densité moyenne étant à peu près constante, la masse spécifique du composite final est directement proportionnelle à son épaisseur.

Dans le cas du kénaf, la densité est faible, mais elle est compensée par une forte épaisseur et donc la masse surfacique se retrouve dans la moyenne de la série.

Les taux de fibres sont autour de 23,4 % si nous excluons le kénaf et le lin LIN A. La moyenne est proche de 22 %.Dans le cas du kénaf, nous pouvons expliquer la faible valeur obtenue d'une part par une épaisseur importante du composite final qui se traduit par un taux de résine important. D'autre part, le nontissé de kénaf a été réalisé avec une masse surfacique en-dessous de la moyenne à 672 g/m² pour des raisons de process liée à la faible densité de la fibre (voir partie précédente sur

le composite chimique et renfort kénaf). La faible teneur en fibre du composite à base de lin LIN A vient d'un nontissé hors catégorie en termes de surface spécifique pour cette série de composites chimiques.

5.4.2- TRACTION

Les résultats en traction des composites avec matrice chimique sont regroupés dans le tableau ci-dessous :

	LIN D	LIN R	LIN A	CHAN 1	CHAN 2	KENAF B	RESINE	MOYENNE
Contrainte normale (MPa)	47,1	85,3	57,8	45,9	47,6	42,5	80 à 83	54,4
Ecart type	1,3	6,6	2,6	5	4,8	1,08		3,6
Contrainte spécifique (MPa)	42,7	74,3	52,7	41,1	44,4	47,2	73 à 75	50,41
Ecart type	1,6	9	1,1	3,8	4,8	3,7		4,00
MOE (MPa)	3869	5203	3975	3759	3358	2738	3450 à 3600	3817
Ecart type	293	686	320	658	429	316		450
MOE spécifique (MPa)	3505	4542	3624	3365	3135	3049		3537
Ecart type	285	632	218	551	436	536		443,00

Tableau 47 Résultats en traction des composites à résine synthétique

Globalement, nous pouvons constater que pour ces composites à matrice chimique, les fibres en LIN R aboutissent à un composite qui se distingue avec des propriétés mécaniques bien au-dessus des autres matériaux réalisés à plus de 85 MPa quand la moyenne est de 54,37 MPa. Dans ces autres matériaux, le composite basé sur la fibre LIN A se positionne légèrement mieux avec une contrainte de 52,7 MPa légèrement supérieure aux autres composites qui sont en moyenne à 43,8 MPa en contrainte (ce qui correspond à peine à un peu plus de la moitié de la valeur donnée pour la résine).

Les remarques restent à peu près les mêmes quand on rapporte la contrainte à la densité. Globalement, nous atteignons en moyenne 50,41 MPa ± 12,4 en contrainte spécifique pour l'ensemble des composites à résine chimique.

La tendance se confirme aussi avec les modules d'élasticité. Seul le composite de qualité LIN R semble jouer son rôle de renfort, puisque pour tous les autres composites, les renforts n'apportent

aucune amélioration sur les MOE, et la présence des fibres semble même affaiblir les propriétés mécaniques de la matrice.

Nous mesurons ici les différences d'affinité et l'influence de la préparation mais aussi de la qualité de la résine puisque les biocomposites kénaf / tanins montraient de bonnes propriétés.

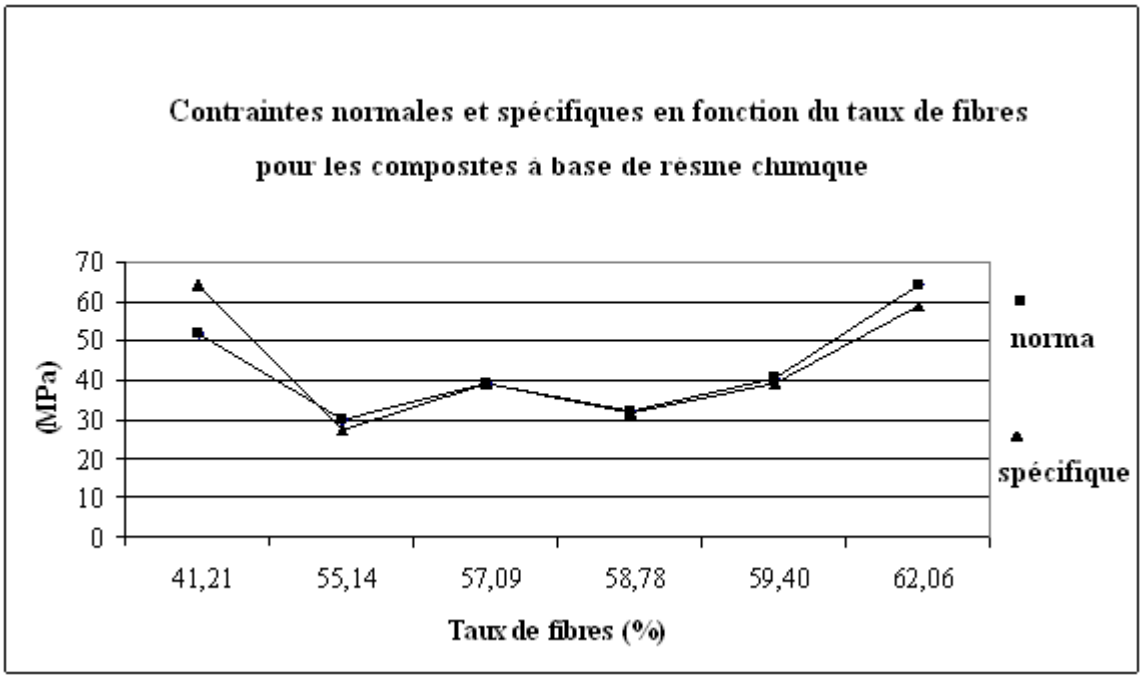


Figure 53 Contrainte en fonction du taux de fibres pour les composites à résine synthétiques

On voit que le taux de fibre ne change pas vraiment les contraintes normales mais aussi spécifiques qui restent constante entre 40 et 50 MPa. Le pic du milieu correspond aux fibres de lin R qui sont les seules à permettent de dépasser les valeurs de la résine seule.

Pour les MOE, en traçant la courbe de tendance linéaire, on peut observer une augmentation de cette valeur qui passe d'ailleurs au-dessus de la valeur MOE de la résine seule (3500 MPa) donnée par le fournisseur.

CONCLUSION GENERALE

Ce travail contribue à la préparation et au développement de matériaux composites performants biosourcés à plus de 98% (fibres naturelles et matrice à base de tannins) et répondant parfaitement aux tendances et aux exigences technico économiques du marché. Cette étude regroupe un certain nombre d'étapes depuis la description des fibres et de leurs caractéristiques essentielles jusqu'à l'élaboration des matériaux finaux en passant par la mise au point et l'optimisation des organes mécaniques permettant la constitution d'un nontissé. Les voies que nous avons choisies au cours de ce travail nous ont permis d'appréhender et de mettre en évidence l'importance de la qualité des fibres sur les propriétés mécaniques et structurales des matériaux développés.

La première partie qui balaie l'essentiel des procédés de fabrication des composites à base de fibres naturelles ainsi que leur champs et secteurs d'application a orienté notre recherche sur la nécessité de mettre au point le procédé de base dont nous disposions. Le système de thermocompression sélectionné et développé demande certes un investissement bien plus lourd qu'un système de préparation de composite par infusion, mais il autorise ensuite la possibilité de travailler à des cadences bien plus importantes. Les possibilités de transfert vers l'industrie sont à ce titre, nombreuses.

Nous avons dans le deuxième chapitre décrit les méthodes mises au point pour caractériser les renforts ainsi que les composites. Ces travaux ont permis d'amorcer la création d'une base de données unique et très précieuse au laboratoire, qui pourra être alimentée par les résultats sur de nouvelles fibres et complétée par de nouveaux développements et tests complémentaires comme la résistance thermique et la résistance aux attaques biologiques.

Le troisième chapitre décrit de façon technique la mise en route de la ligne de production du CETELOR permettant la préparation de renforts innovants à base de fibres libériennes par voie nontissé. C’est sans conteste et sans prétention une étude très originale puisque peu de laboratoires de recherche disposent de ce type de matériel et d’une ligne pilote compte tenu de la spécificité des machines et des difficultés à parfaitement maîtriser les différentes étapes du process. Les renforts réalisés ont été faiblement aiguilletés dans le but de préserver les propriétés mécaniques des fibres et de permettre une bonne accessibilité de la résine. Nous avons constaté une plus grande variabilité des résultats sur les propriétés mécaniques des renforts qu'entre les différentes fibres utilisées. Le process de préparation des fibres et du cardage semble avoir son importance, mais c'est plutôt une bonne combinaison de propriétés qui permet d'arriver à un renfort avec déjà des caractéristiques mécaniques intéressantes, renfort qui pourra potentiellement à son tour déboucher sur un biocomposite performant.

La quatrième partie a consisté à préparer une première série de biocomposites à base résine tannin / hexamine et de résine époxy en utilisant plusieurs fibres seules ou en mélanges. Plusieurs catégories de masses surfaciques ont été préparées en simple, double ou triple épaisseurs par assemblage à l’aiguilletage. L’imprégnation manuelle a été employée et les valeurs de taux de fibres sont restées relativement faibles. En utilisant les mêmes supports, mais avec le process d’infusion, les taux de fibres sont restés dans des valeurs assez basses. Les composites ont étés caractérisés en flexion et en traction. Il semblerait que la valeur de densité idéale soit proche de 1,1.

La cinquième partie nous a permis d’approfondir la réflexion sur l'intégration des fibres libériennes dans un biocomposite. Ainsi, pour limiter les facteurs de complications, les paramètres d'aiguilletage et de cardage ont été fixés à un niveau relativement faible et identique pour toutes les fibres. Les composites ont été réalisés avec des paramètres de pressage constants. Les fibres sélectionnées ont été caractérisées chimiquement et physiquement. Les performances mécaniques sont intéressantes, car nous avons réalisé des matériaux dont les modules d'élasticité atteignent 6 GPa en flexion et en traction. Pour les contraintes, les moyennes atteignent 42 MPa et 75Mpa respectivement en traction et en flexion. Le fait de travailler avec 6 fibres différentes a

permis dégager des propriétés et des caractéristiques particulières les différenciant, comme par exemple les diamètres. La famille de fibre amenant aux matériaux les plus performants est la famille des fibres de lin, mais pour les autres, il est difficile de voir directement un niveau de performances mécaniques directement lié aux propriétés intrinsèques des fibres. Par contre, il est possible de mettre en relations les propriétés mécaniques des nontissés avec les propriétés finales des composites à partir de tests simples comme la mesure de la perméabilité, de l'épaisseur et de la masse spécifique du mat. La composition chimique, et en particulier le taux de cellulose, semble apporter à la fibre une meilleure capacité d'allongement et de ce fait une plus grande résistance aux sollicitations lors du process fibre. Les fibres avec moins de cellulose ou plus de lignine, sont certes plus rigides, mais en finalité, les composites dont elles font office de renfort ne sont pas aussi performants qu'espéré. Si les fibres de lin ont conduit aux meilleurs résultats, nous pouvons penser qu'à terme, en travaillant sur une bonne préparation des fibres de chanvre et un cardage bien adapté, nous pourrions largement atteindre les propriétés des biocomposites de fibres de lin.

Perspectives

Même si le travail accompli au cours de cette thèse va au-delà d'une simple étude prospective, le sujet reste très largement ouvert. Sans vouloir être exhaustifs, quelques perspectives de prolongement se détachent.

Tout d'abord, la préparation des composites à base de résine chimique nous a permis d'approfondir l'analyse de facteurs importants sur la réponse mécanique des matériaux. Nous avons montré que le rapport matrice / fibres est resté assez faible (en-dessous de 25% en masse). En corollaire on peut imaginer un process d'infusion couplé à une compression qui aurait pour effet d'augmenter les taux de fibres et de faire en sorte que celles-ci accomplissent vraiment le rôle de renfort pour lequel elles ont été pensées. Nous avions également évoqué à ce stade l'intérêt potentiel d'améliorer l'adhérence inter faciale entre fibre et matrice plus particulièrement via un traitement des fibres qui pourrait faciliter leur mouillage.

Ensuite, s'agissant des composites entièrement biosourcés, l'idée d'une amélioration de l'interface fibres/matrice reste également valable. Dans le souci de conserver à ces matériaux leur caractère écoconçu, il serait préférable ici d'envisager des traitements sur les fibres d'origine

plutôt physique (plasma, UV, micro ondes, explosion à la vapeur…) sans écarter cependant les traitements chimiques. Il serait également intéressant d'étendre la prospection à d'autres polymères biosourcés et l'on peut évoquer ici les résines à base de tannins d'acacia, de pin, de pécan, de qebracho ou même d'épicea. Des mélanges de tannins avec des lignines de bas poids moléculaires pourraient également être envisagés. L'ensemble des ces études permettrait probablement d'approcher et d'appréhender de façon plus fine les propriétés d'adhésion au cœur de l'interface.

Les matériaux préparés au cours de cette thèse ont montré des propriétés qui en font des candidats plus que sérieux dans une perspective de remplacement des composites couramment utilisés mais le champ de recherche reste encore largement ouvert.