UNIVERSITÉ DU QUEBEC À TROIS-RIVIÈRES

TITRE DU MÉMOIRE

ÉTUDE DE L'EFFET DE LA FIBRILLATION DE SURFACE DES FIBRES COURTES DE LIN SUR LES PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES ET AU MOULAGE DE COMPOSITES LIN-ÉPOXY FAITS DE RENFORTS UNIDIRECTIONNELS DE LIN À LIANT MAT DE LIN.

MÉMOIRE PRÉSENTÉ À

COMME EXIGENCE PARTIELLE DE LA

MAITRISE EN GÉNIE

CONCENTRATION GÉNIE MÉCANIQUE

PAR

AMIR BERNAOUI

NOVEMBRE 2021

Université du Québec à Trois-Rivières

Service de la bibliothèque

Avertissement

L'auteur de ce mémoire ou de cette thèse a autorisé l'Université du Québec à Trois-Rivières à diffuser, à des fins non lucratives, une copie de son mémoire ou de sa thèse.

Cette diffusion n'entraîne pas une renonciation de la part de l'auteur à ses droits de propriété intellectuelle, incluant le droit d'auteur, sur ce mémoire ou cette thèse. Notamment, la reproduction ou la publication de la totalité ou d'une partie importante de ce mémoire ou de cette thèse requiert son autorisation.

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À TROIS-RIVIÈRES

PROGRAMME DE MAITRISE EN INGENIERIE – CONCENTRATION GENIE MECANIQUE (AVEC MEMOIRE)

Direction de recherche :

Gilbert Lebrun, Professeur, Université du Québec à Trois-Rivières (UQTR)

Prénom et nom — directeur de recherche

Eduardo-Antonio-Julian Ruiz, Professeur, École Polytechnique de Montréal

Prénom et nom — codirecteur de recherche

Jury d'évaluation

Gilbert Lebrun, Professeur, UQTR, membre et directeur de recherche

Prénom et nom — Fonction du membre de jury

Martine Dubé, Professeur, École de technologie supérieure, membre externe

Prénom et nom — Fonction du membre de jury

Mathilde Jean-St-Laurent, Professeur, UQTR, membre

Prénom et nom — Fonction du membre de jury

REMERCIEMENT

Je tiens à exprimer ma gratitude et ma reconnaissance à tous ceux qui ont contribué à la réussite de ce mémoire de près ou de loin.

Tout d'abord, je voudrais remercier mon directeur de recherche, le Professeur Gilbert Lebrun, pour ses conseils, son encadrement et son soutien durant toute la durée de mes études. Ça fut un immense plaisir de faire partie de vos étudiants de recherche. Également, mon co-directeur de recherche, le Professeur Eduardo Antonio Julian Ruiz, pour son soutien et son encouragement.

Je remercie également l'Institut D'Innovations en Écomatériaux, Écoproduits et Écoénergies, à base de biomasse (I2E3) pour m'avoir donné accès à ses équipements et l'expertise de ses chercheurs et ses techniciens.

J'adresse ma gratitude à Dany Lemay, Jonathan St-Arnaud, Céline Leduc et Agnès Lejeune pour leur soutien technique et leurs conseils pratiques.

J'exprime également mes sincères remerciements à mes collègues du Département de génie mécanique, Rodrigue Stéphane Mbakop, Samer El Khoury Rouphael, Abdelhadi Hadj Djilani et Abdelhadi Blal pour leur soutien et les encouragements surtout durant cette période de pandémie.

Je tiens à remercier également les professeurs du Département de génie mécanique qui ont contribué de manière significative à la réussite de mon parcours universitaire.

Finalement, merci à ma famille et mes amis qui étaient toujours là pour me remonter la morale et m'encourager. Surtout, merci à ma chère Malek, pour ton soutien et ta croyance en mes capacités.

RÉSUMÉ

L'industrie des plastiques et composites migre graduellement vers la diminution de la dépendance aux matériaux issus des dérivés pétroliers, d'une part, vu l'augmentation du prix des matières premières et du coût de gestion des déchets et d'autre part, vu les nouvelles règlementations gouvernementales visant à diminuer l'impact environnemental des déchets industriels. Les produits écologiques ont intégré les secteurs aérospatial et automobile ces dernières années avec l'apparition des matériaux composites à fibres naturelles. Ces matériaux sont fabriqués à partir de fibres végétales dont la source est abondante et coûte moins cher que les fibres faites de matériaux synthétiques [1]. Mais le caractère hydrophile des fibres naturelles et hydrophobe de la plupart des polymères conduit à des difficultés d'adhésion entre les fibres et la matrice, ce qui affecte les propriétés du composite fabriqué. Il s'agit d'un inconvénient majeur des composites renforcés par des fibres naturelles. Un autre problème est que la température de traitement de ces composites est limitée à 200°C, car les fibres végétales se dégradent à partir de cette température, ce qui limite le choix de la matrice.

L'hétérogénéité de la taille des fibres et des propriétés mécaniques (même entre plantes d'une même culture) pose également un problème. Mais il est clair que les avantages des fibres naturelles l'emportent sur les inconvénients, notamment pour leurs propriétés intrinsèques supérieures aux fibres de verre combiné à leur caractère biodégradable. Pour améliorer la stabilité thermique et la compatibilité entre le polymère et les fibres naturelles, réduire la perméabilité à l'eau et ainsi améliorer les propriétés des composites, la surface des fibres peut être modifiée par des méthodes physiques ou chimiques. La fibrillation est un procédé mécanique, généralement utilisé dans la fabrication des papiers. En raffinant les fibres courtes de pâte Kraft, des microfibrilles sont générées à la surface des fibres permettant à celles-ci de mieux s'accrocher les unes aux autres pour augmenter la résistance du papier. Ajouter ce traitement à la fabrication des fibres courtes de lin, préalablement à la fabrication de renforts unidirectionnels à liant mat de lin fait de ces fibres courtes, pourrait améliorer les propriétés physiques et mécaniques finales des renforts et donc des pièces composites obtenus de ces renforts.

Depuis 2009, des renforts unidirectionnels de lin à liant mats de lin sont développés à l'UQTR en utilisant les procédés de fabrication standards du papier. Les composites obtenus de

ces renforts ont montré des avantages intéressants comparativement aux renforts traditionnels. Dans ce travail, on étudie l'effet de la fibrillation de surface des fibres courtes de lin sur le comportement mécanique des renforts hybrides à fibres unidirectionnelles (UD) continues de lin retenues par un liant mat de fibres courtes de lin. L'objectif est d'augmenter l'adhérence entre les fibres courtes et les fibres unidirectionnelles d'une part, augmentant ainsi la résistance du renfort même, et de créer des points d'ancrage supplémentaires pour la résine d'autre part, afin d'améliorer les propriétés mécaniques du composite final.

La première partie de l'étude consiste à caractériser le procédé de fibrillation et son efficacité sur les fibres courtes de lin et, plus précisément, sur les renforts mats faits de ces fibres courtes. Le procédé de fabrication des mats et les difficultés rencontrées sont d'abord présentés. Les résultats des essais de traction sur les composites à renforts mats sont considérés pour délimiter l'intervalle de variation du taux de fibrillation pour les renforts UD lin/mat lin. Il est observé que, pour les mats seuls, l'augmentation du taux de fibrillation des fibres n'a presque aucun effet sur la contrainte maximale à la rupture, mais est accompagnée d'une augmentation de 26.76% de la déformation à la rupture (1.6 % pour les non raffinés contre 2.32% pour ceux raffinés à 1000 tours) et par suite une augmentation de l'énergie de rupture.

La deuxième partie de l'étude consiste à caractériser l'effet du traitement de fibrillation sur les renforts hybrides UD lin-mat lin. En se référant aux travaux précédents réalisés sur ces renforts, le même procédé de moulage par transfert de résine (procédé RTM, acronyme de 'resin transfer moulding') des composites a été employé en gardant les paramètres de fabrication jugés optimum, notamment une fraction volumique de fibres autour de 40% et une densité surfacique du renfort entre 280 et 300 g/m^2, permettant une meilleure résistance de ceux-ci tout en maintenant une bonne perméabilité aux résines liquides. Le taux de fibrillation fut varié de façon à délimiter l'intervalle pour lequel les propriétés mécaniques en traction sont améliorées. Des composites ont été fabriqués en utilisant la démarche élaborée par les travaux précédents pour les renforts non-fibrillés et fibrillés.

Il fut déterminé que les meilleures propriétés mécaniques en traction des composites à renforts UD lin-mat lin ont été obtenues pour des taux de fibrillation de l'ordre de 400 tours. L'augmentation du taux de fibrillation des fibres courtes constituant la phase mat est accompagnée d'une augmentation de 35.4% de la résistance à la traction des composites fabriqués et une

amélioration de 61.33% du module de traction avec une déformation à la rupture qui reste pratiquement inchangée. Les meilleures propriétés mécaniques ont été obtenues pour une faible vitesse de fibrillation (800 tours/min pendant 30 sec) et des fibres courtes de lin d'une longueur de 10 ± 1 mm. Les micrographies des échantillons sains montrent que la fibrillation engendre une densification de la phase mat dans la structure des composites fabriqués. Pour les renforts mats, on observe une diminution de la perméabilité à la résine tandis que pour les renforts UD/mat lin, la perméabilité diminue légèrement dans la direction longitudinale et reste inchangée dans la direction transversale. Cette diminution de la perméabilité peut engendrer l'apparition de microfissures et de la porosité dans le composite. Il fut déterminé, à travers cette étude, que comme tous les autres traitements de surface appliqués sur les fibres naturelles, un raffinage excessif des fibres de lin engendre la dégradation de ces dernières et par suite de faibles propriétés mécaniques.

TABLE DES MATIÈRES

REMERCIEMENT I

RÉSUMÉ II

TABLE DES MATIÈRES V

LISTE DES FIGURES VIII

LISTE DES TABLEAUX XI

LISTE DES ÉQUATIONS XII

LISTE DES SYMBOLES ET ABREVIATIONS XIII

CHAPITRE 1 : INTRODUCTION 1

1.1. Introduction générale 1

1.2. Notions de base sur les matériaux composites 1

1.2.1. Introduction 1

1.2.2. La matrice 2

1.2.3. Le renfort 2

1.2.4. L'interface fibre-matrice 4

1.3. Composites à fibres synthétiques 10

1.4. Généralités sur les fibres naturelles 11

1.4.1. Intérêt de l'exploitation des fibres naturelles 11

1.4.2. La fibre végétale 12

1.4.2.1. Propriétés des fibres végétales 12

1.4.2.2. Le lin 13

1.5. Problématique et objectifs 15

1.5.1. Développement d'un renfort hybride à base de fibres courtes de lin traités 15

1.5.2. Interface fibre-matrice du renfort hybride 17

1.5.3. Objectifs 18
CHAPITRE 2 : REVUE DE LITTÉRATURE 20
2.1. Introduction 20
2.2. Les traitements des fibres naturelles 20
2.2.1. Les traitements chimiques 20
2.2.2. Les traitements physiques 22
2.2.2.1. Le traitement corona 22
2.2.2.2. Le traitement au plasma 23
2.2.2.3. Le traitement de fibrillation 24
2.2.3. Effet des traitements de surface sur les propriétés mécaniques des composites 29
2.3. Procédés de mise en œuvre des CFN et perméabilité aux résines des renforts à fibres naturelles. 31
2.3.1. Procédés et paramètres de mise en œuvre des CFN. 31
2.3.2. Perméabilité aux résines des renforts à fibres naturelles 33
2.4. Des CFN avec des renforts hybrides à fibres UD de lin retenues par un liant mat 36
CHAPITRE 3 : MÉTHODOLOGIE EXPÉRIMENTALE 39
3.1. Introduction 39
3.2. Matériaux et méthodes 40
3.2.1. Prétraitement des fibres courtes de lin 40
3.2.2. Fabrication des renforts hybrides UD lin/mat lin à fibres courtes fibrillées. 42
3.2.3. Moulage des plaques composites 44
3.3. Caractérisation 47
3.3.1. Microscopie 47
3.3.1.1. Images tirées des essais sur les fibres courtes seuls 47
3.3.1.2. Images tirées des essais sur les fibres composites sains 48

3.3.1.3. Images tirées des essais sur les fibres composites fracturés 48

3.3.2. Essais de traction 49

3.3.3. Essais de perméabilité 50

3.4. Caractéristiques des renforts et des composites pour les essais de traction 53

CHAPITRE 4 : RÉSULTATS ET DISCUSSION 56

4.1. Introduction 56

4.2. Microscopies des fibres courtes de lin traités au moulin PFI seuls 56

4.3. Effet du traitement de fibrillation sur les propriétés mécaniques en traction des composites. 59

4.3.1. Évaluation du comportement des composites mat lin-époxy sous l'effet du traitement de fibrillation. 59

4.3.2. Évaluation du comportement des composites UD-mat/époxy sous l'effet de la fibrillation. 66

4.3.2.1. Essais de traction dans le sens longitudinal 66

4.3.2.2. Essais de traction dans le sens transversal 76

4.4. Effet du traitement de fibrillation sur la perméabilité des renforts 78

CHAPITRE 5 : CONCLUSION 81

5.1. Récapitulatif des résultats obtenus 81

5.2. Travaux futurs 82

LISTE DES RÉFÉRENCES 83

ANNEXE A : Difficultés dans la fabrication des renforts 92

ANNEXE B : Fiche technique de la résine Marine 820 avec durcisseur 824 93

LISTE DES FIGURES

Figure 1. Les diverses formes des fibres dans les matériaux composites [8]. 3
Figure 2. Essais micromécaniques dans lesquels une charge externe est appliquée directement à la matrice : essai de fragmentation (a) et essai de Broutman (b)[23]. 6
Figure 3. Essais micromécaniques dans lesquels une charge externe est appliquée directement à la fibre : pull-out (a), microbond (b), three-fiber test (c), et push-out (d) [23]. 6
Figure 4. Représentation schématique des essais de cisaillement [23]. 7
Figure 5. Structure multiéchelles de la fibre de lin [44]. 15
Figure 6. Renforts UD lin/Mat typique (a) Schématisation (b) Renfort fabriqué en laboratoire[48]. 16
Figure 7. Étapes de fabrication des renforts hybrides (a) formette dynamique ; (b) presse; (c) rouleau séchoir; (d) dispositif d'alignement des fibres[51]. 16
Figure 8. Schéma du procédé de détermination du degré de fibrillation des fibres (a) selon la méthode Schopper-Riegler (b) selon la méthode CSF [79, 81]. 25
Figure 9. Comparaison du taux de drainage pour les différents types de pâtes [81]. 27
Figure 10. Schéma du procédé d'injection à basse pression RTM [97]. 33
Figure 11. Comparaison de la perméabilité (non saturée) de renforts à fibres de sisal, de jute et de verre E imprégnés d'une solution de glycérine [99]. 35
Figure 12. Procédé expérimental de prétraitement des fibres courtes de lin : (a) moulin de type PFI (b) pesage des fibres (c) mélange des fibres courtes (d) fabrication du coussinet de fibres (e) dispersion de la pâte sur la paroi du bol. 41
Figure 13. Procédé expérimental de fabrication des renforts (a) enroulement des fibres (b) fibres courtes en suspension dans l'eau (c) formette dynamique et formation du renfort (d) séchage de la feuille du renfort (e) découpage des renforts. 43
Figure 14. Montage de moulage des plaques composites. 45
Figure 15. Schéma du moule utilisé [47]. 46
Figure 16. Plaque de composite après démoulage. 46
Figure 17. Montage de microscopie optique. 47
Figure 18. Microscope balayage électronique équipé de la spectroscopie à dispersion d'Energie (EDS). 48

Figure 19. Découpage des éprouvettes en traction. 49
Figure 20. Montage pour essai de traction. 50
Figure 21. Montage expérimental de mesure de perméabilité ; (A) caméra (B) chambre de dégazage sous vide (C) moule (D) ordinateur d'acquisition. 52
Figure 22. Micrographies (20X) des fibres courtes de lin après traitement de fibrillation à différents taux : (a) Non-fibrillés (b) 100 Révolutions (c) 300 Révolutions (d) 600 Révolutions (e) 1000 Révolutions. 58
Figure 23. Microscopie optique 50X des fibres courtes de lin traités à 1000 tours au moulin PFI. 59
Figure 24. Courbes contrainte - déformation des composites mat lin/époxy selon le Tableau 5. 60
Figure 25. Propriétés mécaniques des composites Mat en fonction du taux de fibrillation (nombre de tours) : à droite résistance à la traction, à gauche le module d'élasticité en traction. 61
Figure 26. Effet de la fibrillation sur la déformation à la rupture des composites mats en fonction du taux de fibrillation. 62
Figure 27. Profilés des échantillons fracturés après essais de traction. 63
Figure 28. Micrographies des faciès de rupture 100X : (a) M0-5 (b) M500-5-1440 (c) M1500-5-1440 et 250X : (d) M0-5 (e) M500-5-1440 (f) M1500-5-1440. 64
Figure 29. Courbes contraintes - déformation des composites UD/Mat lin-époxy dans le sens longitudinal. 66
Figure 30. Propriétés mécaniques des UD/Mat lin-époxy à différents taux de raffinage (longueur de fibre : 10 mm, vitesse de fibrillation 800 tours/min) : (a) résistance à la traction (b) module longitudinal. 69
Figure 31. Variation de la déformation à la rupture sous l'effet de la fibrillation (longueur de fibre : 10 mm, vitesse de fibrillation 800 tours/min). 70
Figure 32. Micrographie 50X d'échantillons de composites sains UD lin/mat lin-époxy ; (A) UDM0-10, (B) UDM200-10-800, (C) UDM400-10-800 et (D) UDM600-10-800. 72
Figure 33. Profilés des échantillons UD lin/mat lin-époxy fracturés après essais de traction. 72
Figure 34. Micrographie 250X des faciès de rupture de composites UD/mat lin-époxy ; (a) UDM0-10, (b) UDM200-10-800, (c) UDM400-10-800 et (d) UDM600-10-800. 73
Figure 35. Effet de la longueur des fibres sur les propriétés en traction des UD lin/mat lin-époxy. 74

Figure 36. Effet de la vitesse de fibrillation des fibres courtes sur les propriétés en traction des UD lin/mat lin-époxy. 76
Figure 37. Propriétés transversales en traction des UD lin/mat lin époxy pour des fibres courtes de 10 mm, une vitesse de rotation de 800 tours/min, pour les composites non-fibrillés (0 tours) et fibrillés à 400 tours. 77
Figure 38. Micrographie (250X) des faciès de rupture des composites testés en traction dans le sens transversal : (A) UDM0-10 et (B) UDM400-10-800. 77
Figure 39. Effet de la fibrillation sur la perméabilité (vitesse de fibrillation : 800 tours/min, longueur des fibres courtes : 10 mm). 79
Figure 40. Micrographies au MEB des renforts MAT0 et MAT400, pour des grossissements variants de 50 à 1000X. 80
Figure A.1. Renfort mat lin présentant un défaut de fabrication avec une vue agrandie de ce dernier. 92
Figure B.1 Fiche technique de la résine Marine 820 (source : Bulletin produit fourni par ADTECH Marine Systems). 93

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1. Propriétés des fibres les plus courantes sur le marché [8, 29-31]. 10
Tableau 2. Comparaison des propriétés des différentes fibres naturelles et synthétiques [38]. ... 13
Tableau 3. Propriétés des renforts fabriqués. 54
Tableau 4. Propriétés des plaques moulés. 55
Tableau 5. Effet du taux de fibrillation sur les propriétés en traction des composites stratifiés de type mats/époxy. 61
Tableau 6. Propriétés mécaniques des composites UD/mat lin-époxy traités à différents taux de fibrillions sous différents paramètres. 67

LISTE DES ÉQUATIONS

Équation (1) 7
Équation (2) 8
Équation (3) 9
Équation (4) 9
Équation (5) 9
Équation (6) 44
Équation (7) 50
Équation (8) 51
Équation (9) 51
Équation (10) 51
Équation (11) 51

LISTE DES SYMBOLES ET ABREVIATIONS

CFN	Composite à fibres naturelles
CSF	Canadian standard freeness
D_f	Degré de fibrillation
E	Module d'élasticité
G	Grammage (densité surfacique)
L_f	Longueur des fibres
MEB	Microscope électronique à balayage
RTM	Resin transfer moulding
SR	Méthode Schopper-Riegler
°SR	Degré Schopper-Riegler
UD	fibres unidirectionnelles
V_f	Vitesse de fibrillation
σ_{max}	Résistance maximale en traction
ε_{max}	Déformation à la rupture

CHAPITRE 1 : INTRODUCTION

1.1. Introduction générale

Le projet consiste à étudier l'effet de la fibrillation sur les propriétés mécaniques des composites lin/époxy à renforts hybride. Avant d'aborder la fibrillation comme traitement de surface, il est nécessaire de définir ce qu'est un matériau composite et les différentes phases qui le constituent. Les différentes architectures des renforts seront présentées afin de mieux comprendre l'utilité du renfort hybride faisant l'objet du mémoire et son potentiel d'exploitation pour le moulage des pièces complexes. Une description détaillée de l'interface fibre-matrice sera présenté avec les essais mécaniques les plus employés pour sa caractérisation puisque le projet se concentre sur l'altération de cette phase. Avant d'aborder les différents traitements de surface, il est nécessaire d'introduire les composites à fibres naturelles, de la fibre et ses constituants jusqu'au renfort, et leurs avantages comparés aux composites à fibres synthétiques ainsi que leurs limitations. Cette introduction comportera aussi une description du renfort hybride UD-mat/lin et une présentation des objectifs de ce mémoire.

1.2. Notions de base sur les matériaux composites

1.2.1. Introduction

Les matériaux composites partagent notre vie quotidienne à travers une variété de produits dans divers domaines tels que la construction, la santé, le secteur pétrolier, les transports, les sports et l'aérospatiale, pour ne nommer que ceux-ci. Ces matériaux offrent une variété d'atouts ; notamment une forte résistance à la corrosion, une légèreté et une variété de géométries de pièce qu'on peut produire de par la flexibilité de mise en forme des procédés disponibles. Les matériaux composites sont fortement présents dans la nature. Une pièce de bois par exemple est composée de fibres longues de cellulose maintenues entre elles par une substance organique appelée lignine [2].

En industrie, les composites sont préparés en combinant deux ou plusieurs matériaux non miscibles l'un dans l'autre avec des propriétés qui se complètent pour donner un matériau possédant les attributs de chacun des constituants. De façon générale, on peut distinguer trois phases dans la composition d'un matériau composite ; la matrice comme étant la phase continue agissant comme liant pour les fibres, le renfort comme étant la phase discontinue comportant des

fibres ou des particules et une troisième phase fine connue sous le nom d'interface entre les fibres et la matrice [3, 4]. Cette dernière permet de rendre compatibles la matrice et les fibres lors du moulage (pour maximiser le mouillage et donc l'enrobage des fibres par la matrice liquide) et d'améliorer l'interface fibre-matrice sur le plan mécanique du composite.

1.2.2. La matrice

La matrice sert à joindre les fibres du renfort entre elles permettant ainsi de transmettre l'effort entre les fibres élémentaires et répartir la charge. Elle peut être constituée d'un métal, d'un polymère ou d'une céramique, mais la majorité des pièces fabriquées sont à base de matrices polymères. Il en existe plusieurs types, mais les matrices thermodurcissables sont les plus utilisées suivies des matrices thermoplastiques.

Les matrices thermodurcissables subissent une réaction chimique irréversible accompagnée d'un durcissement (la polymérisation) pour passer de l'état liquide à l'état solide. Généralement, dans son état initial, ce type de matrice comporte un mélange liquide de molécules non liées entre elles appelées monomères. L'ajout d'un deuxième composé chimique liquide appelé catalyseur, ou parfois simplement de la chaleur, sert à initier la polymérisation. Ce changement est permanent et irréversible. C'est-à-dire, exposer ce matériau à une température élevée mène à sa dégradation et non à sa fusion.

Les matrices thermoplastiques sont constituées de longues chaînes moléculaires enchevêtrées, sans réticulation entre elles, et obtenues par polymérisation dans des réacteurs chimiques. Lorsqu'on est à une température au-dessus de la température de fusion, le plastique fond ou se ramollit suffisamment pour être transformé. Lorsqu'on refroidit, le plastique se solidifie et reprend son état rigide structural. Ce processus peut être répété plusieurs fois en chauffant et refroidissant le plastique. Cependant, le matériau peut subir une détérioration dans son état fondu, de sorte qu'il y une limite pratique au nombre de fois que ce traitement peut avoir lieu sans trop affecter les propriétés du matériau [5-7].

1.2.3. Le renfort

Les renforts dans les composites se présentent sous différentes formes. Ils peuvent être sous forme de fibres, de flocons ou même de particules. Chaque forme possède ses propres propriétés et donc son propre domaine d'application. Les composites à renforts particules sont constitués de

particules immergées dans des matrices telles que des alliages et des céramiques. Ils sont généralement isotropes du fait de la répartition et l'orientation aléatoires et homogènes des particules. Parmi les renforts les plus utilisés, on trouve les fibres. Elles ont la plus forte influence sur les propriétés mécaniques des composites. Ceci est dû à un rapport de proportionnalité élevé entre la longueur de la fibre et son diamètre, ce qui rend le composite anisotrope avec des propriétés supérieures dans le sens des fibres et ce qui permet un transfert efficace des contraintes de cisaillement entre la matrice et les fibres, tout en maintenant la possibilité de fabriquer des pièces composites de différentes formes en utilisant différentes techniques [8]. La Figure 1 illustre les différentes architectures et tailles des renforts faits de fibres.

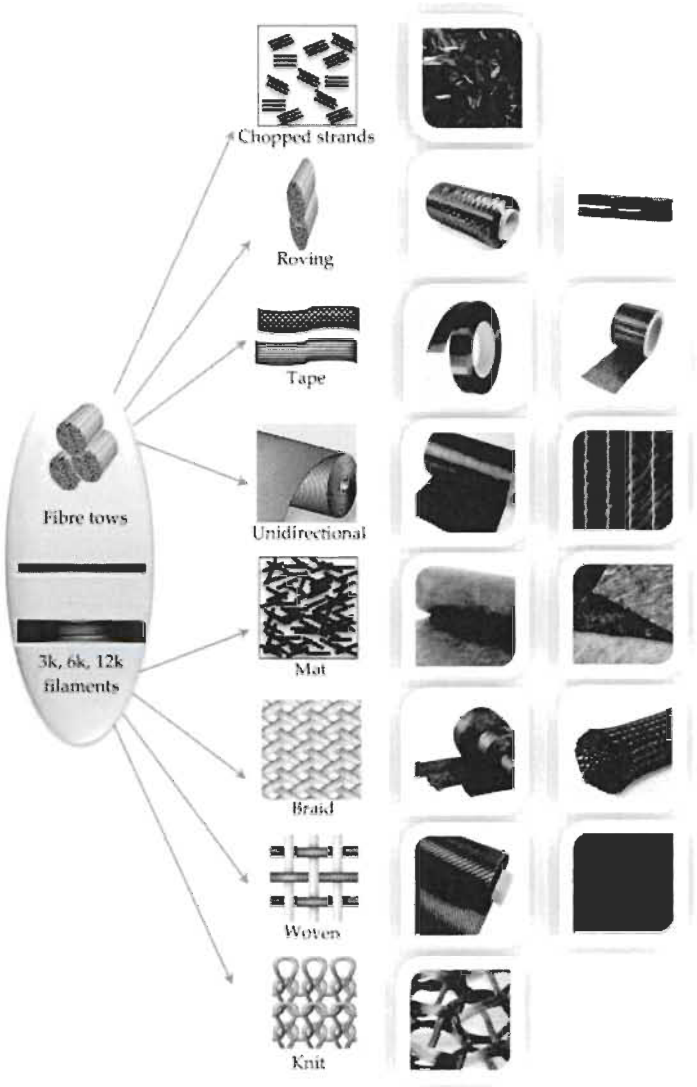


Figure 1. Les diverses formes des fibres dans les matériaux composites [8].

Les renforts à fibres peuvent être classés sous plusieurs catégories selon l'architecture du renfort [9, 10]. Les renforts les plus courants utilisés dans le moulage des pièces composites sont :

- Le filament continu (ou fil), qui est la forme la plus élémentaire pour les applications structurales. Il est transformé en renfort de type unidirectionnel (nappes cousues) ou tissé et est couramment utilisées dans le procédé d'enroulement filamentaire des pièces tubulaires cylindriques.
- Les fibres discontinues, transformées en renforts mats, sont distribuées de façon aléatoire et retenues entre elles par un liant chimique ou par création de liens mécaniques (le papier est un exemple typique de ce dernier cas).
- Les renforts textiles (toile, sergé, satin) à fibres multidirectionnelles, fabriqués en diverses variétés selon les propriétés souhaitées du composite final. Ils sont préparés sur métier à tisser avec des fibres continues dans les directions chaîne et trame.

1.2.4. L'interface fibre-matrice

L'interface fibres-matrice est essentielle dans la compréhension de la performance et le potentiel d'application des composites. Par exemple, la compréhension de l'interface et des divers traitements de surface des fibres est prérequis dans la sélection des matériaux constituants pour la conception et le développement des structures. L'évaluation et la caractérisation des propriétés interfaciales peuvent être cruciales dans la prédiction du cycle de vie d'un produit sensible à la durabilité de l'interface [11-13]. En général, l'adhésion interfaciale peut être attribuée à des mécanismes majeurs, notamment l'adsorption et le mouillage, l'attraction électrostatique, la liaison chimique, la liaison par réaction d'échange et la liaison mécanique [14]. L'amélioration de la région interfaciale des composites se fait moyennant des traitements chimiques sur la fibre ou sur la matrice ou des traitements physiques et mécaniques sur la fibre. Ces traitements seront détaillés dans le chapitre 2.

L'interface entre les fibres et la matrice joue donc un rôle central dans la détermination des propriétés mécaniques des composites. Dans le cas des CFN, une interface robuste génère un matériau qui présente une très bonne résistance et rigidité, mais qui est très fragile par nature, avec une propagation facile des fissures dans la matrice et les fibres. Une interface plus faible réduit

l'efficacité du transfert des contraintes de la matrice à la fibre et, par conséquent, la résistance et la rigidité ne sont pas aussi élevées, mais, en revanche, la ténacité est accrue [15].

Dans les composites à renforts fibreux, les fibres et la matrice interagissent pour produire les propriétés mécaniques résultantes du composite. Elles contribuent d'une manière pondérée par la fraction massique ou volumique des fibres, et les propriétés des constituants sont principalement la rigidité, la contrainte, la déformation (pourcentage d'allongement) et les propriétés thermiques. Elles interagissent également par l'intermédiaire de l'interface qui les unit et apporte un comportement et des propriétés supplémentaires. Récemment, une approche de la mécanique des matériaux a été présentée pour décrire l'interface par trois paramètres, l'énergie interfaciale, la contrainte de cisaillement frictionnelle interfaciale et la déformation de disparité entre la fibre et la matrice [16]. L'énergie interfaciale G [J/m^2] représente la nature chimique et la liaison de la surface de la fibre à la matrice, la contrainte de cisaillement interfaciale frictionnelle τ_s [MPa] représente la topographie et le glissement frictionnel de la fibre par rapport à la matrice, et la déformation de disparité Δ_e^T [-] est causée par le déséquilibre thermoélastique entre la fibre et la matrice.

Plusieurs méthodes expérimentales ont été développées pour la caractérisation de l'interface fibre-matrice [17-19]. Ces méthodes peuvent être classées d'une manière générale en deux groupes selon la nature de l'échantillon employé et de l'échelle du test. La première comporte les essais sur des micro-composites faits avec une ou quelques fibres individuelles introduites dans une matrice (essais micromécaniques), tels que l'essai d'arrachement d'une fibre (en anglais 'fiber pull-out test') [20], l'essai de micro-indentation, l'essai de fragmentation (en anglais 'single-fiber fragmentation test') [21, 22] et l'essai de compression avec une seule fibre dans la matrice (en anglais 'embedded fiber compression test') comme le montrent les Figures 2 et 3. L'autre groupe fait appel à des composites stratifiés pour évaluer les comportements interlaminaires (entre les couches du stratifié) et intralaminaires (à l'intérieur des couches). Quelques exemples sont donnés à la Figure 4.

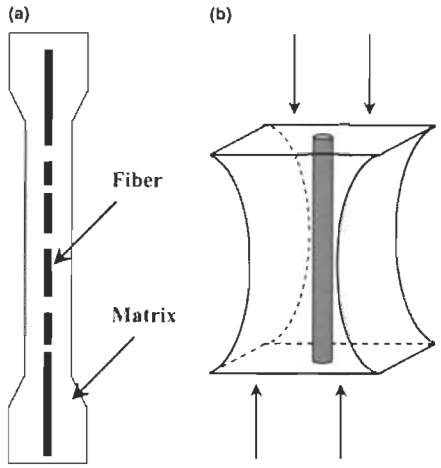


Figure 2. Essais micromécaniques dans lesquels une charge externe est appliquée directement à la matrice : essai de fragmentation (a) et essai de Broutman (b)[23].

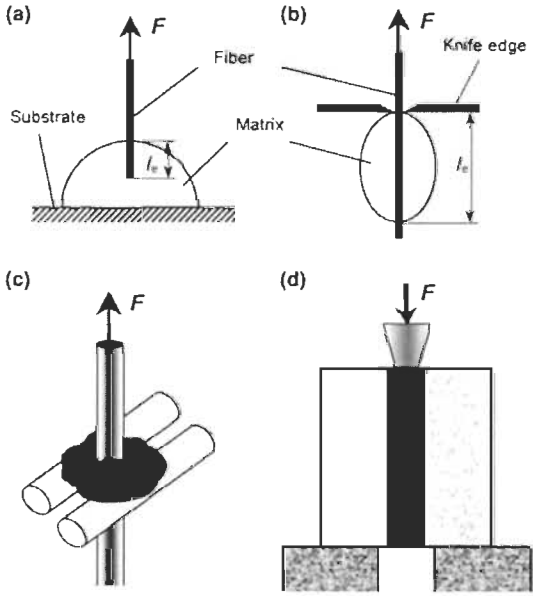


Figure 3. Essais micromécaniques dans lesquels une charge externe est appliquée directement à la fibre : pull-out (a), microbond (b), three-fiber test (c), et push-out (d) [23].

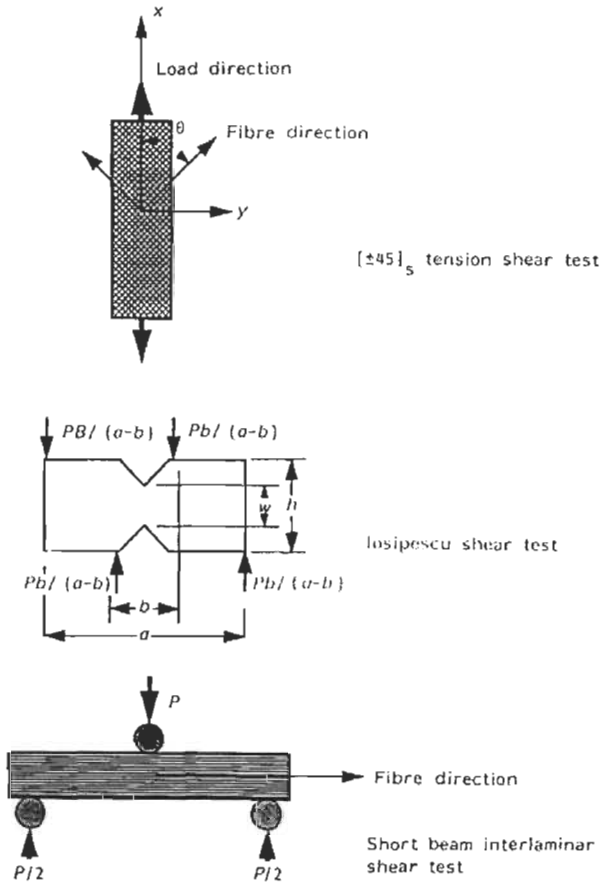


Figure 4. Représentation schématique des essais de cisaillement [23].

La méthode d'arrachement d'une fibre a été développée dans les premières phases de la recherche sur les composites [24]. Dans cette méthode, une fibre ou un faisceau de fibres est partiellement incorporé dans un bloc, un disque mince ou une gouttelette solide de matrice (voir Figure 3-a). Une charge est appliquée à la fibre tandis que la matrice est retenue. La charge et les déplacements sont ensuite mesurés en continu durant tout le processus de décollement et d'arrachement. La résistance au cisaillement interfacial τ_{app} peut être mesurée à l'aide de l'équation suivante [25] :

$$\tau_{app} = \frac{F_{max}}{\pi\, d_f\, l_f} \tag{1}$$

où, d_f est le diamètre de la fibre, l_f est la longueur submergée dans la matrice et F_{max} est la force maximale nécessaire pour décoller et déchausser la fibre de l'échantillon.

Ce type d'essai comporte plusieurs variantes ; telle que l'essai de micro-liaison (en anglais 'microbond') où la fibre est tirée d'une seule goutte de matrice maintenue et retenue par deux bords de couteaux (Figure 3-b) et l'essai à trois fibres (Figure 3-c), la fibre étant perpendiculaire à deux autres fibres, maintenue par une matrice et est ensuite tirée jusqu'à l'arrachement, ainsi que l'essai d'arrachement par compression (Figure 3-d) où une force de compression est appliquée à la fibre pour l'enfoncer dans la matrice.

Les autres types d'essais micromécaniques sont ceux où la charge est appliquée sur la matrice tels que l'essai de fragmentation (Figure 2-a) et l'essai Broutman (Figure 2-b) ainsi que plusieurs variations de l'essai de fragmentation où la matrice subie de la flexion au lieu de la traction. L'essai de fragmentation est parmi les essais les plus populaires pour l'évaluation de l'interface fibre-matrice. Il fut développé dans les travaux de Kelly et Tyson [26]. Une fibre est entièrement incorporée au milieu de la matrice et puis formée en une éprouvette de traction en forme d'os. La déformation à la rupture de la matrice doit être trois fois supérieure à celle de la fibre. Lorsque l'éprouvette est chargée en tension, la fibre intégrée rompt en fragments de plus en plus petits aux endroits où l'on dépasse la contrainte critique. Le processus de fragmentation se répète jusqu'à ce que toutes les longueurs de fibre soient trop courtes pour permettre à la contrainte de traction de provoquer d'autres ruptures de fibres. La détermination de la résistance au cisaillement interfacial τ moyennant le modèle Kelly-Tyson [26] se fait alors selon l'équation suivante :

$$\tau = K \frac{d_f \sigma_f(\bar{l})}{2\bar{l}} \tag{2}$$

où, K est une constante qui prend une valeur moyenne de 0.75, d_f est le diamètre de la fibre et $\sigma_f(\bar{l})$ est la résistance de la fibre à la longueur de saturation l (longueur à partie de laquelle il n'y a plus de rupture de fibres) .

La microindentation est également populaire pour caractériser la résistance au cisaillement interfacial des fibres [27]. Les fibres individuelles perpendiculaires à une surface coupée et polie d'un composite réel sont chargées en compression à l'aide d'un indenteur dont le bout peut prendre plusieurs formes et tailles. Durant l'essai, la force et le déplacement de l'indenteur sont enregistrés jusqu'au détachement de la fibre de la matrice.

La résistance au cisaillement interfacial τ est obtenue par ;

$$\tau = \frac{F_{max}}{\pi d_f l_f} \tag{3}$$

où, F_{max} est la force maximale appliquée requise pour le détachement et l'arrachement de la fibre, d_f est le diamètre de la fibre et l_f est la longueur de la fibre ou la largeur de l'échantillon.

Plusieurs autres essais mécaniques existent mais ceux-ci ne mesurent pas directement les propriétés de l'interface fibre-matrice. Ils évaluent la qualité de la liaison par l'analyse des propriétés mécaniques brutes de l'ensemble du composite, comme la résistance à la traction transversale et la résistance au cisaillement. Ces techniques, adoptées comme normes ASTM, utilisent des composites stratifiés renforcés par des fibres continues, qu'elles soient unidirectionnelles ou croisées. La Figure 4 illustre trois des essais les plus utilisés dans la caractérisation de l'interface fibre-matrice, soit l'essai de traction à ±45° des fibres, l'essai Isoipescu et l'essai de cisaillement sur poutre courte (en anglais 'short beam shear test'). Pour les essais $[\pm 45]_s$, il fut démontré que les expressions des courbes de contrainte et de déformation en cisaillement peuvent être déterminées par le résultat d'un chargement uniaxial des éprouvettes à l'aide des équations suivantes [28] :

$$\tau_{12} = \frac{\bar{\sigma}_x}{2} \tag{4}$$

$$\gamma_{12} = (\epsilon_x^0 - \varepsilon_y^0) \tag{5}$$

où, σ_x est la contrainte appliquée et ε_x^0 et ε_y^0 sont les déformations longitudinales et transversales.

Un état de cisaillement pur est obtenu à la section droite de l'éprouvette d'un essai Iosipescu en appliquant deux moments contraires produits par deux couples de forces. Par des considérations d'équilibre statique simples, la force de cisaillement agissant au centre de la section centrale est égale à la force appliquée mesurée par le dispositif de chargement. La contrainte de cisaillement est obtenue en divisant simplement la valeur de la force appliquée par la section transversale située entre les deux extrémités des entailles [28].

1.3. Composites à fibres synthétiques

Tel que mentionné ci-dessus, les matériaux composites sont conçus et mis en œuvre essentiellement pour des applications structurales, de sorte que la fonction mécanique est dominante. Ils trouvent de plus en plus d'applications pour la réalisation de pièces structurales de dimensions diverses, dans de nombreux secteurs industriels tels que l'aéronautique, l'automobile, le domaine biomédical, etc. La plupart des composites utilisés dans l'industrie sont à base de fibres synthétiques. Le Tableau 1 résume les propriétés mécaniques des fibres les plus courantes. Les fibres de verre sont plus utilisées vu leurs excellentes propriétés mécaniques, leur faible coût et leur comportement isotrope (le verre étant isotrope).

Tableau 1. Propriétés des fibres les plus courantes sur le marché [8, 29-31].

Types de fibres	Diamètres µm (10^{-3} po)	Densité g/cm^3 (lb/in^3)	Module de Young GPa (Msi)	Résistance à la traction MPa (ksi)
Verre				
Verre-E	8-14 (0.30-0.55)	2.54 (0.092)	73 (10.5)	3450 (500)
Verre-S	10 (0.40)	2.49 (0.090)	86 (12.4)	4500 (650)
Carbone				
AS4	7 (0.28)	1.81 (0.065)	235 (34)	3700 (535)
IM-7	4 (0.16)	1.80 (0.065)	290 (42)	5170 (750)
Bore	140 (5.6)	2.50 (0.090)	395 (57)	3450 (500)
Aramide				
Kevlar 49	12 (0.47)	1.45 (0.052)	131 (19)	3800 (550)
Silicon carbide				
Nicalon	15 (0.6)	2.60 (0.094)	172 (25)	2070 (300)
Alumine				
FP-2		3.70 (0.133)	380 (55)	1725 (250)
Nextel 610		3.75 (0.135)	370 (54)	1900 (275)
Tungesten		19.3 (0.696)	410 (60)	4140 (600)

La fibre de carbone occupe une large portion des produits de l'aérospatiale (25 % de l'Airbus A380, 50 % du poids total du Boeing 787, 20 % des hélicoptères de Bell Helicopter [32]). Cependant, les questions environnementales, le coût élevé de la matière première ainsi que l'énergie consommée pour leur fabrication encouragent les sociétés à chercher un substitut à ces fibres. En effet, les composites à fibres synthétiques contribuent au problème d'augmentation des déchets des produits usagés (ceux-ci étant difficilement recyclables) et les règlementations imposées par les gouvernements visent à diminuer ceux-ci. D'autre part, le recyclage de ces fibres est coûteux et engendre une matière recyclée de faible qualité et rendement, ce qui pousse les chercheurs à migrer vers des ressources biodégradables.

1.4. Généralités sur les fibres naturelles

1.4.1. Intérêt de l'exploitation des fibres naturelles

Le développement des composites à fibres naturelles est donc un sujet d'intérêt depuis plus de vingt ans. Récemment, la recherche et l'innovation dans le domaine des matériaux composites à fibres naturelles (CFN) a connu une croissance rapide. L'intérêt provient des avantages de ces matériaux par rapport aux composites à fibres synthétiques, notamment leur faible impact environnemental, leur faible coût, et leur potentiel d'emploi pour une large gamme d'applications. De nombreux efforts ont été consacrés à l'amélioration des performances mécaniques pour étendre les capacités et applications de ce groupe de matériaux. Parmi les fibres naturelles, le lin attire plus l'attention chez les chercheurs canadiens. Étant déjà considérées comme déchets dans la culture des grains de lin, ces fibres peuvent être récupérées et transformées en renforts. Le lin est abondant au nord du continent européen pour la fibre textile, alors que le Canada est l'un des plus grands producteurs de graines de lin pour l'alimentation et les huiles [33, 34]. D'où l'intérêt de récupérer les fibres courtes, provenant de la culture canadienne du grain, en vue d'en faire des produits composites à valeur ajoutée.

Actuellement, l'utilisation des CFN s'est distinguée dans la fabrication des pièces composites de petite taille telle que les équipements sportifs, les pièces d'intérieur de certaines automobiles et les accessoires de véhicules récréatifs, ce qui a mis en valeur le potentiel d'emploi dans la fabrication de pièces de moyenne et grande taille [35]. En effet, les fibres naturelles sont caractérisées par une faible masse volumique (entre 1.2 et 1.55 g/cm^3) comparée aux fibres

synthétiques (verre : 2.54 g/cm^3 et carbone : 1.8 g/cm^3) ce qui assure une réduction du poids des fibres allant jusqu'à 40%. Pour les composites, il est donc devenu inévitable de mieux connaître ces fibres, en termes de microstructure, de propriétés mécaniques et de méthodes de fabrication, ceci afin de développer des matériaux ayant des performances élevées. Plusieurs recherches ont vu le jour ces dernières décennies relativement aux méthodes de fabrication et aux divers traitements des fibres qu'on peut envisager. À ce titre, le Chapitre 2 visera à donner un aperçu des différentes publications dans le domaine de l'utilisation des fibres naturelles, de la mise en œuvre des matériaux composites et notamment, des facteurs à prendre en compte dans les techniques de traitement de surface des fibres végétales qui affectent les propriétés mécaniques obtenues. Mais avant d'aborder ces questions, voyons à quoi ressemble la structure d'une fibre naturelle, plus précisément celle relative à la fibre de lin utilisée dans le projet actuel.

1.4.2. La fibre végétale

1.4.2.1. Propriétés des fibres végétales

Des travaux de recherche ont été réalisés pour démontrer l'intérêt des fibres naturelles dans les pièces composites non structurales pour l'industrie automobile [35-37]. Parmi les difficultés rencontrées, notons les propriétés mécaniques relativement faibles (par rapport aux fibres synthétiques courantes) et la forte variabilité de celles-ci, notamment en raison des aléas de la nature (climat annuel favorable ou non à la croissance) et de leur faible adhésion à la majorité des matrices polymériques, les fibres naturelles étant hydrophiles comparativement aux matrices polymères de nature hydrophobes donc chimiquement incompatibles sur le plan de la mouillabilité. La structure des fibres naturelles variant de facto avec les aléas de la nature, il n'y donc aucun contrôle industriel réel dans la fabrication des fibres elles-mêmes et de leur structure interne.

Le Tableau 2 compare les propriétés mécaniques des fibres utilisées dans la fabrication des CFN avec celles des fibres synthétiques courantes. Les propriétés mécaniques des fibres végétales dépendent non seulement de leur composition chimique et physique, mais aussi de leur architecture interne. En effet, ces fibres sont constituées de microfibrilles de cellulose de 4 à 10 nm de diamètre liées entre elles par une matrice de lignine. Elles sont donc en soi un matériau composite stratifié tel que le montre la Figure 5 avec les sous-couches S1 à S3. La lignine est considérée comme une composante importante de la rigidité de la fibre. Elle maintient l'eau dans les fibres et agit comme une protection biologique et un agent de renforcement pour résister à la force de gravité et au vent.

Il faut donc garder à l'esprit que les fibres naturelles sont avant tout des fibres à l'origine "vivantes" dont les propriétés physiques, chimiques et mécaniques s'amalgament intimement à cet état de fait, c'est-à-dire que leur comportement dans les composites industriels est difficilement comparable au comportement développé dans la nature sous forme vivante de la fibre. Une autre composante de la fibre naturelle est l'hémicellulose. Elle est caractérisée par sa capacité à créer des liaisons hydrogène et joue un rôle fondamental dans le maintien d'une architecture pariétale organisée, en liant les microfibrilles de cellulose entre elles. Il s'agit donc d'une matrice pour les microfibrilles de cellulose dans la fibre composite.

Tableau 2. Comparaison des propriétés des différentes fibres naturelles et synthétiques [38].

Fiber	Density (g/cm^3)	Diameter (μm)	Tensile strength (MPa)	Young's modulus (GPa)	Elongation at break (%)
Jute	1.3–1.45	20–200	393–773	13–26.5	7–8
Flax	1.5–3	–	45–1100	27.6	2.7–3.2
Hemp	–	–	690	–	1.6
Ramie	1.5	–	400–938	61.4–128	1.2–3.8
Sisal	1.45	50–200	468–640	9.4–22	3–7
Palf	–	20–80	413–1627	34.5–82.51	1.6
Cotton	1.5–1.6	–	287–800	5.5–12.6	7–8
Coir	1.15	100–450	131–175	4–6	15–40
E-glass	2.5	–	2000–3500	70	2.5
S-glass	2.5	–	4570	86	2.8
Aramid	1.4	–	3000–3150	63–67	3.3–3.7
Carbon	1.7	–	4000	230–240	1.4–1.8

1.4.2.2. Le lin

Le lin est une plante annuelle dicotylédone de la famille des Linacées. Elle fut l'une des premières espèces végétales cultivées par l'homme. A travers le monde, environ 200 variétés de lin sauvage se maintiennent naturellement. Toutefois ces lins sont « courts » et branchus, vivaces ou sensibles aux maladies, pauvres en fibres ou constitués de fibres fragiles. Le lin cultivé est issu de sélections successives de l'espèce Linum usitatissimum, du latin « le lin le plus utile », utilisé par l'homme depuis l'époque gallo-romaine pour le textile. Les multiples variétés de Linum

usitatissimum actuellement cultivées ont été optimisées selon les régions de culture et les produits à élaborer [39-41].

Le lin ne produit pas de déchets, toute la plante est utilisée. La graine est pressée pour faire de l'huile, des bases de peinture ou des résines. Les tourteaux, riches en anticholestérol, seront consommés par les animaux. Les fibres longues sont exploitées dans l'industrie textile et les fibres courtes partent essentiellement en papeterie (65%) ou en débouchés techniques comme renfort de différents matériaux, comme les composites à fibres courtes des tableaux de bord des voitures. La paille sert à 80% pour la confection de panneaux agglomérés, à 15% pour la litière des chevaux et le reste au paillage écologique des massifs pour limiter le développement des mauvaises herbes. Pour des raisons pratiques, on distingue entre le lin dit oléagineux, optimisé pour la production de graines (principal type de lin cultivé au Canada), et le lin dit fibre, optimisé pour la production de fibres textiles; bien que dans les deux cas le reste de la plante soit évidemment aussi exploité [42].

Si on considère la fibre de lin, comme le coton, elle est dans l'ensemble un polymère de cellulose, mais sa structure est plus cristalline, ce qui la rend plus solide, plus ferme et plus rigide à manipuler, mais aussi plus facilement froissable. La Figure 5 présente aussi une vue schématique des structures multi-échelles du lin, de la tige aux microfibrilles de cellulose. Les plantes de lin peuvent atteindre une longueur de 90 cm. Elles possèdent des fibres tout le long de leurs tiges, laquelle a un diamètre moyen de 3 à 5 mm. Au niveau macroscopique, une tige de lin est composée, de l'extérieur vers l'intérieur, de l'écorce, de faisceaux de fibres, du xylème et d'un vide central aussi appelé lumen. À l'échelle d'un faisceau, une coupe transversale de ce dernier comporte entre 10 et 40 fibres élémentaires reliées entre elles par les pectines [43].

Pour bien montrer l'architecture composite d'une fibre élémentaire, la Figure 5 montre enfin (en bas à droite) la paroi d'une fibre de lin divisée en ses différentes couches. La couche primaire externe est constituée de microfibrilles de celluloses orientées aléatoirement. Il s'agit d'une couche riche en protéine. La surface externe comporte aussi une lamelle intermédiaire ("middle lamella") située entre les fibres élémentaires du faisceau et très riche en lignine, ce qui permet de maintenir les fibres collées entre elles. La seconde couche S contient trois sous couches, lesquelles contiennent des nanofibrilles orientées (un peu comme les couches unidirectionnelles dans un composite stratifié). Elle est subdivisée en une couche externe (S1), une couche intermédiaire (S2) et une couche interne (S3). Les parois secondaires (couche S) et le lumen, lequel

correspond à un vide cylindrique longitudinale de la fibre, assurent le transport d'eau et de minéraux.

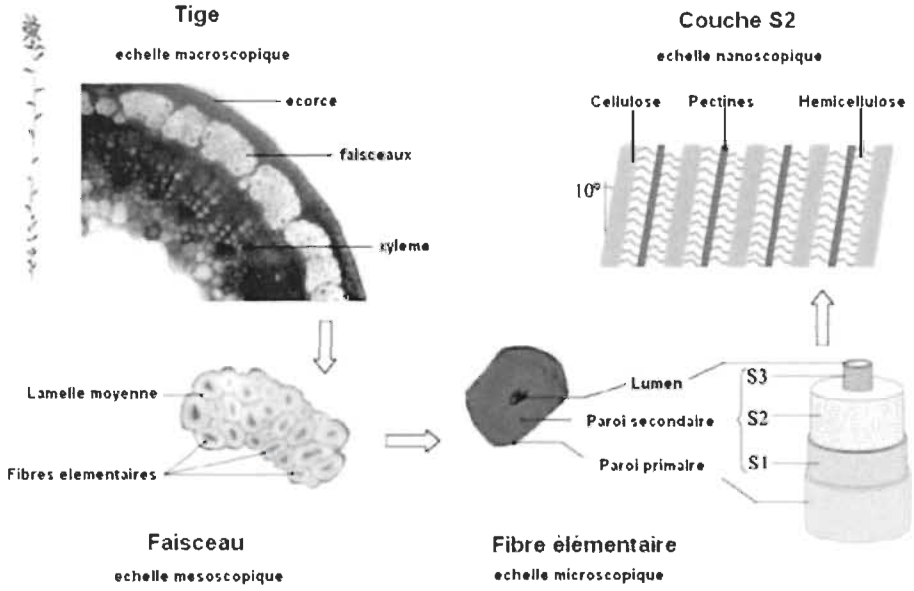


Figure 5. Structure multiéchelles de la fibre de lin [44].

La couche S1 est responsable des propriétés mécaniques transversales de la fibre. La couche S2 présente la majorité de la couche S et ses microfibrilles sont orientées à environ 10° par rapport à l'axe de la fibre. Elle contrôle la résistance mécanique axiale de toute la fibre et est donc structuralement importante dans les CFN. La couche S3 contient la plus forte concentration en lignine (~53%) par rapport aux autres sous-couches de la couche S [45].

1.5. Problématique et objectifs

1.5.1. Développement d'un renfort hybride à base de fibres courtes de lin traités

Depuis 2009, des travaux effectués à l'Université du Québec à Trois-Rivières ont mené au développement d'un nouveau type de renfort hybride à base de fibres naturelles de lin. Le renfort comporte une partie contenant des fils unidirectionnels (UD) de lin, de Tex 400, 1000 ou 2000 (le Tex correspondant au poids en grammes par km de fil), composés de fibres de lin tordues à un très faible niveau de torsion (autour de 40 tours par mètre de fil) et juxtaposés les uns aux autres pour former une couche UD, et une partie de fibres courtes découpées manuellement et déposées

aléatoirement sur la couche de fils UD pour former un liant mat retenant les fils UD entre eux [38, 46-52]. La Figure 6 montre un schéma de même qu'une photographie d'un renfort UD typique, communément appelé renfort UD lin-mat où la couche mat est fabriquée à base de fibres kraft. Dans le présent travail, ces fibres ont été remplacées par des fibres courtes de lin puisqu'elles présentent de meilleures propriétés mécaniques.

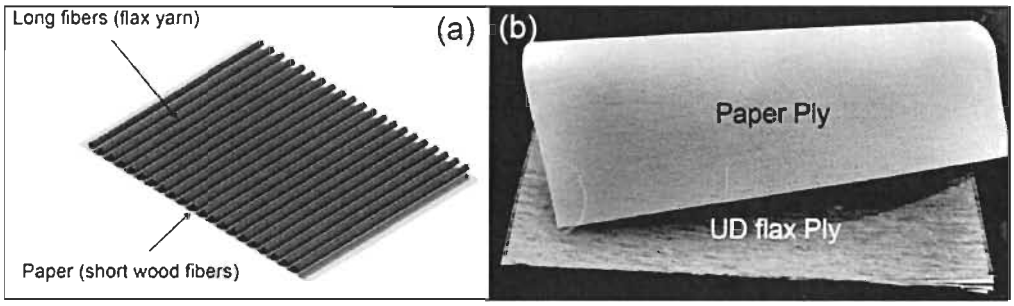


Figure 6. Renforts UD lin/Mat typique (a) Schématisation (b) Renfort fabriqué en laboratoire[48].

La fabrication du renfort se fait à l'aide d'une formette dynamique, procédé de fabrication du papier à petite échelle (voir Figure 7), lequel permet de déposer les fibres courtes, en suspension dans l'eau, en les projetant sur les fibres UD maintenues à l'intérieur d'un tambour en rotation (tambour d'essorage).

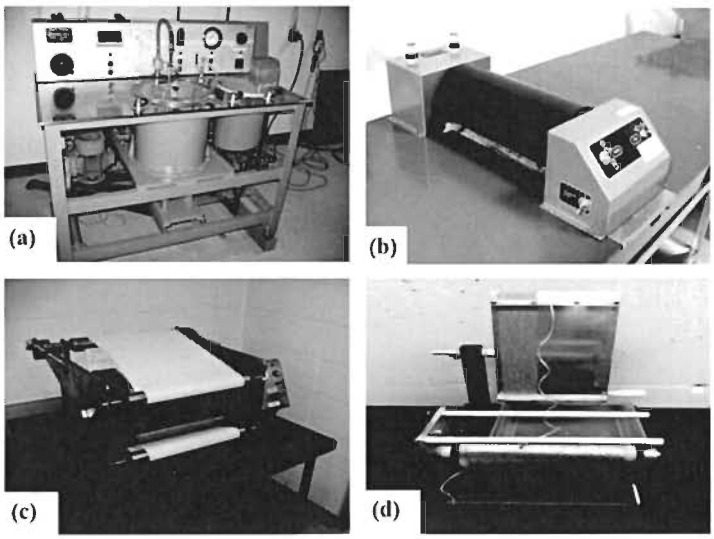


Figure 7. Étapes de fabrication des renforts hybrides (a) formette dynamique ; (b) presse; (c) rouleau séchoir; (d) dispositif d'alignement des fibres[51].

Cette approche offrira éventuellement la possibilité de fabriquer les renforts sur une ligne de fabrication en continu automatisée présentant ainsi des avantages pour l'industrie. Ce type de

renfort a été l'objet principal de nombreuses études portant sur l'amélioration des propriétés mécaniques de composites UD à fibres de lin [38, 46-52].

1.5.2. Interface fibre-matrice du renfort hybride

Des études sur les structures et les propriétés des fibres naturelles montrent que les composites issus de celles-ci combinent de bonnes propriétés mécaniques avec une faible masse spécifique. Les modifications physiques et chimiques de la surface des fibres conduisent à une amélioration de ces propriétés. L'utilisation d'un agent de couplage, par exemple, conduit à une amélioration du module de Young et de la résistance en traction d'environ 50%. Simultanément, le taux d'absorption d'humidité des composites diminue d'environ 60% [53].

Les travaux de littérature montrent que la taille des fibres et la rugosité de leur surface affectent l'adhérence à la matrice du composite. Ridzuan et coll. [54] ont conclu qu'un traitement alcalin réduit le diamètre et la densité des fibres et permet de diminuer le taux d'humidité dans la fibre. Cela engendre un meilleur accrochage mécanique fibres-matrice du composite renforcé par des fibres naturelles [54]. La résistance mécanique des composites dépend du transfert des contraintes entre les fibres par le biais de la matrice. Elle est donc fortement déterminée par l'adhésion entre la fibre et la matrice.[55].

L'amélioration de la surface par un prétraitement (chimique ou mécanique) permet de modifier et de nettoyer la surface de la fibre. Cela permettrait également de réduire l'absorption d'humidité de la fibre et de rectifier les défauts géométriques des fibres naturelles [56]. La bonne tenue des polymères renforcés par des fibres naturelles est gouvernée par l'interface fibre-matrice et la capacité de transmettre les contraintes à partir de la matrice. Les imperfections telles qu'une mauvaise adhésion entraînera une absorption d'humidité élevée et contribuera à la formation de microfissures. De faibles propriétés mécaniques limitent l'utilisation des fibres naturelles comme renforts dans la fabrication des composites [57].

Les renforts UD lin à liant mat de lin améliorent les propriétés transversales du composite et facilitent le moulage en maintenant l'alignement des fibres longues UD pendant le préformage et le moulage. Les traitements de surface des fibres courtes constituant la phase mat permettent d'améliorer d'une part, l'accrochage entre les fibres courtes et les fibres UD et d'autre part,

l'accrochage fibre matrice. La couche mat est fabriquée à l'aide d'un procédé papetier qui sera décrit dans les chapitres suivant.

Une corrélation entre les traitements de surface des fibres dans le domaine de la fabrication du papier et celui des renforts UD lin-mat pour les composites à fibres naturelles, puisque ce dernier est fabriqué à partir d'un procédé papetier, mène à considérer le traitement de raffinage comme un traitement potentiellement avantageux pour l'amélioration du comportement mécanique de ce type de renfort. Le raffinage est un traitement mécanique de la pâte à papier visant à obtenir l'hydratation, la fibrillation ou la coupe des fibres selon le type de raffineur utilisé. Les paramètres et l'effet de la fibrillation sur les fibres courtes de lin seront donc étudiés. Non seulement il améliore l'accrochage mécanique fibre-fibre et fibre-matrice, il permet aussi une forte augmentation du nombre de sites réactionnels pour d'éventuels traitements chimiques entre les deux phases du renfort d'une part (fibres courtes et longues) et entre la matrice et les fibres d'autre part.

1.5.3. Objectifs

L'objectif de ce travail est d'évaluer l'effet de la fibrillation de surface des fibres courtes de lin sur les propriétés mécaniques en traction des composites à renforts hybride UD lin/mat lin. La fibrillation détache des nanofibres en surface des fibres, ce qui augmente l'interaction fibre-fibre et fibre-matrice des composites. Une première étape dans l'analyse sera de déterminer un jeu de paramètres de fibrillation permettant de maximiser les propriétés mécaniques. Une fois ces paramètres connus, la caractérisation en traction des composites dans le sens longitudinal et travers des fibres sera réalisé. De même, Des essais de mesure de la perméabilité à la résine des renforts obtenus seront effectués pour vérifier jusqu'où la capacité de moulage est affectée par la fibrillation des fibres courtes pour les renforts mat et UD-lin/mat. Cette étude nous amènera donc à répondre aux questions suivantes :

1) Quel est l'effet de la fibrillation sur la structure de la fibre de lin ?
2) À quelle dégrée de fibrillation les propriétés mécaniques en traction seront le plus améliorées ?
3) Ce traitement affectera-t-il la capacité d'imprégnation du renfort ?

Les analyses se feront d'abord sur des renforts mats de fibres courtes (sans fibres UD) pour d'abord voir l'effet de la fibrillation sur les propriétés des composites faits de mats seulement, et ensuite sur des composites à renforts UD-lin/mat pour déterminer comment l'accrochage entre fibres courtes et UD affecte les propriétés. La réponse à ces questions permettra de délimiter les facteurs qui entrent en jeu dans la variation des propriétés longitudinales et transversales du composite final fait du renfort UD lin/mat à fibres de lin. L'objectif principal de cette recherche est donc de vérifier si le traitement de fibrillation peut être appliqué sur ce type de renfort et dans quelles limites.

Il faut donc étudier l'effet de la fibrillation sur la structure et la géométrie des fibres courtes, ainsi que son impact sur la perméabilité des renforts pour le moulage et les propriétés mécaniques des composites fabriqués tout en gardant les autres paramètres de fabrication constants (densité surfacique des renforts, taux volumique des fibres dans les plaques composites, longueurs des fibres courtes, température durant l'imprégnation et pression d'injection).

Un autre objectif est de déterminer dans quelle mesure les propriétés mécaniques transversales (perpendiculaires aux fibres UD) en traction augmentent en proportion du taux de fibrillation. Cela facilitera les recherches ultérieures sur le sujet. Cet aspect est important, car dans un renfort UD conventionnel, les propriétés transverses sont généralement faibles (équivalentes à celles de la matrice seule) tandis qu'ici, la fibrillation des fibres suggère qu'il est possible d'augmenter de façon substantielle les propriétés transverses par accrochage fibres-fibres et fibres-matrice.

CHAPITRE 2 : REVUE DE LITTÉRATURE

2.1. Introduction

Dans ce chapitre, une revue de littérature scientifique sera réalisée sur les divers traitements de surface des fibres naturelles pour les composites afin de clarifier l'effet de ceux-ci sur les propriétés mécaniques et la mise en forme par les procédés d'injection sur renforts, dont le procédé RTM (de l'anglais ''resin transfer moulding'') utilisé dans cette étude. Une attention particulière sera portée à la fibrillation de surface et les traitements mécaniques pour délimiter l'état actuel des connaissances sur ce type de traitement dans les composites. Nous verrons notamment les modifications de surface appliquées sur les fibres végétales dans le but d'améliorer l'adhésion entre les fibres et la matrice ainsi que les paramètres pris en compte pour le traitement de fibrillation des fibres. Le chapitre conclut avec les divers procédés et paramètres de mise en forme des CFN, notamment ceux développés à l'UQTR en lien avec les renforts UD lin-mat développés et améliorés au fil des ans.

2.2. Les traitements des fibres naturelles

Tel que mentionné précédemment, un des inconvénients des fibres naturelles dans le développement des matériaux composites est la faible adhésion entre la matrice polymère et les fibres. Celle-ci est causée par la présence d'un renfort hydrophile polaire et une matrice hydrophobe apolaire. Les composites issus d'une telle combinaison présentent de faibles propriétés mécaniques et se dégradent rapidement dû à la forte tendance à l'absorption d'humidité des fibres végétales. C'est dans ce contexte qu'un prétraitement des fibres des renforts est requis. Ces prétraitements utilisent des méthodes physiques ou chimiques et visent à maximiser l'adhésion entre les fibres et la matrice des composites. Il existe de nombreux traitements chimiques, mais hormis l'aspect strictement mécanique des composites, le meilleur sera aussi celui ayant le plus faible impact environnemental et le coût le plus faible.

2.2.1. Les traitements chimiques

Les différents traitements de surface pour des applications composites ont été revus par plusieurs chercheurs [57-59]. Les plus employés sont le traitement alcalin qui consiste à augmenter la quantité de cellulose exposée à la surface des fibres, la silanisation, qui consiste à l'ajout des

silanes comme agents de couplage et la greffe ou traitement avec des agents de couplage au niveau de la surface. Ils permettent d'exposer d'avantages de groupes réactifs à la surface des fibres et le couplage efficace avec la matrice. Dépendant des traitements, des améliorations significatives de la résistance des composites peuvent être obtenues par traitement chimique [57, 60-63].

Une des modifications chimiques de surface très utilisée pour les composites naturels est le traitement alcalin (appelé aussi mercerisation). Ce traitement résulte en une augmentation de la rugosité de surface pour augmenter l'accrochage à l'interface fibre/matrice. Cette modification de surface supprime les huiles, la cire et la lignine qui recouvrent la surface extérieure de la membrane cellulaire et augmente ainsi la quantité de cellulose exposée à la surface des fibres, et par suite le nombre de sites de réaction avec la résine [64-67]. Le comportement mécanique des composites en polypropylène renforcé de fibres de lin soumises à différents traitements chimiques a été étudié par Wang et coll. [68]. Des renforts mats et textiles ont été traités avec de l'eau distillée, une solution de 0,5 M d'hydroxyde de sodium (NaOH) et une solution de 12% d'acide maléique. Lorsque les échantillons sont saturés (submergé dans des conteneurs en plastique à une profondeur de 35 mm et remplis de solution de traitement), tous les traitements augmentent de manière significative l'allongement à la rupture (de 2.5% vers 3.5% d'allongement) tout en diminuant la rigidité (de 1300 MPa pour les non-traités contre 850 MPa pour les renforts traités), ce qui suggère que la capacité de formage a été améliorée, sans perte de résistance (35 MPa en moyenne). La rigidité diminuée (850 MPa) des composites suggère que l'interface fibres/matrice a été altérée de façon permanente. Cette étude met en évidence l'efficacité des traitements chimiques dans l'amélioration de la formabilité des composites par thermoformage obtenue généralement par une étape de préchauffage [69].

La silanization est un traitement couramment utilisé avec les fibres de verre. La formule chimique du silane est le SiH_4. Les silanes sont utilisés en tant qu'agent de couplage fibres-matrice pour réduire l'impact de l'humidité sur les propriétés mécaniques et augmenter l'adhérence fibre/matrice. Pour les fibres naturelles, le nombre total de groupes hydroxyles de la cellulose à la surface des fibres peut être diminué par les agents de couplage silane. Huner [70] a étudié l'effet de ce traitement sur les composites à fibres de lin. Il constate qu'un composite lin-époxy avec les fibres traitées par silanization montre une augmentation de la résistance à la traction de 8% et du

module de traction de 23 % comparé aux échantillons non traités. Les silanols à la surface des fibres interagissent avec la résine époxy et améliorent l'adhésion.

2.2.2. Les traitements physiques

La modification des fibres de cellulose peut se faire par des méthodes physiques. Ces traitements de surface visent à oxyder et à activer la surface des fibres. En modifiant les caractéristiques au niveau de la surface, les traitements physiques auront une influence sur la mouillabilité et l'affinité des fibres avec la matrice. Les traitements physiques les plus connus sont le traitement corona et le traitement au plasma, mais, récemment, des recherches ont démontré l'efficacité du traitement de fibrillation.

2.2.2.1. Le traitement corona

Le traitement corona est défini comme une décharge lumineuse et audible qui se produit lorsqu'il y a un gradient de champ électrique excessif concentré sur un objet, ce qui provoque l'ionisation et un éventuel claquage électrique de l'air adjacent à ce point. Les décharges corona sont causées par des géométries d'électrodes non homogènes telles qu'une électrode ponctuelle et une électrode à surface plane. La décharge se produit à des points précis où le champ électrique est renforcé. Les décharges corona sont de puissance relativement faible se produisant à la pression atmosphérique [71]. Ce traitement est l'une des techniques les plus intéressantes pour l'activation de la surface des fibres par oxydation. Ce procédé modifie l'énergie de surface des fibres de cellulose, et dans le cas du bois, l'activation de surface augmente la quantité de groupes aldéhyde [53].

Belgacem et coll. [72] ont étudié l'effet du traitement corona sous différentes conditions sur les propriétés mécaniques de composites à fibres de cellulose. Les fibres et le polypropylène ont été modifiés en utilisant une large gamme de traitement corona et de concentrations d'oxygène. Les propriétés mécaniques des composites sont considérablement améliorées lorsque les fibres de cellulose seules ou la matrice et les fibres étaient traitées. Les composites fabriqués à partir de fibres de cellulose non traitées et de polypropylène traité ont montré une amélioration relativement faible.

Le traitement corona est cependant difficile à utiliser sur des objets en 3D à géométrie complexe. Cette limitation s'applique non seulement aux produits de forme 3D, mais aussi aux

matériaux fibreux, notamment sous forme de tissus ou de fils. L'existence de ces limitations nécessite de recourir à d'autres techniques de modification de surface plus conformes aux géométries complexes, comme l'ozone ou les rayons ultraviolets.

2.2.2.2. Le traitement au plasma

Un plasma peut être défini comme un gaz quasi-neutre partiellement ionisé. Dans ce gaz ionisé, il existe un équilibre entre les densités des particules négatives et positives. Les composantes du plasma comportent des ions, des électrons et des ondes UV qui interagissent au niveau de la surface de la fibre en modifiant sa nature physico-chimique. La décharge électrique est le moyen le plus simple et le plus répandu pour maintenir un plasma pendant une longue période. Le plasma apporte une modification physique à la surface des fibres en les rendant plus rugueuses par effet de pulvérisation, ce qui produit une augmentation de la surface de contact et de l'accrochage entre la fibre et le polymère [73]. Le traitement au plasma représente un processus rapide, écologique, non toxique et sec, qui agit sur la surface de la fibre sans affecter sa structure contrairement à la fibrillation. Ce type de traitement est utile pour activer et nettoyer la surface et pour améliorer l'adhésion fibre-matrice des CFN.

Seki et coll. [74] ont soumis des fibres de jute à un plasma d'oxygène à basse température et ont étudié l'influence de la puissance du plasma sur les propriétés mécaniques des composites en polyéthylène haute densité (PEHD) renforcés de fibres de jute. Ils observent que la résistance au cisaillement interlaminaire et à la flexion de ces composites augmente de 35% et 30% respectivement, lorsque les fibres sont traitées avec une puissance de 60 W pendant 15 min [74, 75]. Enciso et coll. [76] ont étudié l'influence du traitement plasma, à faible pression et sur des fibres courtes de lin sur l'amélioration de l'adhésion avec une matrice polyéthylène. Le traitement s'est avéré efficace pour les composites ayant un V_f de 20%, seul pourcentage de fibres évalué par les auteurs. La spectroscopie aux rayons X a démontré qu'aucune altération de la composition chimique de la surface de la fibre de lin n'a été obtenue. Par conséquent, contrairement à la fibrillation, l'amélioration de l'adhésion est uniquement due à la déshydratation et au nettoyage des fibres. Cela permet aux groupes carbonyles d'avoir un meilleur ancrage lorsque les fibres sont traitées, comme le montre clairement le MEB. Toutefois, vu la faible stabilité du traitement aux plasma, il est nécessaire de diminuer le temps entre le traitement des fibres et la fabrication des composites.

2.2.2.3. Le traitement de fibrillation

Le traitement de fibrillation consiste à détacher partiellement les microfibrilles à la surface des fibres pour produire des fibres naturelles "poilues" en surface, et donc plus rugueuses et susceptibles d'améliorer l'adhésion fibres-matrice tout en augmentant le nombre de sites réactionnels pour le traitement chimique des fibres. La micro-fibrillation peut être réalisée à l'aide d'un raffineur de pâte à papier et l'écart entre le rotor et les disques statoriques du raffineur peut être ajusté pour obtenir différents degrés de micro-fibrillation de surface [77, 78]. Iwamoto, Nakagaito et Yano [58] étudient les paramètres qui affectent la fibrillation de la pâte kraft et l'impact de celle-ci sur les propriétés mécaniques des composites faits d'une matrice à base de résine acrylique. Des mesures de performance ont été réalisées en variant à chaque fois le nombre de passages des fibres dans le raffineur. L'étude montre que les fibres se transformaient en fibres uniformes de 20 à 50 nm de largeur après cinq passages. Au-delà de 5 passages, la taille des fibres ne changeait plus. À mesure que le nombre de passages augmente, les fibres subissent une dégradation qui peut s'expliquer par la diminution du degré de cristallinité et du dégrée de polymérisation de la cellulose. Les auteurs constatent que la dégradation des fibres entraîne une diminution des propriétés mécaniques et une augmentation de la dilatation thermique des renforts et des composites.

La pâte à papier ou pulpe peut être obtenue moyennant trois procédés ; des procédés mécaniques en utilisant un raffineur ou un défibreur, des procédés chimiques en cuisant le bois et en ajoutant des produits chimiques pour dissoudre la lignine et récupérer les fibres de cellulose et des procédés mi-chimiques qui combinent la cuisson chimique et les traitements mécaniques.

Le degré de fibrillation des pâtes ou fibres traitées peut être évalué avec deux types d'essais au laboratoire. La méthode Schopper-Riegler (appelée aussi méthode européenne) est conçue pour fournir une mesure de la vitesse à laquelle une suspension diluée de pâte à papier peut être déshydratée (selon la norme ISO 5267-1 :1999). Il a été démontré que la capacité d'égouttage est liée à l'état de surface et au gonflement des fibres et constitue un indice utile de l'intensité du traitement mécanique auquel la pâte a été soumise. L'échelle du nombre Schopper-Riegler (SR) est telle qu'une décharge de 1000 ml correspond à un °SR de 0 et une décharge nulle correspond à un °SR de 100 [79]. La Figure 8a illustre la méthode de caractérisation du dégrée de fibrillation des fibres courtes selon la norme européenne.

En Amérique du Nord, le degré de fibrillation peut être mesuré moyennant l'indice d'égouttage de la pâte (en anglais Canadian Standard Freeness ou CSF). Selon la norme TAPPI T-227 [80], le degré d'égouttage de la fibre est conçu pour donner une mesure de la vitesse à laquelle une suspension diluée de pâte (3 g de fibre dans 1 L d'eau) peut être égouttée. Le processus est illustré à la Figure 8-b. L'eau est détournée par un cône de dispersion où, si elle s'écoule rapidement, une partie déborde vers un orifice latéral et échappe à la collecte par l'orifice inférieur. L'eau de l'orifice latéral est recueillie, mesurée dans un cylindre gradué et rapportée en ml. Le bois tendre non raffiné peut contenir 700 ml d'eau, tandis que la pâte mécanique raffinée en contient entre 100 et 200 ml [81].

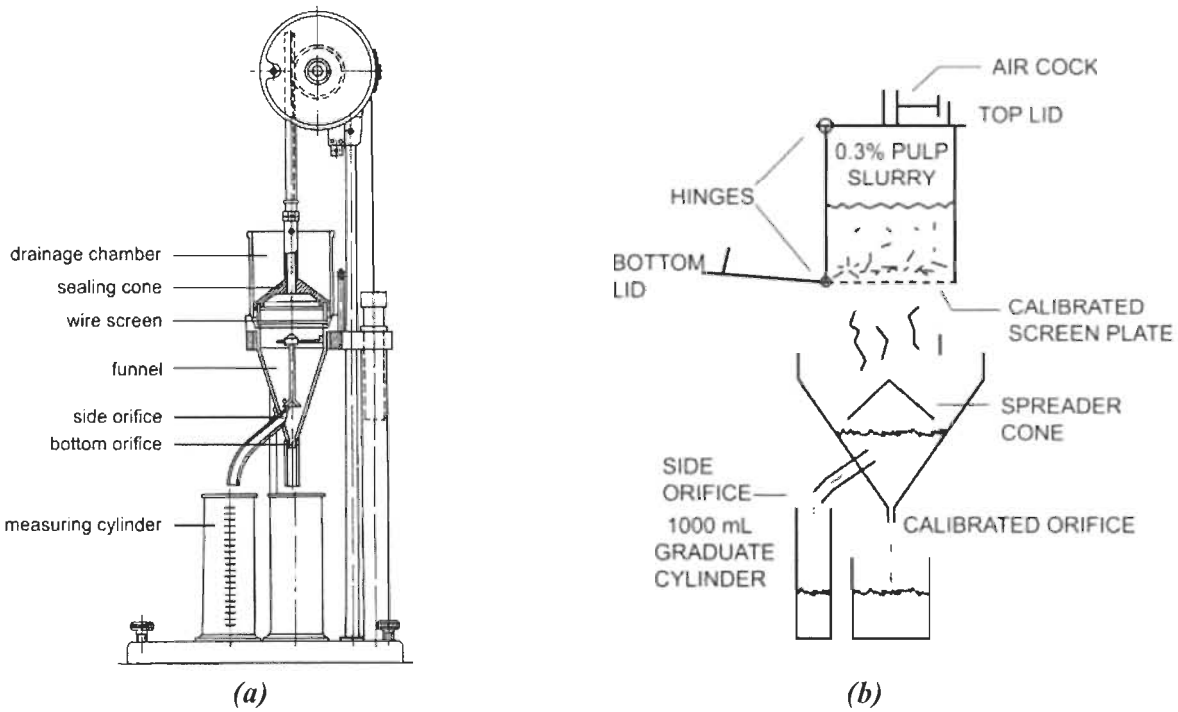


Figure 8. Schéma du procédé de détermination du degré de fibrillation des fibres (a) selon la méthode Schopper-Riegler (b) selon la méthode CSF [79, 81].

Le CSF a été mis au point pour être utilisé avec les pâtes mécaniques et n'était pas destiné à être utilisé avec des pâtes chimiques. Néanmoins, il s'agit du test standard pour la caractérisation du raffinage dans les raffineries nord-américaines. Il a été démontré que le CSF est lié à l'état de surface et au gonflement des fibres. Outre ces facteurs, le résultat dépend également des conditions

dans lesquelles l'essai est conduit, tel que la préparation de la pâte, la température et la qualité de l'eau. TAPPI TIP 0809-01 [82] fournit une conversion des valeurs de raffinage entre les taux obtenus selon le CSF, le °SR, le Williams Precision et le facteur de drainage de la pâte. La Figure 9 présente un graphique du premier tableau de la norme, obtenu pour les pâtes mécaniques et les pâtes chimiques. Puisqu'il ne s'agit pas d'une conversion exacte, chaque type de test est illustré par deux courbes qui représentent les limites maximum et minimum des valeurs. Pour chaque cas, L'échelle donne la quantité d'eau extraite pour le poids à sec contenu dans le mélange d'eau. Pour chaque échelle, le nombre de gramme spécifié correspond à la masse de fibres sèches contenues dans le volume d'eau précisé par la norme correspondante. La ligne continue réfère à l'échelle de gauche (SR), la ligne en points réfère à l'échelle de droite et la ligne en traits discontinus correspond à l'échelle de dessous (CSF). Cette figure facilitera les conversions effectuées par les différents auteurs cités au chapitre suivant.

Il existe plusieurs systèmes de raffinage de laboratoire qui permettent de simuler le processus de raffinage dans les machines industrielles. Parmi ceux-ci, il y a la technique de raffinage à la pile Valey, le moulin PFI, le moulin Jokkro et les raffineurs coniques. Feng [83] vise à mettre en évidence une méthode de caractérisation du taux de fibrillation des fibres cellulosiques. Il examine en détail l'utilité et la validité du degré de rétention d'eau pour caractériser l'étendue de la fibrillation des fibres en des microfibrilles et des nanofibrilles. À l'aide d'un raffineur de type PFI, des échantillons de fibres sont fibrillés pour produire des microfibrilles. Les auteurs ont calculé le degré de rétention d'eau (ou WRV pour water retention value) dans les différentes fibres et comparé les résultats afin de valider l'efficacité du procédé dans la détermination du taux de fibrillation. Le raffinage au PFI pour une longue durée (60 min) a entraîné une augmentation de la surface externe des fibres de par la présence des microfibrilles. Un taux de raffinage faible correspond à une faible valeur de WRV. L'auteur démontre que le dégrée de rétention d'eau est une méthode fiable pour caractériser le taux de fibrillation. Les valeurs calculées sont cohérentes avec les observations microscopiques. Cette méthode pourrait s'avérer utile pour comparer les résultats d'essais mécaniques sur des composites faits de fibres fibrillées à différents degrés.

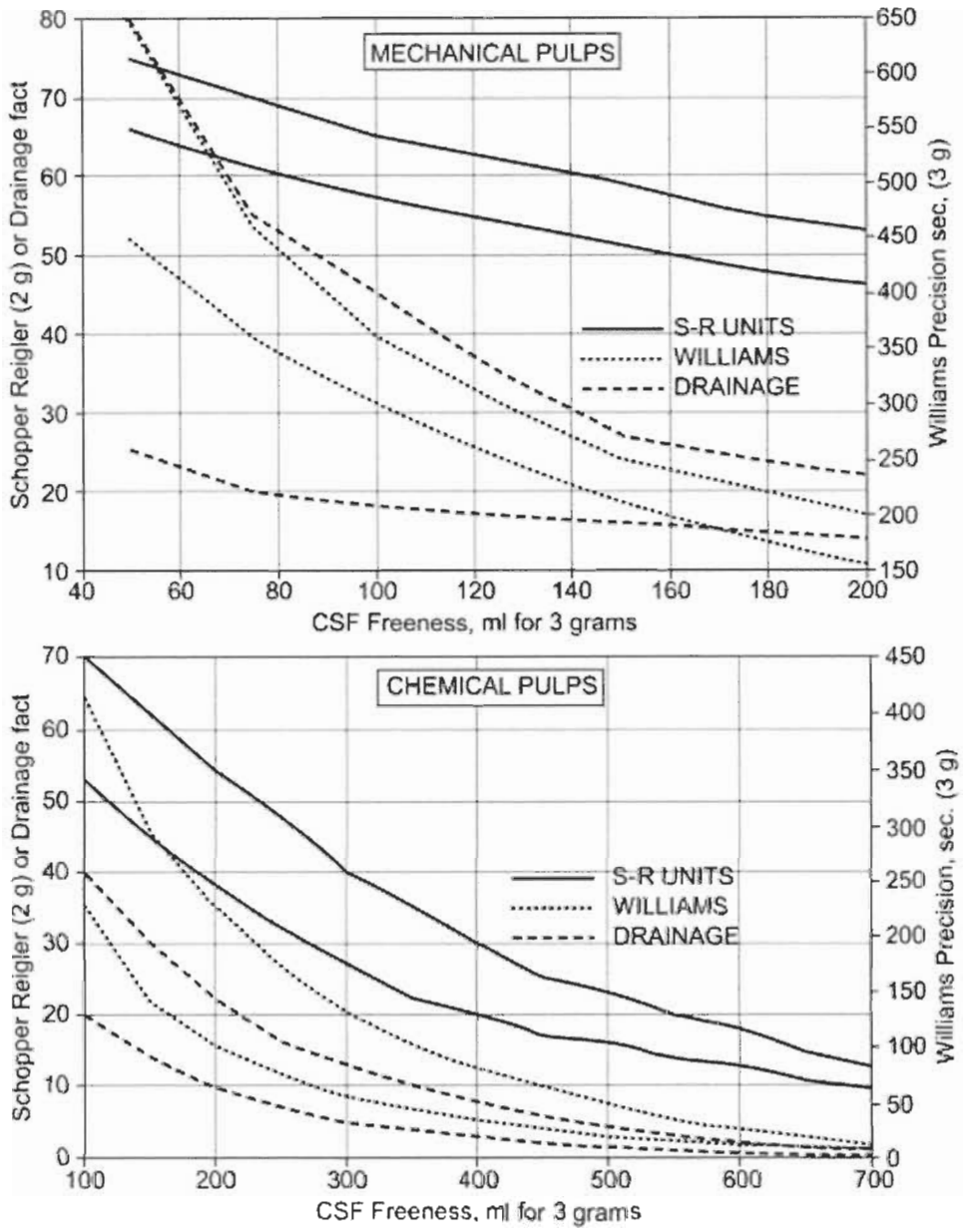


Figure 9. Comparaison du taux de drainage pour les différents types de pâtes [81].

Behzad Kord [84] a étudié l'effet de l'intensité de raffinage sur les propriétés du papier fabriqué à partir de bois d'eucalyptus. Un mélange de fibres de pâte kraft a été préparé au laboratoire à partir de copeaux de bois. Après la cuisson et la mise en pâte, celle-ci est raffinée avec un moulin de type PFI à cinq intensités différentes de 0 révolution, 500 révolutions, 1500 révolutions, 2500 révolutions et 3500 révolutions. Ensuite, la fabrication du papier et la mesure de

ses propriétés telles que le degré de raffinage, la résistance à la traction, la résistance à la déchirure, la résistance à l'éclatement et la densité ont été effectuées. Les résultats ont montré qu'avec l'augmentation de l'intensité de raffinage, la résistance à la déchirure du papier diminue, mais la résistance à la traction, la résistance à l'éclatement et la densité du papier augmentent. Cependant, la résistance maximum à la déchirure du papier est obtenue sans raffinage (0 tr/min) et la valeur la plus élevée de la résistance à la traction, de la résistance à l'éclatement et de la densité du papier est obtenue à l'intensité de raffinage de 3500 révolutions. Motamedian, Halilovic et Kulachenko [85] ont aussi étudié l'effet du raffinage de pâtes kraft avec un moulin PFI via une approche expérimentale et numérique. L'étude démontre aussi que le raffinage augmente la résistance, la rigidité et la densité des feuilles de papier. L'amélioration des propriétés mécaniques provient essentiellement de la présence des microfibrilles en surface des fibres et leur morphologie. Les auteurs ont constaté que l'augmentation de la longueur des microfibrilles améliore la rigidité du réseau de fibres puisqu'elles peuvent relier des fibres plus éloignées. Cependant, une augmentation supplémentaire de la longueur des microfibrilles a un effet inverse sur la structure de la feuille puisque l'accrochage devient de plus en plus difficile.

Une autre étude moins récente avait pour objectif d'étudier l'influence des fibres de lin traitées sur les propriétés mécaniques et optiques des papiers fabriqués avec celles-ci. Mohini [86] cherchait à explorer l'effet du raffinage sur les fibres elles-mêmes, sans les utiliser dans le moulage de composites ou la fabrication de papier. Des mats de fibres ont été fabriqués avec des fibres raffinées après les avoir traitées chimiquement par le procédé de réaction de l'ester alkylique. La comparaison des propriétés mécaniques et des paramètres de raffinage a été faite avec la pâte kraft (fibre de bois). Les variables traitées dans cette étude sont : la durée de passage au raffineur, l'espacement entre les plaques du raffineur, la consistance de la pâte et la température maintenue durant les traitements. Les résultats montrent que la pâte raffinée de fibres courtes modifiée chimiquement ne peut pas être utilisée pour la fabrication de papier de haute qualité, mais elle peut être utilisée comme rembourrage à faible coût pour des applications bas de gamme dans l'emballage ou les papiers décoratifs à faible performance [86, 87].

2.2.3. Effet des traitements de surface sur les propriétés mécaniques des composites

Dans l'optique d'amélioration des caractéristiques des fibres naturelles, les chercheurs ont pensé aux traitements mécaniques et chimiques qu'on peut appliquer pour favoriser la rigidité et la résistance des composites. Venkatachalam et coll. [62] font une revue de littérature montrant que les traitements des fibres peuvent améliorer significativement l'adhérence entre la fibre et la matrice et réduire l'absorption d'eau. Les auteurs déduisent les facteurs affectant les propriétés mécaniques des composites qui sont : la méthode d'extraction des fibres naturelles, la densité des fibres, la composition chimique des fibres et les techniques de prétraitement des fibres que ce soit mécaniquement par raffinage ou compactage ou chimiquement comme le traitement à l'acide phosphorique. Un autre facteur jouant un rôle important est le taux d'humidité dans les composites. Les auteurs révèlent que les traitements chimiques, à partir d'un degré connu de traitement, augmentent effectivement les propriétés mécaniques et que l'amélioration de l'adhésion entre les fibres et la matrice permet de fabriquer des composites qui présentent une capacité de rétention d'eau réduite par rapport aux autres composites [88].

Hodzic et Shanks [78] présentent les résultats d'une étude sur l'effet du traitement de fibrillation sur des composites hybrides à base de résine phénolique. Ces composites, dont le V_f est de 30%, sont faits de renforts hybrides ayant 80% du poids des fibres en fibres de sisal fibrillées et le reste en fibres d'aramide. Le module de traction et la résistance des composites hybrides renforcés et fibrillées ont augmenté de 67 % (de 1.5 GPa à 2.25 GPa) et 102 % (de 13.3 MPa vers 26.9 MPa), respectivement, par rapport aux composites hybrides renforcés par des fibres non fibrillées. Cette amélioration a été attribuée à un meilleur accrochage à l'interface fibre-matrice due à une plus grande surface de contact obtenue par les microfibrilles libérées. Les résultats des essais sur des composites à matrice phénolique renforcés par des fibres de sisal fibrillées (avec un V_f de 70%) montrent une augmentation du module de traction de 0.74 GPa à 1.62 GPa et de la résistance de 13 MPa à 22.8 MPa. Cette amélioration a été attribuée à l'accrochage mécanique et à une meilleure liaison entre les fibres fibrillées.

Senthilkumar et coll. [89] étudient le potentiel de renforcement des fibres de noix de coco, fibrillées par un procédé de raffinage mécanique, dans une matrice époxy. Les fibres ont été fibrillées par un raffineur conique pour des durées de 10 à 40 min et soumises à des analyses de composition chimique, de distribution de taille par microscopie et de taux de cristallinité. La

fibrillation n'a pas affecté la cristallinité des fibres. Cependant, la teneur en cellulose a augmenté en raison de l'élimination de la lignine pendant le processus de raffinage. Il fut démontré que le processus de fibrillation engendre une distribution uniforme de fibres de coco fibrillées (FCF) dans la matrice époxy, évitant la formation de vides d'air. La résistance à l'impact ainsi que la résistance à la traction ont augmenté, respectivement, de 61% et 12% pour les composites renforcés par des FCF par rapport aux composites renforcés par des fibres de coco non-fibrillées (FCNF). La fibrillation des fibres de noix de coco a considérablement amélioré les performances des composites à matrice époxy.

Une étude récente sur l'effet de la combinaison des traitements chimiques et mécaniques appliqués aux fibres de bambou a été menée par Sanchez-Echeverri et coll. [90]. Les fibres ont été traitées chimiquement par un traitement alcalin combiné à un traitement de raffinage à différents nombres de révolutions (1500, 2000, 7500 et 10000 tours). Les composites à matrice de ciment ont montré une résistance à la flexion augmentée d'environ 15 % pour les composites à fibres traitées avec des agents alcalins par rapport aux fibres non traitées. Cependant, lorsque le traitement alcalin est combiné à un raffinage mécanique des fibres, l'augmentation atteint 57%. L'énergie spécifique (ES) sous chargement mécanique, définie comme l'énergie absorbée par unité de volume, a été étudiée. Une augmentation de l'ES correspond à une augmentation de la limite élastique du matériau. L'énergie spécifique des composites de ciment n'est pas considérablement affectée ni différente entre les fibres non traitées et celles traitées à l'alcali. Par contre, la combinaison de l'alcali avec le raffinage mécanique entraîne une augmentation de l'ES de plus de 7 fois. Toutefois, il a été observé que les taux élevés de raffinage engendrent des effets négatifs sur ces mêmes propriétés par une dégradation des fibres accompagnée d'une diminution de la capacité de gonflement (capacité de stockage d'eau des fibres) et par suite une augmentation de l'hydrophobicité des fibres qui réduit la liaison fibre-matrice.

En général, les études menées sur les traitements de surface visaient à augmenter les propriétés physiques des composites en altérant les fibres constituant le renfort. Si les traitements mécaniques sont généralement utilisés pour ajuster les propriétés physiques et de surface des fibres, un intérêt doit aussi être porté aux effets qui en découlent sur la limite de déformation des réseaux de fibres. Une amélioration de la déformation du réseau de fibres de 16% a été obtenue en traitant les fibres de cellulose à de faibles taux de raffinage (raffinage PFI). De cette façon, la

déformation des fibres et l'augmentation des liaisons interfibres ont entraîné une multiplication par trois de la résistance à la rupture du réseau de fibres. Cela favorise l'utilisation des fibres naturelles dans les procédés de thermoformage, lesquels exigent généralement une bonne formabilité laquelle est liée à la capacité de déformation du réseau [91].

2.3. Procédés de mise en œuvre des CFN et perméabilité aux résines des renforts à fibres naturelles.

La mise en forme des CFN, en particulier lorsque cela implique des géométries complexes, est souvent l'un des défis les plus difficiles à relever pour les fabricants. Les propriétés intrinsèques des fibres naturelles, telles que l'hygroscopicité (la tendance d'une fibre à absorber l'humidité) et la sensibilité à la chaleur, compliquent encore le choix. Cette section met en valeur les procédés employés dans la fabrication des CFN et l'un des paramètres qui affectent le plus le moulage des CFN, soit la perméabilité des renforts.

2.3.1. Procédés et paramètres de mise en œuvre des CFN.

Généralement, les procédés de moulage des CFN font appel aux techniques conventionnelles de fabrication des composites. La littérature regorge d'études portant sur la caractérisation des procédés de moulage par injection, par thermoformage, par compression ainsi que par injection ou infusion de résine dans les préformes fibreuses (procédé appelé couramment "Liquid Composite Moulding" ou LCM dans la littérature anglaise) et leurs applications avec les fibres lignocellulosiques. Pour produire des composites de qualité supérieure, une bonne compréhension du processus d'imprégnation et de l'écoulement de la résine à travers les renforts à fibres lignocellulosiques est impérative. Les procédés de mise en forme des CFN peuvent être décomposés en plusieurs familles :

- Les procédés par voie humide de type LCM où la préparation de la résine et le drapage du renfort fibreux se font séparément :
  - Le moulage par transfert de résine ("Resin Transfer Moulding" ou RTM en anglais) dans des renforts fibreux nécessitant un moule, un contre-moule rigide et une presse. Ce type de moulage a donné naissance à plusieurs dérivés tel que les procédés "Vacuum

Assisted Resin Transfer Moulding" (VARTM) [92] ou le "Light Resin Transfer Moulding" (LRTM) [93] qui nécessite un moule rigide et un contre-moule semi-rigide.

- Le moulage par infusion de résine qui consiste à l'imprégnation de la résine par une matrice qui peut être soit sous forme de film ou sous forme liquide, et avec imprégnation sous vide seulement.

- Les procédés par voie sèche utilisant des semi-produits imprégnés en amont : moulage par compression, moulage par thermoformage, moulage au sac à vide.
- Les procédés de fabrication en continu comme la pultrusion, l'extrusion et la stratification en continu.
- Les procédés dédiés soit aux fibres courtes, où la cadence de production est élevée, soit aux fibres continues.

Parmi ces procédés, le RTM est une méthode d'injection à basse pression et basse température d'une résine thermodurcissable liquide dans un renfort fibreux poreux placé dans un moule fermé étanche. Ce procédé offre une précision dimensionnelle et une haute qualité de finition de surface du composite moulé. Le RTM est applicable à diverses formes de renforts faits de fibres. Appliqué au moulage des CFN, il apporte des avantages technologiques, économiques, écologiques et environnementaux supplémentaires (aucune émanation de produits chimiques volatils lors de l'injection notamment). Toutefois, il existe d'autres facteurs d'influence, notamment les traitements appliqués aux fibres, l'écoulement en bordure de la préforme fibreuse et la fraction volumique de fibres qui affectent la facilité avec laquelle la pièce est moulée (en termes d'écoulement de la résine dans l'architecture fibreuse) et sa qualité finale. Le RTM est donc une technique de fabrication bien établie qui convient parfaitement aux composantes automobiles et aéronautiques. Dans ce procédé, la préforme fibreuse ayant la géométrie du moule est séchée au four et placée dans un moule étanche. La géométrie du moule ainsi que le nombre d'orifices d'injection et d'évent dépendent de la taille et la complexité géométrique du produit final. Une pompe amène la résine et le durcisseur (préchauffés ou non) disposés dans deux réservoirs séparés jusqu'au mélangeur statique placé au point d'injection du moule. Le mélange peut être injecté dans le moule par un ou plusieurs points d'injection (Figure 10). Une fois la résine polymérisée et refroidie, le moule est ouvert et la pièce finale est retirée du moule et détourée. Une post-cuisson est également nécessaire pour maximiser le degré de polymérisation [94-96].

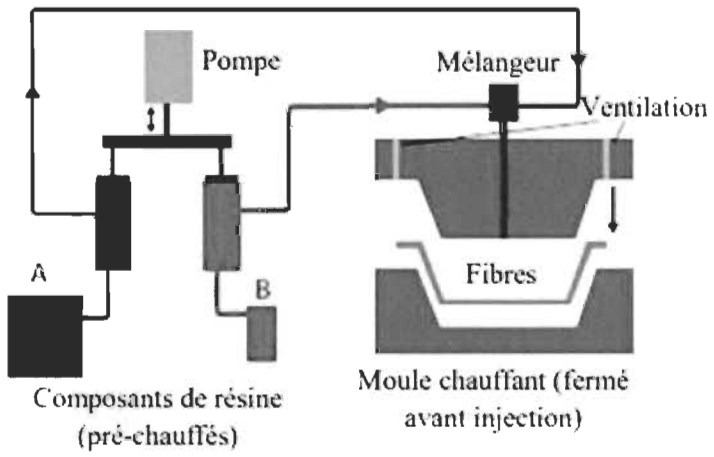


Figure 10. Schéma du procédé d'injection à basse pression RTM [97].

Une étude de l'adaptation des procédés de moulage des composites au moulage des CFN (avec fibres traitées ou non, incluant la fibrillation de surface) mène à une compréhension importante de l'écoulement de la résine dans le moule ainsi que des défauts causés par une mauvaise imprégnation des fibres.

2.3.2. Perméabilité aux résines des renforts à fibres naturelles

La perméabilité définit la facilité avec laquelle un fluide s'écoule à travers un matériau poreux. Les matériaux à forte perméabilité permettent un écoulement facile, tandis que les matériaux à faible perméabilité résistent à l'écoulement. Lors de la sélection des matériaux pour des procédés de moulage LCM des composites, il est important de maintenir un équilibre entre la perméabilité et les propriétés du composite final. Les matériaux à haute perméabilité, tout en permettant un écoulement facile de la résine, sont à faibles pourcentages volumiques de fibres (V_f). Les propriétés sont donc plus faibles et ces renforts sont susceptibles de présenter des volumes riches en résine, sources potentielles de défauts. Les matériaux à faible perméabilité sont à V_f élevé, donc les propriétés mécaniques sont meilleures, mais dans ces conditions ils sont difficiles à imprégner, donc susceptibles aux porosités. Ils possèdent aussi un temps de cycle plus long et peuvent même ne pas être complètement imprégnés avant que la résine commence à durcir.

La perméabilité d'un stratifié, en termes de flux de résine, présente trois directions ; dans le plan ou planaire avec deux directions principales et à travers l'épaisseur. L'écoulement planaire décrit le trajet de la résine entre l'orifice d'injection et la source de vide (la sortie). La perméabilité dans le plan aura des valeurs différentes dans les directions principales selon l'orientation des fibres dans les couches du stratifié [98].

Dans les procédés LCM, la méthode courante consiste à simuler le remplissage du moule à l'aide d'un logiciel de simulation d'écoulement pour prédire le temps et le mode de remplissage, puis d'optimiser le processus (et le moule) pour obtenir une imprégnation de bonne qualité. Donc la perméabilité est un paramètre déterminant dans les équations qui régissent (via la loi de Darcy) l'écoulement de la résine dans le moule. D'autre part, la perméabilité est influencée par plusieurs paramètres parmi lesquels la fraction volumique des fibres (V_f), l'architecture du renfort et son cisaillement intra-pli après drapage sont les plus importants. En raison de ces facteurs, de nombreux chercheurs ont étudié de manière approfondie différentes méthodes de mesure de la perméabilité et ont caractérisé celles-ci pour différentes préformes.

Pantaloni et coll. [99] font une revue des travaux sur la perméabilité des renforts à fibres naturelles et des paramètres qui affectent ces dernier. Même si la caractérisation de la mise en œuvre des fibres naturelles est nouvelle, les chercheurs ont déjà établi des différences cruciales entre les renforts à fibres naturelles et ceux à fibres synthétiques. Cette revue s'est concentrée sur la perméabilité planaire puisque c'est la plus étudiée dans les composites à fibres naturelles. Il fut démontré que les renforts à fibres végétales présentent une perméabilité plus élevée que ceux à fibres de verre (voir Figure 11). Les chercheurs ont émis l'hypothèse que la plus grande flexibilité des fibres végétales par rapport aux fibres de verre pouvait rendre les premières plus perméables. Par contre, spécifiquement pour des renforts de type mat, une perméabilité plus faible fut obtenue. Ceci a été attribué aux chemins d'écoulement plus tortueux de ces derniers en raison de la courte longueur des fibres menant à la présence de fibres détachées en surface des fils du mat, ce qui vient boucher les pores du réseau fibreux.

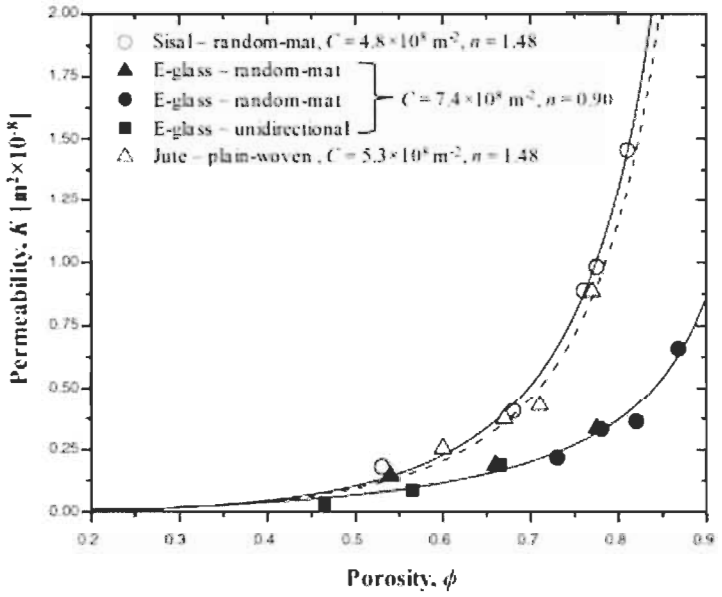


Figure 11. Comparaison de la perméabilité (non saturée) de renforts à fibres de sisal, de jute et de verre E imprégnés d'une solution de glycérine [99].

Umer et coll. [100] ont étudié l'effet du diamètre des fils de lin dans des mats sur la perméabilité. La perméabilité des mats de diamètre de fil moyen (0,56 mm) était constamment supérieure de 27 % à celle des mats de petit diamètre de fil (0,35 mm), et que la perméabilité des mats de petits et moyens diamètres de fil était constamment supérieure de 68 à 77 % à celle des mats de grand diamètre de fil (0,81 mm). Puisque la perméabilité est dominée par les caractéristiques de la préforme (nombre de fils, l'angle de torsion, l'orientation des fils et la dimension et la forme de la section du fil), les auteurs suggèrent que puisque les fils de grand diamètre sont moins compacts avec des niveaux de torsion plus bas, la surface des fils de grand diamètre possède plus de fibres lâches bloquant les pores du réseau, ce qui limite l'écoulement des fluides et diminue la perméabilité. Le niveau de torsion des fils peut également affecter la perméabilité et l'imprégnabilité en affectant l'écoulement à double échelle des renforts: écoulement microscopique à l'intérieur des fils et écoulement macroscopique à l'échelle de la pièce [101]. Cet écoulement à double échelle vient affecter la vitesse optimum requise pour minimiser la porosité dans la pièce composite finale [102].

2.4. Des CFN avec des renforts hybrides à fibres UD de lin retenues par un liant mat

Cette section résume, en partie, les travaux réalisés sur le développement de renforts UD lin-mat à l'UQTR depuis une dizaine d'années. Elle a pour objectif de montrer les développements et avancées faits depuis les débuts, tant pour l'aspect moulage des renforts que pour celui des propriétés mécaniques des composites obtenus à partir de ceux-ci, de façon à mettre en perspective les travaux de ce mémoire par rapport à ceux réalisés précédemment.

Ameri et coll. [48, 52] et Habibi et coll. [46] ont développé et bien décrit une méthode de fabrication des renforts UD lin-mat lin à partir d'un procédé de fabrication du papier à l'échelle laboratoire (la formette dynamique). Généralement les renforts unidirectionnels commerciaux sont maintenus avec des fils fins cousus permettant de maintenir le parallélisme des fibres UD tout en diminuant leur impact sur la désorientation locale des fibres dans les composites moulés. Cependant, plusieurs difficultés se présentent lors du moulage des pièces à géométrie complexe. Les fibres alignées se désorientent localement (entre deux coutures) et parfois les fils s'écrasent les uns sur les autres, affectant l'homogénéité de distribution des fibres dans la pièce, cause fréquente de propagation de fissures et de bris prématuré. Les auteurs ont constaté qu'on peut introduire une couche de papier ou de lin (le mat) servant de liant uniformément réparti sur la surface du renfort, ce qui permet d'éliminer ou du moins limiter les désorientations locales des fibres continues unidirectionnelles. Ce type de liant permet aussi de maintenir les fibres alignées lors de la manipulation et la conformation des renforts pour la fabrication de préformes.

Le protocole expérimental employé pour la fabrication des renforts s'inspire de celui développé dans des travaux précédents (se référer à [48] et [47] pour plus de détails). Les conclusions obtenues des travaux seront brièvement résumées ci-dessous. Les auteurs traitent des difficultés qu'on peut rencontrer lors de la fabrication des renforts, notamment le fait que plus le grammage (ou la densité surfacique) de la couche liant papier est élevée, plus la perméabilité du renfort sera diminuée (pour des échantillons ayant un même V_f) et par suite plus le processus de moulage sera plus difficile. En conclusion, les auteurs ont pu démontrer l'efficacité de la couche papier d'une part, dans l'augmentation des propriétés longitudinales et transversales des composites, tout en maintenant une perméabilité des renforts acceptable lors du moulage en limitant le grammage du liant papier.

Les travaux de Habibi et coll. [50] visaient à améliorer les caractéristiques des renforts. Les auteurs étudient l'effet d'une substitution d'une partie des fibres courtes de papier Kraft par des fibres courtes de lin (dans la fabrication du liant papier) sur les propriétés biaxiales du composite. La combinaison d'un liant à fibres courtes de lin aux fils UD permet l'utilisation de fils fabriqués à faible taux de torsion (les fils étant tordus par les fournisseurs pour permettre le tissage, sur métier à tisser, des architectures courantes de renfort sans casser les fils). Trois types de renforts sont fabriqués ; soit des renforts UD seulement à un grammage de 400 g/m^2, des renforts mats seulement ayant un grammage de 200 g/m^2 et des renforts combinant les deux (UD et mat) avec un grammage de 200 g/m^2. Les essais expérimentaux consistaient à mouler ces renforts en faisant varier le pourcentage volumique de fibres (V_f) entre 20% et 40% pour chaque type de composites. Les résultats des essais de traction dans le sens longitudinal (0°) et perpendiculaire (90°) aux fibres ont permis de conclure que les propriétés mécaniques (module d'élasticité et résistance) dans le sens longitudinal ont légèrement régressées lorsqu'on compare les échantillons avec et sans liant mat, tandis que celle dans la direction transversale sont nettement améliorées. L'augmentation du V_f est accompagnée d'une amélioration de la résistance et du module longitudinal et transversal dans les cas des UD/mat. Il fut démontré aussi que l'ajout de la couche mat diminue la variabilité des résultats d'essais de traction et de flexion par rapport aux composites avec des fibres UD seulement (jusqu'à 59% pour les résultats en traction et 82.9% en flexion).

Une autre étude de Habibi et coll. [51] traite des effets du liant constitué d'un mélange de fibres courtes de lin et de fibres kraft (en diverses proportions) sur la perméabilité des renforts fabriqués. La présence du liant papier diminue la perméabilité du renfort et par suite augmente le temps de remplissage du moule et engendre une faible imprégnation menant à la création de porosité dans le composite final. Une technique qui vise à modifier l'architecture du réseau fibreux en substituant une proportion des fibres krafts par des fibres courtes de lin a été adoptée dans cette étude. À grammage (ou densité surfacique) constant, l'augmentation de la proportion de fibres courtes de lin par rapport aux fibres kraft dans le liant mat engendre une amélioration de la perméabilité globale du renfort. Bien que la présence de la couche mat diminue les propriétés en traction des composites, les résultats des essais mécaniques suggèrent que la substitution d'une partie des fibres Krafts limite les pertes de propriétés et minimise encore plus la variabilité. La principale conclusion tirée de ces résultats est que la couche du liant doit être fabriquée avec un

faible grammage et elle doit contenir une forte proportion de fibres courtes de lin de longueur ne dépassant pas les 5 mm environ. Ces conditions facilitent le moulage par RTM et aboutissent à des échantillons de bonne qualité.

Couture et coll. [47] comparent les propriétés mécaniques de deux types de composites à fibres de lin UD faits d'une matrice thermoplastique PLA biodégradable : l'un fabriqué avec des couches de fibres UD de lin uniquement et l'autre avec des couches supplémentaires mat de fibres courtes kraft fabriquées en utilisant la technique de fabrication décrite ci-dessus par Habibi. Des plaques ont été moulées en variant la fraction volumique de fibres, la densité surfacique du liant mat et la longueur des fibres courtes tout en maintenant un faible taux d'humidité dans le composite final. Les résultats montrent que les propriétés de traction intrinsèques (rapport propriété/densité) des composites lin/PLA (à 252 MPa $cm^3 g^{-1}$) et lin-papier/PLA (à 217 MPa $cm^3 g^{-1}$) sont similaires à celles des tissus de verre imprégnés d'époxy (227-278 MPa $cm^3 g^{-1}$). Une résistance au choc très élevée de 600 J/m a également été obtenue pour les composites UD lin/papier par rapport à celle de la résine non renforcée de 15 J/m. Il fut conclu que l'ensemble des propriétés mécaniques obtenues est prometteur pour des applications industrielles des renforts UD lin-papier et UD lin-mat.

CHAPITRE 3 : MÉTHODOLOGIE EXPÉRIMENTALE

3.1. Introduction

Ce chapitre décrit les matériaux utilisés et les différents essais réalisés pour déterminer comment la fibrillation de surface des fibres courtes de lin peut améliorer les propriétés mécaniques des composites lin-époxy faits à partir des renforts UD lin-mat.

La première partie décrit la technique de fabrication des composites, en partant de la découpe des fibres courtes, de la fibrillation de surface de celles-ci, de la fabrication des renforts mat et UD-lin/mat jusqu'au procédé de moulage des plaques composites.

La deuxième partie de l'étude consiste à déterminer le taux de fibrillation à partir duquel les microfibrilles de lin se détachent des fibres courtes. Pour ce faire, des essais de fibrillation et des analyses microscopiques ont été réalisés sur les fibres courtes seules afin de déterminer une plage de degré de fibrillation viable pour les matériaux composites. Des fibres trop dégradées doivent nécessairement être exclu de l'étude. Le microscope utilisé pour ce faire sera donc décrit dans cette partie.

La troisième partie comporte l'analyse de l'effet du traitement de fibrillation sur les propriétés mécaniques des composites à renforts mat seuls faits de fibres courtes de lin. Le montage des essais de traction sera décrit et les résultats de ceux-ci permettront de délimiter, avec plus de précision que ce qui était obtenu sur les fibres seuls, un intervalle de taux de fibrillation optimal pour le liant mat. Les essais de traction sont accompagnés de micrographies au microscope optique et électronique à balayage (MEB). Les images obtenues décrivent la structure du composite final, le taux de porosité dans le composite et la qualité d'imprégnation du renfort.

Une quatrième partie décrira les essais réalisés sur les composites UD-lin/mat. Il a été constaté, dans les essais pour les composites à renforts mat seuls, que l'augmentation des propriétés en traction obtenue de ceux-ci pourrait être améliorée en tenant compte de d'autre paramètres matériaux des renforts. Ainsi, cette partie comporte également des essais mécaniques qui tiennent compte de l'influence de la longueur des fibres courtes de lin (5 ou 10 mm) et de la vitesse de rotation du raffineur (800 ou 1440 tours/min) sur les propriétés en traction des composites UD lin-

mat/époxy. Les essais de traction utilisent le même montage que celui utilisé pour les composites à renforts mat seuls.

Une dernière partie décrit les essais de perméabilité et le montage utilisé. Ils ont pour but d'analyser l'effet du traitement de fibrillation sur l'écoulement de la résine dans le moule pour les composites à renforts mat seuls et les composites à renforts hybrides UD-lin/mat. La méthode de calcul de la perméabilité sera aussi décrite dans cette partie.

3.2. Matériaux et méthodes

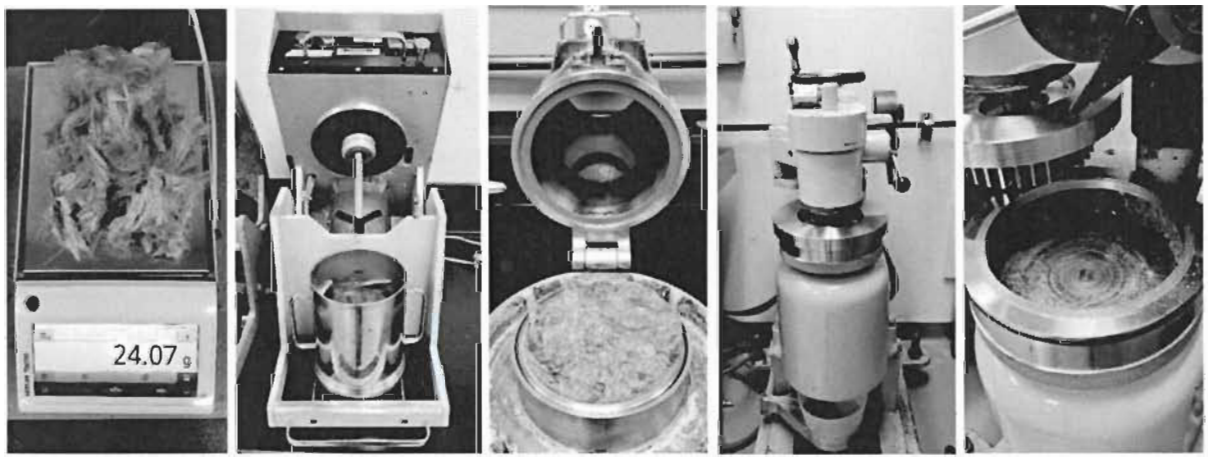
3.2.1. Prétraitement des fibres courtes de lin

Le prétraitement des fibres courtes constituant la couche liant mat se déroule dans le laboratoire humide à l'Institut d'Innovations en Écomatériaux, Écoproduits et Écoénergies à base de biomasse (I^2E^3) de l'Université du Québec à Trois-Rivières (UQTR). Les fibres de lin utilisées dans ce travail ont été fournies par la société Safilin sous forme de ruban Tex 5000 et de fils Tex 400 non traités.

Dans cette partie, un moulin de raffinage de laboratoire de type PFI (Figure 12-a) est utilisé. On coupe d'abord le ruban en fibres courtes d'une longueur de 5 à 7 mm en utilisant une tranche à papier à guillotine. On mélange ensuite 24 g de fibres courtes sèches (voir Figure 12-b) à 1 litre d'eau pendant 5 min à l'aide d'un désintégrateur de pâte chimique (Figure 12-c). Cette étape permet d'avoir un mélange homogène de fibres courtes dans l'eau. Ce mélange sera ensuite mis en suspension sur une formette statique, qui consiste en un décanteur vertical muni d'un filtre à la base, pour obtenir un mat d'environ 240 g d'une siccité de 10%, celle-ci étant le pourcentage massique de fibres dans l'eau résiduelle (Figure 12-d). À ce stade, soit les fibres sont utilisées tel quel pour la fabrication des renforts UD lin-mat (fibres du liant mat non-fibrillées), soit nous passons à l'étape supplémentaire de fibrillation de surface pour des renforts à fibres fibrillées. Le moulin PFI est un dispositif de raffinage à haute reproductibilité, utilisé pour étudier la relation entre le dégrée de fibrillation de la pâte (ici le mélange à 10% fibres-eau contenant 24g de fibres sèches) et les propriétés physiques. Une charge verticale constante est appliquée sur le tambour de raffinage, et donc sur la pâte qui circule entre le rotor (tambour en acier inoxydable) et le bol cylindrique du raffineur, lesquels tournent en sens inverse l'un par rapport à l'autre. Des efforts mécaniques de cisaillement et de compression sont ainsi appliqués sur la pâte et le degré de fibrillation est caractérisé par un compteur donnant le nombre de rotations effectuées par le

tambour et la vitesse de celui-ci. La distance entre le rotor et le bol rotatif peut être ajustée manuellement à l'aide d'un levier. Cet ajustement contrôle la pression appliquée sur les fibres lors du raffinage. L'unité de contrôle reliée au raffineur permet d'ajuster la fréquence du moteur de la machine et donc la vitesse de rotation. Une diminution de la fréquence permet d'obtenir des taux de fibrillation plus faibles.

La pâte est ainsi dispersée contre la paroi du bol du raffineur PFI (Figure 12-e). Une fois obtenu le degré de fibrillation souhaité, la machine est arrêtée, les fibres sont extraites et traitées en ajoutant 800 ml d'eau pour ramener le mélange à une consistance de 0.3% en masse de fibres sèches dans l'eau. Ce pourcentage est intrinsèque à la méthode pour assurer une bonne qualité de raffinage. Le mélange est ensuite homogénéisé pendant 2 min durant lequel 400 ml du mélange est extrait. La pâte obtenue sera finalement rediluée pour obtenir 20 litres d'un mélange eau-fibres à une consistance de 0.06% (12g de fibres sèches dans le mélange). Ce mélange sera ultérieurement déposé dans le réservoir de la formette dynamique pour la fabrication du renfort UD lin-mat décrite à la section 3.2.3. Une seule opération de raffinage permet d'obtenir les fibres nécessaires pour fabriquer quatre couches de renfort pour le moulage d'une plaque.



(a) *(b)* *(c)* *(d)* *(e)*

Figure 12. Procédé expérimental de prétraitement des fibres courtes de lin : (a) moulin de type PFI (b) pesage des fibres (c) mélange des fibres courtes (d) fabrication du coussinet de fibres (e) dispersion de la pâte sur la paroi du bol.

3.2.2. Fabrication des renforts hybrides UD lin/mat lin à fibres courtes fibrillées.

Le renfort UD lin-mat comporte une couche UD d'environ 250 g/m^2 et une couche liant mat de 50 g/m^2 faite de fibres courtes projetées à la surface de la couche UD à l'aide de la formette dynamique. Parmi les difficultés rencontrées durant la fabrication des renforts, le grammage de la couche liant papier ou mat doit assurer une bonne perméabilité du renfort pour faciliter le moulage des échantillons composites par le procédé RTM. Dans le présent travail, le liant mat de 50 g/m^2 a été choisi en se référant à la revue de littérature élaborée dans le chapitre précédent en lien avec les travaux précédents réalisés sur ces mêmes renforts. Au final, le grammage total du renfort UD lin-mat se situe autour de 300 g/m^2.

Tout d'abord, la couche UD est fabriquée séparément. À partir d'une bobine de fil de lin de Tex 400, les fils sont enroulés sur une plaque munie d'une manivelle (Figure 13-a), sous forme de plaque de bobinage. Ce travail est fait manuellement. Le contrôle du nombre de fils enroulés par cm de largeur de la plaque se fait moyennant une tige filetée de taille adéquate (le fil étant déposé dans le creux des filets). Le Tex est une caractéristique des fils de fibres naturelles donnant le poids en grammes par 1000 m (1 km) de longueur du fil (Tex 400 = 400 g par km). Les fils alignés sur la plaque seront ensuite mouillés afin de permettre aux fibres de la couche UD de créer entre elles de faibles liens chimiques (liens de Van der Waals) et mécaniques de façon naturelle pour un maintien suffisant pour permettre de les transférer vers la formette dynamique. Une fois l'enroulement fait et l'excès d'eau projetée enlevé, la couche de fibres UD est placée sur une toile de formation qui ira ensuite à l'intérieur du tambour rotatif de la formette dynamique. Une deuxième opération d'humidification sera faite afin d'enlever toute courbure provenant de l'opération d'enroulement sur plaque et assurer qu'aucun espacement ne s'est créé lors du déplacement de la toile.

La formette dynamique utilisée est fabriquée par la compagnie ALIMAND (Figure 13-c). Cette machine est constituée d'un réservoir de mélange eau-fibres courtes, d'une pompe, d'un bras vertical muni d'une buse de projection à son extrémité, et d'un tambour d'essorage perforé tournant à haute vitesse de rotation pendant la fabrication. On introduit le mélange eau-fibres courtes obtenu à l'étape précédente dans le réservoir de la machine.

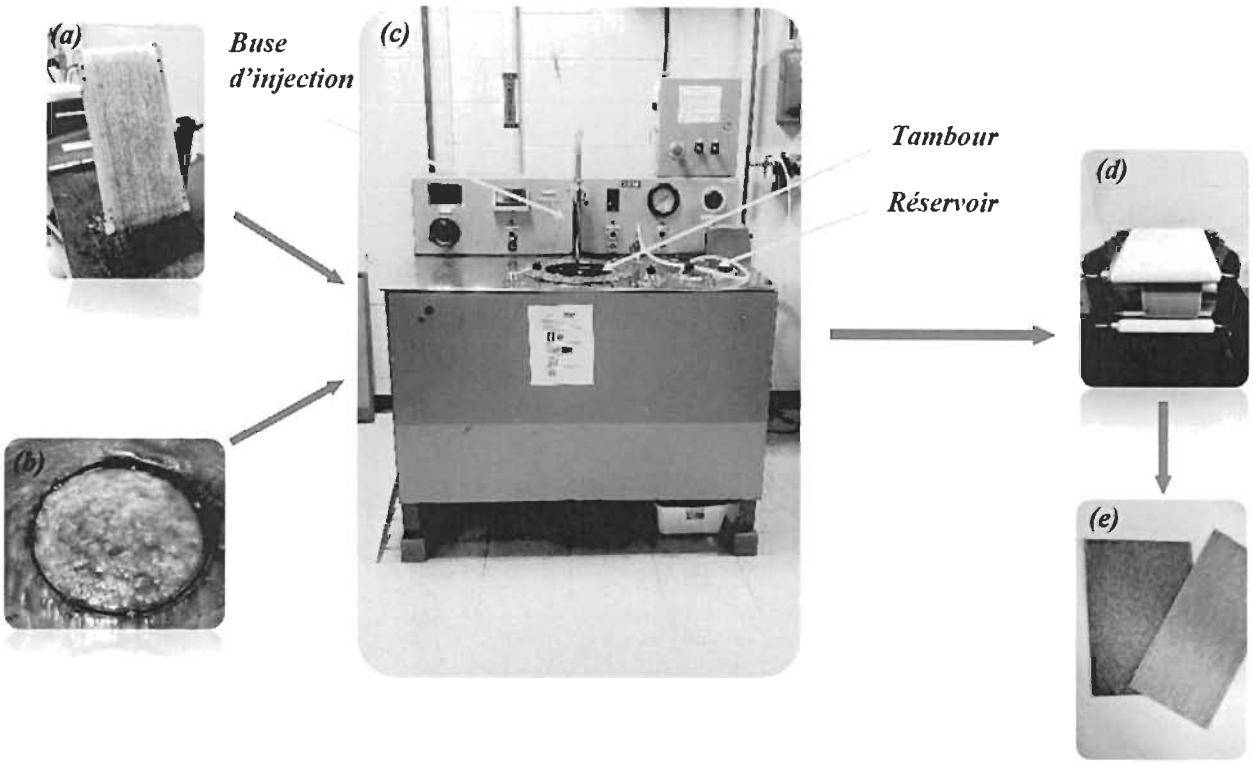


Figure 13. Procédé expérimental de fabrication des renforts (a) enroulement des fibres (b) fibres courtes en suspension dans l'eau (c) formette dynamique et formation du renfort (d) séchage de la feuille du renfort (e) découpage des renforts.

Un agitateur mécanique sert à assurer l'homogénéité du mélange et prévenir l'apparition d'agglomérats (voir Annexe A). Le mélange d'eau et de fibres courtes de lins fibrillées ou non est ensuite pompé à travers la buse de projection, laquelle fait un mouvement vertical de va-et-vient à l'intérieur du tambour rotatif tout en projetant les fibres courtes sur la toile en rotation contenant les fibres UD prépositionnées à l'intérieur du tambour. La durée de projection est d'environ 4 min, au cours de laquelle un total de 20 litres d'eau de mélange contenant 12g de fibres est projeté.

Après projection des fibres courtes sur les fibres UD préalablement placées à l'intérieur du cylindre d'essorage, le renfort humide sera ensuite retiré. Une autre toile de formation est placée au-dessus du renfort fabriqué, lequel sera ensuite pressé pour éliminer l'excès d'eau. La presse employée est fournie par la compagnie CANPA Inc. et permet d'éliminer l'excès d'eau dans le renfort. On procède ensuite au séchage pour évaporer la totalité d'eau restante. Le séchoir utilisé

est de type Formax (Figure 13-d) fabriqué par Adirondack Machine Corporation et est préchauffé à 100°C avant le séchage. Le renfort passe quatre fois à travers le séchoir à rouleau unique (Figure 13-d) pour une durée de séchage d'environ 10 min. Cette procédure assure le séchage quasi-complet du renfort (humidité résiduelle très faible) [38, 46, 50]. La Figure 13-e montre les deux faces du renfort obtenu après découpage. Les renforts sont d'une dimension de 7.25 pouces × 12 pouces. Les renforts fabriqués avec des fibres courtes fibrillés présentent une densité surfacique un peu plus faible que celle à fibres non traitées. Cette variation est due, principalement, aux légères pertes de matière lors de la fibrillation (moulin PFI et la formette statique) et celle au niveau des tubes de pompage de la formette dynamique. Le tableau des grammages obtenus pour chaque type de renfort sera détaillé à la partie des essais expérimentaux (Section 3.4).

3.2.3. Moulage des plaques composites

Les renforts sont d'abord coupés en feuilles de dimensions 7.25 po × 12 po (voir Figure 13-e), séchées pour enlever l'humidité résiduelle et pesées une par une afin de déterminer le grammage de chaque renfort. L'épaisseur d'une plaque à mouler est déterminée à l'aide de la formule suivante ;

$$V_f = \frac{n \times m_r}{h \times \rho} \tag{6}$$

où V_f est le pourcentage volumique de fibres, n est le nombre de couches de renfort empilées, m_r (g/m^2) est la densité surfacique de chaque couche, ρ est la densité des fibres de lin (1.45 g/cm^3) et h est l'épaisseur de la plaque mesurée après moulage.

Les conditions d'humidité et de température considérées dans la littérature montrent qu'au-delà d'un V_f de 40%, il devient difficile de mouler les plaques vu la diminution de la perméabilité et il a été démontré qu'au-delà de 40% de fibres, les propriétés des composites UD de lin tendent à diminuer puisque le taux de porosité augmente rapidement [46]. Donc, dans cette étude, la fraction volumique de fibres de tous les échantillons sera maintenue à 40%. La matrice époxy Marine 820 de Adtech Plastic Inc. est utilisée et pré-mélangée au durcisseur Marine 824 dans une proportion de 18% en poids de durcisseur, tel que recommandé par le fabricant.

Le procédé de moulage par transfert de résine (RTM) est utilisé. L'injection de la résine dans le moule se fait par un montage artisanal formé d'un pot à vide, un réservoir pressurisé pour la résine, des tubes d'injections en PVC et le moule (voir Figure 14). Le montage est relié à une pompe à vide pour le dégazage de la résine et un compresseur. Le moule en acier inoxydable (Figure 15) comporte une partie inférieure en acier de 35 mm d'épaisseur avec les orifices d'injection et d'évacuation de la résine, une partie supérieure en acier et un cadre de fixation rigide pour limiter le plus possible la flexion des parois du moule lors de l'injection sous pression. Un autre cadre en aluminium, placé entre les deux parties du moule, sert à maintenir sur le pourtour des renforts un joint d'étanchéité pendant l'injection. Six cales d'épaisseur sont placées sur le pourtour du moule afin d'obtenir la fraction volumique désirée dans la plaque (40% dans le cas présent).

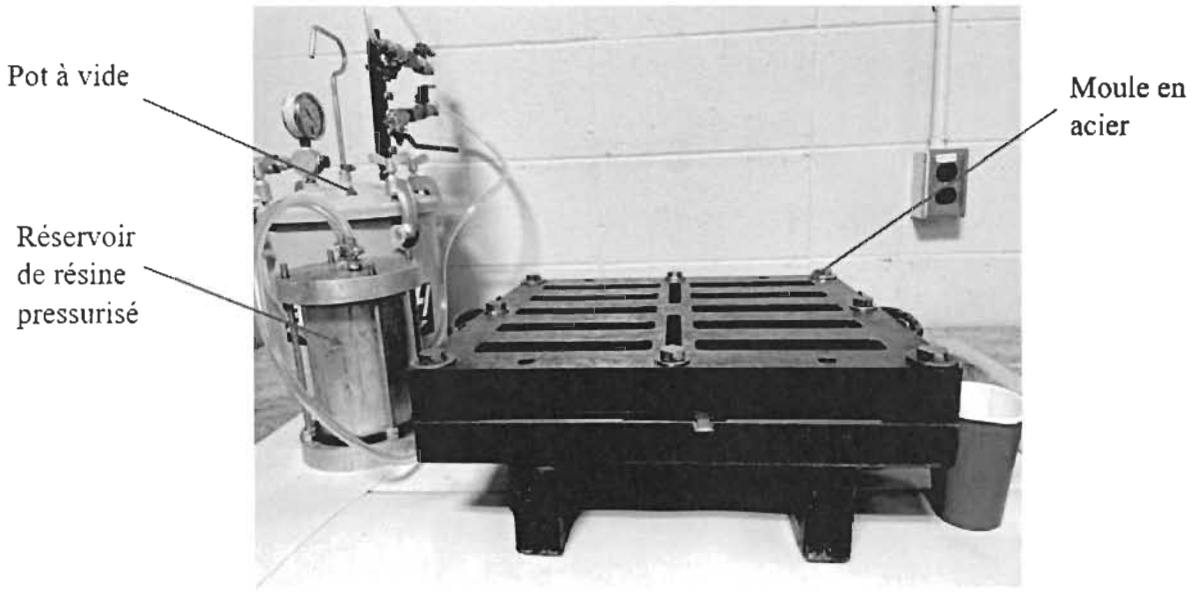


Figure 14. Montage de moulage des plaques composites.

Avant de mouler, le moule est préchauffé au four à 70°C pendant 1h. Une couche de cire est ensuite appliquée en surface du moule pour faciliter le démoulage. Les couches de renfort sont placées sur la partie du bas du moule jusqu'à obtenir le nombre de couches souhaité, soit 5 dans le cas présent. Pour un $V_f = 40\%$, l'épaisseur est de l'ordre de 2.65 mm. Le moule est fermé, serré

sur le pourtour avec les vis prévues et relié au réservoir d'injection de résine. Le mélange de résine avec durcisseur est introduit dans le réservoir pressurisé qui est relié au pot à vide. Une pompe à vide effectue le dégazage de la résine pendant 15 min. Le réservoir sera ensuite mis sous pression en injectant de l'air comprimé. Un tube submergé dans la résine permet l'évacuation de celle-ci vers le moule. La pression d'injection est contrôlée par un régulateur de pression. Après l'imprégnation, le moule est transféré au four et maintenu à 70°C pendant 3h pour la cuisson. Après l'extraction de la pièce (Figure 16), la plaque est refroidie à l'air libre pendant 24h. Elle est ensuite remise au four à 70°C pendant 6 h pour effectuer une post-cuisson.

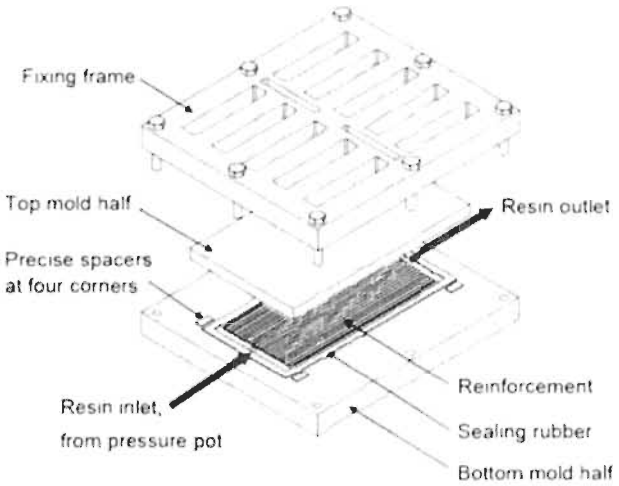


Figure 15. Schéma du moule utilisé [47].

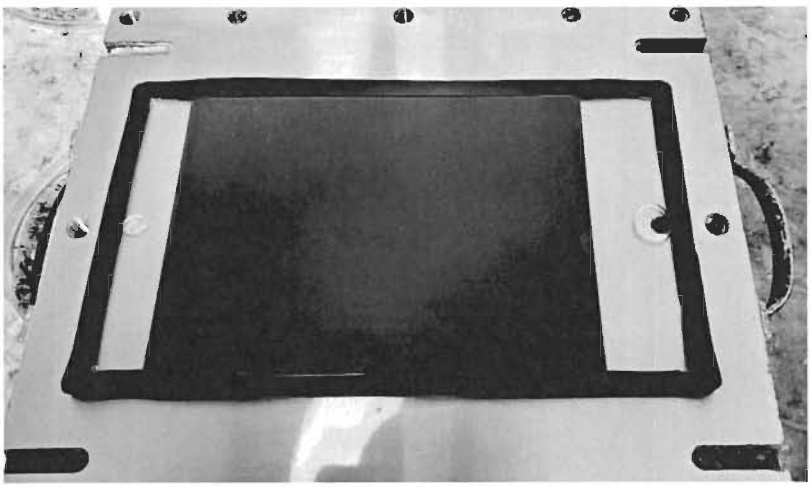


Figure 16. Plaque de composite après démoulage.

3.3. Caractérisation

3.3.1. Microscopie

3.3.1.1. Images tirées des essais sur les fibres courtes seuls

L'effet de la fibrillation sur la surface externe des fibres de lin est examiné à l'aide d'un microscope optique muni d'une caméra et d'un système d'acquisition de données (Figure 17). Pour un taux de fibrillation donné, une petite quantité de fibres est extraite et diluée dans un bécher d'eau qu'on agite de façon à disperser les fibres. À l'aide d'une pipette, quelques fibres sont extraites et déposées sur une lame qu'on laisse sécher à température ambiante pendant 4h. Les échantillons sont ensuite placés sur le microscope et observés à différents grossissements. Cette étape permet d'observer la structure de la paroi de la fibre. En se référant à la revue de littérature, une analogie sera faite sur une plage de degrés de fibrillation tolérés par les fibres. La plage choisie doit montrer l'effet sur les propriétés mécaniques des composites de façon à obtenir un taux de fibrillation optimum. Les fibres observées au microscope sont des fibres non traitées (comme référence) et traitées à 100, 300, 600 et 1000 révolutions au PFI. Le choix de 100 révolutions correspond à la plus faible valeur qu'on peut appliquer avec l'équipement disponible. Les autres valeurs sont basées sur la littérature [78, 89, 90].

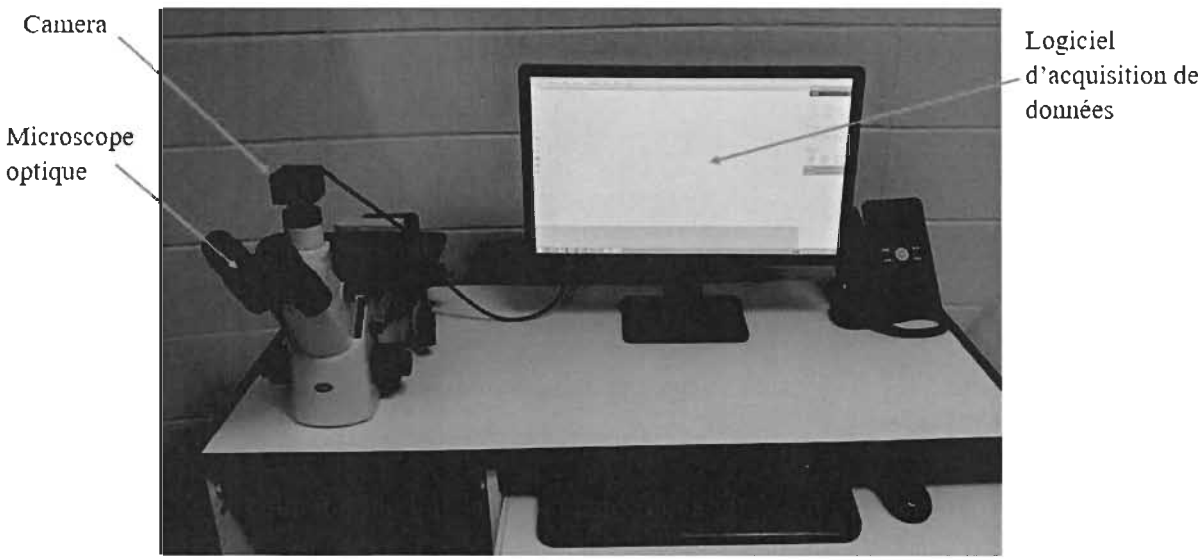


Figure 17. Montage de microscopie optique.

3.3.1.2. Images tirées des essais sur les fibres composites sains

Le montage de la Figure 17 fut aussi utilisé pour l'analyse des composites fabriqués. Des échantillons de 10 mm × 10 mm environ ont été coupés des plaques composites à l'aide d'une scie à bande et graduellement poncés à l'aide d'une table rotative munie de papier à poncer de calibre 120, 400, 600, 900 et 1200 sur lesquels est déposé un filet d'eau. Ces micrographies permettaient d'évaluer la qualité d'imprégnation par la résine dans un plan perpendiculaire à la direction des fibres UD. Cela permet de visualiser l'empilement des couches et la présence de microfissuration dans le composite ainsi que la porosité.

3.3.1.3. Images tirées des essais sur les fibres composites fracturés

Après les essais de traction, les échantillons fracturés ont été coupés pour faciliter l'observation des faciès de rupture à l'aide d'un microscope électronique à balayage (MEB). Le microscope est de type Hitachi SEM SU1510 (Voir Figure 18) et permet de visualiser les détails des faciès de ruptures. Les images fournies seront présentées dans le chapitre 4 sous forme de complément aux résultats des essais mécaniques.

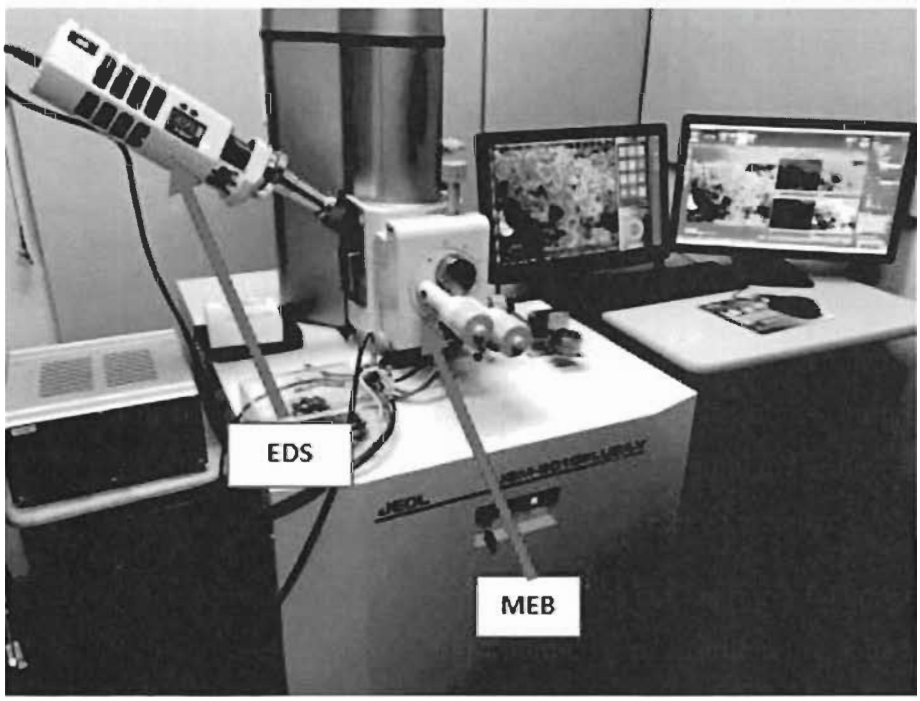


Figure 18. Microscope balayage électronique équipé de la spectroscopie à dispersion d'Energie (EDS).

3.3.2. Essais de traction

Les échantillons de traction ont été coupés suivant les dimensions recommandées par la norme ASTM D3039 pour les essais de traction ; soit 250 mm × 25 mm × épaisseur de l'échantillon pour les essais à 0° (propriétés longitudinales) et 175 mm × 25 mm × épaisseur de l'échantillon pour les essais à 90° (propriétés transversales). Des stratifiés $[0_5]$ ont été moulés pour les propriétés longitudinales et au moins six échantillons ont été testés tandis que pour les essais à 90°, la configuration $[90_5]$ fut moulée et au moins 8 échantillons ont été testés. Pour obtenir une meilleure précision et pour limiter le délaminage pouvant se produire en bordure durant la découpe, une machine de découpage par jet d'eau de marque ProtoMAX est utilisée. Les éprouvettes sont ensuite mises au four pour 3h à 120 °C pour éliminer toute humidité résiduelle et son effet potentiel sur les résultats finaux. La Figure 19 montre des échantillons après la découpe et le séchage au four. Les sections des éprouvettes obtenues demeurent, ainsi, représentatives du matériau évalué. Des micrographies ont été prises afin d'inspecter la surface de coupe et la comparer avec celle obtenue en utilisant la scie à bande. Voir l'Annexe 1 pour la comparaison des découpes.

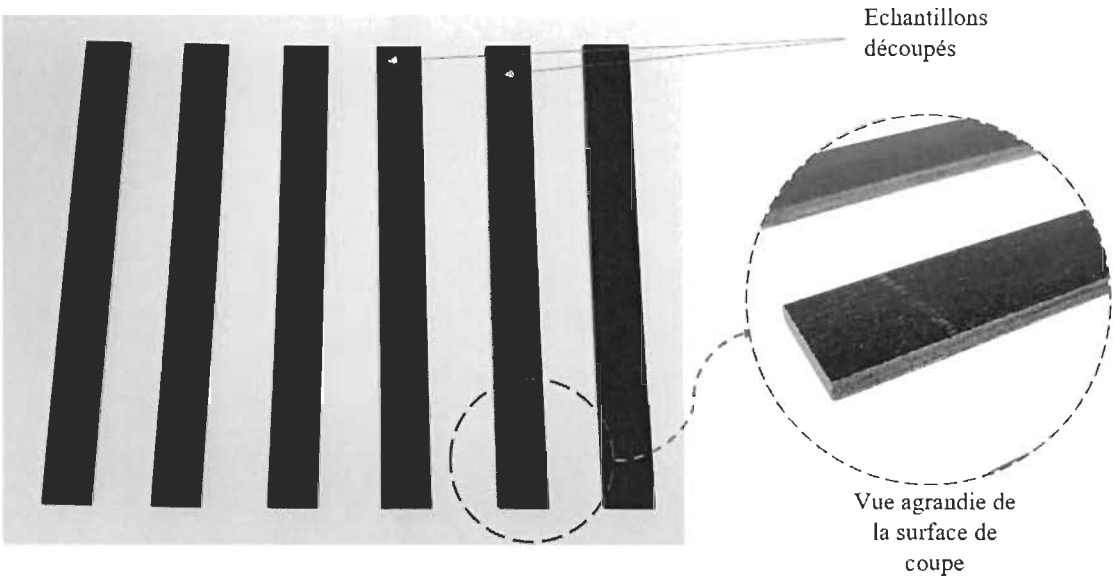


Figure 19. Découpage des éprouvettes en traction.

La Figure 20 montre le montage pour les essais de traction. Les essais ont été réalisés à l'aide d'une machine Instron-U150 LM équipée d'une cellule de charge de 150 kN et d'un extensomètre de type Instron 2620. L'essai fut réalisé à vitesse de déplacement constante de 2 mm/min suivant

les recommandations de la norme ASTM D3039 [103]. La résistance à la rupture et le module d'élasticité ont été calculés à partir des mesures de force et de déformation.

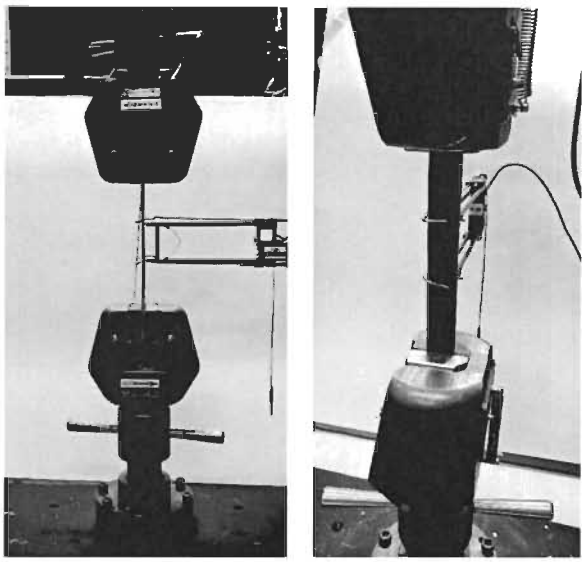


Figure 20. Montage pour essai de traction.

3.3.3. Essais de perméabilité

La perméabilité est un paramètre matériau permettant de quantifier la facilité avec laquelle un fluide (la résine) vient imprégner un milieu poreux (le renfort à fibres naturelles dans le cas présent). Celle-ci peut être déterminée avec un liquide ayant une viscosité très proche de celle de la résine utilisée pour mouler les plaques composites. L'imprégnation des préformes textiles avec de la résine est typiquement décrite en utilisant le modèle d'un liquide visqueux s'écoulant à travers un milieu poreux homogène. La loi de Darcy [104], qui est fréquemment formulé sous sa forme tensorielle suivante :

$$v = -\frac{K}{\eta}\,\nabla \mathrm{P} \tag{7}$$

Cette équation indique la dépendance de la vitesse d'écoulement de la résine v sur la perméabilité du matériau K, la viscosité de la résine η et le gradient de la pression à l'intérieur de la préforme fibreuse ∇P. Les paramètres K et η peuvent être ajustés pour améliorer la qualité de l'imprégnation et limiter ainsi la porosité des pièces après le moulage.

Dans cette étude, la méthode de l'écoulement radiale a été utilisée pour déterminer la perméabilité planaire des renforts fibrillés et non-fibrillés dans les directions longitudinale (selon la direction des fibres UD) et transversale (perpendiculaire aux fibres). Pour un écoulement 2D, le front d'écoulement peut prendre deux formes distinctes ; circulaire ou elliptique dépendant du type de matériau (isotrope ou anisotrope à l'écoulement) et de la forme du port d'injection (point d'injection, ligne d'injection, etc.). En 2D, le tenseur de perméabilité s'écrit comme suit ;

$$K = \begin{pmatrix} K_x & 0 \\ 0 & K_y \end{pmatrix} \tag{8}$$

où K_x et K_y représentent la perméabilité dans les directions principales X et Y de la préforme fibreuse. Les deux composantes peuvent être obtenues en mesurant une perméabilité effective K_e à l'aide de l'Équation 9 [105];

$$\frac{R_{X,e}}{R_{X0,e}}\left[2\ln\frac{R_{X,e}}{R_{X0,e}} - 1\right] = \frac{4\,K_e\,\Delta P\,t}{\emptyset\,\mu\,R_{X0,e}^2} \tag{9}$$

Ici, $R_{x,e}$ est le rayon équivalent du front d' écoulement dans la direction X, ΔP est le gradient de pression, t est le temps écoulé depuis le début de l'injection, K_e est la perméabilité effective, $R_{xo,e}$ le rayon équivalent au point d'injection (à l'entrée) et ϕ est la porosité du renfort (égale à $1-V_f$). Une fois que K_e est déterminée, les perméabilités K_x et K_y peuvent être calculées à partir des équations suivantes ;

$$K_x = \frac{K_e}{m_1} \tag{10}$$

$$K_y = K_e \times m_1 \tag{11}$$

où, m_1 correspond à la pente d'une droite du graphe de R_y par rapport à R_x (R_x et R_y étant les rayons du front d'écoulement elliptique selon x et y).

La Figure 21 présente le montage pour les essais de perméabilité. Ce montage comporte une plaque de base en acier rigide de 420 mm × 260 mm et d'une épaisseur de 25 mm, une plaque de dessus en verre trempé de 370 mm × 220 mm et de 20 mm d'épaisseur surmontée d'une seconde plaque en acier de 25 mm d'épaisseur et de mêmes dimensions que la première. Cette plaque est munie de trois ouvertures dont une de 165 mm × 125 mm située au milieu pour la visualisation et l'enregistrement de la position du front d'écoulement pendant l'essai. Pour cela, une caméra est

montée sur un trépied et reliée à un ordinateur qui permet la visualisation, en temps réel, de l'évolution du front d'écoulement.

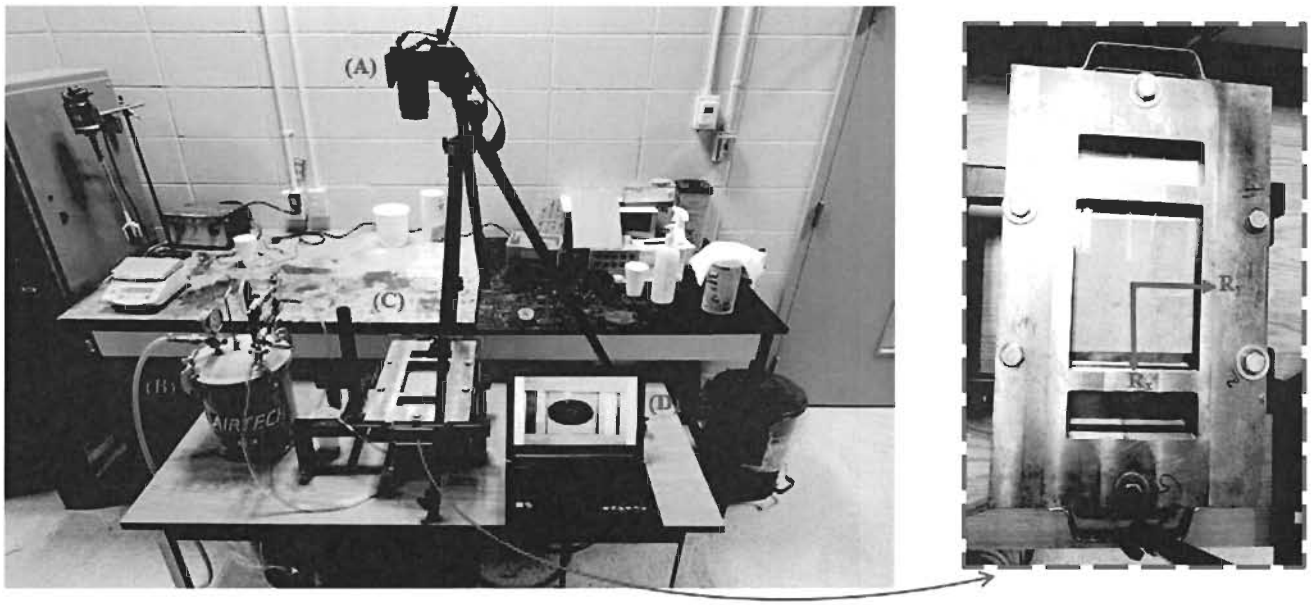


Figure 21. Montage expérimental de mesure de perméabilité ; (A) caméra (B) chambre de dégazage sous vide (C) moule (D) ordinateur d'acquisition.

Un joint d'étanchéité est placé entre la plaque de base et la plaque de verre, ce qui permet de maintenir le vide dans la cavité. Les plaques d'acier et de verre permettent de prévenir toute déflexion pendant la fermeture et l'injection du fluide afin de maintenir un V_f constant sur toute la surface de la préforme fibreuse. Huit cales d'épaisseur sont placées au milieu des quatre côtés du joint, entre la plaque de verre et le support en acier, et permettent de contrôler l'épaisseur de la cavité du moule et par suite, la fraction volumique de fibres V_f.

Pour les essais de perméabilité, une huile moteur de grade 20W-50 de viscosité 440 mPa-s à 21°C fut utilisée. Cette huile possède une viscosité proche de celle de la résine époxy utilisée pour mouler les composites. L'huile étant hydrophobe, elle reproduit ainsi le comportement d'une résine hydrophobe par rapport aux fibres naturelles qui sont hydrophiles. Une pompe à vide (modèle Humm-VacTM 12CFM de la société Easy composites Ltd, Stoke-on-Trent, UK) reliée à une chambre de dégazage permet de maintenir un vide de 13.26 psi (0.0914 MPa) dans la cavité. Les échantillons pour les essais de perméabilité sont fabriqués de cinq couches de renforts de dimensions 5.5 po × 5.5 po (140 mm × 140 mm) suivant les mêmes conditions définies à la Section

3.2.2. Chaque échantillon de mesure de perméabilité est percé, en son centre, d'un trou circulaire de 12 mm de diamètre. L'épaisseur requise de la cavité a été calculée avec l'Équation (4) pour avoir un V_f de 40%. Pour chaque type de renfort, trois essais sont effectués. Pour chaque essai, l'enregistrement de l'évolution du front d'écoulement est converti en une série d'images extraites à intervalle de 1 seconde. Les images ont par la suite été binarisées avec un logiciel de traitement d'images (ImageJ) pour obtenir les meilleures ellipses épousant le contour du front d'écoulement à chaque intervalle de temps. Ces ellipses ont été utilisées pour calculer les rayons R_x et R_y et la perméabilité équivalente (K_e) en utilisant l'Équation 9. Finalement, K_x et K_y sont calculés à partir de Ke avec les Équations 10 et 11.

3.4. Caractéristiques des renforts et des composites pour les essais de traction

Le Tableau 3 montre les différents grammages (maintenus constants autour de 300 g/m^2) et paramètres des renforts fabriqués pour le moulage des plaques d'essais mécaniques. Une désignation a été attribué aux renforts sous la forme : TX-Y-Z. Ici, T correspond au type de renfort : M pour un renfort mat seulement et UDM pour les renforts hybrides UD lin-mat lin, X au degré de fibrillation, Y à la longueur des fibres courtes (5 mm ou 10 mm) et Z à la vitesse de fibrillation (800 tours/min ou 1440 tours/min).

Tel que mentionné dans l'introduction du présent chapitre, trois paramètres ont été étudiés en lien avec la fibrillation des fibres courtes du liant mat du renfort UD-lin/mat, soit la longueur des fibres courtes (5 ou 10 mm), le taux de fibrillation des fibres (0 à 600 révolutions) et la vitesse de rotation du raffineur (800 ou 1440 tours/min). Le taux de fibrillation (nombre de tours) fut varié de 0 (fibres non-fibrillées utilisées comme référence dans les travaux) à 1500 pour les renforts mats seuls et de 0 à 200 ou 600 pour les renforts UD lin-mat. Ce choix sera expliqué dans la Section 4.3.2.1 des résultats. Pour le paramètre vitesse de rotation, normalement le raffineur PFI opère à une vitesse optimale de 1440 tours/min, vitesse pour laquelle l'effort appliqué n'endommage pas trop les fibres traitées. Pour étudier l'effet de celle-ci, une vitesse de 1440 tours/min a été utilisée de même qu'une autre de 800 tours/min, soit la plus faible valeur que le raffineur PFI peut prendre, afin de limiter l'endommagement potentiel des fibres pour un taux de fibrillation donné.

Tableau 3. Propriétés des renforts fabriqués.

Désignation	Type de renfort	Grammage, G (g/m^2)	Longueur des fibres courtes, L_f (mm) ± 1mm	Taux de fibrillation, D_f (tours)	Vitesse de fibrillation, V(tours/min)
M0-5	Mat	300 + 0.9	5	0	-
M200-5-1440	Mat	300 + 1.0	5	200	1440
M400-5-1440	Mat	301 + 3.2	5	400	1440
M500-5-1440	Mat	296 + 4.5	5	500	1440
M1000-5-1440	Mat	299 + 2.7	5	1000	1440
M1500-5-1440	Mat	300 + 1.6	5	1500	1440
UDM0-5	UD/Mat	295 + 5.1	5	0	-
UDM100-5-1440	UD/Mat	303 + 3.6	5	100	1440
UDM100-5-800	UD/Mat	296 + 4.7	5	100	800
UDM200-5-1440	UD/Mat	299 + 8.0	5	200	1440
UDM200-5-800	UD/Mat	304 + 6.2	5	200	800
UDM0-10	UD/Mat	289 + 4.7	10	0	-
UDM100-10-800	UD/Mat	294 + 5.0	10	100	800
UDM100-10-1440	UD/Mat	297 + 5.2	10	100	1440
UDM200-10-800	UD/Mat	290 + 9.3	10	200	800
UDM200-10-1440	UD/Mat	296 + 6.4	10	200	1440
UDM400-10-800	UD/Mat	293 + 4.5	10	400	800
UDM600-10-800	UD/Mat	290 + 1.2	10	600	800

Le Tableau 4 montre la nomenclature et les fractions volumiques de fibres des plaques composites fabriquées. Un V_f très près de 40% fut obtenu, tel que souhaité avec un faible taux de porosité (inférieur à 2.5%).

Tableau 4. Propriétés des plaques moulés.

Essai	Désignation	Vf (%)
1	M0-5	40.65
2	M200-5-1440	40.24
3	M400-5-1440	41.08
4	M500-5-1440	39.83
5	M1000-5-1440	40.98
6	M1500-5-1440	40.27
7	UDM0-5	39.84
8	UDM100-5-1440	40.82
9	UDM100-5-800	41.95
10	UDM200-5-1440	40
11	UDM200-5-800	40.45
12	UDM0-10	39.77
13	UDM100-10-800	41.98
14	UDM100-10-1440	42.09
15	UDM200-10-800	41.34
16	UDM200-10-1440	39.60
17	UDM400-10-800	41.98
18	UDM600-10-800	41.31

CHAPITRE 4 : RÉSULTATS ET DISCUSSION

4.1. Introduction

L'objectif du présent chapitre est de répondre à la question de savoir si le traitement de fibrillation, sur le plan strictement mécanique (par l'accrochage créé entre les fibres et la matrice après moulage), permet d'améliorer les propriétés mécaniques des composites à renforts mats et hybrides de type UD lin-mat lin. D'abord à la Section 4.2, des micrographies des fibres courtes fibrillées à différents taux servent à renseigner sur l'influence de la fibrillation sur la structure de la fibre et de délimiter à prime abord un intervalle de raffinage suffisant pour détacher les microfibrilles de surface, sans être trop sévère pour endommager les fibres comme tel. Ensuite dans la Section 4.3.1, les essais de traction sur les composites à renforts mats à fibres traitées ou non sont présentés. Ils permettent de renforcer (ou préciser) le choix de l'intervalle de fibrillation préétabli à la Section 4.2. L'effet du même intervalle de traitement sur les composites UD lin/mat lin-époxy est présenté à la Section 4.3.2. Des essais de traction dans le sens longitudinal et transversal renseignent sur l'effet de la fibrillation sur l'accrochage fibre/matrice et amène des précisions sur les paramètres de fibrillation. Des images à l'aide du microscope optique et du MEB permettent conjointement de visualiser l'interface fibres/matrice et les faciès de rupture obtenus lorsqu'il y a eu présence ou non du traitement de fibrillation. La littérature présente l'effet des traitements de surface sur le moulage et la perméabilité des renforts fibreux, et donc il est important de qualifier, au final et à la Section 4.4, l'effet du traitement de fibrillation sur la capacité de moulage des renforts mat d'une part et UD lin/mat d'autre part. Bien que la fibrillation puisse améliorer les propriétés mécaniques des composites, cela ne doit pas se faire au détriment de la capacité de moulage, en affectant de façon trop importante la perméabilité des renforts obtenus après traitement.

4.2. Microscopies des fibres courtes de lin traités au moulin PFI seuls

L'effet du traitement de fibrillation sur la structure des fibres courtes est étudié dans cette section. Les observations permettent de déterminer le taux de fibrillation possible pour les fibres avant l'apparition des signes de dégradation majeurs de la structure de la paroi externe de la fibre. Les fibres ont été traitées à des taux de fibrillation de 100, 300, 600 et 1000 révolutions. Ce choix initial du nombre de tours réside sur le type d'équipement disponible pour la fibrillation ainsi que

sur les résultats dévoilés des images en termes de degré d'endommagement des fibres. Les 100 révolutions correspondent à la valeur la plus faible permise par le raffineur PFI. Les 1000 révolutions correspondent au taux à partir duquel la dégradation de la fibre commence à apparaître. Plus précisément, on observe à la Figure 22-b (100 révolutions) que les microfibrilles à la surface de la fibre commencent à se détacher. Ces altérations semblent se situer au niveau de la couche S1 de la paroi de la fibre (voir Figure 5 au Chapitre 1) mais cela demeure à être vérifié. On constate à la Figure 22 que la quantité de microfibrilles à la surface des fibres augmente avec le degré de fibrillation. Au-delà de 300 révolutions, on observe que les fibres commencent à se replier et un accrochage entre les fibres commence à se créer par le biais des microfibrilles. Ces résultats sont similaires à ceux retrouvés dans la littérature [49, 78, 86].

Au-delà de 600 révolutions, on observe un endommagement du corps de la fibre. Les microfibrilles à la surface se détachent et se joignent les unes aux autres, formant des impuretés dans le mélange eau-fibres courtes, mélange utilisé pour la fabrication des renforts avec la formette dynamique. La Figure *23* présente la structure d'une fibre de lin extraite d'un lot de fibres traitées à 1000 tours prise à un grossissement 50X. On observe les microfibrilles enchevêtrées qui demeurent attachées à la paroi de la fibre (tel qu'indiqué par les flèches rouges dans la figure). Certaines autres microfibrilles se détachent pour former des particules très fines, tel que le montrent les cercles rouges sur la figure.

Ces observations sont aussi similaires à celles faites dans la littérature [19, 44, 78, 89-91], où les conditions extrêmes de raffinage ont entrainé une réduction significative de la taille des particules et la destruction de la structure cristalline de la fibre. Les conséquences de tels conditions de raffinage seront étudiées plus en détail avec les essais de traction, mais déjà le raffinage à 1000 révolutions semble être une limite à ne pas dépasser ce qui sera vérifié pour les résultats des essais de traction à 1500 révolutions.

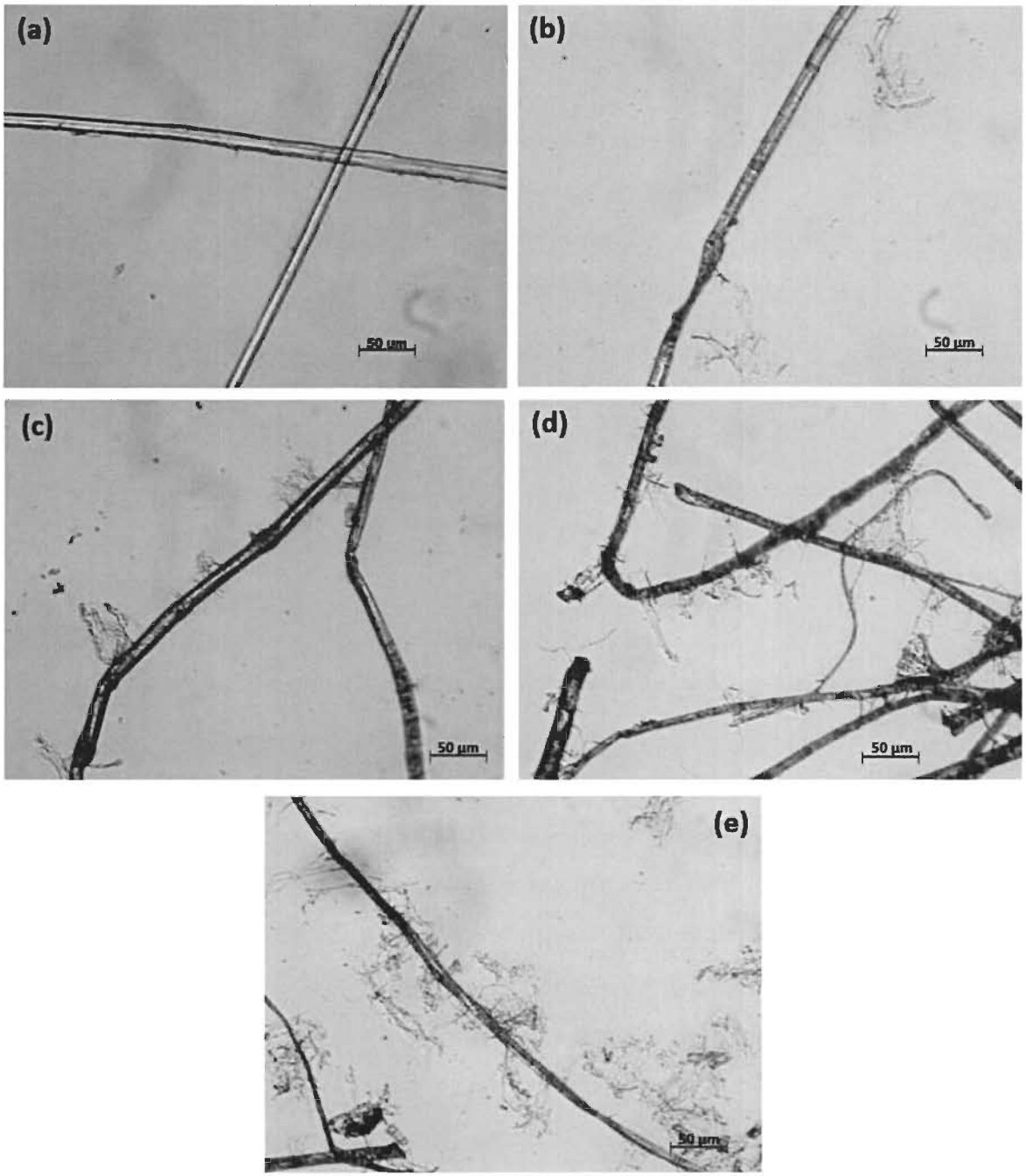


Figure 22. Micrographies (20X) des fibres courtes de lin après traitement de fibrillation à différents taux : (a) Non-fibrillés (b) 100 Révolutions (c) 300 Révolutions (d) 600 Révolutions (e) 1000 Révolutions.

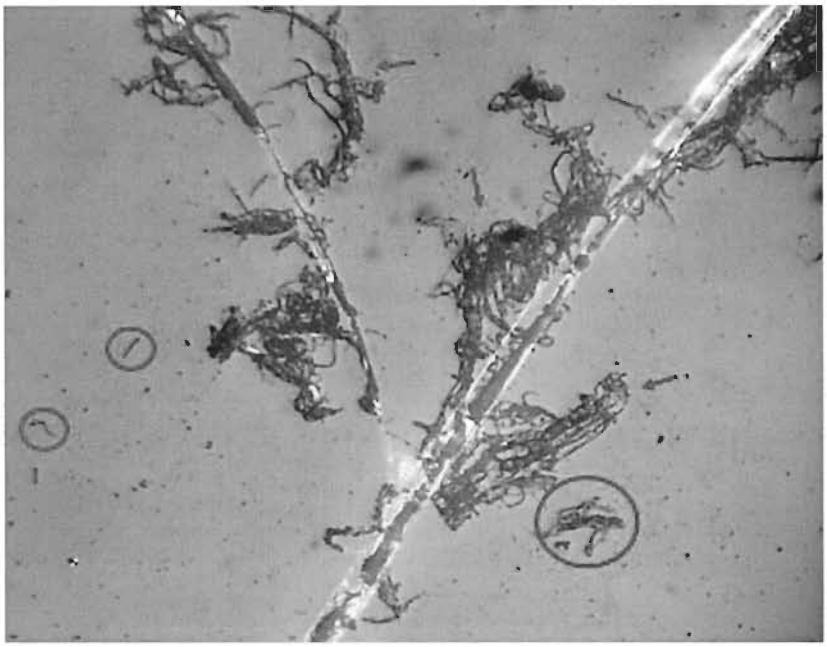


Figure 23. Microscopie optique 50X des fibres courtes de lin traités à 1000 tours au moulin PFI.

4.3. Effet du traitement de fibrillation sur les propriétés mécaniques en traction des composites.

La littérature met en évidence l'influence de la fraction volumique de fibres dans les composites à fibres naturelles sur les propriétés mécaniques en traction [50]. Pour éviter d'alourdir les travaux par l'ajout de V_f comme paramètre, et en lien avec les résultats de la littérature à l'effet qu'un V_f de 40 % pour les composites UD à fibres de lin serait une valeur maximale au-delà de laquelle les propriétés commencent à diminuer [47-50], tous les composites ont été fabriqués à un V_f d'environ 40%. Une grande importance a été accordée au V_f des composites fabriqués afin de maintenir ce dernier le plus constant possible.

4.3.1. Évaluation du comportement des composites mat lin-époxy sous l'effet du traitement de fibrillation.

Les courbes typiques des essais de traction obtenues avec les composites à renforts mats seulement et à différents taux de fibrillation sont présentées à la Figure 24. Les paramètres étudiés sont montrés dans la légende de la figure, où l'on voit que les fibres de 5 mm de long ont été fibrillées entre 0 et 1500 tours à une vitesse de 1440 tours/min. Des taux de fibrillations légèrement différents que ceux utilisés pour la microscopie (section précédente) sont montrés pour permettre

des intervalles plus réguliers, soit un incrément de 500 révolutions (0, 500, 1000 et 1500) avec deux valeurs supplémentaires intermédiaires de 200 et 400. Ceci permet d'étendre l'effet sur une plage plus grande de taux de fibrillation sur les propriétés mécaniques.

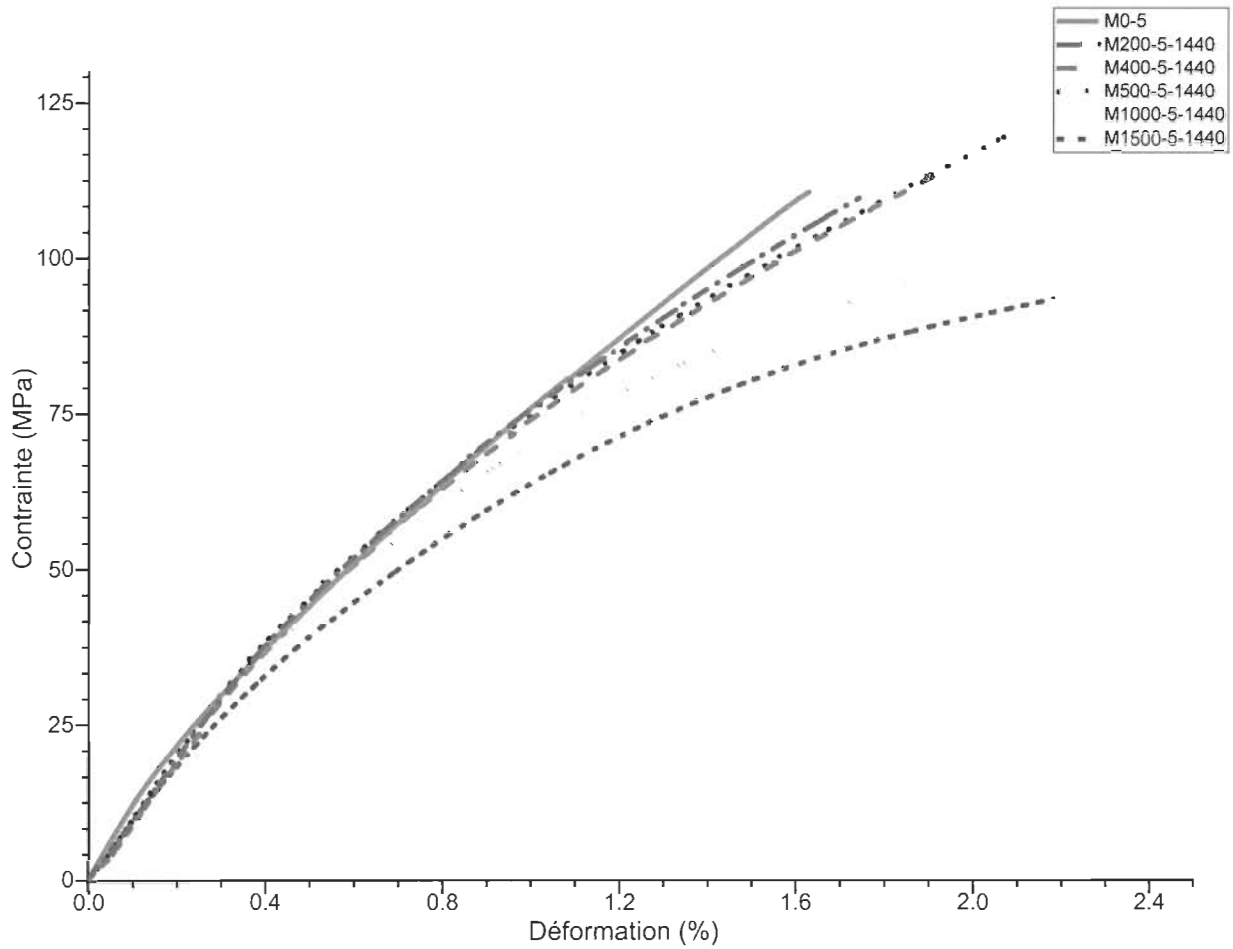


Figure 24. Courbes contrainte - déformation des composites mat lin/époxy selon le Tableau 5.

Les courbes sont caractérisées par deux zones distinctes. Une première zone linéaire entre 0% et environ 0.3% de déformation, montrant une droite caractérisant le comportement élastique linéaire initial du matériau, et une deuxième zone non-linéaire de 0.3% jusqu'à la rupture pour laquelle la déformation du matériau est non réversible. Le module d'élasticité (E) a été mesuré sur la partie linéaire en se référant à la norme ASTM D3039. Le Tableau 5 et les Figures 25 et 26 montrent l'ensemble des résultats obtenus avec les écarts-types. E représente le module de Young longitudinal, σ_{max} la résistance à la traction et ε_{max} la déformation à la rupture. On observe qu'une

augmentation du taux de raffinage augmente la résistance jusqu'au D_f de 500, pour diminuer ensuite pour un D_f de 1000.

Tableau 5. Effet du taux de fibrillation sur les propriétés en traction des composites stratifiés de type mats/époxy.

Test	*Désignation*	*E (GPa)*	σ_{max}*(MPa)*	ε_{max} *(%)*
1	M0-5	8.65 ± 0.63	110.78 ± 7.80	1.63 ± 0.19
2	M200-5-1440	8.47 ± 0.05	114.08 ± 4.80	1.73 ± 0.05
3	M400-5-1440	8.53 ± 0.26	120.75 ± 5.55	1.92 ± 0.08
4	M500-5-1440	8.86 ± 0.41	124.83 ± 5.21	2.11 ± 0.10
5	M1000-5-1440	9.12 ± 0.43	105.85 ± 6.42	2.32 ± 0.08
6	M1500-5-1440	8.25 ± 0.52	93.32 ± 7.56	2.06 ± 0.14

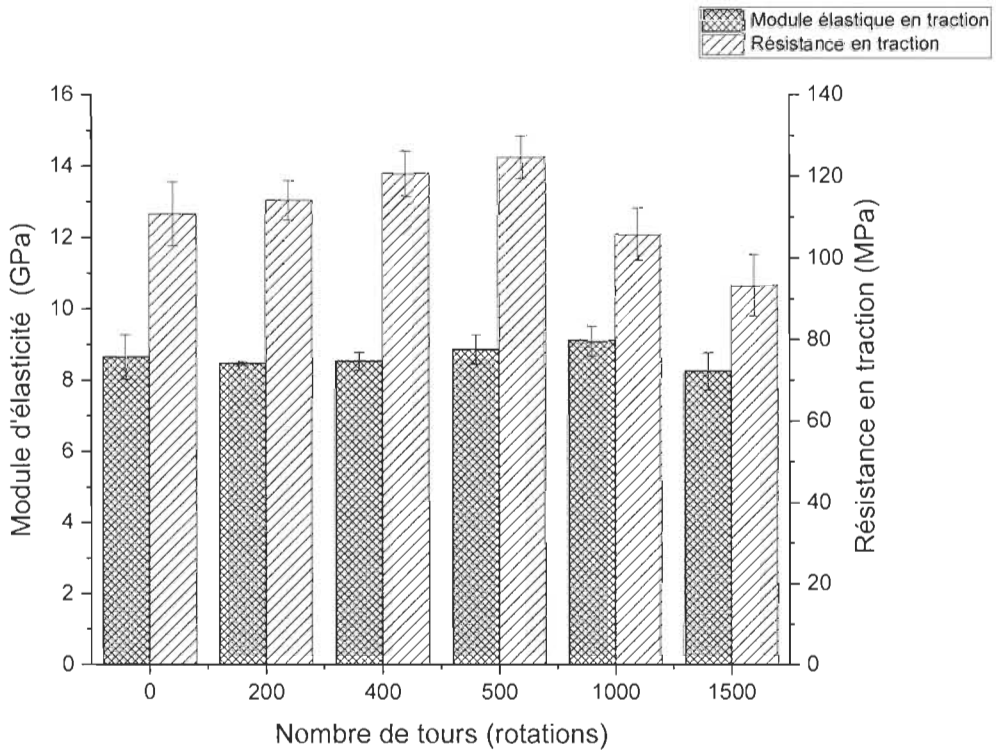


Figure 25. Propriétés mécaniques des composites Mat en fonction du taux de fibrillation (nombre de tours) : à droite résistance à la traction, à gauche le module d'élasticité en traction.

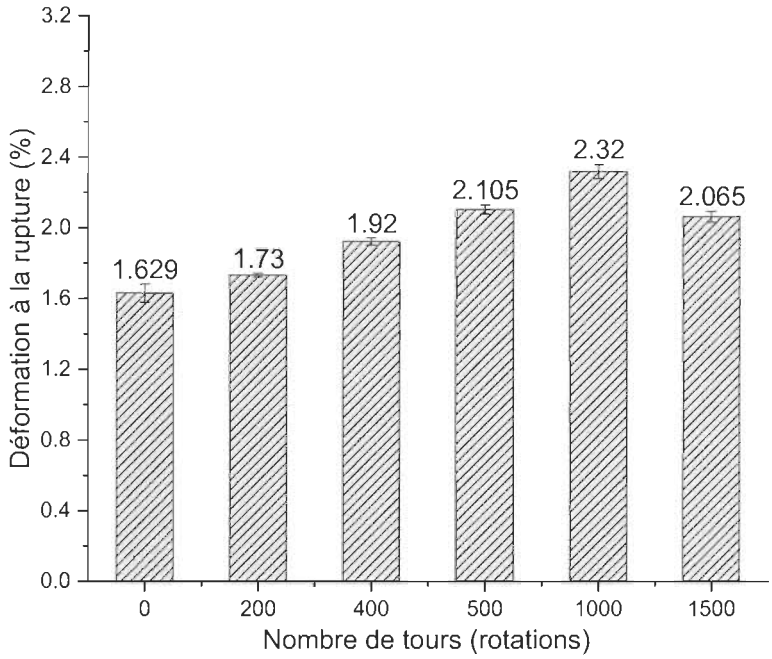


Figure 26. Effet de la fibrillation sur la déformation à la rupture des composites mats en fonction du taux de fibrillation.

Les Figures 25 et 26 reprennent les résultats du Tableau 5 pour permettre de bien visualiser l'effet du taux de fibrillation sur la variation des propriétés. Pour les composites à fibres de lin non traitées, des résultats similaires à ceux de la littérature, soit 110.78 ± 7.8 MPa obtenus ici pour les essais de traction contre 107.62 ± 2.89 MPa obtenus par Habibi [46] pour des composites similaires en termes de type de renfort et de V_f. Pour un taux de fibrillation qui varie entre 0 et 500 tours au PFI, on observe une augmentation de 12.68% de la contrainte à la rupture (110.78 ±7.8 MPa pour M0-5 et 124.83 ± 5.2 MPa pour M500-5-1440). De plus, on observe une augmentation de la déformation à la rupture avec le degré de fibrillation pour les composites à fibres raffinées jusqu'à 1000 tours au PFI (amélioration de 26.76% ; passant de 1.629 ± 0.19 % pour M0-5 à 2.32 % ± 0.08 pour M1000-5-1440). Ceci valide l'efficacité du raffinage dans l'amélioration de l'accrochage entre les fibres et entre les fibres et la matrice. Cette amélioration peut être attribuée à un meilleur transfert de charge entre les fibres et entre les fibres et la matrice. Lorsque le taux de fibrillation dépasse 500 tours, la résistance des échantillons commence à diminuer. On observe une diminution de 15.2 % entre 500 et 1000 tours (124.83 ± 5.2 MPa pour M500-5-1440 et 105.85 ± 6.415 MPa pour M1000-5-1440), qui se poursuit entre 1000 et 1500 tours. Pour ces deux derniers

cas, la résistance obtenue est même plus faible que celle des composites non traités, ce qui suggère que les fibres, pour ces taux de fibrillation, commencent à se dégrader. Cette détérioration affecte aussi la déformation maximale, qui semble diminuer lorsqu'on passe de 1000 à 1500 tours au raffineur PFI. On remarque à la Figure 25 que le module d'élasticité n'est à toute fait pratique pas affecté par le degré de fibrillation. Ceci suggère que malgré la fibrillation, la rigidité des fibres n'a pas été affectée.

L'inspection visuelle des éprouvettes (Figure 27) montre une section de rupture confinée et relativement uniforme. Ce résultat est conforme à ceux des travaux antérieurs sur les renforts [46, 48, 51]. Mbakop attribue ce type de rupture à une distribution homogène des fibres courtes dans le mat fabriqué ainsi que par la faible porosité du composite [49]. Cette faible porosité fut obtenue malgré la faible perméabilité des renforts mat, laquelle diminue avec l'augmentation du taux de raffinage, résultat qui sera montré à la section 4.4 sur les mesures de perméabilité.

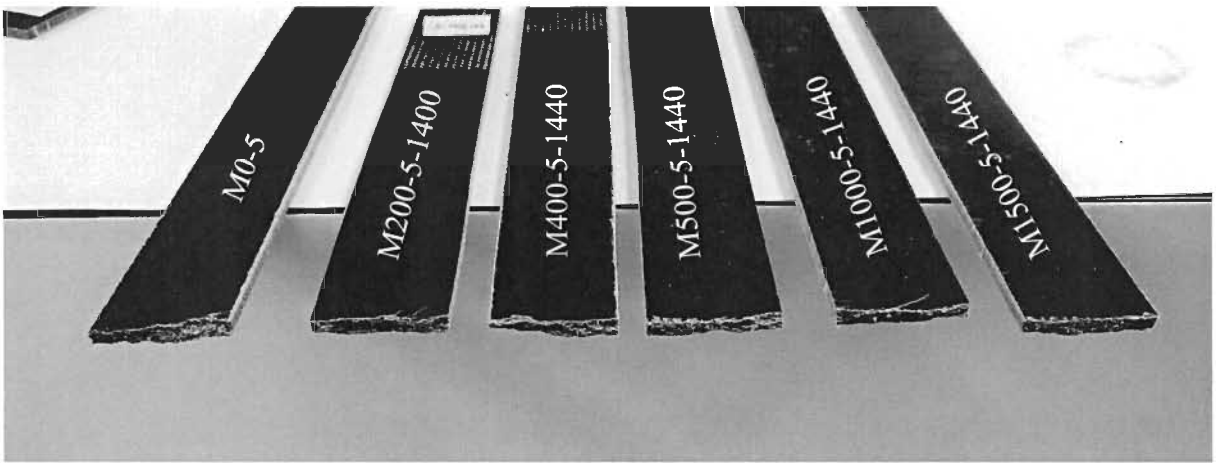


Figure 27. Profilés des échantillons fracturés après essais de traction.

Une simple inspection visuelle reste cependant insuffisante pour caractériser l'influence de la fibrillation sur la structure des composites. La Figure 28 présente des micrographies prises au MEB des faciès de rupture des composites M0-5, M500-5-1440 et M1500-5-1440. Pour tous les degrés de fibrillation, on observe de la fissuration matricielle et du déchaussement des fibres, mais à différentes ampleurs.

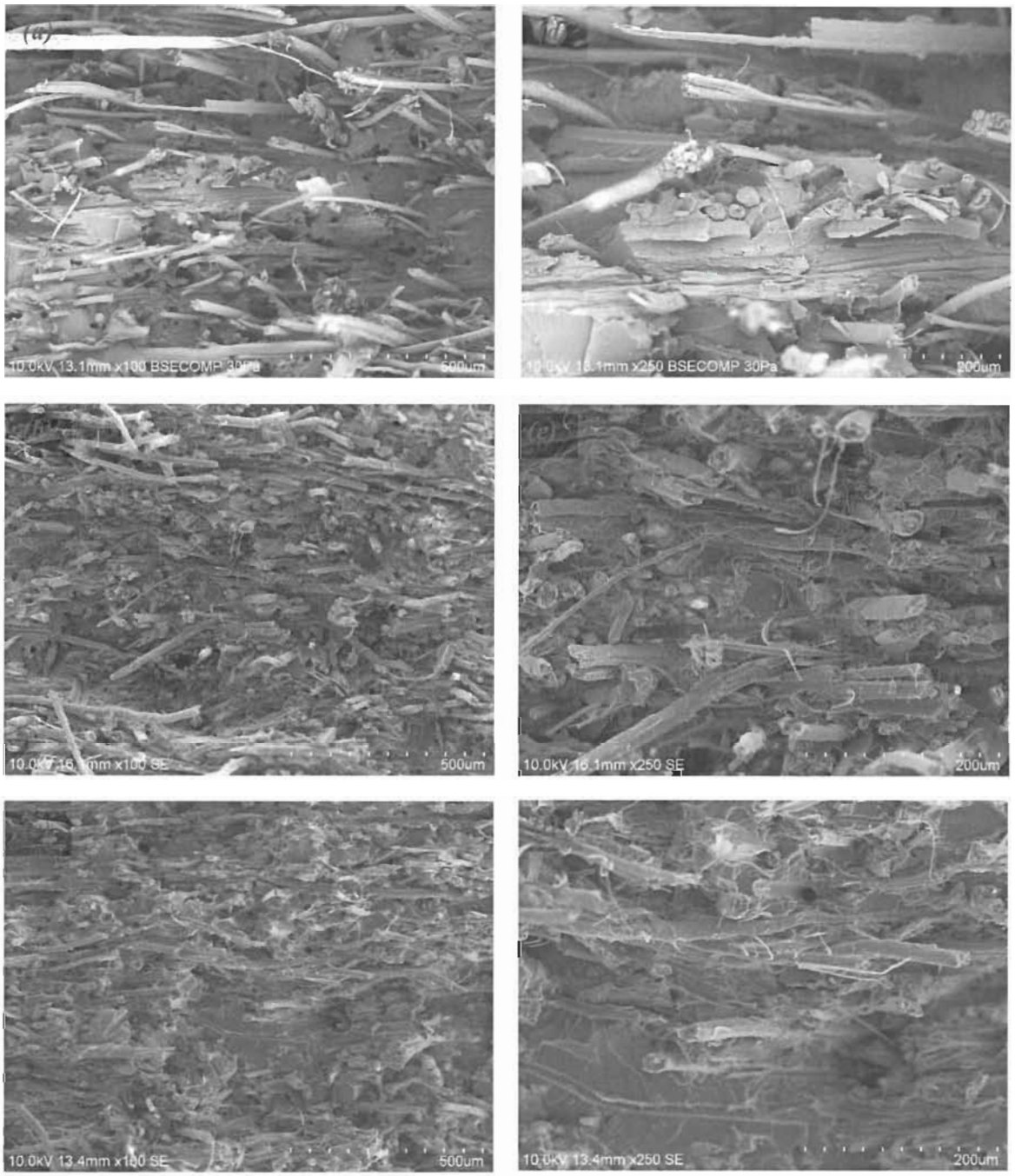


Figure 28. Micrographies des faciès de rupture 100X : (a) M0-5 (b) M500-5-1440 (c) M1500-5-1440 et 250X : (d) M0-5 (e) M500-5-1440 (f) M1500-5-1440.

L'augmentation du taux de fibrillation est associée à une densification du réseau fibreux qui peut être observée sur les Figures 28a à 28c. Ceci peut être attribué au fait que la fibrillation génère des microfibrilles en surface des fibres. Si on compare les Figures 28d et 28e, on remarque que les microfibrilles de la surface des fibres sont incorporées à la matrice. Ces microfibrilles

empêchent le déchaussement des fibres et le rend plus difficile, ce qui explique les résultats au niveau des essais de traction. Pour un taux élevé de fibrillation, la quantité de microfibrilles en surface augmente, mais est accompagnée par la dégradation structurale des fibres. De plus, des défauts sous forme d'amas de microfibrilles détachées dans les zones riches en résine (cercle rouges) sont visibles (Figure 28e). Ces amas proviennent d'un raffinage excessif (comme discuté précédemment en lien avec la Figure 23) et pourraient initier localement et prématurément la fissuration et la rupture des composites.

On remarque qu'un taux de raffinage de 1000 PFI vient maximiser la déformation maximale à la rupture. Cette augmentation est intéressante car elle suggère une augmentation de l'énergie de rupture, représentée par la surface sous la courbe contrainte-déformation. Ceci pourrait s'avérer intéressant pour le comportement à l'impact des composites. Ces aspects débordent les travaux du présent mémoire, mais d'autres travaux sont en cours à ce sujet.

Pour conclure cette section, Hozdic et Shanks [78] suggèrent que l'amélioration des propriétés en traction pour un composite à renfort mat et pour le même type de traitement peut atteindre 102% en terme de résistance et 67% pour le module d'élasticité en traction. En regard des Figures 25 et 26, l'amélioration des propriétés est relativement faible pour les composites à renforts mats, ce qui mène à penser que d'autres paramètres de fabrication des renforts pourraient être ajustés pour améliorer les résultats. La littérature évoque que les modifications physiques et structurales qui se produisent dans les fibres lors du traitement de fibrillations affectent les propriétés mécaniques des composites [89-91]. Les travaux antérieurs sur le renfort UD lin-mat montrent que les fibres courtes de lin constituant le liant mat doivent être d'une longueur supérieure à 5 mm pour contribuer à la rigidité du composite. Les fibres trop courtes (inférieures à 5 mm) résultent en un déchaussement avec la matrice (à cause de la faible adhésion fibres-matrice) et par suite de plus faibles propriétés en traction.

La littérature suggère que la fibrillation engendre une diminution de la longueur des fibres ce qui peut affecter les résultats finaux de l'étude [15]. Cette diminution est possiblement à l'origine (du moins partiellement) du faible impact du traitement de fibrillation sur les mats. Dans le cas présent, le traitement de fibrillation, dont les étapes ont été décrites au chapitre 3, est appliqué à l'aide d'un raffineur PFI dont certains paramètres peuvent être ajustés, tel que le nombre de tours

et la vitesse de rotation du moulin. Dans ce contexte, il est donc nécessaire d'étudier l'effet de ces paramètres sur les propriétés mécaniques des composites fabriqués.

Dans la prochaine partie, la longueur des fibres courtes constituant le liant mat du renfort UD-lin/mat fut variée (5 ou 10 mm) de même que la vitesse du raffineur (800 ou 1440 tours/min) et leurs influences étudiées. Ces ajouts sont réalisés seulement sur les composites faits des renforts hybrides UD-lin/mat puisque ce sont principalement ces renforts que l'on cherche à améliorer. Cette évaluation permettra de vérifier s'il faut garder la longueur des fibres à 5 mm utilisée jusqu'à maintenant dans les travaux précédents [26, 28, 31] ou s'il faut l'augmenter dans un contexte de fibres fibrillées.

4.3.2. Évaluation du comportement des composites UD-mat/époxy sous l'effet de la fibrillation.

4.3.2.1. Essais de traction dans le sens longitudinal

La Figure 29 présente des courbes typiques contrainte – déformation des composites UD lin/mat lin-époxy pour des fibres non fibrillées (UDM0) et pour des fibres fibrillés à différents taux pour des renforts à fibres de 10 mm et fibrillés à 800 tours/min.

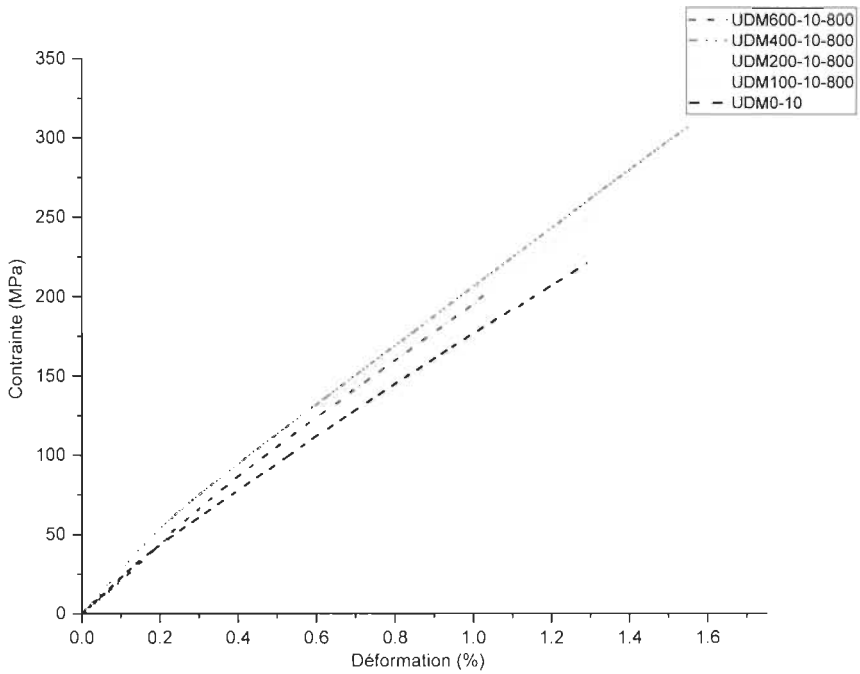


Figure 29. Courbes contraintes - déformation des composites UD/Mat lin-époxy dans le sens longitudinal.

Les courbes présentent deux zones linéaires caractéristiques de ce type de matériau [38, 46, 48, 50-52]. De même que pour les essais sur les composites à renforts mat fibrillés, la première partie linéaire a servi au calcul du module d'élasticité (déformations entre 0.1 % et 0.2% selon les recommandations de la norme ASTM D3039).

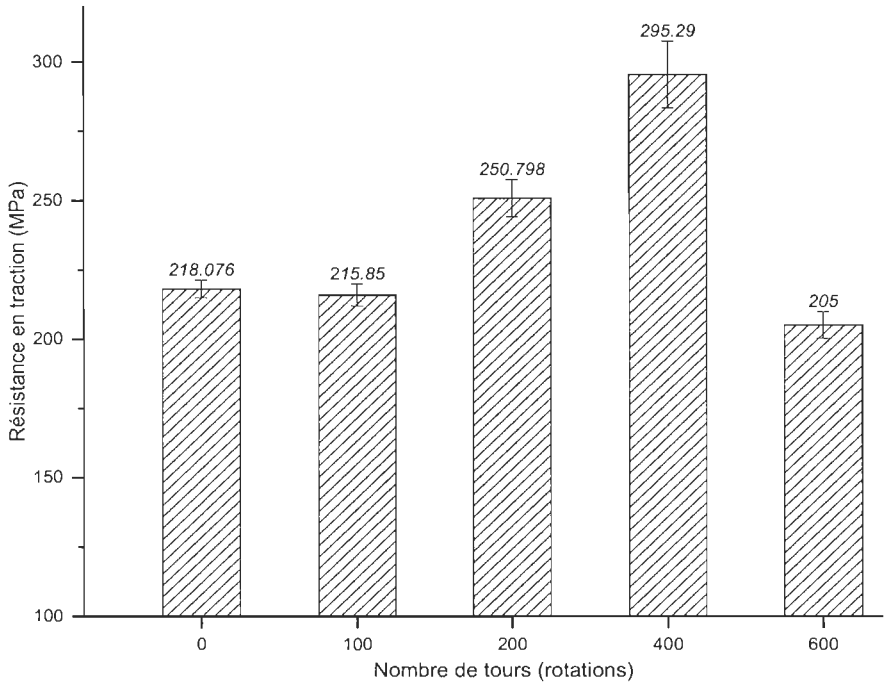
Le Tableau 6 montre les résistances à la rupture ainsi que les modules longitudinaux et les déformations à la rupture des échantillons testés sous différents taux de fibrillations (0, 100 ,200, 400 et 600 tours), pour deux vitesses de rotation du moulin PFI (800 et 1440 tours/min) ainsi que deux longueurs moyennes de fibres courtes (5 et 10 mm). Les composites à fibres de 10 mm possèdent de meilleures propriétés que ceux de 5 mm lorsque les autres paramètres sont identiques. On constate la même chose pour le module E (sauf certains cas) tandis que la déformation à la rupture ne semble pas affectée par la longueur des fibres courtes.

Tableau 6. Propriétés mécaniques des composites UD/mat lin-époxy traités à différents taux de fibrillions sous différents paramètres.

Test	*Désignation*	*E (GPa)*	σ_{max} *(MPa)*	ε_{max} *(%)*
1	UDM0-5	18.3 ± 0.8	201.0 ±5.5	1.33 ± 0.02
2	UDM100-5-800	18.2 ± 1.1	200.0 ± 6.3	1.30 ± 0.04
3	UDM100-5-1440	16.7 ±0.3	197.7 ± 8.2	1.35 ± 0.07
4	UDM200-5-800	19.1 ± 0.4	241.6 ± 7.0	1.39 ± 0.05
5	UDM200-5-1440	18.9 ± 0.2	235.3 ± 4.2	1.25 ± 0.02
6	UDM0-10	17.2 ±1.6	218.1 ± 3.2	1.31 ± 0.01
7	UDM100-10-800	17.8 ±1.4	215.9 ± 4.0	1.29 ± 0.05
8	UDM100-10-1440	19.1 ± 0.1	210.0 ± 3.1	1.30 ± 0.10
9	UDM200-10-800	23.2 ± 2.0	250.8 ± 10.7	1.33 ± 0.08
10	UDM200-10-1440	22.8 ± 0.9	233.0 ± 12.0	1.27 ± 0.05
11	UDM400-10-800	27.8 ± 1.8	295.3 ± 12.0	1.50 ± 0.05
12	UDM600-10-800	19.2 ± 2.3	205.0 ± 4.8	1.06 ± 0.03

La Figure 30 présente les résistances à la traction (figure a) et les modules d'élasticité (figure b) des composites à renforts UD-lin/mat à fibres de 10 mm de longueur. On observe une augmentation de la résistance de 218.1 ± 3.18 MPa pour le UDM0-10 à 295.3 ± 12 MPa pour les UDM400-10-800. Cela correspond à une amélioration en traction non négligeable de 35.40% dans le sens longitudinal. On observe aussi une augmentation du module d'élasticité de 61.3% pour le même intervalle de taux de fibrillation, ce qui s'approche de l'augmentation de 67% obtenue par Hozdic et Shanks [78] et démontre par le fait même l'intérêt de la fibrillation pour les renforts UD lin-mat.

La Figure 31 montre le comportement en déformation. Pour 400 PFI, une augmentation de la déformation à la rupture de 14.8 % est obtenue, plus faible que pour la résistance et le module d'élasticité. Pour les PFI intermédiaires (entre 0 et 200), les déformations à la rupture obtenues pour ces taux de raffinage sont proches en considérant l'écart-type des résultats. Dans le sens longitudinal des composites à fibres UD, la charge est reprise par les fibres, très peu par la matrice. Dans les composites UD à fibres synthétiques, notamment les fibres de verre, la résistance en traction dépend de la déformation à la rupture des fibres et de la matrice. La plus faible de ces deux déformations contrôle la résistance tel que décrites par les modèles micromécaniques [106]. Cependant, pour les CFN unidirectionnels, la fabrication des renforts provient de fils tordus à un certain niveau, ceci afin d'éviter la rupture du fil lors de la fabrication des renforts, torsion qui affecte les propriétés mécaniques par la désorientation locale des fibres ce qui est pris en compte par les modèles micromécaniques de la littérature [107, 108]. Dans le cas présent, bien que la résine époxy Marine 820/824 et les fibres de lin possèdent respectivement une déformation à la rupture de 2% (données fournies par la fiche technique du fabricant, voir Annexe B) et de 2.7 % (Tableau 2), on observe au Tableau 6 des déformations à la rupture qui ne dépasse jamais 1.5 %. La résistance et le module d'élasticité augmentent avec la fibrillation puisque le transfert fibre-matrice est plus efficace, mais compte tenu du niveau de torsion des fils de lin, il semble donc normal qu'on n'atteigne jamais la déformation à la rupture de la fibre ou de la matrice tels que prédisent les modèles micromécaniques des UD à fibres synthétiques.



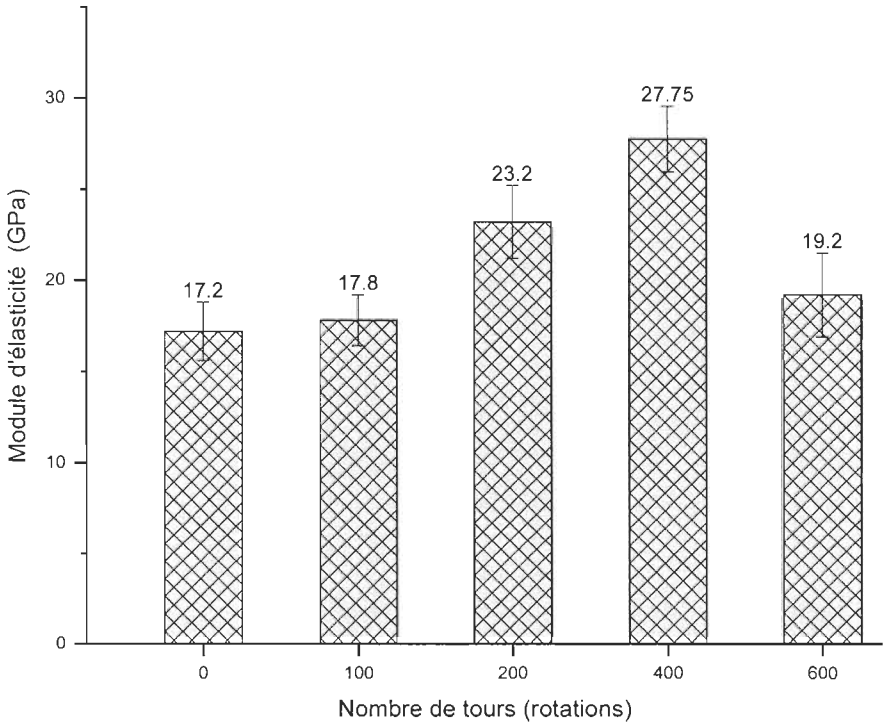


Figure 30. Propriétés mécaniques des UD/Mat lin-époxy à différents taux de raffinage (longueur de fibre : 10 mm, vitesse de fibrillation 800 tours/min) : (a) résistance à la traction (b) module longitudinal.

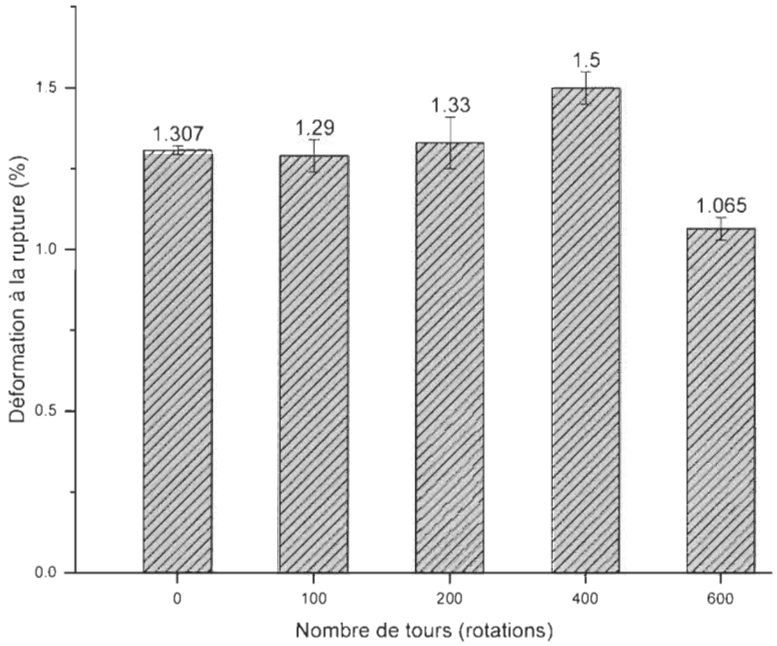


Figure 31. Variation de la déformation à la rupture sous l'effet de la fibrillation (longueur de fibre : 10 mm, vitesse de fibrillation 800 tours/min).

Les composites UDM600-10-800 présentent les plus faibles propriétés (une résistance de 205 ± 4.8 MPa et un module de 19.2 ± 2.3 GPa), plus faibles même que celles des composites non-fibrillés. Ces résultats valident ceux obtenus à la section précédente sur les composites faits de mats seuls où la résistance maximum était obtenue pour un PFI autour de 500. Il semble donc qu'au-delà de 400 tours au raffineur PFI, les fibres courtes se dégradent et ne contribuent plus à la résistance globale du composite. Il est important de mentionner ici que lorsqu'on compare les résultats obtenus dans la présente étude avec les études précédentes portant sur les renforts hybrides UD lin-mat, les propriétés de la présente étude sont inférieures. Mbakop et coll. [38] a étudié l'effet de la compaction planaire sur l'amélioration des propriétés mécaniques des UD lin/mat lin-époxy, et les résistances obtenues pour les composites non compactés étaient de 282 MPa alors qu'une valeur de 200 MPa fut obtenue pour le cas UDM0-5 dans cette étude. Ceci est possiblement attribuable au lot de fibres naturelles utilisé dans chaque étude, où un lot obtenu en 2014 fut utilisé par Mbakop et coll. tandis qu'ici les résultats portent sur un lot obtenu en 2018. Il a été clairement démontré pour les composites à fibres naturelles que les conditions de culture

(année, terroir, période d'ensoleillement, etc.) peuvent considérablement affecter les propriétés mécaniques des composites [109]. Il faut aussi considérer le degré de torsion des fils faits à partir de fibres de lin relativement courtes à la base (variant entre 20 et 50 mm). En effet, les deux études de Mbakop et coll. [38, 49] ont été faites à partir de fils de lin Tex 400 tordus à 30 tours par mètre tandis qu'ici, la torsion du fil utilisé, provenant du lot 2018, était de 40 tours par mètre. Ce qui peut en partie expliquer la différence dans les résultats.

Afin de s'assurer que les résultats des essais obtenus et les variations trouvées ne sont pas causés par une mauvaise imprégnation, l'inspection de quelques échantillons de composites sains fut réalisée à l'aide d'un microscope optique. La Figure 32 montre un grossissement 50X des composites coupés et polis selon la procédure décrite à la Section 3.3.1.23.3.1.2. À remarquer d'abord pour tous les composites que les cinq couches de renfort sont facilement identifiables. On observe la présence de zones riches en résine entre les fils de la couche de fibres UD (identifiées par des flèches blanches sur la figure).

La Figure 33 montre les échantillons après rupture des composites. Ils présentent de légères fissurations longitudinales qui ont été attribuées par Habibi [50] et Mbakop [49] au transfert de contrainte par le biais du liant mat. Pour les composites dont les renforts ont été traités, la rupture est plus confinée (faciès plus uniforme) que celle du composite UDM0. On observe aussi, pour les échantillons de UDM0, un phénomène de cisaillement longitudinal se produisant lors de la rupture, par le décalage longitudinal des faciès, cisaillement longitudinal soulevé dans la littérature [47]. Ce phénomène ne se produit pas pour les échantillons à liant mat fibrillé, notamment pour les taux entre 200 et 600. Cette observation suggère une amélioration de l'adhérence entre les fibres UD et les fibres courtes du liant mat et la matrice.

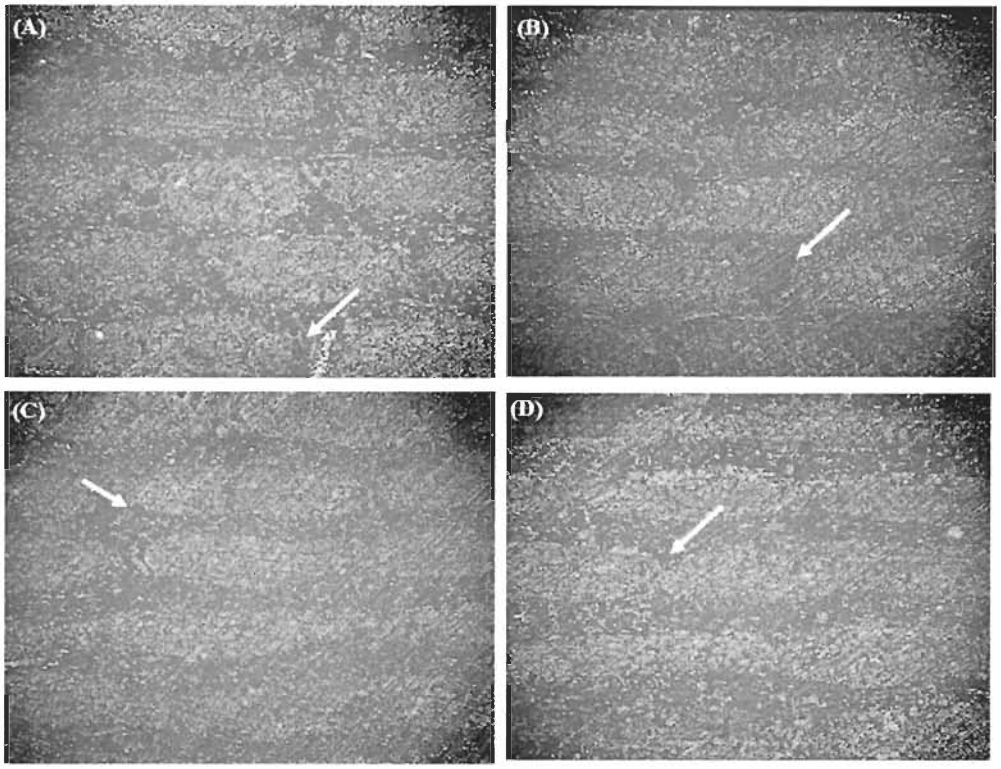


Figure 32. Micrographie 50X d'échantillons de composites sains UD lin/mat lin-époxy ; (A) UDM0-10, (B) UDM200-10-800, (C) UDM400-10-800 et (D) UDM600-10-800.

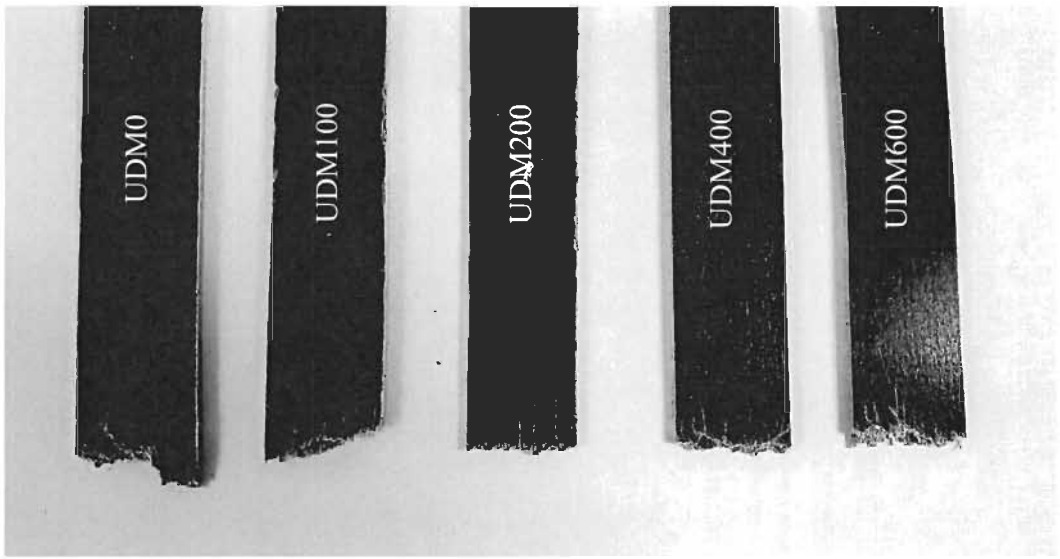


Figure 33. Profilés des échantillons UD lin/mat lin-époxy fracturés après essais de traction.

Pour mieux visualiser l'endommagement au niveau de l'interface fibre/matrice des composites lors de la rupture, des micrographies au MEB des faciès de rupture sont présentées à la Figure 34. Pour tous les composites, les phénomènes de déchaussement des fibres (DDF), de

fissuration matricielle (FM) et de rupture des fibres (RF) sont présents, mais à différents degrés. Pour les UDM0-10 (Figure 34-a), la faiblesse de l'interface fibre/matrice peut être constatée à partir des traces laissées par le déchaussement des fibres (géométrie de fibre intacte et empreinte de la forme de la fibre sur la matrice). Les figures 34-b à 34-d montrent plus de phénomènes de déchaussement mais on observe aussi des microfibrilles à la surface des fibres qui ont contribué à l'amélioration des propriétés mécaniques.

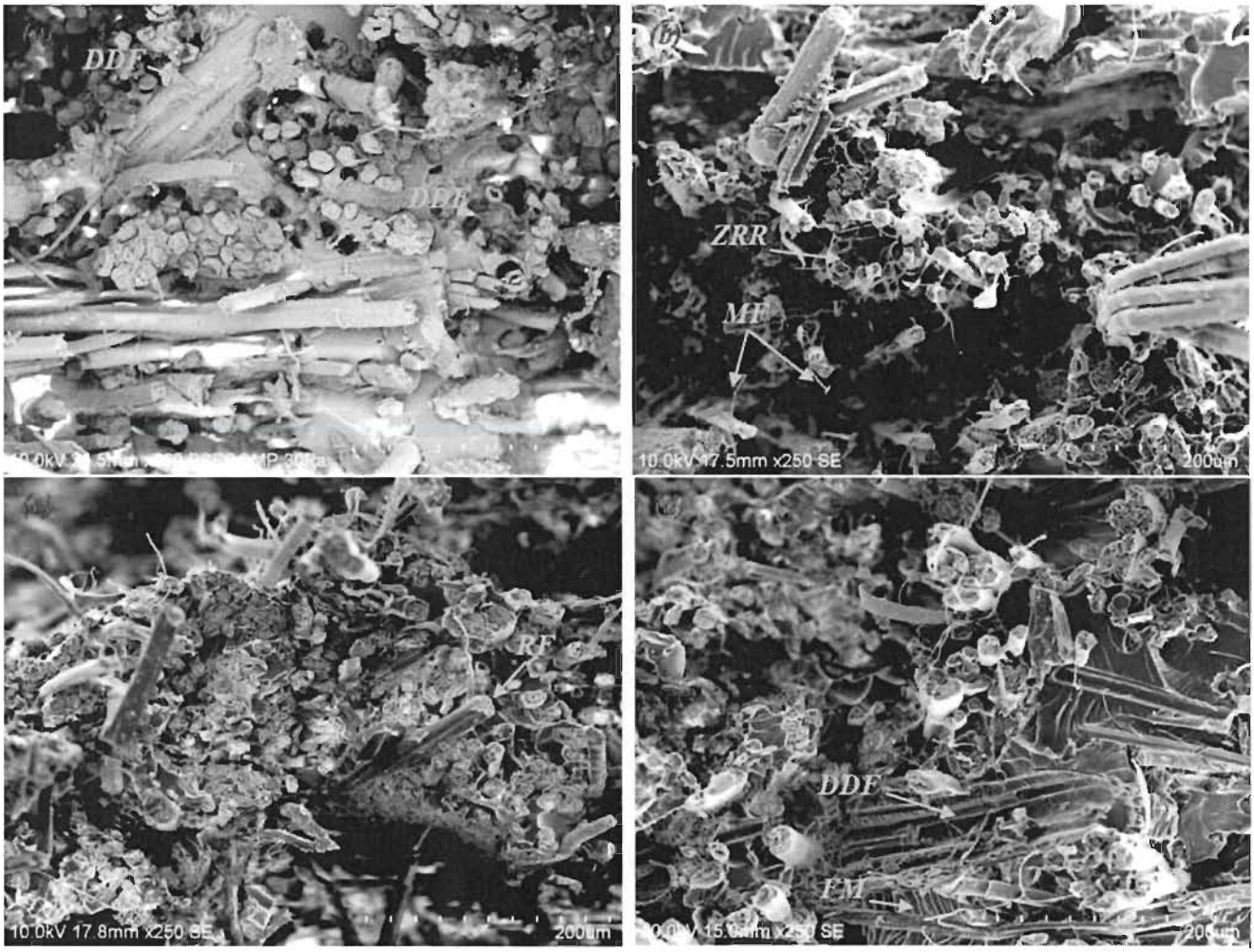


Figure 34. Micrographie 250X des faciès de rupture de composites UD/mat lin-époxy ; (a) UDM0-10, (b) UDM200-10-800, (c) UDM400-10-800 et (d) UDM600-10-800.

Pour les renforts à fibres fibrillés présentés sur la Figure 34 (figures b et c), on observe que l'arrachement des fibres engendre plus de fissuration matricielle dans les zones riches en résine

entre les fibres ce qui peut être attribué aux microfibrilles (MF) au niveau de la surface des fibres qui améliorent l'adhésion entre les fibres et la matrice.

La Figure 35 présente les résultats des essais de traction sur des composites UD lin/mat lin où la couche mat de lin est constituée de fibres courtes de longueurs respectives d'environ 5 et 10 mm pour les non-fibrillés et fibrillés à 100 et 200 tours (la longueur est une valeur moyenne approximative précise à ±1 mm).

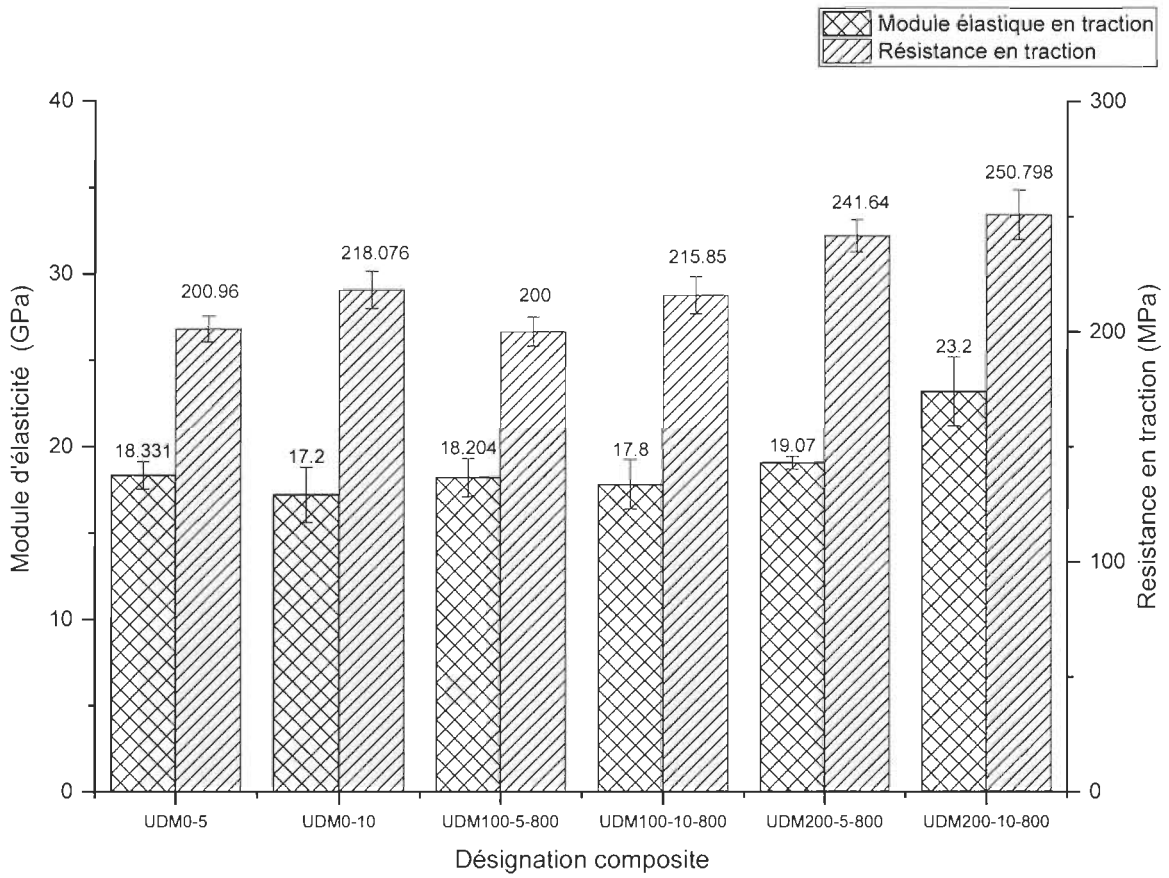


Figure 35. Effet de la longueur des fibres sur les propriétés en traction des UD lin/mat lin-époxy.

Dans tous les cas, on observe qu'une augmentation de la longueur des fibres courtes engendre une légère amélioration de la contrainte à la rupture (par exemple, 200.96 ± 2.5 MPa pour UDM0-5 et 218.076 ± 3.18 MPa pour UDM0-10) et un module d'élasticité longitudinal presque inchangé (18.331 ± 08 GPa pour UDM0-5 et 20.238 ± GPa pour UDM0-10), excepté pour le cas fibrillé à 200 tours. Ces résultats sont similaires à ceux de Habibi et coll. [46] ayant travaillés

sur les fibres non fibrillées seulement. Cette variation est, en partie, causée par l'augmentation du nombre de points d'ancrage sur lesquels la résine époxy peut s'accrocher sur des fibres plus longues, tel que l'ont constaté Habibi et coll., mais puisque l'augmentation est similaire que les fibres soient fibrillées ou non, il semble donc qu'une augmentation de longueur des fibres dans le cas fibrillé n'affecte pas les propriétés mécaniques.

Passons maintenant à l'effet de la vitesse de rotation du tambour PFI. Le raffineur fut régulé à haute vitesse (1440 tours/min) et à basse vitesse (800 tours/min). Ici, seuls les PFI de 100 et 200 furent étudiés car à ces faibles taux de raffinage et pour une vitesse donnée, une fibrillation supplémentaire peut se produire lors de l'arrêt de la machine (par la durée de ralentissement du rotor). L'effet de la vitesse de rotation est donc étudié sur des taux de raffinage les plus susceptibles d'être affectés par celle-ci. La Figure 36 présente les résultats des essais de traction effectués sur ces composites pour des fibres de 10 mm. Ils montrent que la variation de la vitesse de raffinage n'affecte pas les propriétés en traction des composites de façon significative, ce qui suggère qu'à plus haut taux de raffinage, les effets seraient encore moins importants. En effet, le module de traction demeure presque inchangé pour les deux vitesses et les deux taux de fibrillation, mais une très légère diminution au niveau de la contrainte de rupture est observée à 1440 tours/min. Cette variation peut être négligée puisque les écarts-types se chevauchent légèrement. La résistance a cependant augmenté à 200 tours par rapport à la référence non-fibrillée (0 tours), mais entre 800 et 1440 tours/min, la différence n'est pas significative. Donc le choix final de la vitesse de rotation repose essentiellement sur la faisabilité du protocole expérimental de fibrillation (ou sa simplification si c'est plus simple à certaines vitesses).

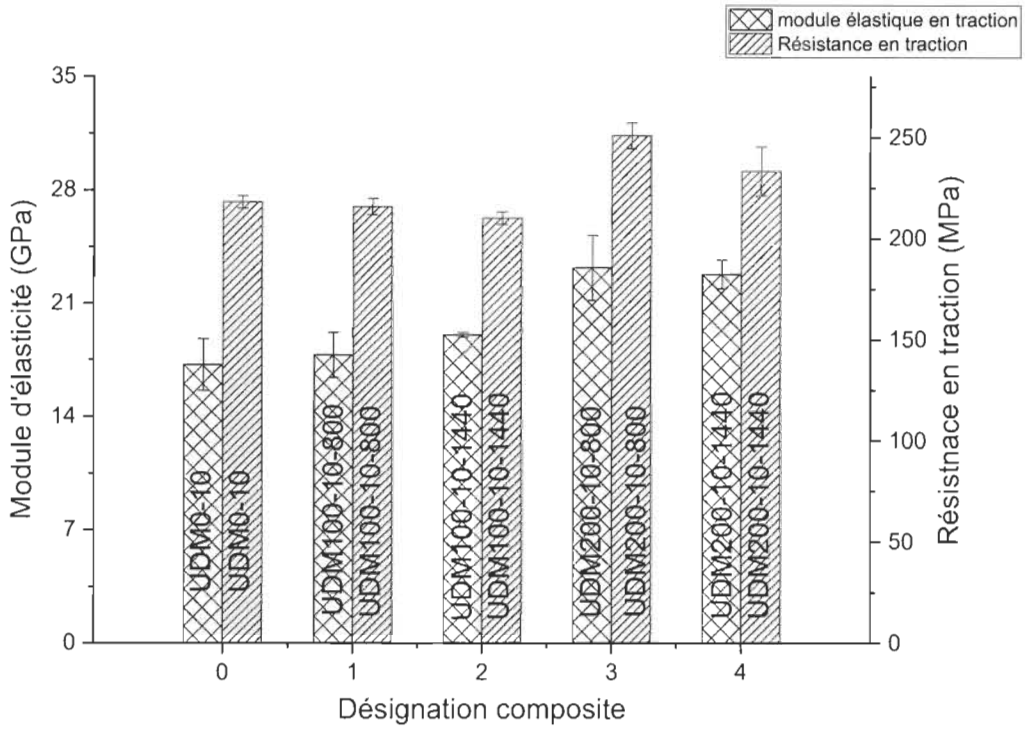


Figure 36. Effet de la vitesse de fibrillation des fibres courtes sur les propriétés en traction des UD lin/mat lin-époxy.

4.3.2.2. Essais de traction dans le sens transversal

L'effet du traitement de fibrillation a été étudié sur les mêmes composites UD-lin/mat à matrice époxy dans le sens transversal des fibres. Les essais ont été faits en réutilisant les paramètres de fibrillation du composite présentant les meilleures propriétés mécaniques obtenues précédemment (UDM400-10-800) et sur un composite non-fibrillés (UDM0-10).

La Figure 37 présente les résistances et modules transversaux des composites à renforts non-fibrillés et fibrillés à 400 tours. On observe une légère diminution de la résistance à la traction et un module transversal inchangé entre les composites à renforts non fibrillés et ceux fibrillés à 400 PFI. L'analyse des faciès de rupture au MEB montre les microfibrilles en surface des fibres fibrillées (Figure 38-B) comparativement aux non-fibrillées (Figure 38-A). Cependant, au final, ils contribuent à une légère diminution de la résistance en traction dans le sens transversal.

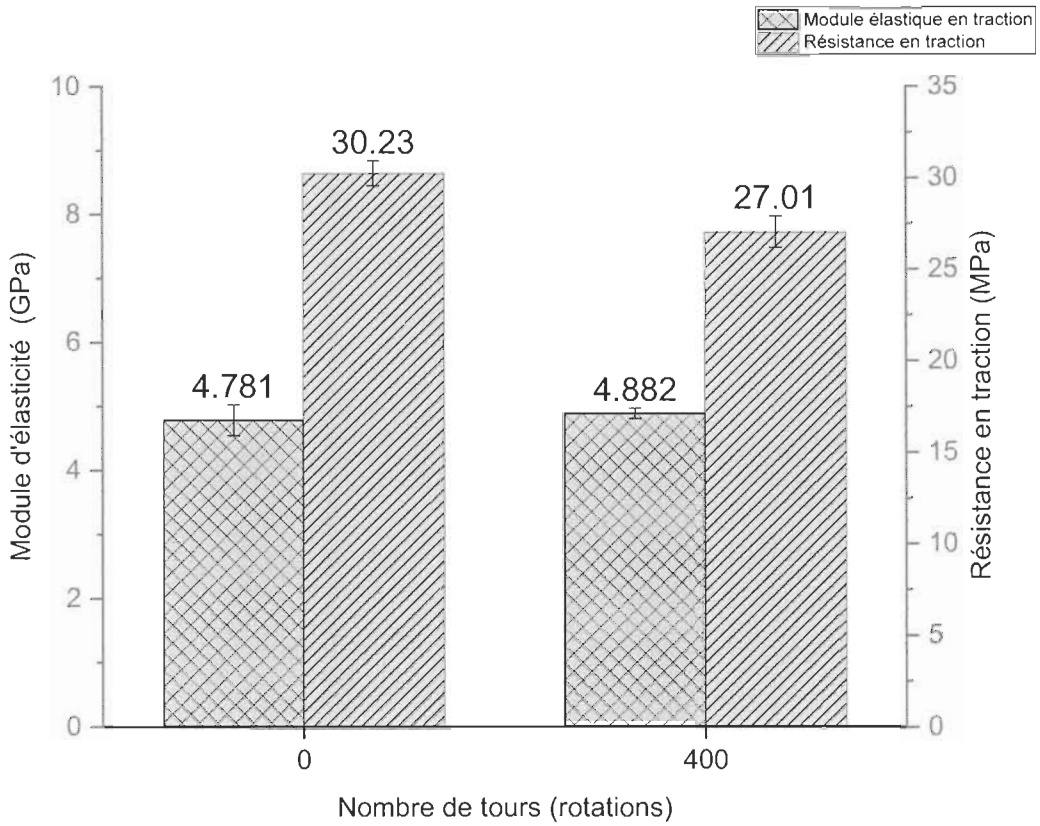


Figure 37. Propriétés transversales en traction des UD lin/mat lin époxy pour des fibres courtes de 10 mm, une vitesse de rotation de 800 tours/min, pour les composites non-fibrillés (0 tours) et fibrillés à 400 tours.

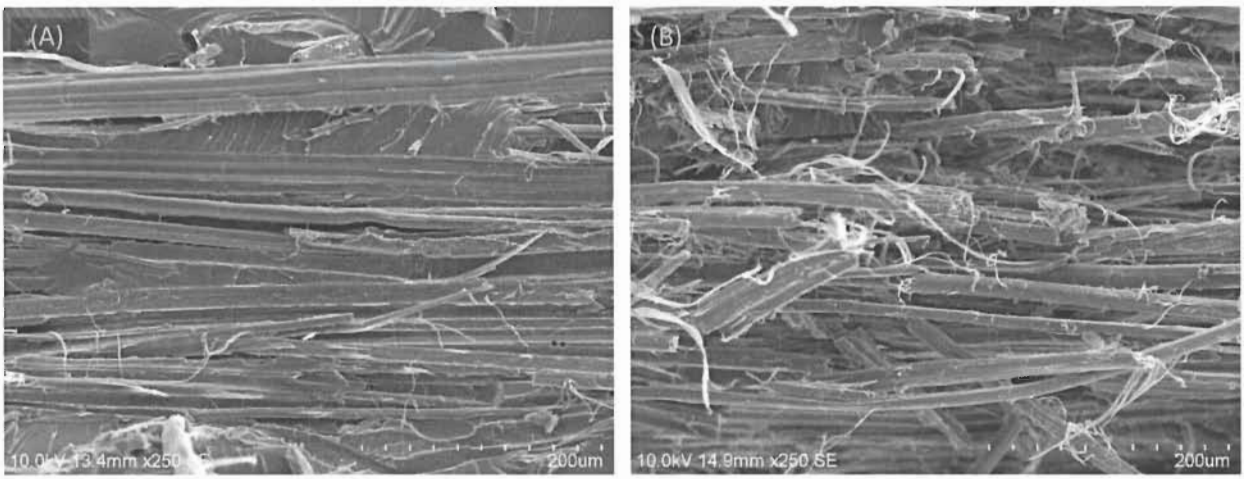


Figure 38. Micrographie (250X) des faciès de rupture des composites testés en traction dans le sens transversal : (A) UDM0-10 et (B) UDM400-10-800.

4.4. Effet du traitement de fibrillation sur la perméabilité des renforts

La Figure 39 montre les résultats d'essais de perméabilité, obtenus selon la méthode décrite à la Section 3.3.3, dans les directions longitudinale (K_x) et transversale (K_y) des renforts mats et UD lin-mat non-fibrillés et fibrillés à 400 tours avec des fibres de 10 mm de longueur et une vitesse de fibrillation de 800 tours/min. Pour les renforts non-fibrillés, les résultats des essais de perméabilité sont proches de ceux obtenus par Habibi et coll. [51] et Mbakop et coll. [38] portant sur le même type de renfort. La figure montre que la fibrillation engendre une diminution de la perméabilité pour les mats. Pour les renforts UD lin/mat lin, la perméabilité dans la direction longitudinale est diminuée tandis que celle dans la direction transversale reste inchangée. Cette variation de la perméabilité fut remarquée durant le moulage par RTM où le temps d'injection des plaques à fibres fibrillées excédait celui des fibres non-traitées. Ces résultats expliquent partiellement ceux obtenus pour les essais de tractions sur les renforts mats. La diminution de la perméabilité observée suggère une modification de la géométrie du réseau d'écoulement par la présence des microfibrilles, donc une augmentation de l'accrochage entre les fibres courtes de lin.

La Figure 40 montre des micrographies des renforts mat non-fibrillés et fibrillés à 400 tours. Pour des grossissements de 50X, on remarque que le réseau de fibres devient plus encombré par la fibrillation. Les microfibres libérées en surface s'accrochent entre elles, réduisant ainsi l'écoulement de la résine entre les fibres courtes ce qui engendre une diminution de la perméabilité. Ces observations microscopiques valident l'efficacité du traitement de fibrillation dans l'amélioration de l'accrochage. Pour les renforts UD lin/mat lin, la fibrillation n'affecte pas de manière significative la perméabilité. La vitesse d'écoulement de la résine entre les fibres UD diminue légèrement due à la modification de la couche mat mais cette diminution reste négligeable et n'affecte pas le moulage des composites à renforts UD lin/mat lin fibrillés.

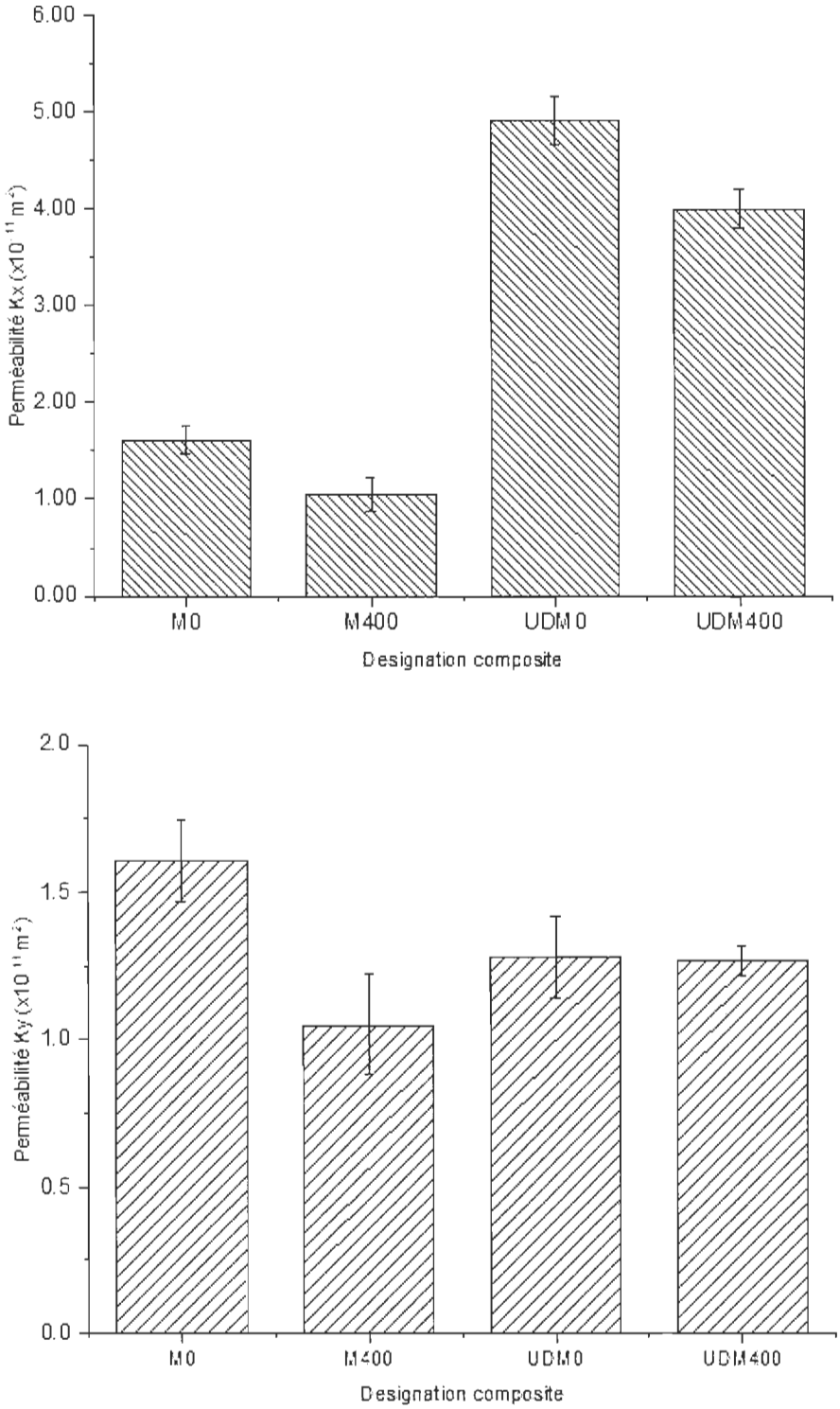


Figure 39. Effet de la fibrillation sur la perméabilité (vitesse de fibrillation : 800 tours/min, longueur des fibres courtes : 10 mm).

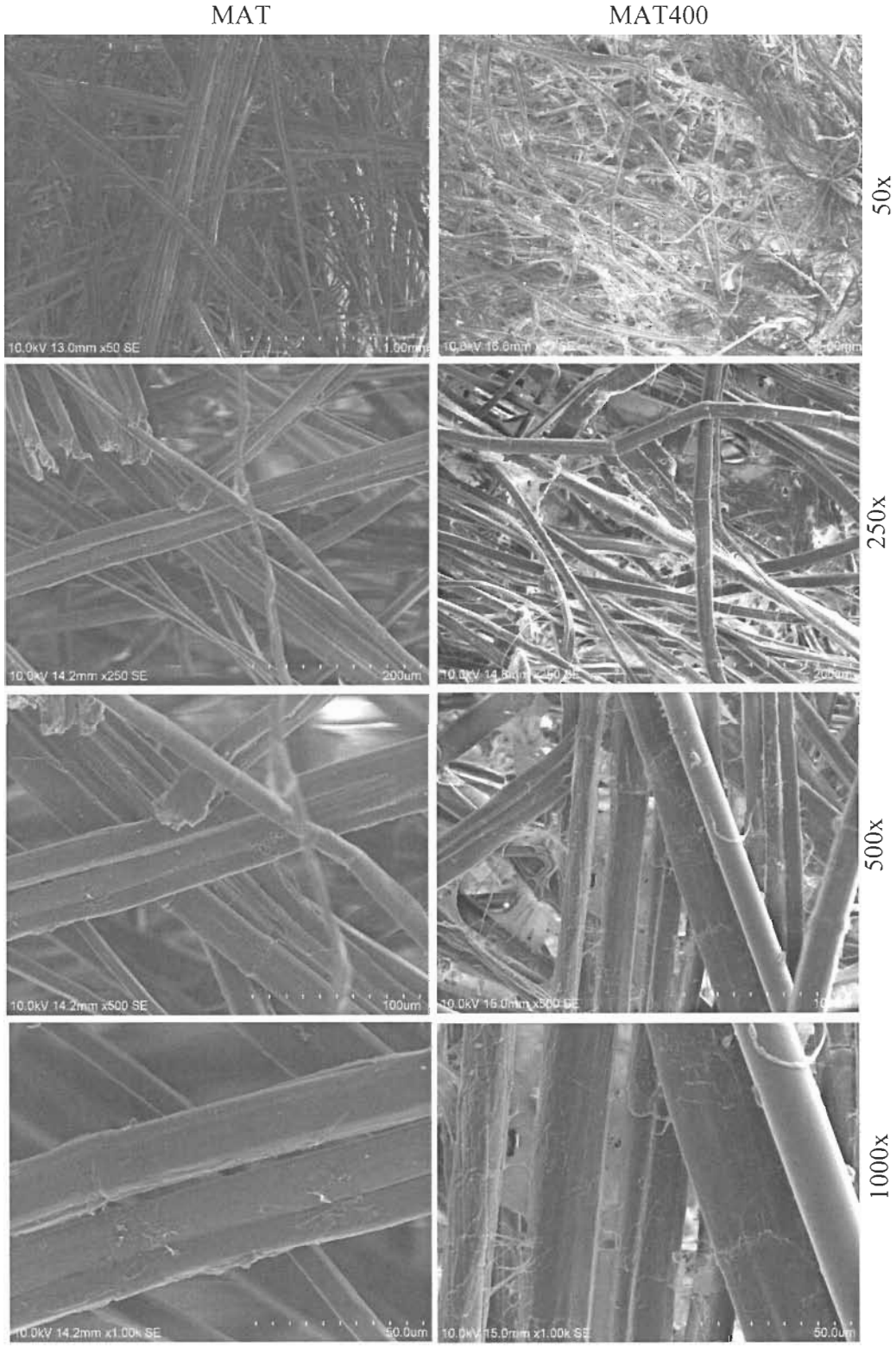


Figure 40. Micrographies au MEB des renforts MAT0 et MAT400, pour des grossissements variants de 50 à 1000X.

CHAPITRE 5 : CONCLUSION

5.1. Récapitulatif des résultats obtenus

L'objectif de l'étude était de déterminer l'efficacité du procédé de fibrillation dans l'amélioration de l'interface fibre-matrice dans les composites faits des renforts hybrides UD de lin à liant mat. Dans le chapitre 4, on a démontré que bien que le traitement de fibrillation soit favorable pour ce type de renforts hybrides, cette modification vient avec certaines limites. Au début, les microscopies optiques des fibres fibrillées ont montré la libération des microfibrilles à la surface suite au traitement. Un raffinage excessif engendre le détachement complet des microfibrilles et la détérioration de la structure. On a également démontré que pour les renforts mat, une amélioration de la résistance en traction est obtenue jusqu'à une fibrillation de 500 tours au PFI et une amélioration de la déformation à la rupture pour une fibrillation jusqu'à 1000 tours. Il fut démontré qu'au-delà de ces valeurs les propriétés mécaniques se dégradent. Des micrographies au MEB montrent qu'une détérioration de la structure de la fibre est à l'origine de cette dégradation.

L'effet du traitement de fibrillation a été également étudié pour les renforts hybrides. Il fut déterminé que, pour la fibrillation, l'augmentation de la longueur des fibres courtes constituant le liant mat de 5 mm à 10 mm engendre une légère amélioration au niveau de propriétés mécaniques. Aussi, les composites à renforts dont les fibres courtes ont été traités à faible vitesse de fibrillation (800 tours/min) présentaient de meilleurs résultats. Les valeurs optimales en résistance ont été obtenues pour un taux de fibrillation de 400 tours au PFI et une vitesse de fibrillation de 800 tours/min avec un module qui n'a pas été affecté. Au-delà de cette valeur, on observe le même comportement que les composites à renforts mat, soit une détérioration des fibres suivie d'une diminution des propriétés en traction longitudinales. Des essais de traction dans le sens transversal n'ont pas démontré d'effet notable de la fibrillation sur les renforts hybrides. Il fut cependant observé que pour les UD-lin/mat, la fibrillation améliore la déformation maximale à la rupture mais ne dépasse pas les déformations à la rupture des constituants individuels fibre et matrice. La torsion des fils de lin utilisés dans la fabrication des couches UD est probablement à l'origine de ce phénomène compte tenu des modèles micromécaniques des CFN.

La perméabilité des renforts UD lin/mat lin et mat seul a été étudiée. Le résultat des calculs, appuyés par des micrographies au MEB montrant la structure des renforts, a démontré que la fibrillation engendre une diminution de la perméabilité des renforts mat. Cette diminution est due à l'augmentation de nombre de microfibrilles libérées à la surface des fibres, ce qui affecte la structure du réseau fibreux en rendant plus difficile l'écoulement de la résine. La nouvelle structure augmente l'accrochage entre les fibres et par suite, réduit la taille des pores du réseau fibreux. Pour les renforts UD à liant mat, la perméabilité dans la direction des fibres (K_x) diminue légèrement. Elle dépend essentiellement de la porosité du liant mat. Pour Ky, elle reste presque inchangée. Cette variation de perméabilité n'affecte pas la qualité des plaques fabriquées, mais augmente la durée de moulage (pour les composites à renforts mat seulement).

5.2. Travaux futurs

La fibrillation est un traitement mécanique qui non seulement peut augmenter l'accrochage fibres-matrice pour compenser la faible interface fibres-matrice, mais en plus les microfibrilles créées en surface des fibres augmentent le nombre de sites réactionnels à la surface pour permettre éventuellement de rendre plus efficaces les traitements de surface décrits au Chapitre 2. Ce qui suggère que ce type de traitement peut être jumelé avec, notamment, un traitement chimique de surface. Dans le Chapitre 2, on a présenté des études qui combinaient les traitements chimiques avec les traitements mécaniques. Par exemple, la fibrillation pourrait possiblement être combinée à un traitement de chimie-clic afin d'augmenter non seulement l'accrochage entre les fibres mais aussi le nombre de sites réactionnels pour multiplier la création des liens chimiques désirés.

D'autres essais mécaniques que ceux présentés dans le Chapitre 1 peuvent être mis de l'avant pour mieux caractériser l'efficacité du procédé de fibrillation. Par exemple, on a observé une augmentation de la déformation à la rupture des mats pour les essais de traction. Ce qui suggère une augmentation de l'énergie de rupture et par suite une amélioration possible en termes d'énergie d'impact. La fibrillation pourrait donc être étudiée avec ce type d'essai.

LISTE DES RÉFÉRENCES

1. Lotfi, A., et al., *Natural fiber–reinforced composites: A review on material, manufacturing, and machinability.* Journal of Thermoplastic Composite Materials, 2019. p. 34
2. Stokke, D, *Lignocellulosic Materials*, in *Introduction to Wood and Natural Fiber Composites*. p. 19-59.
3. Kalpakjian, S., S. Schmid, and V. Sekar, *Manufacturing Engineering and Technology*. 2013.
4. Cantwell, W.J. and J. Morton, *The impact resistance of composite materials — a review.* Composites, 1991. **22**(5): p. 347-362.
5. Hulatt, J.A., L.C. Hollaway, and A. Thorne, *A novel advanced polymer composite/concrete structural element.* Proceedings of the Institution of Civil Engineers - Structures and Buildings, 2004. **157**(1): p. 9-17.
6. Christensen, R.M., *Mechanics of Composite Materials*. 2012: Dover Publications.
7. Strong, A.B., *Fundamentals of Composites Manufacturing, Second Edition: Materials, Methods and Applications*. 2008: Society of Manufacturing Engineers.
8. Ngo, T., *Introduction to Composite Materials*. 2020.
9. Bibo, G.A. and P.J. Hogg, *The role of reinforcement architecture on impact damage mechanisms and post-impact compression behaviour.* Journal of Materials Science, 1996. **31**(5): p. 1115-1137.
10. Fangueiro, R., *Fibrous and Composite Materials for Civil Engineering Applications*. 2011.
11. Saba, N., M. Jawaid, and M.T.H. Sultan, *1 - An overview of mechanical and physical testing of composite materials*, in *Mechanical and Physical Testing of Biocomposites, Fibre-Reinforced Composites and Hybrid Composites*, 2019, Woodhead Publishing. p. 1-12.
12. Koruk, H. and G. Genc, *17 - Acoustic and mechanical properties of luffa fiber-reinforced biocomposites*, in *Mechanical and Physical Testing of Biocomposites, Fibre-Reinforced Composites and Hybrid Composites*, 2019, Woodhead Publishing. p. 325-341.
13. Ouarhim, W., et al., *3 - Mechanical performance of natural fibers–based thermosetting composites*, in *Mechanical and Physical Testing of Biocomposites, Fibre-Reinforced Composites and Hybrid Composites*, 2019, Woodhead Publishing. p. 43-60.

14. Kim, J.-K., *Chapter 6 - Interface mechanics and fracture toughness theories*, in *Engineered Interfaces in Fiber Reinforced Composites*, 1998, Elsevier Science Ltd: Oxford. p. 239-277.

15. Zafeiropoulos, N.E., *3 - Engineering the fibre – matrix interface in natural-fibre composites*, in *Properties and Performance of Natural-Fibre Composites*, 2008, Woodhead Publishing. p. 127-162.

16. Lilholt, H. and B.F. Sørensen, *Interfaces between a fibre and its matrix.* IOP Conference Series: Materials Science and Engineering, 2017. **219**: p. 12-30.

17. Deng, S., et al., *Evaluation of fibre tensile strength and fibre/matrix adhesion using single fibre fragmentation tests.* Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 1998. **29**(4): p. 423-434.

18. Herrera-Franco, P.J. and L.T. Drzal, *Comparison of methods for the measurement of fibre/matrix adhesion in composites.* Composites, 1992. **23**(1): p. 2-27.

19. Madhukar, M.S. and L.T. Drzal, *Fiber-Matrix Adhesion and Its Effect on Composite Mechanical Properties: I. Inplane and Interlaminar Shear Behavior of Graphite/Epoxy Composites.* Journal of Composite Materials, 1991. **25**(8): p. 932-957.

20. Mukhopadhyay, S., et al., *A study of interface behavior in sisal fibre composites - Single fibre pull out test.* Indian Journal of Fibre and Textile Research, 2013. **38**(1): p. 87-91.

21. Huber, T., U. Biedermann, and J. Müssig, *Enhancing the fibre matrix adhesion of natural fibre reinforced polypropylene by electron radiation analyzed with the single fibre fragmentation test.* Composite Interfaces, 2010. **17**(4): p. 371-381.

22. Huber, T. and J. Müssig, *Fibre matrix adhesion of natural fibres cotton, flax and hemp in polymeric matrices analyzed with the single fibre fragmentation test.* Composite Interfaces, 2008. **15**(2-3): p. 335-349.

23. Zhandarov, S. and E. Mäder, *Characterization of fiber/matrix interface strength: applicability of different tests, approaches and parameters.* Composites Science and Technology, 2005. **65**(1): p. 149-160.

24. Broutman, L.J., *Measurement of the Fiber-Polymer Matrix Interfacial Strength.* 1969, ASTM International: West Conshohocken, PA. p. 27-41.

25. Zhang, J., *Different surface treatments of carbon fibers and their influence on the interfacial properties of carbon fiber/epoxy composites.* 2012.

26. Kelly, A. and W.R. Tyson, *Tensile properties of fibre-reinforced metals: Copper/tungsten and copper/molybdenum.* Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 1965. **13**(6): p. 329-350.

27. Drissi-Habti, M., K. Nakano, and K. Suzuki, *Microindentation tests as a tool for the estimate of mechanical properties and the modeling of the interfacial behavior of ceramic matrix composites.* Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 1999. **30**(4): p. 471-475.

28. Daniel, I.M. and O. Ishai, *Engineering mechanics of composite materials*. 2nd ed, 2006, New York: Oxford University Press.

29. Jones, D., et al., *2 - Chemical compositions of natural fibres*, in *Advanced High Strength Natural Fibre Composites in Construction*, 2017, Woodhead Publishing. p. 23-58.

30. Suriani, M.J., et al., *Aspect of fatigue analysis of composite materials: A review.* Pertanika Journal of Science and Technology, 2013. **21**(1): p. 1-14.

31. Bussetta, P. and N. Correia, *Numerical forming of continuous fibre reinforced composite material: A review.* Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2018. **113**: p. 12-31.

32. Bouvet, C., *Dimensionnement des structures composites : applications à l'aéronautique*. 2018, London UK: ISTE Editions Ltd. 315 pages.

33. Metrycki, B., *Promoting Canadian flax globally.* INFORM - International News on Fats, Oils and Related Materials, 2004. **15**(2): p. 124-126.

34. Ulrich, A., *Flax Canada 2015: Going beyond the status Quo*, in *Textiles For Sustainable Development*. 2007. p. 413-419.

35. Baltazar-Y-Jimenez, A. and M. Sain, *Natural fibres for automotive applications*, in *Handbook of Natural Fibres*. 2012. p. 219-253.

36. Fogorasi, M.S. and I. Barbu. *The potential of natural fibres for automotive sector - Review*. in *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*. 2017.

37. Gassan, J., *Natural Fibres in Automotive Interiors.* Kunststoffe Plast Europe, 2003. **93**(8): p. 31-34.

38. Mbakop, R.S., G. Lebrun, and F. Brouillette, *Effect of compaction parameters on preform permeability and mechanical properties of unidirectional flax fiber composites.* Composites Part B: Engineering, 2019. **176**.

39. *Flax council of Canada.*

40. Ramesh, M., *Flax (Linum usitatissimum L.) fibre reinforced polymer composite materials: A review on preparation, properties and prospects.* Progress in Materials Science, 2019. **102**: p. 109-166.

41. Baley, C., et al., *Specific features of flax fibres used to manufacture composite materials.* International Journal of Material Forming, 2019. **12**(6): p. 1023-1052.

42. Foulk, J.A., D.E. Akin, and R.B. Dodd, *New low cost flax fibers for composites.* SAE Technical Papers, 2000.

43. Charlet, K., et al., *Characteristics of Hermès flax fibres as a function of their location in the stem and properties of the derived unidirectional composites.* Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2007. **38**(8): p. 1912-1921.

44. Roudier, A., et al., *Characterization of biochemical and hygroscopic properties of flax fibres.* 2012.

45. Sai Shravan Kumar, P. and K. Viswanath Allamraju, *A Review Of Natural Fiber Composites [Jute, Sisal, Kenaf].* Materials Today: Proceedings, 2019. **18**: p. 2556-2562.

46. Habibi, M., et al., *Combining short flax fiber mats and unidirectional flax yarns for composite applications: Effect of short flax fibers on biaxial mechanical properties and damage behaviour.* Composites Part B: Engineering, 2017. **123**: p. 165-178.

47. Couture, A., G. Lebrun, and L. Laperrière, *Mechanical properties of polylactic acid (PLA) composites reinforced with unidirectional flax and flax-paper layers.* Composite Structures, 2016. **154**: p. 286-295.

48. Ameri, E., L. Laperrière, and G. Lebrun, *Mechanical characterization and optimization of a new unidirectional flax/paper/epoxy composite.* Composites Part B: Engineering, 2016. **97**: p. 282-291.

49. Mbakop, R.S., G. Lebrun, and F. Brouillette, *Experimental analysis of the planar compaction and preforming of unidirectional flax reinforcements using a thin paper or flax mat as binder for the UD fibers.* Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2018. **109**: p. 604-614.

50. Habibi, M., G. Lebrun, and L. Laperrière, *Experimental characterization of short flax fiber mat composites: tensile and flexural properties and damage analysis using acoustic emission.* Journal of Materials Science, 2017. **52**(11): p. 6567-6580.

51. Habibi, M., et al., *Experimental investigation of the effect of short flax fibers on the permeability behavior of a new unidirectional flax/paper composite.* Fibers, 2016. **4**(3).

52. Ameri, E., G. Lebrun, and L. Laperrière, *In-plane permeability characterization of a unidirectional flax/paper reinforcement for liquid composite molding processes.* Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2016. **85**: p. 52-64.

53. Bledzki, A.K., S. Reihmane, and J. Gassan, *Properties and modification methods for vegetable fibers for natural fiber composites.* Journal of Applied Polymer Science, 1996. **59**(8): p. 1329-1336.

54. Ridzuan, M.J.M., et al., *Characterisation of natural cellulosic fibre from Pennisetum purpureum stem as potential reinforcement of polymer composites.* Materials & Design, 2016. **89**: p. 839-847.

55. Fu, S.-Y., et al., *Effects of particle size, particle/matrix interface adhesion and particle loading on mechanical properties of particulate–polymer composites.* Composites Part B: Engineering, 2008. **39**(6): p. 933-961.

56. Dhanasekaran, S., G. Srinath, and M. Sathyaprasad, *Structure, Mechanical behavior and Pre-treatment of Natural fiber composites-A review.* SAE Technical Papers, 2008.

57. Edeerozey, A.M.M., et al., *Chemical modification of kenaf fibers.* Materials Letters, 2007. **61**(10): p. 2023-2025.

58. Mohammed, L., et al., *A Review on Natural Fiber Reinforced Polymer Composite and Its Applications.* International Journal of Polymer Science, 2015.

59. Brodowsky, H.M. *Natural fiber composites with encymatically enhanced fibre matrix adhesion.* in *ECCM 2018 - 18th European Conference on Composite Materials*. 2020.

60. Balaji K.V., et al., *Surface treatment of Basalt fiber for use in automotive composites.* Materials Today Chemistry, 2020. **17**

61. Gassan, J. and A.K. Bledzki, *Influence of fiber surface treatment on the creep behavior of jute fiber-reinforced polypropylene.* Journal of Thermoplastic Composite Materials, 1999. **12**(5): p. 388-398.

62. Sayeed, M.M.A. and A. Paharia, *Optimisation of the surface treatment of jute fibres for natural fibre reinforced polymer composites using Weibull analysis.* Journal of the Textile Institute, 2019. **110**(11): p. 1588-1595.

63. Xu, C., et al., *Mechanical properties of surface-treated ramie fiber fabric/epoxy resin composite fabricated by vacuum-assisted resin infusion molding with hot compaction.* Journal of Composite Materials, 2016. **50**(9): p. 1189-1198.

64. Chandrasekar, M., et al., *A review on the characterisation of natural fibres and their composites after alkali treatment and water absorption.* Plastics, Rubber and Composites, 2017. **46**(3): p. 119-136.

65. Hu, C., et al., *Effect of fiber modified by alkali/polyvinyl alcohol coating treatment on properties of sisal fiber plastic composites.* Journal of Reinforced Plastics and Composites, 2020. **39**(23-24): p. 880-889.

66. Ishikawa, H., et al., *Effect of surface treatments on the mechanical properties of natural fiber textile composites made by VaRTM method.* Composite Interfaces, 2014. **21**(4): p. 329-336.

67. Tayfun, U., M. Dogan, and E. Bayramli, *Investigations of the flax fiber/thermoplastic polyurethane eco-composites: Influence of isocyanate modification of flax fiber surface.* Polymer Composites, 2017. **38**(12): p. 2874-2880.

68. Wang, W., A. Lowe, and S. Kalyanasundaram, *Effect of chemical treatments on flax fibre reinforced polypropylene composites on tensile and dome forming behaviour.* International Journal of Molecular Sciences, 2015. **16**(3): p. 6202-6216.

69. Wang, H., et al., *Mechanical and Interfacial Properties of Flax Fiber-reinforced Plastic Composites Based on a Chemical Modification Method.* Fibers and Polymers, 2020. **21**(7): p. 1498-1507.

70. Huner, U., *Effect of Chemical Surface Treatment on Flax-Reinforced Epoxy Composite.* Journal of Natural Fibers, 2018. **15**(6): p. 808-821.

71. Gassan, J. and V.S. Gutowski, *Effects of corona discharge and UV treatment on the properties of jute-fibre expoxy composites.* Composites Science and Technology, 2000. **60**(15): p. 2857-2863.

72. Belgacem, M.N., P. Bataille, and S. Sapieha, *Effect of corona modification on the mechanical properties of polypropylene/cellulose composites.* Journal of Applied Polymer Science, 1994. **53**(4): p. 379-385.

73. Mukhopadhyay, S. and R. Fangueiro, *Physical modification of natural fibers and thermoplastic films for composites - A review.* Journal of Thermoplastic Composite Materials, 2009. **22**(2): p. 135-162.

74. Seki, Y., et al., *The influence of oxygen plasma treatment of jute fibre reinforced thermoplastic composites.* Proceedings 5th International Advanced Technologies Symposium (IATS'09), 2009: p. 1-4.

75. Sever, K., et al., *Oxygen plasma treatments of jute fibers in improving the mechanical properties of jute/HDPE composites.* Materials Chemistry and Physics, 2011. **129**(1): p. 275-280.

76. Enciso, B., J. Abenojar, and M.A. Martínez, *Influence of plasma treatment on the adhesion between a polymeric matrix and natural fibres.* Cellulose, 2017. **24**(4): p. 1791-1801.

77. Akdim, R., *Approche théorique du procédé de raffinage des fibres*. 2014, Trois-Rivières: Université du Québec à Trois-Rivières.

78. Hodzic, A. and R. Shanks, *Natural Fibre Composites Materials, Processes and Properties*. 2013.

79. Dienes, D., et al., *Improving the capability of the Schopper–Riegler freeness measurement.* Measurement, 2005. **38**(3): p. 194-203.

80. Kitaoka, T., et al., *TAPPI Test Methods, T227 om-94, 1997.* 2001. **57**(7): p. 212-219.

81. Bajpai, P., *Chapter 1 - Refining and Pulp Characterization*, in *Biermann's Handbook of Pulp and Paper (Third Edition)*, P. Bajpai, Editor. 2018, Elsevier. p. 1-34.

82. Sheet, T.D., *Freeness Scale Interconversion.* 1945.

83. Gu, F., et al., *Water retention value for characterizing fibrillation degree of cellulosic fibers at micro and nanometer scales.* Cellulose, 2018. **25**(5): p. 2861-2871.

84. Kord, B., *Effect of Refining Intensity on Pulp and Paper Properties Made of Eucalyptus Camaldulensis Wood.*

85. Motamedian, H.R., A.E. Halilovic, and A. Kulachenko, *Mechanisms of strength and stiffness improvement of paper after PFI refining with a focus on the effect of fines.* Cellulose, 2019. **26**(6): p. 4099-4124.

86. Sain, M. and D. Fortier, *Flax shives refining, chemical modification and hydrophobisation for paper production.* Industrial Crops and Products, 2002. **15**(1): p. 1-13.

87. Sain, M., D. Fortier, and E. Lampron, *Chemi-refiner mechanical pulping of flax shives: refining energy and fiber properties.* Bioresource Technology, 2002. **81**(3): p. 193-200.

88. Venkatachalam, N., et al., *Effect of Pretreatment Methods on Properties of Natural Fiber Composites: A Review.* Polymers and Polymer Composites, 2016. **24**(7): p. 555-566.

89. Senthilkumar, T., et al., *Fibrillation of Coconut Fibers by Mechanical Refining to Enhance Its Reinforcing Potential in Epoxy Composites.* Fibers and Polymers, 2020. **21**(9): p. 2111-2117.

90. Sanchez-Echeverri, L.A., et al., *Mechanical refining combined with chemical treatment for the processing of Bamboo fibres to produce efficient cement composites.* Construction and Building Materials, 2021. **269**.

91. Khakalo, A., et al., *Mechanically-induced dimensional extensibility of fibers towards tough fiber networks.* Cellulose, 2017. **24**(1): p. 191-205.

92. Vengalrao, K., et al., *An Investigation on the Quality of the Laminates Produced by VARTM Process and Process parameters.* Materials Today: Proceedings, 2017. **4**(8): p. 9196-9202.

93. Harper, A., *RTM – past, present and future.* Reinforced Plastics, 2009. **53**(8): p. 30-33.

94. Asim, M., et al., *1 - Processing of hybrid polymer composites—a review*, in *Hybrid Polymer Composite Materials*, 2017, Woodhead Publishing. p. 1-22.

95. Leong, Y.W., et al., *8 - Compression and injection molding techniques for natural fiber composites*, in *Natural Fibre Composites*, Woodhead Publishing. p. 216-232.

96. Erden, S. and K. Ho, *3 - Fiber reinforced composites*, in *Fiber Technology for Fiber-Reinforced Composites*, M.Ö. Seydibeyoğlu, 2017, Woodhead Publishing. p. 51-79.

97. Laurenzi, S. and M. Marchetti, *Advanced Composite Materials by Resin Transfer Molding for Aerospace Applications*. 2012.

98. Popham, N., *8 - Resin infusion for the manufacture of large composite structures*, in *Marine Composites*, 2019, Woodhead Publishing. p. 227-268.

99. Pantaloni, D., et al., *A review of permeability and flow simulation for liquid composite moulding of plant fibre composites.* Materials, 2020. **13**(21): p. 1-23.

100. Umer, R., S. Bickerton, and A. Fernyhough, *The effect of yarn length and diameter on permeability and compaction response of flax fibre mats.* Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2011. **42**(7): p. 723-732.

101. Zhou, F., J. Alms, and S.G. Advani, *A closed form solution for flow in dual scale fibrous porous media under constant injection pressure conditions.* Composites Science and Technology, 2008. **68**(3): p. 699-708.

102. Leclerc, J.S. and E. Ruiz, *Porosity reduction using optimized flow velocity in Resin Transfer Molding.* Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2008. **39**(12): p. 1859-1868.

103. D, A., *Standard test method for tensile properties of polymer matrix composite materials.* American Society of Testing and Materials: West Conshohocken, PA, 2000.

104. Michaud, V., *14 - Permeability properties of composite reinforcements*, in *Composite Reinforcements for Optimum Performance (Second Edition)*, 2021, Woodhead Publishing. p. 443-472.

105. Weitzenböck, J.R., R.A. Shenoi, and P.A. Wilson, *Radial flow permeability measurement. Part A: Theory.* Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 1999. **30**(6): p. 781-796.

106. Daniel, I.M.I.O., *Engineering mechanics of composite materials*. 2006, New York: Oxford University Press.

107. Tham, M.W., et al., *Tensile properties prediction of natural fibre composites using rule of mixtures: A review.* Journal of Reinforced Plastics and Composites, 2019. **38**(5): p. 211-248.

108. Shah, D.U., P.J. Schubel, and M.J. Clifford, *Modelling the effect of yarn twist on the tensile strength of unidirectional plant fibre yarn composites.* Journal of Composite Materials, 2013. **47**(4): p. 425-436.

109. Nelson, J., R. Bucinell, and D. Walczyk, *Characterization of Natural Fiber Material Property Variability*. 2019.

ANNEXE A : Difficultés dans la fabrication des renforts

L'une des difficultés rencontrées lors de la fabrication des renforts est la formation d'agglomérats. Ces agglomérats, dans le cas où ils ne bouchent pas la buse d'injection, engendrent des obstacles pour l'écoulements de la résine, d'où une diminution significative de la perméabilité et des défauts de moulage dans la plaque finale. La Figure A.1 montre un renfort manqué présentant des défauts de distribution des fibres. Ces renforts sont rejetés et éliminés de l'étude.

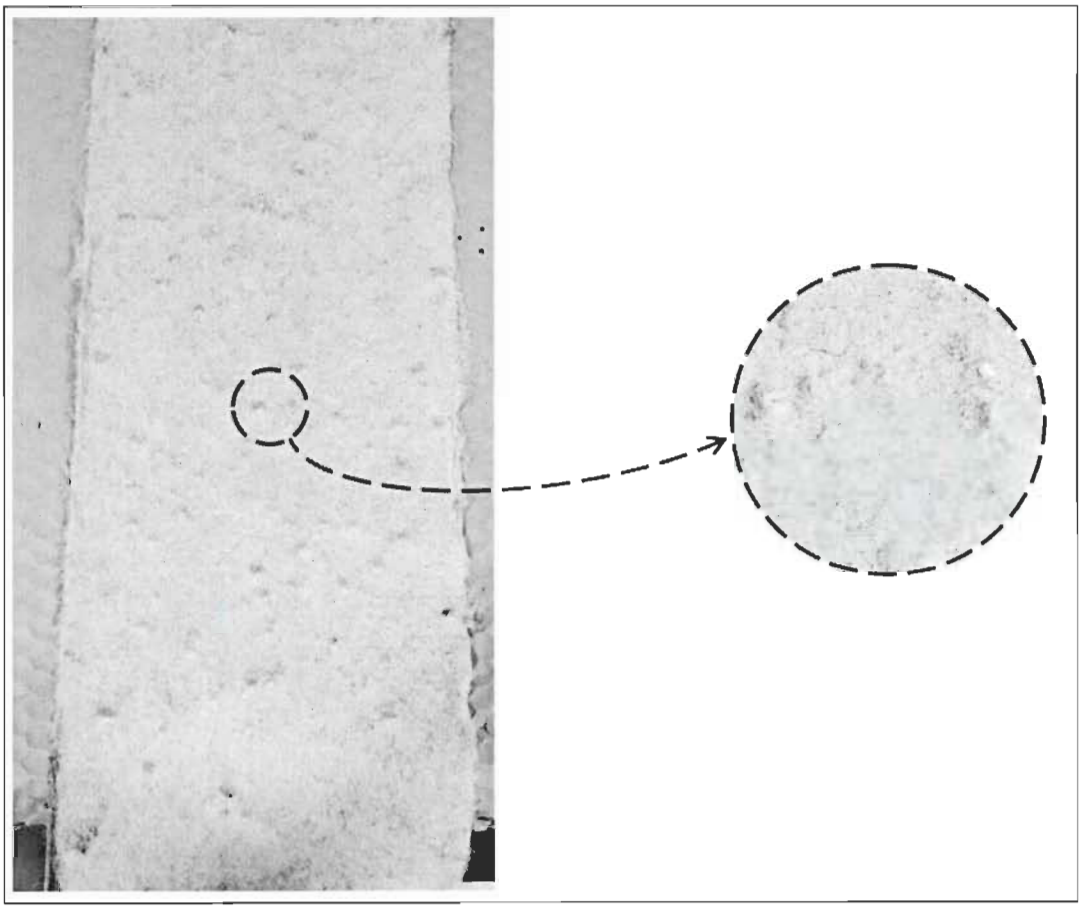


Figure A.1. Renfort mat lin présentant un défaut de fabrication avec une vue agrandie de ce dernier.

ANNEXE B : Fiche technique de la résine Marine 820 avec durcisseur 824

La Figure B.1 présente les caractéristiques de la résine Marine 820 testés avec différents durcisseurs et fourni par le manufacturier.

TYPICAL HANDLING CHARACTERISTICS @ 77°F (25°C)				
Test	**Test Method**	**820/822**	**820/823**	**820/824**
Mix Ratio	By Weight	100R:18H	100R.18H	100R:18H
Mix Ratio	By Volume	5R.1H	5R.1H	5R:1H
Mixed Viscosity	Brookfield	650 cps	350 cps	425 cps
Pot Life (236 gram mass)	Minutes	25-30	40-45	50-60
Specific Gravity	g/cc	1.10	1.10	1.09
Demold Time	Hours	24	24	24
V.O.C.	g/L	0 g/L	0 g/L	0 g/L
Color		Pale Amber	Pale Amber	Pale Amber
Minimum Cure Schedule	Hours	24	24	24
Complete Cure Schedule	Days	7	7	7
Shelf Life / D.O.M.		2 years	2 years	2 years
Tensile Strength	ASTM D-638.946	25,514psi (174MPa)	24,700psi (170MPa)	45,000psi (310MPa)
*Tensile Elongation	ASTM D-638.946	2%	3%	2%
Tensile Modulus	ASTM D-638.946	1,950,000psi (13,445MPa)	1,930,000psi (13,307MPa)	3,000,000psi (20,684MPa)
Flexural Strength	ASTM D-790.92	26,250psi (181MPa)	28,522psi (197MPa)	45,000psi (310MPa)
Flexural Modulus	ASTM D-790.92	1,840,000psi (12,686MPa)	1,650,000psi (11,376Mpa)	2,200,000psi (15,168MPa)
*Compressive Strength	ASTM D-695.91	8,343psi (58MPa)	8,100psi (56Mpa)	8,400psi (58MPa)
*Compressive Modulus	ASTM D-695.91	170,280psi (1,174MPa)	154,240psi (1,064MPa)	160,000psi (1,103MPa)
*Impact Strength	ASTM D-256.93a	5.52 (in-lbf/in)	4.50 (in-lbf/in)	3.75 (in-lbf/in)
*HDT(@ 66psi)	ASTM D-648.82	180°F (82°C)	180°F (82°C)	161°F (72°C)
*Average Moisture Absorption	ASTM D-570.81	0.17%	0.21%	0.25%

* Physical testing conducted on neat resin only. *HDT testing conducted on neat resin samples post cured 4 hours at 150°F (66°C).

Figure B.1. Fiche technique de la résine Marine 820 (source : Bulletin produit fourni par ADTECH Marine Systems).