

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC

MÉMOIRE PRÉSENTÉ À
L'UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À TROIS-RIVIÈRES

COMME EXIGENCE PARTIELLE
DE LA MAÎTRISE EN INGÉNIERIE
CONCENTRATION GÉNIE MÉCANIQUE

PAR
ADRIEN COUTURE

ÉTUDE COMPARATIVE DES PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES D'UN
ÉCO-COMPOSITE UNIDIRECTIONNEL À BASE DE LIN AVEC ET
SANS FIBRES COURTES

MARS 2015

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.

Résumé

Cette étude présente les résultats de la fabrication et de la caractérisation d'un éco-composite unidirectionnel à base de lin et de papier moulé avec de l'acide polylactique (PLA). Ce projet s'inscrit dans l'objectif du Laboratoire de Mécanique et Éco-Matériaux de l'Université du Québec à Trois-Rivières de concevoir et fabriquer un renfort en lin et papier sur une machine à papier commerciale. L'objectif de cette étude est de caractériser les propriétés mécaniques et thermiques d'un composite en lin, papier et PLA et d'évaluer l'impact de la couche de papier sur ces propriétés.

Une méthodologie de fabrication des renforts fut élaborée afin de les fabriquer en laboratoire à l'aide d'une machine à aligner des fils, une formette dynamique, une presse à rouleaux et un séchoir à bande. Les renforts en lin avec et sans papiers ont ensuite été moulés sous forme de pré-imprégnés puis en plaque de composite à l'aide d'une presse du Bioproducts Discovery and Development Center (BDDC) de l'université de Guelph en Ontario. Ces plaques ont ensuite été découpées en échantillons et soumises à des essais de traction, flexion, et impact puis caractérisées thermiquement à l'aide de la calorimétrie différentielle à balayage, de l'analyse mécanique dynamique et par analyse thermogravimétrique. Des observations au microscope ont aussi permis d'évaluer la répartition des constituants dans les composites.

Les résultats démontrent que les composites en PLA & Lin et PLA & Lin & Papier ont des propriétés mécaniques spécifiques similaires à celle d'un composite à fibre de verre tissé et époxy. Soumis aux essais de flexion sur éprouvette courte, les deux composites ne démontrent aucun signe de délaminage et les micrographies montrent une bonne imprégnation des fibres de lin et de papier. La couche de papier a parfois un effet positif sur la réduction de la variabilité des propriétés mécaniques, par exemple dans les tests de résistance à l'impact. Parfois elle a au contraire un effet négatif, par exemple dans les tests de flexion. Les deux formulations ont un schéma de dégradation thermique similaire et une résistance à la flexion sous une charge thermique comparable à celle d'un composite à fibre de verre et polypropylène.

Remerciements

Je souhaite tout d'abord remercier mon directeur de recherche, Pr. Luc Laperrière et mon co-directeur, Pr. Gilbert Lebrun pour avoir su éveiller mon intérêt pour la recherche, pour m'avoir conseillé, encadré et permis de participer à ce projet aussi enrichissant que formateur.

Je remercie également les professeurs Amar K. Mohanty et Manjusri Misra et l'étudiant au doctorat Rajendran Muthuraj de l'université de Guelph pour leur accueil chaleureux au sein de leurs laboratoire.

Je remercie aussi le professionnel de laboratoire Jonathan St-Arnaud et le technicien Dany Lemay, du département de génie mécanique de l'UQTR, pour leur aide et leur disponibilité et mes collègues Mohamed Habibi et Ehsan Ameri pour leur collaboration et entraide.

Finalement, je tiens à souligner toutes les marques d'encouragement et de support, dont m'on témoigné ma famille, mes amis et mon amoureuse.

Table des matières

Résumé	I
Remerciements	III
Liste des tableaux	VIII
Liste des figures	IX
Liste des abréviations et symboles	XI
Liste des équations	XII
Chapitre 1 - Introduction et revue de la littérature	1
1.1 Introduction	1
1.2 Revue de la littérature scientifique	6
1.2.1 Fibre de lin	6
1.2.1.1 Description botanique	6
1.2.1.2 Production	6
1.2.1.2.1 Croissance de la plante	6
1.2.1.2.2 Rouissage	7
1.2.1.2.3 Teillage	8
1.2.1.2.4 Filature	8
1.2.1.3 Marché	9
1.2.1.4 Caractérisation	11
1.2.1.4.1 Structure et morphologie	11
1.2.1.4.2 Composition chimique	13
1.2.1.4.3 Propriétés physiques et mécaniques	14
1.2.2 Fibre de bois	16
1.2.2.1 Bref historique de l'industrie des pâtes et papiers au Canada	16
1.2.2.2 Production	16
1.2.2.2.1 Pâte mécanique	17
1.2.2.2.2 Pâte chimique	17

1.2.2.3	Marché.....	18
1.2.2.4	Caractérisation	19
1.2.2.4.1	Structure, morphologie et composition chimique	19
1.2.2.4.2	Propriétés physiques et mécaniques	20
1.2.3	Acide polylactique	21
1.2.3.1	Production	21
1.2.3.2	Marché.....	21
1.2.3.3	Caractérisation	22
1.2.3.4	Propriétés physiques, thermiques et mécaniques	22
1.3	Matériaux composites	22
1.3.1	Composites en lin et PLA	23
1.3.2	Composites en lin et PP	27
1.3.3	Composites en fibre de bois et PLA ou PP	28
1.4	Positionnement de la recherche	30
Chapitre 2 - Matériel et méthode		31
2.1	Matériel	31
2.1.1	Lin	31
2.1.2	Papier.....	32
2.1.3	PLA	32
2.2	Fabrication du composite	33
2.2.1	Fabrication du renfort	33
2.2.1.1	Alignement des fils de lin	33
2.2.1.2	Formette dynamique.....	35
2.2.1.3	Pressage	39
2.2.1.4	Séchage	40
2.2.1.5	Type de renforts	41
2.2.2	Moulage du composite	42

2.2.2.1	Formation de pré-imprégnés	42
2.2.2.2	Formation du composite	46
2.2.3	Propriétés constitutantes des composites	48
2.3	Essais mécaniques et préparation des échantillons	50
2.3.1	Essais de traction	50
2.3.2	Essais de flexion	51
2.3.3	Essais de flexion sur appuis rapprochés – résistance au cisaillement.....	53
2.3.4	Essais d'impact	54
2.3.5	Analyse différentielle à balayage (DSC).....	55
2.3.6	Analyse thermogravimétrique (TGA)	56
2.3.7	Température de déflexion sous charge (HDT)	57
2.3.8	Microscopie	58
2.4	Plan d'expérience	59
Chapitre 3 - Résultats	61
3.1	Propriétés mécaniques	61
3.1.1	Propriétés en traction	61
3.1.1.1	Courbes de tractions	61
3.1.1.2	Contraintes et modules de traction	65
3.1.1.3	Comparaison des propriétés en traction avec les résultats de la revue de littérature sur les composites PLA/lin et PLA/papier .	69
3.1.1.4	Comparaison des propriétés en traction avec les résultats antérieurs d'un composite lin/lin-papier et époxy.	71
3.1.1.5	Analyse statistique.....	75
3.1.1.6	Comparaison des propriétés spécifiques en traction	77
3.1.2	Propriétés en flexion.....	82
3.1.3	Propriétés en flexion – éprouvettes courtes	84

3.1.4	Propriétés à l'impact.....	87
3.2	Propriétés thermiques.....	90
3.2.1	DSC.....	90
3.2.2	TGA.....	91
3.2.3	TDC.....	92
Chapitre 4	- Conclusions.....	94
4.1	Retour sur les objectifs	94
4.2	Recommandations.....	96
	Références.....	97
	Annexe A - Procédure pour formette dynamique	103
	Annexe B - Procédure de pressage des renforts	104
	Annexe C - Micrographies.....	105
	Annexe D - Calculs des taux de cristallinité	108
	Annexe E : Plan de découpe des échantillons en traction.....	109
	Annexe F: Analyses statistiques	111

Liste des tableaux

Tableau 1: Composition chimique de la fibre de lin, en pourcentage volumique des constituants.	13
Tableau 2: Propriétés mécaniques de la fibre de lin et du verre type E.	15
Tableau 3: Composition chimique de la pâte kraft, en pourcentage volumique des constituants [34]	20
Tableau 4: Résistance de l'interface fibre/matrice au cisaillement.....	25
Tableau 5: Caractéristiques du lin utilisé	31
Tableau 6: Caractéristiques du PLA utilisé	32
Tableau 7: Types de renforts	41
Tableau 8: Caractéristiques des composites.	48
Tableau 9: Pourcentages massiques et volumiques des composites	49
Tableau 10: Plan d'expérience.....	60
Tableau 11: Résultats des tests d'égalité des variances et moyennes pour les essais en traction	76
Tableau 12: Comparaison des propriétés spécifiques	78
Tableau 13: Comparaison des contraintes ultimes et modules d'élasticité avec ceux tirés de la littérature	80
Tableau 14: Résultats des tests d'égalité des variances et moyennes pour les essais en flexion	84
Tableau 15: Résultats des tests d'égalité des variances et moyennes pour les essais d'impact	89
Tableau 16: Températures et taux de cristallinité	91
Tableau 17: Températures de dégradations et résidus.....	92
Tableau 18: Température de fléchissement.....	93

Liste des figures

Figure 1: Concept de la fabrication d'un renfort en lin et papier.....	3
Figure 2: a) Tige de lin et b) croissance de la plante	7
Figure 3: Ruban de fibres de lin	9
Figure 4: Structure et morphologie de la fibre de lin[14]	12
Figure 5: Bandes observées dans une fibre élémentaire de lin au microscope optique	12
Figure 6: Exemple d'une courbe de traction d'une fibre élémentaire de lin [25]	14
Figure 7: Structure et morphologie de la fibre de bois[32]	19
Figure 8: Montage utilisé pour aligner et préparer la couche de fibres de lin	34
Figure 9: Formette dynamique	35
Figure 10: Installation de la couche de lin dans le tambour rotatif de la formette dynamique	37
Figure 11: Presse à rouleaux	39
Figure 12: Séchoir à bande.....	40
Figure 13: Représentation des étapes de moulages du composite	42
Figure 14: Presse hydraulique	43
Figure 15: Étapes de fabrication des pré-imprégnés	44
Figure 16: Schéma de fabrication des plaques de composite.....	47
Figure 17: Découpage des éprouvettes de traction	51
Figure 18: Table à polir	52
Figure 19: Machine d'impact TMI (www.testingmachines.com)	54
Figure 20: Éprouvettes d'impact (courtes) et éprouvettes de flexion (longues).	55
Figure 21: Appareil DSC Q200 (www.tainstruments.com)	56
Figure 22: Appareil TGA Q500 (www.tainstruments.com)	57
Figure 23: Appareil DMA Q800 (www.tainstruments.com).....	58
Figure 24: Microscope optique.....	59

Figure 25: Courbes de tractions des composites	61
Figure 26: Courbes de tractions du PLA	63
Figure 27: Éprouvettes de traction après rupture.....	64
Figure 28: Contrainte ultime en traction	65
Figure 29: Module initial en traction	66
Figure 30: Module d'élasticité en traction.....	66
Figure 31: Intersection des pentes de E_i et E	68
Figure 32: Micrographie à 50X et 100X du composite PLA & Lin	72
Figure 33: Micrographie à 50X et 200X du composite PLA & Lin & Papier.....	73
Figure 34: Représentation des propriétés en traction de plusieurs composites de lin UD avec différentes résines.	81
Figure 35: Contrainte et module de flexion obtenus pour le PLA seul et les composites PLA-lin-papier et PLA-lin.....	82
Figure 36: Courbes de flexion pour éprouvettes courtes	85
Figure 37: Contrainte de flexion pour éprouvette courte	86
Figure 38: Éprouvettes courtes après essais de flexion.....	87
Figure 39: Éprouvette d'impact du composite PLA & lin & papier après essai..	88
Figure 40: Énergie d'impact	89

Liste des abréviations et symboles

DMA	<i>Dynamic mechanical analysis</i> ou l'analyse mécanique dynamique
DSC	<i>Differential scanning calorimeter</i> ou calorimétrie différentielle à balayage
HDT	<i>Heat deflexion temperature</i> ou température de fléchissement
MEB	Microscope électronique à balayage
PLA	<i>Polylactic Acid</i> ou Acide polylactique
PP	Polypropylène
PID	Proportionnel intégral dérivé
TGA	<i>Thermogravimetric analysis</i> ou analyse thermogravimétrique
TDC	Température de déflexion sous charge
UD	Unidirectionnel
ρ	Masse volumique
σ	Contrainte
ε	Élongation
E	Module d'élasticité
\varnothing	Diamètre

Liste des équations

Eq. (1) $V_f = 100 \cdot \frac{w_f/\rho_f}{(w_m/\rho_m) + \sum(w_f/\rho_f)}$	49
Eq. (2) $R = ZL^2/6d$	52
Eq. (3) $F_{sbs} = 0.75 \times P_{mb} \times h$	53
Eq. (4) $\chi = \Delta H_m/\Delta H_{m0}$	90

Chapitre 1 - Introduction et revue de la littérature

1.1 Introduction

«Composite à Fibres Naturelles». Trois mots remplis de signification. «Composite», un mélange de plusieurs éléments, dont la combinaison surpasse ses constituants, synonyme de performance, de technologie. «Fibre», qui constitue un tissu, qui relie, qui soutien. «Naturel», qui appartient à la nature, synonyme de propreté, de pureté. L'assemblage de ces trois mots est le témoignage de notre désir d'innover et de progresser. Innover afin de rendre plus solide, plus léger, plus accessible, plus durable. Progresser afin d'équilibrer, de tempérer, d'humaniser. Ainsi, le développement des composites se veut une action écologique, économique et technologique. Motivé par des contraintes environnementales de plus en plus certaines, ce développement prend de plus en plus d'ampleur et suscite maintenant un intérêt marqué. De plus en plus encadrées par les institutions gouvernementales et désireuses de satisfaire les exigences d'un consommateur plus responsable, les industries se tournent en direction de ces nouveaux matériaux en quête de solutions. L'automobile et la construction sont les deux secteurs où la demande en matériaux dits «verts» est la plus grande [1, 2]. L'union européenne exigera, à partir de 2025, qu'un véhicule en fin de vie soit recyclé à 95% [3]. Le département de l'énergie des États-Unis a fixé comme objectif qu'en 2020, 10%

des matières premières chimiques soit d'origine végétale, pour atteindre 50% en 2050 [4]. Selon un rapport de Lucintel, le marché des composites à fibres naturelles devrait atteindre 531.3 millions de dollars en 2016 [5]. Pour satisfaire cette demande grandissante, les chercheurs devront concevoir et élaborer des matériaux composites aux performances équivalentes à leurs homologues à fibres et matrices synthétiques et à coût demeurant compétitifs.

Parmi l'éventail des fibres naturelles, la fibre de lin fait l'objet de beaucoup d'attention. Produite principalement en France pour l'industrie du textile, cette fibre offre des propriétés spécifiques qui se rapprochent grandement de la fibre de verre en plus d'avoir une grande capacité d'absorption des vibrations. Le Canada, premier producteur mondial de la graine de lin [6], pourrait devenir un acteur majeur dans la production de cette fibre, actuellement non valorisée. Une autre fibre, celle du bois, utilisée continuellement par tous et chacun grâce au papier, offre un potentiel intéressant. Le savoir-faire en extraction des fibres du bois et l'énorme capacité de transformation de celles-ci en papier en font une matière de base à considérer. Cette idée d'utiliser le papier comme élément constitutif d'un composite est familière au Laboratoire de Mécanique et Éco-Matériaux (LMEM) de l'Université du Québec à Trois-Rivières (UQTR), situé dans la ville autrefois qualifiée de «Capitale mondiale du papier», qui compte à ce jour trois usines de pâte et papier, un Centre de recherche sur les matériaux lignocellulosiques (CRML) et un centre collégial de transfert technologique

(Innofibre du Cégep de Trois-Rivières) doté d'une machine expérimentale de production de pâte et papier.

L'un des projets phares du LMEM est la conception d'un renfort hybride en lin unidirectionnel (UD) et papier. L'objectif global de ce projet est d'arriver à fabriquer ce renfort de façon continue suivant les procédés papetiers conventionnels utilisés sur une machine de pâte et papier. Le concept général consiste à déposer les fibres de lin sur la toile de formation de la ligne et de projeter sur cette couche de lin une mince couche de pâte de papier (Figure 1).

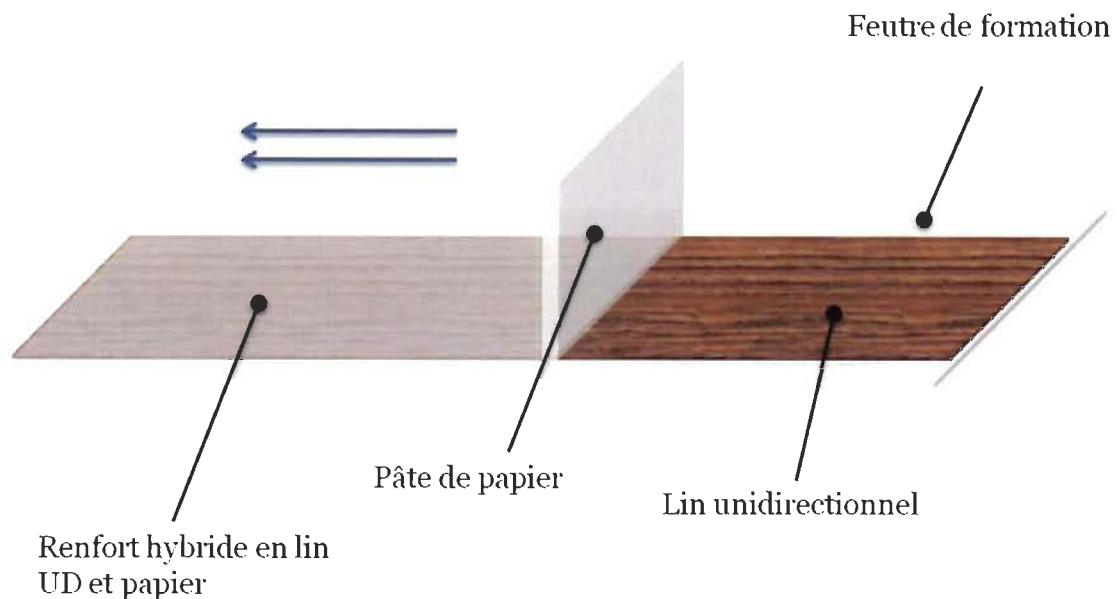


Figure 1: Concept de la fabrication d'un renfort en lin et papier

Cette couche de papier, une fois sèche, permettrait de manipuler le renfort en maintenant les fibres de lin bien alignées, tout en éliminant le besoin de coudre les fibres de lin UD comme c'est souvent le cas pour les renforts UD traditionnels. De plus, cette méthode permettrait la production de renfort à haut volume annuel, ce qui rendrait le produit commercialement viable. Une caractéristique intéressante de la présence de papier dans le renfort en lin est son influence sur la diminution de la variabilité des propriétés mécaniques du composite unidirectionnel [7]. La grande variabilité que l'on retrouve dans les propriétés physiques et mécaniques de la fibre de lin limite considérablement son utilisation commerciale. Ainsi, l'influence du papier ouvrirait la porte à une conception robuste qui minimiserait la variabilité tout en maximisant les propriétés finales.

Dans le cadre de cette étude, le renfort hybride en lin et papier fut moulé avec une matrice thermoplastique bio-sourcé et biodégradable qui est l'acide polylactique (PLA). Cette matrice, souvent produite à base d'amidon de maïs ou de sucre, offre des propriétés mécaniques similaires, voire même supérieures au polypropylène. L'assemblage du lin, papier et PLA formera ainsi un composite 100% bio-sourcé et biodégradable. L'étude qui suit a pour objectifs de caractériser les propriétés mécaniques et thermiques de ce nouveau composite et d'évaluer l'effet de la couche de papier sur la variabilité des propriétés mécaniques. Pour ce faire, des essais de traction, de flexion et

d'impact furent réalisés sur une série d'échantillons de composites avec et sans papier. Les propriétés thermiques des composites furent évaluées par calorimétrie différentielle à balayage (DSC), analyse mécanique dynamique (DMA) et par analyse thermogravimétrique (TGA).

1.2 Revue de la littérature scientifique

1.2.1 Fibre de lin

1.2.1.1 Description botanique

Le lin est une plante herbacée annuelle appartenant à la famille des linacées. Comptant plus de 200 variétés de *Linum usitatissimum*, le lin, cultivé de façon sélective, est utilisé principalement soit pour ses graines ou pour ses fibres. Pouvant atteindre une hauteur d'environ un mètre et un diamètre de 2 millimètres à sa base, la tige de lin nécessite environ 100 à 120 jours pour atteindre sa pleine grandeur et arriver à maturation (Figure 2a).

1.2.1.2 Production

1.2.1.2.1 Croissance de la plante

La première étape de la production du lin consiste en la mise en terre des semis, qui dans l'hémisphère nord a lieu entre le 1er mars et le 30 avril. Huit semaines plus tard apparaissent les premières pousses qui atteindront de 10 à 15 cm (Figure 2b) . Une croissance rapide pouvant atteindre jusqu'à 5 cm par jour s'en suit. Arrivé à maturité, le lin auparavant vert pâle devient jaune et presque complètement dépourvu de feuilles (Figure 2a).

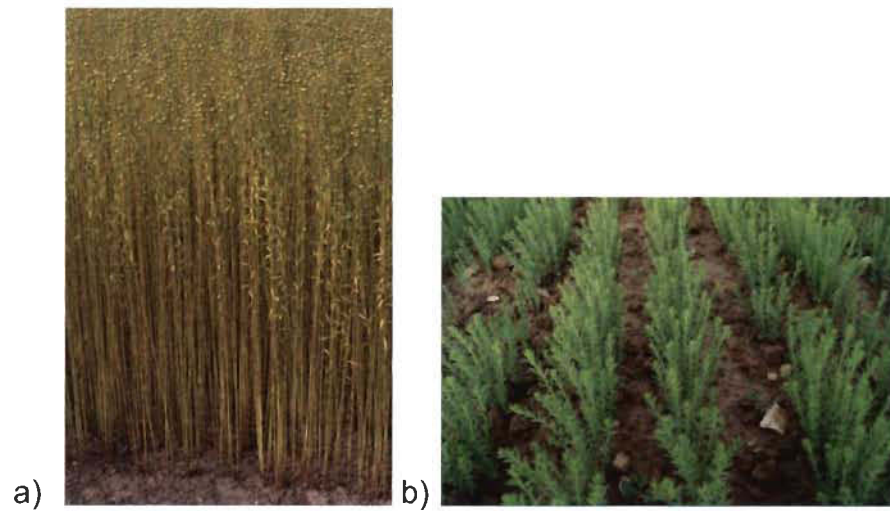


Figure 2: a) Tige de lin et b) croissance de la plante

1.2.1.2.2 Rouissage

Le rouissage consiste en la dégradation des ciments pectiques qui lie les fibres entre elles afin de les extraire. La méthode de rouissage la plus répandue est le rouissage sur le champ. Les tiges de lin fraîchement arrachées sont laissées sur le sol, préférablement humide afin que les microorganismes et bactéries dégradent la pectine qui lie les fibres entre elles et avec les autres tissus. Cette étape est très susceptible aux conditions météorologiques et peut durer de 20 à 90 jours. Afin d'assurer un rouissage homogène, les tiges sont retournées régulièrement. Une étroite surveillance du niveau de rouissage est nécessaire afin d'éviter le rouissage excessif qui entraîne une baisse des propriétés mécaniques des fibres [8]. Un lin trop roui, rendu inutilisable, doit dans certains

cas être brûlé dans le champ afin d'éviter l'éclosion de maladie. Un lin pas assez roui est difficile voire impossible à transformer et donc inutilisable.

1.2.1.2.3 Teillage

Lors du teillage, les fibres de lin sont mécaniquement extraites de l'épiderme de la tige et de la partie ligneuse de celle-ci. Les balles de tiges sont déroulées sur un convoyeur qui achemine les tiges vers un broyeur cylindrique qui fragmente le bois. Ces fragments de bois, aussi appelés anas, sont ensuite aspirés et récupérés afin d'être utilisés pour le jardinage, la formation de panneaux d'aggloméré ou comme litière animale. Une fois bien nettoyées, les fibres sont triées en deux catégories soit les fibres longues et les fibres courtes (étoupe).

1.2.1.2.4 Filature

La première étape nécessaire à la formation d'un fil de lin est le peignage. Lors de cette étape, les fibres sont disposées mécaniquement de façon parallèle en forme de ruban (Figure 3). Une fois peigné, le ruban de fibre suit deux voies possibles, la filature «au mouillé» ou la filature «au sec»[9]. Lors de la filature «au mouillé», plusieurs rubans de fibres sont laminés successivement jusqu'à l'obtention d'un ruban homogène et celui-ci est légèrement tordu. Il est ensuite plongé dans l'eau maintenue à 60°C afin de ramollir la pectine liant les fibres

élémentaires entre elles. Le ruban est alors étiré et tordu à nouveau pour former un fil mince, résistant et régulier. La filature «au sec» quant à elle consiste à étirer et tordre le ruban sans le mouiller, ce qui limite le raffinement possible. Le fil qui s'en suit est plus gros et moins régulier que le fil obtenu par la méthode «au mouillé».



Figure 3: Ruban de fibres de lin

1.2.1.3 Marché

Le marché économique du lin se divise en deux sous-catégories, soit le marché de la graine de lin et le marché de la fibre de lin. Le Canada se qualifie au rang de premier producteur mondial de graine de lin avec une production annuelle de 489k tonnes suivi de la Russie (369k tonnes) et de la Chine (350k tonnes) [6]. Pour ce qui est de la fibre, le portrait en est tout autre. Le premier producteur mondial, la France, produit annuellement 52.4k tonnes de fibres suivi de près par la Biélorussie (51.6k tonnes) et de la Russie (46.1k tonnes) [6]. Le Canada,

ne figure même pas sur la liste des producteurs de fibres de lin selon la « Food and Agriculture Organization » des Nations Unies. Cette situation, aussi incroyable qu'elle puisse paraître compte tenu de l'immensité du volume de production de graine de lin au Canada, pourrait être en partie causée par des facteurs climatiques et une échelle d'opération déséquilibrée [10]. En effet, la météo joue un rôle majeur dans l'extraction des fibres de la tige de lin car elle influence grandement le développement et la multiplication des microbes et microorganismes qui dégradent la pectine lors du processus de teillage. Une météo plus sèche et froide, souvent retrouvée dans l'ouest du Canada vers l'automne et l'hiver, limite souvent l'efficacité du teillage nécessitant parfois la prolongation de cette opération jusqu'à la fin de l'automne ou même au printemps. Cette incertitude sur les conditions de culture et traitement des fibres affecte la qualité des fibres et leurs propriétés [8]. Une connaissance accrue des méthodes et procédés permettrait de réduire cette variation à la source tandis qu'une gestion plus globale des lots de fibres permettrait l'entreposage, la sélection et le mélange des fibres afin d'uniformiser la qualité et les propriétés [11]. Cependant, ces deux options sont difficilement envisageables compte tenu de la très faible production de fibres. Ainsi, les clients potentiels les plus importants appartenant au secteur automobile et de la construction demeurent inaccessibles compte tenu de l'incertitude sur la matière première et de son volume, limitant ainsi pour l'instant le développement du marché Canadien.

1.2.1.4 Caractérisation

1.2.1.4.1 Structure et morphologie

L'observation d'une coupe de la tige de lin permet de repérer à une échelle macroscopique les différents constituants qui sont, de l'extérieur vers l'intérieur, l'écorce (« bark »), le phloème (« bundle »), le xylème (« xylem ») et le vide central au centre de la tige tel que montré à la (Figure 4). Les fibres de lin, situées dans la région du phloème entre l'écorce et le xylème sont regroupées en paquets de diamètre d'environ 100 à 300 μm [12, 13]. Une vingtaine de paquets sont présents dans la tige, chacun comptant entre 10 et 40 fibres liées entre elles principalement par la pectine. D'un point de vue microscopique, la fibre élémentaire, d'une longueur variant entre 25 et 30 mm, est constituée de plusieurs couches différentes les unes des autres. La première, appelée couche primaire, recouvre la surface de la fibre avec une épaisseur de 0.2 μm et est constituée principalement de pectine, de lignine et d'hémicellulose. La seconde couche est divisée en trois, soit les couches S3, S2 et S1, la couche S1 étant la plus proche du cœur de la fibre (Figure 4). La couche la plus épaisse est la couche S2 est composée de micro fibrilles de cellulose orientées en spirales à un angle d'environ 10° selon la longueur de la fibre. Celles-ci agissent comme renfort à l'intérieur de la fibre. La masse des micros fibrilles représente environ 70% de la masse totale de la fibre de lin. Le défaut le plus couramment rencontré avec la fibre de lin est une bande étroite et bombée où la fibre est

déformée [14-16] tel que montré à la Figure 5 ((a) lumière polarisée (b) lumière non-polarisée). Ces défauts sont produits soit pendant la croissance de la plante soit durant les différents procédés d'extraction de la fibre.

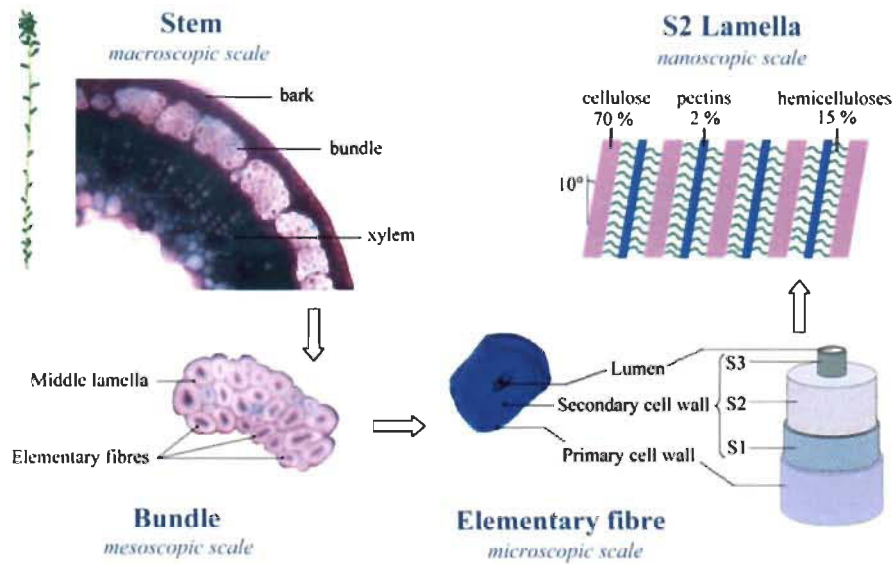


Figure 4: Structure et morphologie de la fibre de lin[14]

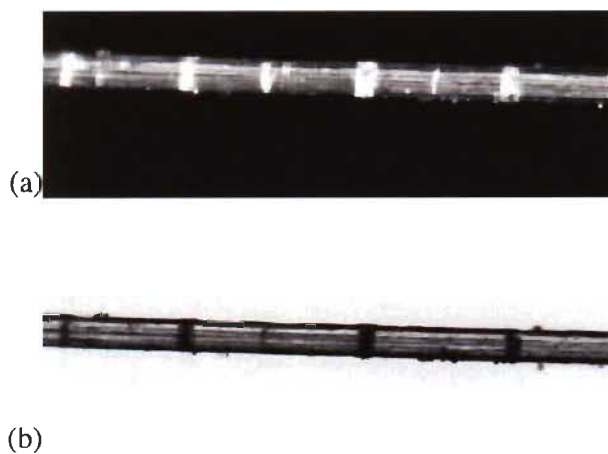


Figure 5: Bandes observées dans une fibre élémentaire de lin au microscope optique

1.2.1.4.2 Composition chimique

La composition chimique de la fibre de lin, en pourcentage volumique des constituants, est répertoriée au Tableau 1 selon les observations de différents auteurs [17, 18]. Les principaux constituants de la fibre sont la cellulose, l'hémicellulose, la cire, la lignine et la pectine. La cellulose est l'élément qui apporte le plus de rigidité et de résistance à la fibre. Étant un polysaccharide semi cristallin, la cellulose comporte beaucoup de groupes hydroxyles qui lui donnent un caractère hydrophile. Ce dernier, nécessaire pour l'hydratation de la plante, s'avère être un net désavantage pour l'utilisation de la fibre dans les matériaux composites. En effet, lorsque celle-ci est utilisée avec une matrice hydrophobe, il en résulte une interface fibre matrice de moindre qualité et une résistance à l'absorption d'humidité plus faible.

Tableau 1: Composition chimique de la fibre de lin, en pourcentage volumique des constituants.

Cellulose	Lignine	Hémicellulose	Pectine	Cire	Humidité	Réf.
71.0	2.2	18.6 - 20.6	2.3	1.7	10.0	[18]
64 - 74	2 - 3	11 -17	1.8	1.5	8 - 10	[19]

1.2.1.4.3 Propriétés physiques et mécaniques

Les propriétés physiques et mécaniques de la fibre de lin varient selon la variété de la plante de lin la provenance du lot, le moment de sa récolte, voire même d'une fibre à l'autre à l'intérieur de la tige [13, 20, 21]. Les observations au sujet du diamètre, de la masse volumique, de la contrainte ultime en traction, du module d'élasticité et du pourcentage d'élongation à la rupture sont répertoriées au Tableau 2. À première vue, il est évident que la variabilité des propriétés mécaniques est grande mais celle-ci provient aussi de la méthode de calcul et d'évaluation des fibres. En effet, certains auteurs ne considèrent pas le vide central dans le calcul de la section de la fibre, ce qui influence la contrainte et le module [22-24]. Lors d'un essai typique de traction d'une fibre de lin, on observe trois étapes de déformation.

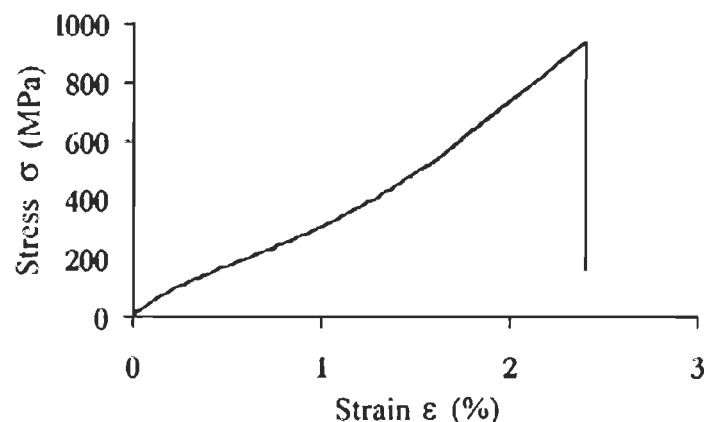


Figure 6: Exemple d'une courbe de traction d'une fibre élémentaire de lin [25]

Tel que montré à la Figure 6, une première étape linéaire entre 0% et 0.3% d'élongation est suivie d'une étape non-linéaire entre 0.3% et 1.5%, pour finir avec une seconde étape linéaire jusqu'à la rupture [25]. Cette non-linéarité en début de courbe est reliée à la déformation visco-elasto-plastique des polymères amorphes dans la fibre et aux réalignements progressifs des microfibrilles dans la direction de la traction. La masse volumique de la fibre est estimée à 1.54 g/cm³, en excluant du calcul le vide central et en tenant compte d'un niveau de porosité de la partie solide de la fibre de 10%. Lorsqu'on compare les propriétés mécaniques de la fibre de lin avec d'autres types de fibres, il est important de tenir compte de la masse volumique des fibres. La fibre de lin se classe parmi les fibres naturelles les plus résistantes car sa résistance mécanique et son module d'élasticité sont parmi les plus élevés. Le module spécifique de la fibre de lin est supérieur à celui de la fibre de verre (verre type E) et sa résistance mécanique s'y rapproche grandement [11].

Tableau 2: Propriétés mécaniques de la fibre de lin et du verre type E.

Matériaux	Masse volumique	Diamètre	Contrainte	Module d'élasticité	Élongation	Réf.
	ρ	\varnothing	σ	E	ϵ	
	g/cm ³	μm	MPa	GPa	%	
Fibre élémentaire de lin	1.5	-	345 - 1035	27.6	2.7 - 3.2	[26]
	1.4 - 1.5	19.0	500 - 900	50 - 70	1.5 - 4.0	[17]
	1.5	-	800 - 1500	27.6 - 80	1.2 - 3.2	[3]
Fibre de verre de type E	2.54-2.60	8-14	3450-3790	73	4.8	[27, 28]

1.2.2 Fibre de bois

1.2.2.1 Bref historique de l'industrie des pâtes et papiers au Canada

L'industrie des pâtes et papiers repose sur deux ressources primaires qui sont le bois et l'eau. Celles-ci, très abondantes au Canada, principalement au Québec, ont permis l'émergence de nombreuses usines de pâte et papier qui, au fil du temps, ont façonné l'industrie canadienne. À la fin du 19^e siècle, suite au blocus continental terminé en 1814, le Canada qui approvisionnait l'Angleterre se voit contraint de réorienter sa production de bois de construction vers les États-Unis [29]. La demande de papier, de plus en plus grande, la présence d'un vaste réseau hydrographique permettant le transport du bois, la production d'électricité et les ressources forestières abondantes favorisent l'implantation de nombreuses usines papetières. C'est ainsi qu'en 1926, le Canada devient le premier producteur mondial de papier et la ville de Trois-Rivières se voit attribuer le titre de «Capitale mondiale du papier»[30].

1.2.2.2 Production

Les fibres cellulosiques liées entre elles par la lignine forment un des matériaux composites le plus connus qui est le bois. Pour produire de la pâte de papier, il est nécessaire de séparer les fibres cellulosiques en éliminant la lignine qui les colle entre elles. Pour effectuer cette séparation, deux procédés sont

disponibles, soit le procédé mécanique qui produit une pâte dite «pâte mécanique», soit le procédé chimique qui donne de la «pâte chimique».

1.2.2.2.1 Pâte mécanique

Lors du procédé mécanique, les billots de bois sont généralement écorcés puis déchiquetés en copeaux. Ces copeaux sont alors écrasés entre deux plaques d'acier pour former de la «pâte mécanique de raffineur». Cependant, ce procédé endommage la fibre et ne permet pas d'extraire la lignine rendant ainsi le papier moins résistant et de moins bonne qualité. On utilise donc ce type de fibre dans le papier journal. Pour améliorer le procédé, il est possible de chauffer à la vapeur et sous pression les copeaux avant et pendant qu'ils sont raffinés, ce qui améliore la qualité du papier. Ce type de pâte s'appelle la «pâte thermomécanique».

1.2.2.2.2 Pâte chimique

Lors du procédé chimique, les billots de bois sont écorcés et broyés en petits copeaux. Ceux-ci sont ensuite immergés dans une «liqueur de cuisson» qui consiste en plusieurs réactifs chimiques et le mélange est cuit à haute pression dans un autoclave. Les produits chimiques et la chaleur dissolvent la lignine qui lie les fibres de cellulose, les libérant ainsi sans les briser. Les trois types de

procédés chimiques les plus répandus sont le procédé au sulfate (procédé kraft), au sulfite et au bisulfite. Le papier obtenu avec le procédé chimique est beaucoup plus résistant que celui obtenu par le procédé mécanique.

1.2.2.3 Marché

La production canadienne de pâte de papier se situe au troisième rang mondial avec une production annuelle de 17190 ktonnes [6]. Cette industrie subie cependant les contre coups de l'apparition de nouveaux médias technologiques qui entraînent une baisse de la consommation de papier. De plus, la concurrence des pays en développement s'accroît et on observe une hausse majeure de la production de pâte de papier dans les pays d'Amérique centrale et d'Amérique du Sud. Pour contrer ce ralentissement, l'industrie forestière vise à se transformer sur quatre plans distincts soit le développement des marchés, l'efficacité opérationnelle, la transformation des processus opérationnels et la création de produits. C'est en diversifiant sa gamme de produits que l'industrie pourra stabiliser son rendement économique et du même coup accroître la masse de produits renouvelables sur le marché.

1.2.2.4 Caractérisation

1.2.2.4.1 Structure, morphologie et composition chimique

Tel que montré à la Figure 7, la fibre de bois est composée de plusieurs couches distinctes. De l'extérieur vers l'intérieur, on retrouve la couche primaire, d'une épaisseur d'environ 0.1 à 0.2 μm , les couches S1 (0.2-0.3 μm), S2 (1-5 μm), S3 ($\sim 1\mu\text{m}$) appartenant à la couche secondaire. La couche S2, la partie principale de la fibre, est composée en grande partie de micro fibrilles de cellulose dont l'angle d'inclinaison est entre 0 et 30°. C'est cette couche qui contribue principalement à la résistance mécanique et au module de la fibre. La longueur d'une fibre de bois mou est d'environ 2.7 à 5.6 mm et pour le bois dur, de 0.7 à 1.7 mm [17, 31].

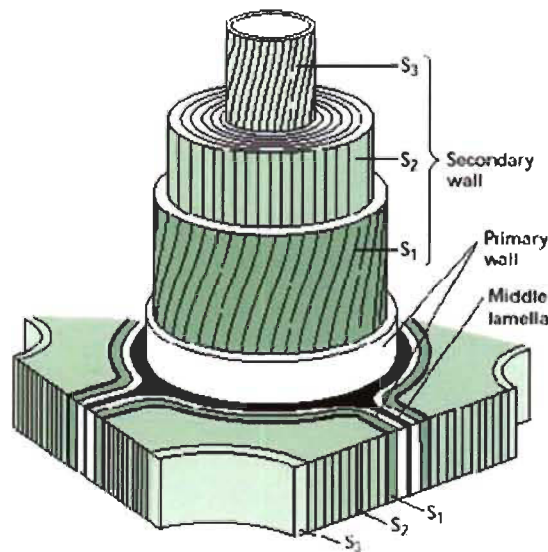


Figure 7: Structure et morphologie de la fibre de bois[32]

La composition chimique de la fibre de bois varie selon le type de bois (dur ou mou) mais ses principaux constituants sont la cellulose, l'hémicellulose et la lignine. Le pourcentage de chaque constituant pour le pin et le bouleau, tout comme leurs équivalents après leur transformation en pâte kraft, est présenté au Tableau 3. Étant constituée principalement de cellulose, la fibre de bois possède un caractère hydrophile dû aux groupements hydroxyles [33, 34].

Tableau 3: Composition chimique de la pâte kraft, en pourcentage volumique des constituants [34]

Essence de bois	Cellulose	Hémicellulose	Lignine
Pin	73	19	6
Bouleau	64	32	4

1.2.2.4.2 Propriétés physiques et mécaniques

La fibre de bois a une masse volumique d'environ 1.4 g/cm^3 [35]. Ses propriétés mécaniques varient selon le type de bois et aussi le degré de raffinage. Généralement, les fibres de la pâte kraft sont de 50% à 70% plus résistantes que les fibres provenant de la pâte mécanique. La contrainte ultime d'une fibre de bois mou se situe entre 100 et 170 MPa, pour un module de 10 à 50 GPa, tandis que pour le bois dur la contrainte ultime se situe entre 90 et 180 MPa et le module entre 10 et 70 GPa [17, 31].

1.2.3 Acide polylactique

1.2.3.1 Production

L'acide polylactique (PLA) est un bio-polymère de synthèse obtenu par la fermentation de sucres ou d'amidon par des bactéries qui les transforment en acide lactique. Ces sucres ou amidon peuvent provenir entre autre de la farine de maïs, des racines de tapioca ou de la canne à sucre. Il existe deux méthodes pour produire du PLA, soit la polymérisation par ouverture de cycle du lactide avec des catalyseurs, soit par la condensation directe du monomère acide lactique [36, 37].

1.2.3.2 Marché

La production annuelle de PLA se situe aux alentours de 180k tonnes et elle pourrait grimper à un million de tonnes pour l'année 2020 [38]. Ce thermoplastique biodégradable est actuellement utilisé pour l'emballage, surtout pour les produits alimentaires, pour des implants médicaux, et même dans certaines imprimantes 3D.

1.2.3.3 Caractérisation

1.2.3.4 Propriétés physiques, thermiques et mécaniques

Les propriétés physiques et mécaniques du PLA varient selon le type puisque l'acide lactique qui le compose est de nature chiral. De façon générale, la masse volumique du PLA se situe aux alentours de 1.25 g/cm^3 . Sa température de transition vitreuse et son point de fusion sont situés entre $60\text{-}65^\circ\text{C}$ et $173\text{-}178^\circ\text{C}$. La contrainte ultime en tension est d'environ 60 MPa , pour un module de 3.5 GPa . En flexion, la contrainte peut atteindre 120 MPa pour un module de 3.5 GPa .

1.3 Matériaux composites

Créer un matériau composite consiste à mélanger deux (ou plusieurs) matériaux différents dans le but d'obtenir un nouveau matériau qui bénéficie des qualités combinées des deux matériaux d'origine tout en limitant leurs défauts respectifs. Les matériaux composites sont composés d'un matériau qualifié de renfort et d'un second appelé matrice. Le renfort est souvent sous forme de fibres dont la résistance et la rigidité surpassent celle de la matrice. La matrice sert de liant en maintenant ensemble les fibres du renfort tout en assurant le transfert de charge local d'une fibre à l'autre. L'orientation et la taille des fibres utilisées peuvent être multiples. Les renforts unidirectionnels présentent des fibres qui sont toutes

orientées dans la même direction. Les renforts tissés ont généralement des fibres orientés à 0° et 90° (sens chaîne et sens trame). On retrouve aussi des renforts à fibres courtes et des renforts à fibres longues orientées de façon aléatoire. Dans le cadre de cette étude, les renforts utilisés sont de type unidirectionnel à fibres longues grâce aux fibres de lin et aussi aléatoires à fibre courte grâce à la couche de papier. La matrice est de type thermodurcissable ou thermoplastique. La matrice utilisée pour cette étude, l'acide polylactique (PLA) est de type thermoplastique. Celle-ci a l'avantage de pouvoir être recyclée en la refondant afin de la mouler à nouveau. La section qui suit présente les résultats de plusieurs travaux issus de la littérature sur les composites à fibre de lin et PLA ou PP et à fibres de bois (papier) et PLA ou PP.

1.3.1 Composites en lin et PLA

Plusieurs études démontrant le potentiel des composites à fibres naturelles et matrices biodégradables furent publiées lors des dernières décennies [39]. Cependant, l'une des premières études à démontrer le potentiel et la viabilité d'un composite à renfort en fibres naturelles et PLA fut présentée par Oksman et coll. en 2003 dans la publication intitulée «Natural fibres as reinforcement in polylactic acid (PLA) composites» [40]. Cette étude compare les propriétés mécaniques d'un composite en lin et polypropylène (PP) et d'un composite en lin et PLA. Moulées avec une extrudeuse, les deux matrices furent mélangées

avec le lin à différents pourcentages volumiques de fibre. Les essais de traction montrent que la contrainte ultime des composites à base de PLA est supérieure à celle des composites à base de PP. Dans les deux cas, l'ajout de fibres de lin n'améliore pas la résistance en traction des matrices seules, ce qui suggère que l'adhésion fibre matrice est faible. Cependant, l'ajout de fibres améliore le module des matrices, lequel passe de 3.4 ± 0.1 GPa à 8.3 ± 0.6 GPa pour le PLA à 30% en masse de lin et de 1.6 GPa à 7.6 ± 0.9 GPa pour le PP à 40% en masse de lin. Du côté des essais d'impact, l'ajout de fibres a plutôt diminué l'énergie absorbée. L'analyse microscopique montre que plusieurs fibres ont été arrachées et que leur surface est demeurée intacte, signe d'une mauvaise interface fibre-matrice. Le Tableau 4, présente un résumé des résultats de diverses études sur l'interface de la fibre de lin imprégnée de différentes matrices. Malgré la faible résistance d'interface fibre-matrice, le composite en PLA et lin montre une résistance supérieure au composite à base de PP, ce qui suggère qu'il pourrait le remplacer pour certaines applications [41].

Tableau 4: Résistance de l'interface fibre/matrice au cisaillement

Composite	Résistance de l'interface au cisaillement (MPa)	Réf.
Lin & PLA	28.3 ± 10.9	[41]
Lin & PP	17.9 ± 10.5	[41]
Lin & Époxy	22.9 ± 7	[42]
Lin & Époxy	22.3 ± 2.1	[43]
Lin & Polyester	14.2 ± 0.4	[19]
Lin & PLLA	22.2 ± 3.4	[44]
Verre & Époxy	37.2 ± 4.6	[43]

Des résultats similaires furent observés par Bax et Müssig en 2008 [45] avec un composite formé par extrusion. Le déchaussement de fibres fut clairement observé, renforçant l'affirmation d'une interface fibre matrice faible. Alimuzzaman et coll. ont publié les résultats d'une étude sur un composite à matrice PLA renforcée d'une toile de lin non cousue, dans un article intitulé «Nonwoven polylactic acid and flax biocomposites» [46]. Cette étude trouve son originalité par l'utilisation de mats de lin obtenus par un procédé de dépôt à l'air qui ne nécessite aucune couture. Cette approche permet d'éviter les dommages causés par l'aiguille lorsqu'elle traverse la couche de fibres pour ajouter des coutures de support qui assurent la maniabilité du renfort. Les mats de lin furent moulés par compression à différentes températures (180°C, 190°C et 200°C) et différents temps de maintien (5, 10 et 15 min) afin d'évaluer l'impact de ces paramètres. Des essais de traction et flexion furent effectués et le taux de

cristallinité et les températures de dégradation furent mesurés. Les résultats des essais de tractions indiquent que plus le temps de maintien est court et la température de moulage réduite, plus les propriétés mécaniques sont élevées. Contrairement aux publications précédentes, l'ajout de fibres de lin augmente non seulement le module mais aussi la contrainte de rupture. En effet, pour un pourcentage massique de 50%, une température de moulage de 180°C et un maintien de 5 min, la contrainte ultime atteint 80.2 MPa et le module 9.9 GPa. La supériorité des propriétés mécaniques par rapport aux autres études est attribuable au procédé de moulage par compression qui permet d'utiliser des fibres plus longues. La résistance en flexion et le module de flexion suivent la même tendance que les essais de traction avec une contrainte maximale de 138.5 MPa pour un module de 7.87 GPa. Les résultats du calorimètre différentiel à balayage (DSC) indiquent que l'ajout de fibres de lin réduit le taux de cristallinité de 46% pour le PLA seul à 27% pour le PLA à 60% massique de lin. Cette diminution est attribuable au fait que la fibre de lin est plus amorphe. Les courbes de l'analyse thermo gravimétrique suivent les trois phases de décomposition habituelles des fibres naturelles. La première, entre 30°C et 150°C, est caractérisée par la perte d'humidité absorbée par les fibres. La décomposition de la cellulose et l'hémicellulose apparaît durant la seconde phase entre 150°C et 375°C. La dernière phase est caractérisée par la dégradation des matières non-cellulosiques entre 375°C et 600°C. La teneur en cendre à 600 °C augmente plus le pourcentage volumique de fibre est grand.

Les micrographies montrent clairement que le phénomène de déchaussement des fibres est présent, tout comme la présence de porosités. Les images n'indiquent aucun délaminage durant les essais de flexion.

1.3.2 Composites en lin et PP

Madsen et al.[47] ont évalué les propriétés en traction de plusieurs composite en lin unidirectionnel et PP de fraction volumique de fibre allant de 56% à 72% et de porosité allant de 4% à 8%. Les couches de renfort furent fabriquées l'aide d'une enrouleuse qui enroule un fil de lin autour d'un cadre métallique (40cm x 40cm) avec pas entre chaque fils de 1mm. Les renforts étaient ensuite pressés et chauffés contre des minces feuilles (0.025mm) de PP pour obtenir la plaque de composite. Les contraintes de tractions axiales observées vont de 251.1 ± 7.7 MPa pour le composite au pourcentage volumique de 56% jusqu'à 320.7 ± 16.1 MPa pour un pourcentage volumique de 72%. Les modules d'élasticité sont quant à eux de 26.9 ± 1.4 GPa à 28.2 ± 1.4 GPa. Considérant que la fabrication d'un fil de lin nécessite habituellement du teillage, du peignage, de quatre à six étapes d'étirement pour finir avec l'opération de torsion, Miao et al.[48] ont proposé différentes méthodes de fabrication de renfort non-tissé. L'une de ces méthodes consiste à carder les fibres de lin et de PP ensemble afin d'obtenir un ruban. Plusieurs de ces rubans sont ensuite alignés l'un au côté de l'autre et acheminé dans un gill-box pour étirer et rendre

parallèle les fibres. Le renfort qui en ressort est constitué de fibre de lin et de PP alignés mais est difficilement manipulable puisque rien ne retient les fibres entre elles dans la direction transverse du renfort. Afin de consolider le renfort, celui-ci est pressé par deux rouleaux chauffé à 135°C afin que le PP se fusionne avec les fibres, ce qui en résulte en un renfort facilement manipulable et résistant. Ces renforts ont été empilés, pressé et chauffé afin de former un composite en lin UD d'un pourcentage volumique de fibre de 40%. La contrainte à la rupture et le module d'élasticité obtenu sont respectivement de 143.4 ± 2.6 MPa et 7.34 ± 0.33 GPa.

1.3.3 Composites en fibre de bois et PLA ou PP

La première publication visant à caractériser les propriétés mécaniques et thermomécaniques d'un composite en PLA et fibres courtes de bois fut présentée par Huda et al. [33]. Les résultats des essais de traction, obtenus sur des échantillons moulés par extrusion, indiquent que la valeur du module d'élasticité augmente de façon importante avec l'ajout de fibres de bois. Le module du PLA seul, situé à 2.7 ± 0.4 GPa, grimpe de façon linéaire jusqu'à 6.3 ± 0.9 GPa avec l'ajout de 40% massique de fibres courtes de lin. La contrainte ultime quant à elle, demeure inchangée. Le module de flexion (tout comme le module de traction), augmente considérablement selon l'ajout de fibres de bois,

passant de 3.3 ± 0.1 GPa pour le PLA seul à 10.2 ± 0.9 GPa pour le PLA à 40% massique de fibres. La résistance en flexion hausse légèrement lorsque des fibres sont ajoutées mais diminue subséquemment plus le taux de fibre augmente. La résistance à l'impact fut évaluée mais aucune différence marquée fut observée selon le taux de fibres présent dans le composite. L'analyse mécanique dynamique (DMA) démontre que le module de conservation augmente avec le pourcentage de fibres, tout comme la température de transition vitreuse et la température de fléchissement sous charge (HDT). Les photographies au MEB ont permis d'évaluer le diamètre et la longueur des fibres qui se situent respectivement entre 330 et 410 μm et 1650 μm . La difficulté rencontrée à différencier les fibres de bois de la matrice pourrait indiquer que les fibres sont bien mouillées et que les défaillances se produisent davantage dans la matrice qu'à la surface de la fibre. Suite à ces travaux, les auteurs ont publié une étude évaluant les propriétés mécaniques d'un composite en PLA à fibres de papier journal recyclé et d'un composite en PLA à fibres de verre [34]. Les résultats obtenus suggèrent que les fibres de bois pourraient remplacer les fibres de verre pour certaines applications non structurales. Li et Sain [49] ont publié les résultats d'un comparatif de plusieurs composites faits de PP et de différentes fibres naturelles dont la fibre de pâte kraft. Mélangés, granulés et fondu pour être injecté, les échantillons furent moulés avec un pourcentage volumique de fibres de 40%. Les propriétés obtenues sont supérieures à celle

du PP seul avec une contrainte en traction de 50 MPa (32 MPa pour PP) et un module d'élasticité de 3 GPa (1.2 GPa pour PP).

1.4 Positionnement de la recherche

Le travail suivant vise en premier lieu à combler le vide d'informations relatives aux composites à fibres longues et unidirectionnelles de lin et PLA en présentant les résultats d'essais mécaniques et thermiques. Ces résultats sont comparés à divers composites à fibre de lin et PLA comportant des pourcentages volumiques de fibres similaires, mais de longueurs et orientations différentes. Les résultats sont aussi comparés à différents composites en lin unidirectionnel mais à matrice variée. En second lieux, ce travail vise à évaluer l'impact de la présence d'une couche de papier sur les moyennes et variabilités des propriétés mécaniques du composite.

Le travail suivant permettra aux concepteurs et spécialistes des matériaux de considérer avec plus d'attention ce type de composite bio-sourcé et biodégradable à l'instar des composites synthétiques. De plus, il présentera une application concrète du concept de renfort en lin et papier fabriqué sur une machine de pâte et papier.

Chapitre 2 - Matériel et méthode

2.1 Matériel

2.1.1 Lin

Le lin utilisé pour la fabrication des renforts est de provenance européenne, de la compagnie Safilin Inc. située en France. Les fibres de lin sont sous la forme d'un mince fil de calibre tex 200, c'est-à-dire 200 grammes par kilomètre de fil. Afin d'assurer une certaine rigidité du fil, celui-ci fut tordu de 55 tours par mètre de fil. Les propriétés physiques et mécaniques fournies par le manufacturier, soit la masse volumique de la fibre, le diamètre, le pourcentage d'élongation et la résistance à la rupture de même que le module d'élasticité, sont montrées au Tableau 5.

Tableau 5: Caractéristiques du lin utilisé

Propriétés	Lin Safilin tex 200 à faible torsion
Masse volumique (g/cm ³)	1.45
Diamètre de la fibre (um)	20
Pourcentage d'élongation (%)	1.35
Contrainte ultime (MPa)	742
Module d'élasticité (GPa)	72.9

2.1.2 Papier

La pâte de papier utilisée pour la fabrication des renforts provient d'Innofibre, centre de recherche du Cégep de Trois-Rivières. La pâte de papier d'épinette noire de type kraft est fournie pré-mélangée (environ 90% massique d'eau) et insaturée en eau. Les fibres de bois de la pâte sont très courtes (moins de 1 mm de long) et leur densité est d'environ 1.4 g/cm³.

2.1.3 PLA

L'acide polylactique (PLA), de type Ingeo 3251D de la compagnie NatureWorks Inc., fut fourni par le Bioproducts Discovery and Development Center (BDDC) de l'Université de Guelph, Ontario. Les propriétés physiques et mécaniques fournies par le manufacturier sont montrées au Tableau 6.

Tableau 6: Caractéristiques du PLA utilisé

Propriétés	Ingeo 3251D
Masse volumique (g/cm ³)	1.24
Température de transition vitreuse (°C)	55-60
Température de fusion (°C)	155-170
Contrainte ultime (MPa)	62
Pourcentage d'élongation (%)	3.5
Contrainte en flexion (MPa)	108
Énergie d'impact Izod (J/m)	16

2.2 Fabrication du composite

2.2.1 Fabrication du renfort

2.2.1.1 Alignement des fils de lin

La fabrication du renfort débute par la fabrication d'une couche uniforme de fils de lin. Afin d'assurer la répétabilité de la fabrication des renforts, un montage fut conçu spécialement à cet effet (Figure 8a-1). Composé d'un cadre rectangulaire rotatif, de plaques de support et d'une manivelle (Figure 8a-2), ce montage permet à l'utilisateur d'enrouler un fil de lin provenant d'une bobine autour de plaques support selon un nombre d'enroulements désiré. Le fil est tout d'abord attaché à l'extrémité du cadre du montage d'enroulement et un premier tour est effectué. Le fil est soigneusement aligné avec les marques de départ gravées sur le cadre. L'utilisateur tourne ensuite la manivelle et ajuste la position du fil afin que celui-ci soit adjacent au fil qui le précède, sans toutefois les entrecroiser. Le nombre de tours de manivelle correspond au nombre de fils de chaque côté du montage et des marques aux extrémités du cadre indiquent la largeur des plaques (en pouces), permettant ainsi à l'utilisateur d'assurer une distribution uniforme des fils. Une fois l'enroulement complété, le fil est attaché à l'extrémité du cadre et coupé. L'enroulement est ensuite légèrement humidifié (Figure 8b) pour que les fils perdent toute courbure ou plis provenant de la bobine (Figure 8c). Quatre supports sont ensuite installés (Figure 8d-3), soit un à chaque extrémité des deux plaques, afin de maintenir les fils en place pour la

découpe. À l'aide d'un ciseau bien aiguisé, l'utilisateur coupe l'extrémité de l'enroulement suivant la rainure prévue à cet effet. Les deux plaques peuvent maintenant être retirées du cadre en les dévissant (Figure 8e). Une fois installés sur le plan de travail, les supports servant à retenir les fils de lin durant la découpe peuvent être retirés afin de libérer les couches de lin (Figure 8f).

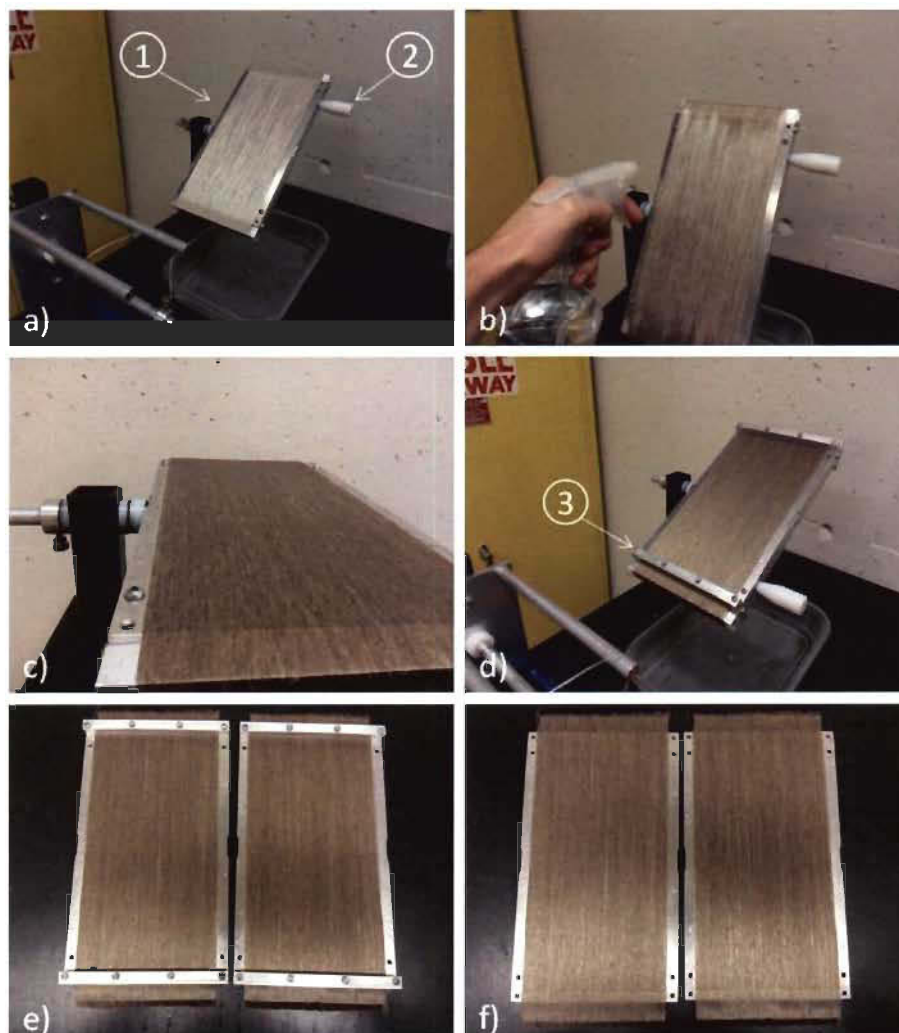


Figure 8: Montage utilisé pour aligner et préparer la couche de fibres de lin

2.2.1.2 Formette dynamique

Une formette dynamique est une machine dont la fonction première est de former une couche de papier à partir de la pâte de papier. Elle est constituée d'un tambour vertical rotatif et perforé, d'un bras escamotable faisant un mouvement vertical de va-et-vient et muni d'une buse de projection à l'extrémité, d'une pompe et d'un réservoir muni d'un agitateur (Figure 9).

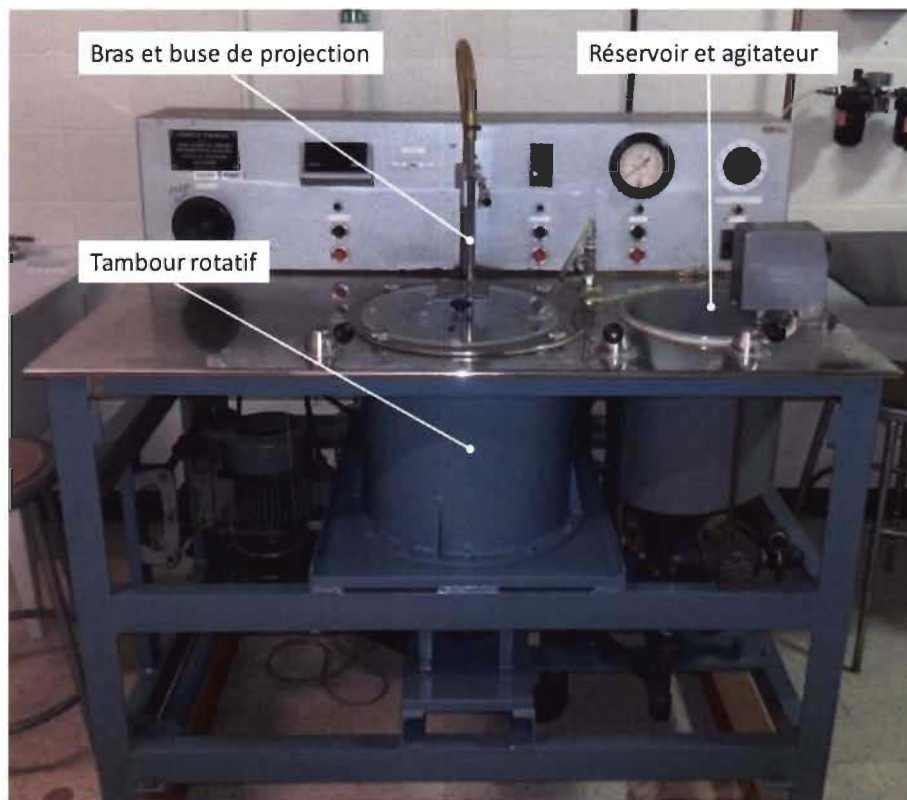


Figure 9: Formette dynamique

La formette dynamique du LMEM provient de la compagnie Allimand Inc. et fut construite dans les années 80. Le détail du mode d'opération est décrit en annexe A. Au final, une mince couche de papier, de densité surfacique uniforme, est obtenue par projection et essorage de la pâte à l'intérieur du tambour rotatif.

Pour simuler, à l'aide de la formette dynamique, le procédé de fabrication du renfort sur une machine à papier industrielle, consistant à déposer la pâte de papier sur le renfort de lin, il faut insérer la couche de lin alignée sur la paroi interne du tambour rotatif pour que celle-ci soit ensuite aspergée de pâte de papier lors de la projection. Pour effectuer cette opération délicate, l'utilisateur doit préalablement déposer la couche de lin humide (Figure 10a-1) provenant de la machine à enroulement sur un feutre de formation (Figure 10a-2). Une toile de formation (Figure 10a-3) est ensuite déposée sur la couche de lin, de façon à retenir le lin entre le feutre et la toile de formation (Figure 10b). L'assemblage est légèrement roulé (Figure 10c) et installé dans le tambour.

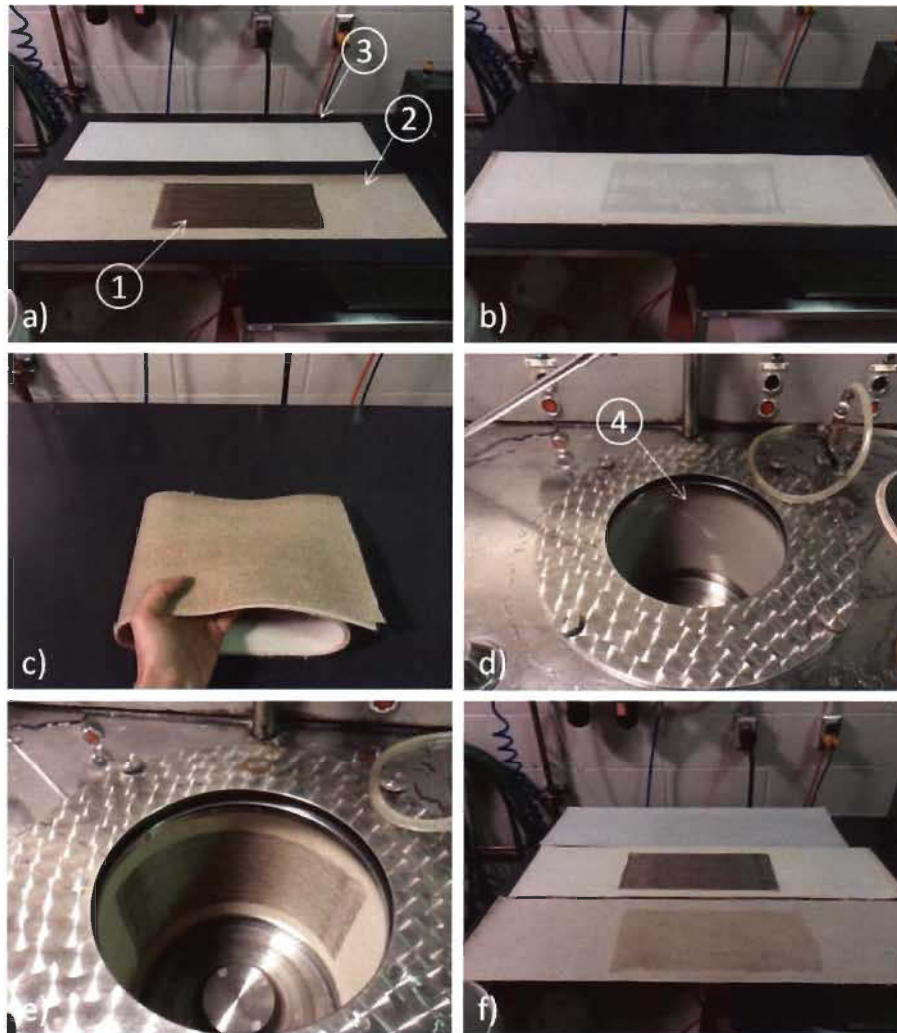


Figure 10: Installation de la couche de lin dans le tambour rotatif de la formette dynamique

La toile recouvrant la couche de lin empêche celle-ci de tomber, cependant elle doit être retirée pour permettre la projection de la pâte sur la couche de lin. L'astuce employée pour retirer la toile de formation sans entraîner la chute de la couche de lin consiste à maximiser l'adhésion de la couche de lin avec le feutre de formation et réduire l'adhésion avec la toile. Pour ce faire, le tambour rotatif

est mis en marche avec l'assemblage toile-lin-feutre et de l'eau vient asperger la surface (Figure 10d-4) pour ainsi libérer les quelques fibres qui sont adhérentes sur la toile et augmenter le nombre de fibres qui adhèrent au feutre de formation. L'eau est ensuite essorée et le tambour mis à l'arrêt. Délicatement, l'utilisateur retire la toile en s'assurant de ne pas perturber l'alignement des fils et l'adhésion de la couche avec le feutre de formation (Figure 10e). Le tambour est ensuite rapidement remis en marche. La couche de lin étant maintenant en place, il ne reste qu'à pulvériser la pâte de papier sur celle-ci et suivre les étapes habituelles de fabrication d'une couche de papier. Au final le renfort en lin et papier est retiré du tambour de la formette et séparé du feutre de formation (Figure 10f). Pour la fabrication des renforts de cette étude, 150 grammes de pâte humide insaturée furent diluées dans 8 litres d'eau, pour une consistance de 0.12% en volume de fibres dans l'eau, pour ensuite être projetées avec la formette dynamique. Des essais préliminaires furent effectués avec des consistances de pâtes différentes afin de vérifier la répartition des fibres de bois. Il fut établi qu'en dessous de 75 grammes de pâtes (consistance de 0.06%), il devient difficile d'assurer une bonne répartition des fibres de bois. C'est lors de l'essorage que certaines zones partiellement couvertes apparaissent, puisque le mur d'eau a tendance à descendre vers le fond du tambour. Cette limitation de la formette dynamique serait probablement inexistante sur une machine à papier industrielle.

2.2.1.3 Pressage

Tout comme dans la fabrication d'une feuille de papier sur une machine à papier industrielle, les renforts sont pressés successivement à l'aide d'une presse à rouleaux et à différentes pressions. La presse à rouleaux de la compagnie Canpa Inc. permet de presser une feuille de papier ou le renfort à une pression allant de 0 à 35 kg/cm et ce à une vitesse de 0 à 10 cm/sec (Figure 11). La procédure suivie pour le pressage de tous les renforts est disponible à l'annexe B.



Figure 11: Presse à rouleaux

2.2.1.4 Séchage

Les renforts sont finalement séchés à l'aide d'un séchoir à bande (Figure 12). Ce séchoir est composé d'un rouleau chauffant et d'une bande qui entraîne le renfort en le serrant contre le rouleau chauffant. Un thermostat électromécanique assure le réglage de la température du rouleau et un potentiomètre permet d'ajuster la vitesse de la bande. Tous les renforts furent séchés à environ 100 degrés C pendant 10 min, la couche de lin faisant face au rouleau.



Figure 12: Séchoir à bande

2.2.1.5 Type de renforts

Pour cette étude, deux types de renforts furent fabriqués, soit le renfort en lin qui consiste en une couche de lin uniquement, et le renfort lin et papier qui consiste en une couche de lin sur laquelle de la pâte de papier est pulvérisée. L'épaisseur, la densité surfacique totale (grammage) et celle de la couche de lin et de la couche de papier, prises sur cinq échantillons des deux types de renforts, sont répertoriées dans le Tableau 7. La densité surfacique de la couche de lin du renfort lin-papier provient de la valeur moyenne obtenue pour le lin seul. Elle est soustraite de la densité surfacique totale afin d'obtenir la densité surfacique de la couche de papier du renfort lin-papier. Les grammages ont été obtenus en divisant la masse du renfort par sa surface et l'épaisseur fut mesurée à l'aide d'un micromètre.

Tableau 7: Types de renforts

Renfort	Nombre de fils de lin	Grammage lin	Grammage papier	Grammage total	Épaisseur
	fils/po	g/m ²	g/m ²	g/m ²	mm
Lin	24	187.5 ± 2.1	0.0	187.5	0.276 ± 0.005
Lin & Papier	24	187.5	38.75 ± 1.7	226.2	0.324 ± 0.005

2.2.2 Moulage du composite

Les plaques composites furent moulées en deux étapes, soit la formation de pré-imprégnés et la formation du composite (Figure 13). La méthodologie utilisée résulte d'une série d'essais préliminaires pour différentes configurations de laminé, de température et de temps de moulage.

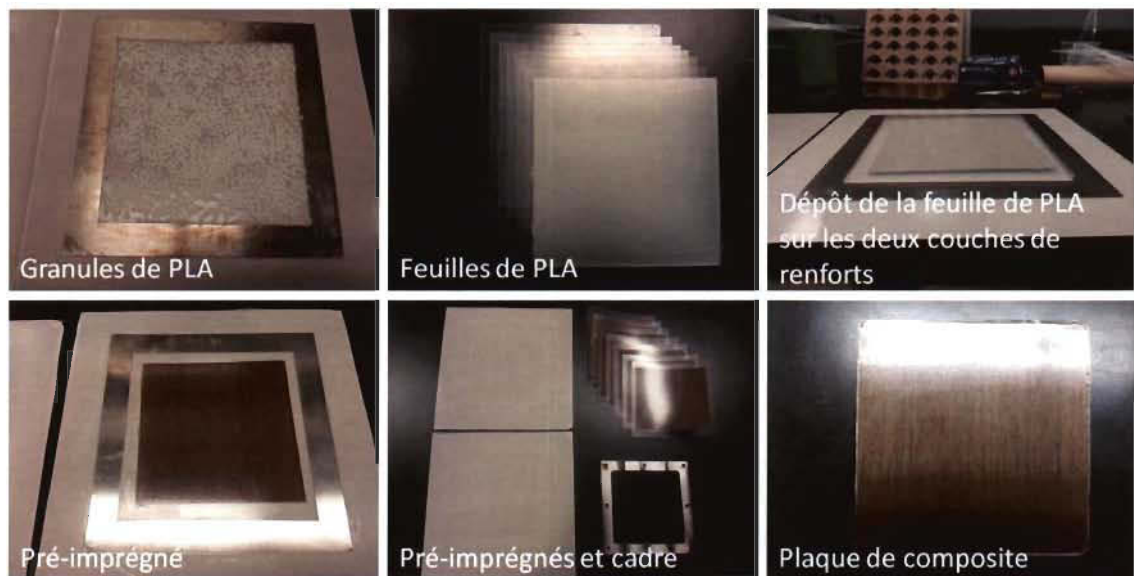


Figure 13: Représentation des étapes de moulages du composite

2.2.2.1 Formation de pré-imprégnés

Les pré-imprégnés utilisés pour cette étude consistent en la superposition de deux renforts unidirectionnels lin-papier alignés dans la même direction et d'une feuille de PLA, le tout pressé et chauffé afin que la couche de PLA thermoplastique imprègne les deux renforts. La presse hydraulique (Figure 14)

du laboratoire BDDC est de marque Carver, et est actionnée manuellement à l'aide d'une manivelle et d'un manomètre.

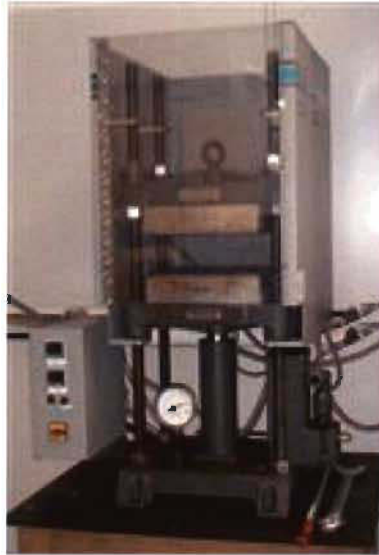


Figure 14: Presse hydraulique

Les deux plateaux de la presse sont chauffés à l'aide d'éléments contrôlés par PID et également refroidis à l'eau. La procédure détaillée du moulage des pré-imprégnés est la suivante : Les granules de PLA et les renforts sont préalablement séchés à 80 °C durant 12 heures. Deux plaques d'acier d'un quart de pouce d'épaisseur et d'une surface de 30 cm par 30 cm sont recouvertes d'une couche de téflon. Un cadre métallique carré de 0.6 mm d'épaisseur est déposé sur l'une des plaques, sur la couche de téflon, et l'autre plaque est déposée sur le cadre face téflon. Les plaques et le cadre sont insérés dans la presse chauffante à 180 °C afin de les réchauffer. Les plaques et cadres réchauffés sont sortis de la presse et on retire la plaque du dessus.

Des granules de PLA sont versés à l'intérieur du cadre de façon à former une couche uniforme de volume supérieur au volume de la cavité finale. La deuxième plaque est redéposée sur le dessus et l'ensemble est déposé sur le plateau inférieur de la presse chauffante. Un délai de 3 minutes est alloué de façon à ce que les granules de PLA fondent. La presse est ensuite refermée durant 2 minutes afin de former la feuille de PLA. L'excédent de PLA s'échappe du cadre entraînant avec lui les bulles d'air emprisonnées. Les éléments chauffants sont ensuite éteints et on active le circuit de refroidissement à l'eau. Les plaques sont laissées à refroidir pendant 5 minutes jusqu'à la température de la pièce. L'ensemble est retiré de la presse et la feuille de PLA est retirée du cadre.

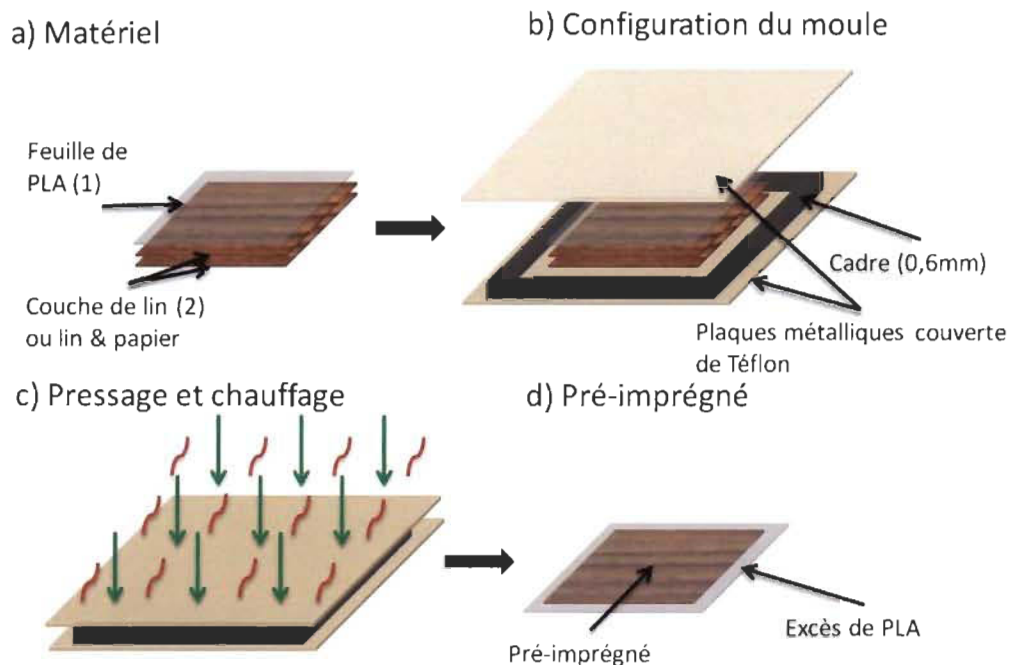


Figure 15: Étapes de fabrication des pré-imprégnés

Les plaques et le cadre sont à nouveau chauffés dans la presse à 180 °C. Une fois réchauffés, les plaques et le cadre sont retirés de la presse et la plaque du dessus est enlevée. Deux renforts sont déposés à l'intérieur du cadre suivant la même direction avec la couche papier vers le haut s'il y a lieu. La feuille de PLA fabriquée précédemment est déposée sur les deux renforts et la deuxième plaque vient recouvrir l'empilement (Figure 15a). L'ensemble est déposé dans la presse qui est immédiatement refermé de façon à compresser l'empilement (Figure 15b-c). Un délai de 5 minutes est alloué pour laisser fondre la feuille de PLA et imprégner graduellement les deux renforts. L'excédent de PLA s'écoule à l'extérieur du cadre, entraînant les bulles d'air. Les éléments chauffants sont éteints et le circuit de refroidissement est activé. Un délai de 5 minutes est alloué afin de refroidir l'ensemble à température pièce. La presse est ouverte et l'ensemble retiré. Le pré-imprégné est retiré du cadre et immédiatement placé dans un sac de plastique étanche (Figure 15d). La feuille de PLA de 0.6 mm et les deux renforts d'environ 0.3 mm d'épaisseur chacun sont largement plus épais une fois superposés que le cadre de 0.6 mm utilisé pour le moulage. Cette différence d'épaisseur est nécessaire pour bien compresser la feuille de PLA sur le renfort afin de bien l'imprégner et éviter d'emprisonner des bulles d'air. En effet, il fut constaté, lors d'un essai de moulage d'un seul renfort avec une feuille de PLA, qu'un excédent de PLA se formant en surface du renfort imprégné pour donner deux couches distinctes puisque le renfort de 0.3 mm ne représentait que la moitié de l'épaisseur du cadre. Utiliser un cadre de 0.3 mm

d'épaisseur au lieu de 0.6 mm n'était pas envisageable compte tenu de la méthode de fabrication. L'utilisation d'un cadre trop petit compliquait beaucoup le démoulage des feuilles de PLA et des pré-imprégnés en augmentant le risque de rupture.

2.2.2.2 Formation du composite

Afin de répondre aux critères des normes ASTM D636, D790 et D256, il fut convenu que l'épaisseur des plaques serait de 4 mm. Compte tenu de la dimension des renforts (30 cm X 15 cm), un cadre métallique de 15 cm x 15 cm (dimensions internes) fut usiné pour fabriquer les plaques. Afin d'assurer une compression lors du moulage, sept pré-imprégnés furent utilisés pour le moulage d'une plaque. Chaque pré-imprégnés de 0.6 mm d'épaisseur, les fibres alignées dans la même direction, forme un empilement de 4.2 mm d'épaisseur avant moulage. La procédure détaillée du moulage des plaques est la suivante :

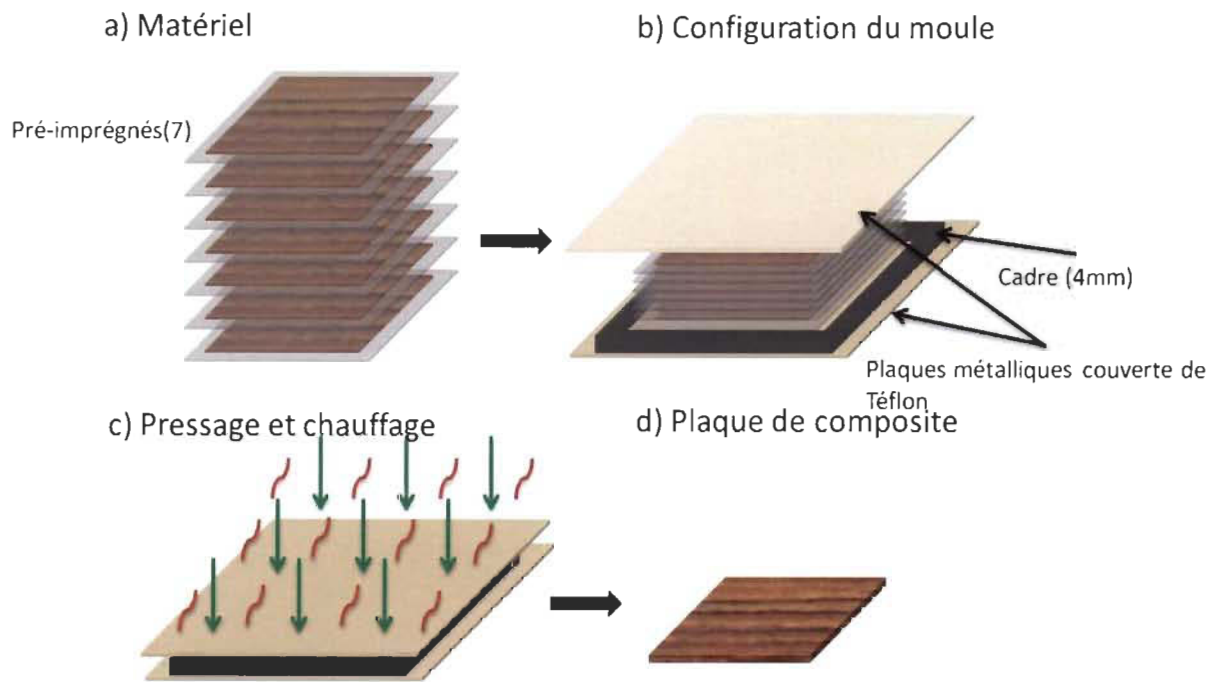


Figure 16: Schéma de fabrication des plaques de composite

Deux plaques d'acier d'un quart de pouce d'épaisseur et de 30 cm X 30 cm de surface sont recouvertes d'une couche de téflon. Le cadre métallique de 4mm d'épaisseur est déposé sur la plaque recouverte de téflon et la seconde plaque est déposée sur le cadre. Les plaques et le cadre sont déposés dans la presse chauffée à 180 °C afin de les réchauffer. Les plaques et le cadre réchauffés sont sortis de la presse et la plaque du dessus est retirée. Les pré-imprégnés découpés à la dimension du cadre (15 cm x 15 cm) sont déposés à l'intérieur du cadre, la couche papier vers le haut s'il y a lieu (Figure 16a). La deuxième plaque est déposée sur l'empilement de pré-imprégné et l'ensemble est inséré dans la presse et immédiatement pressé à 180 °C (Figure 16b-c). Un délai de 5

minutes est alloué afin que le PLA des pré-imprégnés fonde et fusionne pour former la plaque composite multicouches. L'excédent de PLA s'échappe du cadre entraînant avec lui les bulles d'air. Les éléments chauffants sont mis à l'arrêt et le circuit de refroidissement est activé. Un délai de 5 minutes est alloué afin de refroidir l'ensemble à température pièce. L'ensemble est retiré de la presse et la plaque est retirée du cadre (Figure 16d).

2.2.3 Propriétés constituantes des composites

La masse moyenne des plaques PLA-Lin et PLA-Lin-Papier, la masse des constituants, leurs masses volumiques et la masse volumique mesurée des composites obtenus sont énumérés au Tableau 8.

Tableau 8: Caractéristiques des composites.

Composite	ρ_{lin}	ρ_{papier}	ρ_{PLA}	Masse Lin	Masse Papier	Masse PLA	Masse Totale	$\rho_{composite}$
	(g/cm ³)	(g/cm ³)	(g/cm ³)	(g)	(g)	(g)	(g)	(g/m ³)
PLA & Lin	1.54	1.4	1.256	59.1	0.0	60.5	119.6 ± 0.4	1.344 ± 0.005
PLA & Lin & Papier	1.54	1.4	1.256	59.1	12.2	46.1	117.4 ± 1.0	1.453 ± 0.005

Les pourcentages massiques et volumiques des deux composites sont énumérés au Tableau 9. Les pourcentages volumiques ont été calculés à l'aide de l'équation 1. Les composites en lin et lin-papier ont été moulés avec la même

quantité de fibres de lin. Le pourcentage volumique de fibres de lin du composite PLA & lin & papier est cependant plus élevé (de 1.4%) que celui du composite PLA & lin. Puisque les plaques moulées ont la même épaisseur finale, la présence du papier a pour effet de comprimer davantage les fibres de lin que dans la plaque moulée avec le lin seul. Deux hypothèses peuvent être avancées pour expliquer la différence de taux volumique de fibres lorsqu'il y a présence ou non de papier. Soit la pression supplémentaire engendrée par le papier comprime le lin et modifie légèrement la densité des fibres (éliminant partiellement le vide central au centre de la fibre), soit le papier s'imprègne moins bien que le lin et induit par le fait même un niveau de porosité global du composite venant légèrement affecter les calculs de taux de fibres.

Tableau 9: Pourcentages massiques et volumiques des composites

Composite	%m Lin	%m Papier	%m Fibre total	%v Lin	%v Papier	%v Fibre total
PLA & Lin	49.3 ± 0.2	0.0	49.3 ± 0.2	44.3 ± 0.2	0.0	44.3 ± 0.2
PLA & Lin & Papier	50.3 ± 0.4	10.4 ± 0.1	60.7 ± 0.5	45.7 ± 0.4	10.4 ± 0.1	56.1 ± 0.5

$$V_f = 100 \cdot \frac{w_f / \rho_f}{(w_m / \rho_m) + \sum (w_f / \rho_f)} \quad (1)$$

où :

w_f représente le pourcentage massique de fibres,

w_m , le pourcentage massique de la matrice,

ρ_f , la masse volumique de la fibre et

ρ_m , la masse volumique de la matrice.

2.3 Essais mécaniques et préparation des échantillons

2.3.1 Essais de traction

Les essais de tractions ont été effectués selon la norme ASTM D638 suivant le modèle d'éprouvette de type IV. Cette norme fut adoptée puisqu'elle concordait avec les dimensions des plaques de 15 cm x 15 cm, qu'elle est couramment utilisée pour les composites à matrice thermoplastique à fibres courtes et compte tenu du nombre de couches de renfort dans la plaque (avec 14 couches de lin UD) et de la juxtaposition des fils de lin UD (avec 9.5 fils par cm de large), la section de l'éprouvette demeurerait représentative du matériau évalué. Les essais de traction 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 Instron 2620. La vitesse fut réglée à 5 mm/min. Les éprouvettes ont été découpées à l'aide d'une fraiseuse à commande numérique équipée d'une fraise de 6.35 mm (0.25 pouces) tel que montré aux Figure 17a et b. Les éprouvettes ont été découpées de façon à ce que l'orientation des fibres soit parallèle à la longueur de l'éprouvette. Un jet d'air comprimé orienté vers l'outil de coupe permet de refroidir l'outil et la plaque, tout en libérant les copeaux. Les légères bavures (Figure 17c) ont ensuite été retirées avec un papier à sablé fin. Les plans de découpe et de fixation de la plaque sont disponibles en annexe E La résistance à la rupture et le module d'élasticité ont été enregistrés.

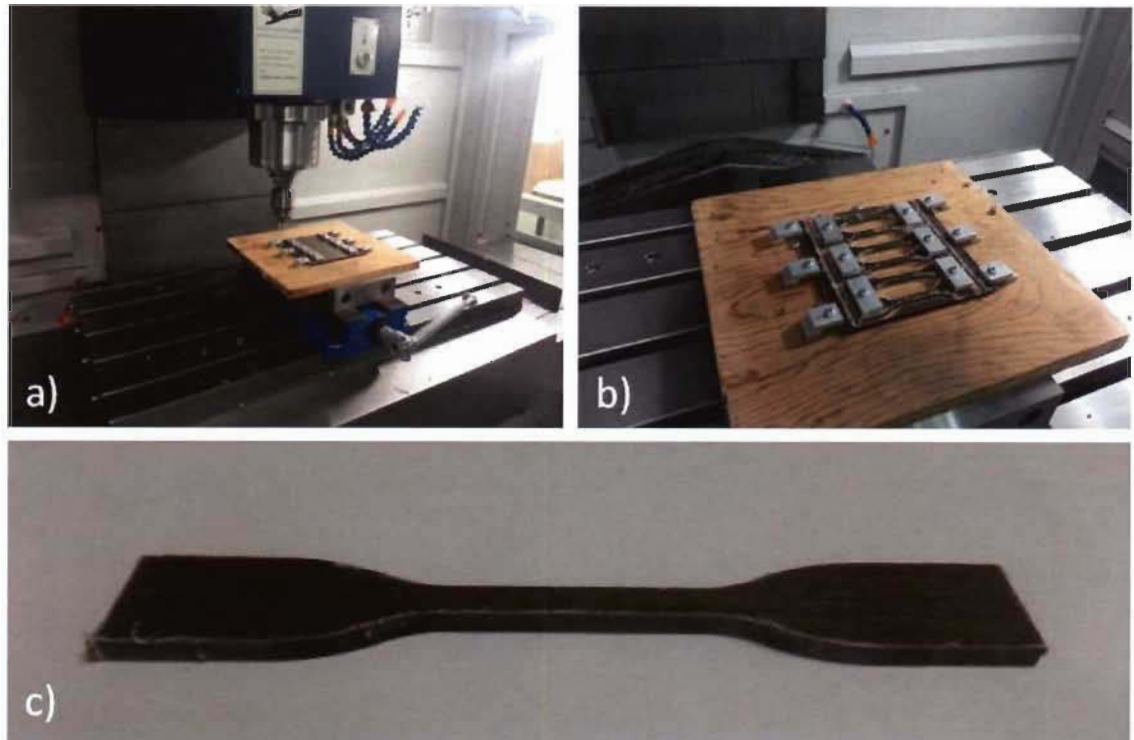


Figure 17: Découpage des éprouvettes de traction

2.3.2 Essais de flexion

Les essais de flexions ont été effectués selon la norme ASTM D790 sur une machine d'essai de type Instron 3382. Les éprouvettes de 130 mm x 13 mm x 4 mm (Figure 20) ont été découpées à l'aide d'une scie à bande et polies à l'aide d'une table à polir munie de plateaux rotatifs (Figure 18). La découpe fut telle que les fibres de lin soient orientées selon la longueur de l'éprouvette. La distance entre les appuis du montage fut réglée à 6.4 cm, soit 16 fois l'épaisseur des éprouvettes. Les éprouvettes du composite PLA & lin & papier ont été disposées

de sorte que la couche de papier soit en contact avec les deux points d'appuis inférieure. La vitesse de chargement de 1.7 mm/min est calculée à partir de l'équation :

$$R = ZL^2/6d \quad (2)$$

où :

$Z = 0.01$ (taux d'élongation des fibres de la couche extrême)

$L = 66\text{mm}$ (distance entre les appuis)

$d = 4\text{mm}$ (épaisseur de l'éprouvette)

La résistance à la flexion et le module de flexion ont été enregistrés.



Figure 18: Table à polir

2.3.3 Essais de flexion sur appuis rapprochés – résistance au cisaillement

Les essais de flexion sur appuis rapprochés ont été réalisés selon la norme ASTM D2344 - 13, sur une machine Instron-U150 LM équipée d'une cellule de charge de 10 kN. La distance entre les supports fut réglée à 16 mm. Des éprouvettes de 24 mm x 8 mm x 4 mm ont été découpées à l'aide d'une scie à bande et polies à l'aide de papier sablé. La vitesse de chargement fut réglée à 1mm/min et la force appliquée sur l'éprouvette fut enregistrée. La contrainte de flexion fut calculée à partir de l'équation 3 :

$$F^{sbs} = 0.75 \times \frac{P_m}{b \times h} \quad (3)$$

Où :

F^{sbs} représente la contrainte calculée,

P^m , la force maximale mesurée,

b, la largeur de l'éprouvette et

h, l'épaisseur de l'éprouvette.

2.3.4 Essais d'impact

Les essais d'impact ont été effectués sur une machine d'impact TMI munie d'un pendule de 5 lb, selon la norme ASTM D256. Des éprouvettes de 63 mm x 13 mm x 4 mm ont été découpées à l'aide d'une scie à bande et polies à l'aide d'une table à polir. La découpe fut faite de façon à ce que les fibres de lin soient orientées dans le sens de la longueur de l'éprouvette. Les éprouvettes ont été entaillées à une profondeur de 3 mm au centre de l'éprouvette (Figure 20). L'énergie d'impact et le type de rupture furent enregistrés.



Figure 19: Machine d'impact TMI (www.testingmachines.com)

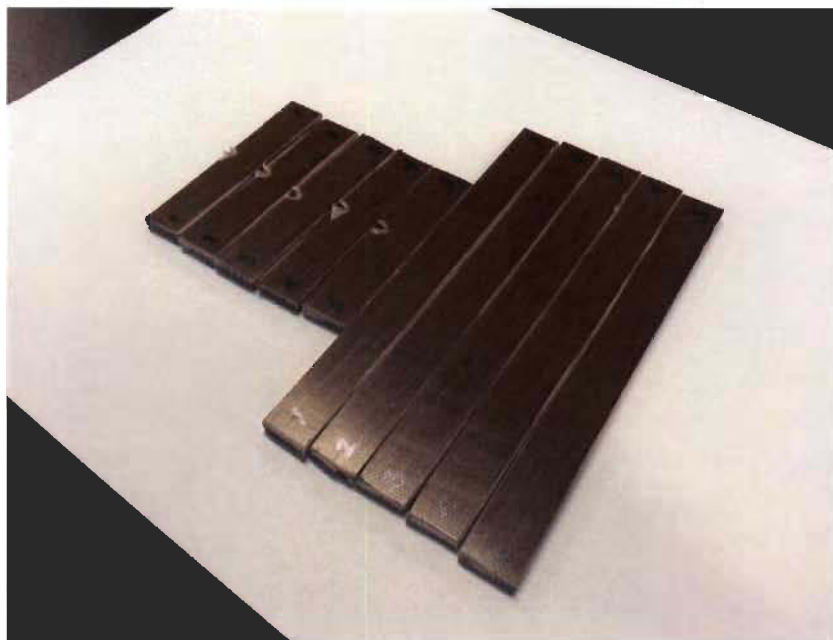


Figure 20: Éprouvettes d'impact (courtes) et éprouvettes de flexion (longues)

2.3.5 Analyse différentielle à balayage (DSC)

Le point de fusion et le taux de cristallisation de la matrice avant et après le moulage par compression ont été évalués par calorimétrie différentielle à balayage sur un appareil de TA Instrument de type DSC Q200 (Figure 21) équipée d'un système de refroidissement à l'hydrogène. Un fragment d'environ 5 mg de matière est placé dans une capsule d'aluminium et scellé à l'intérieur de l'appareil. L'échantillon est refroidi à 0 °C et graduellement chauffé jusqu'à 200 °C au taux de 10 °C/min. La température et le flux de chaleur sont enregistrés. La température de fusion est obtenue en vérifiant la température correspondant au flux de chaleur minimal tandis que l'enthalpie de fusion est

obtenue en intégrant la surface définie par le minima du flux de chaleur, grâce au logiciel TA Instrument Universal Analysis 2000.



Figure 21: Appareil DSC Q200 (www.tainstruments.com)

2.3.6 Analyse thermogravimétrique (TGA)

L'analyse thermogravimétrique fut effectuée à l'aide de la machine TA Instrument TGA Q500 (Figure 22). Un fragment d'environ 10 mg est déposé sur un plateau pré-calibré et scellé à l'intérieur de la machine. Sous atmosphère d'hydrogène, l'échantillon est graduellement chauffé de 35 à 800 °C au taux de 10 °C/min et sa masse est mesurée et enregistrée en continue.



Figure 22: Appareil TGA Q500 (www.tainstruments.com)

2.3.7 Température de déflexion sous charge (HDT)

La température de déflexion sous charge fut obtenue par analyse mécanique dynamique à l'aide de l'appareil TA Instrument DMA Q800 (Figure 23) équipée d'un montage de flexion à trois points et selon le standard ASTM D648. Une force constante de 0.46 MPa fut appliquée sur l'éprouvette de 63 mm x 13mm x 4mm et celle-ci fut chauffée graduellement au taux de 2 °C/min à partir d'une température de 25 °C jusqu'à ce que la flexion atteigne 500 μ m. La température maximale atteinte lors de l'essai est enregistrée.



Figure 23: Appareil DMA Q800 (www.tainstruments.com)

2.3.8 Microscopie

Afin d'observer la répartition des différents constituants du composite, des échantillons ont été découpés, polis et photographiés au microscope optique (Figure 24). Des échantillons, d'environ 10mm x 10mm x 4mm, ont d'abord été découpés à l'aide d'une scie à bande et sablés grossièrement avec une sableuse à ruban. Les échantillons ont ensuite été graduellement sablés à l'aide d'une table rotative munie de papier sablé de calibre 800 et 1000, sous un jet d'eau. Par la suite, les échantillons ont été polis avec un feutre rotatif. Ils ont ensuite été placés sous le microscope et observés avec un facteur de grossissement de 50X, 100X et 200X. Deux plans de vue ont été observés, soit

de façon perpendiculaire à la longueur des fibres de lin et parallèle à la longueur des fibres de lin.



Figure 24: Microscope optique

2.4 Plan d'expérience

L'objectif de cette étude étant de caractériser les propriétés mécaniques d'un composite formé d'un renfort en lin avec ou sans papier, deux types de plaques composites furent fabriqués soit des plaques constituées uniquement de lin et PLA et des plaques constituées de lin, papier et PLA. De plus, des plaques composées uniquement de PLA furent moulées et testées à titre de base comparative. Le nombre de répétitions pour chaque type d'essais est répertorié au Tableau 10. Pour les essais de traction, deux éprouvettes furent exclues de

l'analyse compte tenue de la présence de défauts de surface. Il fut convenu d'analyser 6 éprouvettes de PLA en flexion et en résistance à l'impact puisque leur comportement était déjà bien connu et que la variation des résultats était très faible.

Tableau 10: Plan d'expérience

Type d'essais	Matériaux	Répétitions	Norme
Traction	PLA	10	ASTM D638
	PLA & Lin	10	
	PLA & Lin & Papier	8	
Flexion	PLA	6	ASTM D790
	PLA & Lin	10	
	PLA & Lin & Papier	10	
Flexion éprouvette courtes	PLA & Lin	5	ASTM D2344
	PLA & Lin & Papier	5	
Impact	PLA	6	ASTM D256
	PLA & Lin	10	
	PLA & Lin & Papier	10	
DSC	PLA avant moulage	1	Voir description ci-haut
	PLA après moulage	1	
TGA rampe	Lin	1	Voir description ci-haut
	Lin & Papier	1	
	PLA	1	
	PLA & Lin	1	
	PLA & Lin & Papier	1	
TGA iso	Lin	1	Voir description ci-haut
	Lin & Papier	1	
HDT	PLA	1	ASTM D648
	PLA & Lin	1	
	PLA & Lin & Papier	1	

Chapitre 3 - Résultats

3.1 Propriétés mécaniques

3.1.1 Propriétés en traction

3.1.1.1 Courbes de tractions

Un aperçu de quatre courbes de traction obtenues avec les composites PLA & lin et PLA & lin & papier est présenté à la Figure 25.

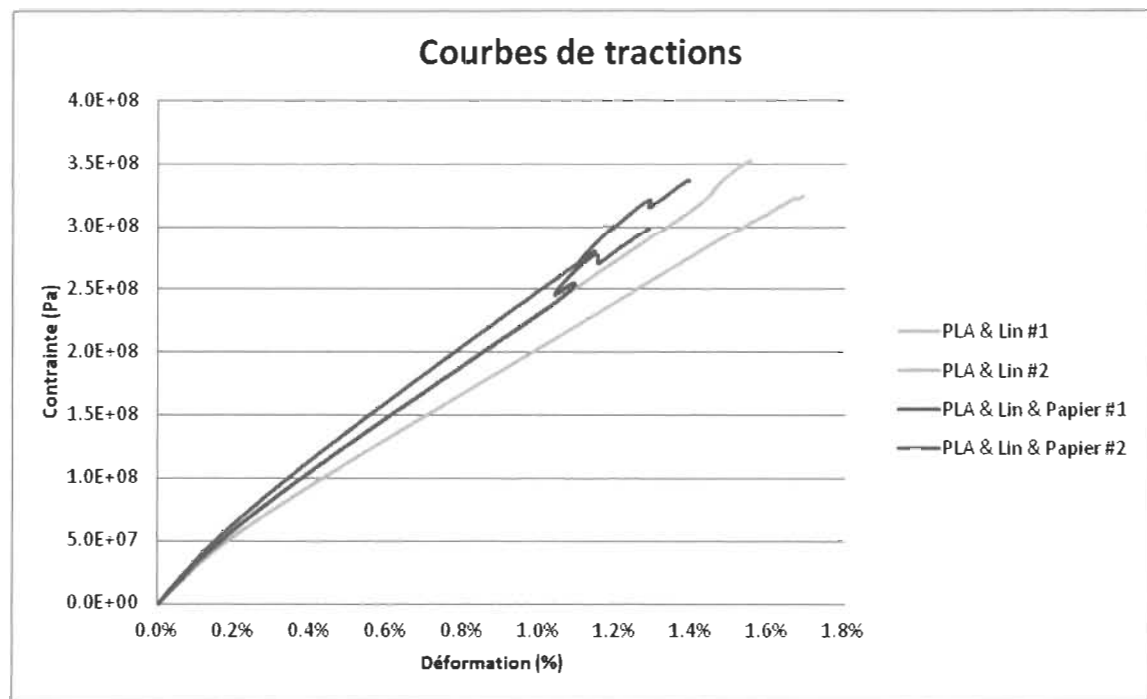


Figure 25: Courbes de tractions des composites

Les courbes de traction des deux types de composites sont caractérisées par trois zones distinctes, soit une première partie linéaire située entre environ 0% et 0.075% d'élongation, une partie non-linéaire entre 0.075% et 0.4% et une

seconde partie linéaire allant de 0.4% jusqu'à la rupture. Ainsi, deux modules de traction furent mesurés soit le module initial (E_i) pour la première partie linéaire et le module de traction (E) pour la seconde partie linéaire. Ces modules ont donc été calculés séparément [7, 50]. L'analyse des courbes de traction montre que lorsqu'on approche de la contrainte ultime, soit à environ 1.3% d'élongation, la courbe du composite en lin et papier dévie momentanément, et cette déviation est caractérisée initialement par une diminution soudaine de la contrainte et de la déformation. Ces déviations furent tout d'abord perçues comme résultant d'une défaillance de l'extensomètre. Cette idée fut cependant rejetée considérant que tous les essais mécaniques furent effectués de façon alternée entre les différents matériaux et que seulement les éprouvettes en PLA & lin & papier présentaient ces sauts.

La couche de papier semble donc être à la source de ces déviations. Lors des essais en traction, l'extensomètre fut installé sur le côté papier de l'éprouvette. Un phénomène de fissurations de la couche de papier pourrait expliquer le recul de la mesure d'élongation et la perte de charge soudaine (la couche papier ne contribuant plus pour supporter la charge). Les perturbations, se produisent sur environ 0.1 à 0.2% de déformation, soit une longueur 0.025 mm compte tenu de la longueur de référence de l'extensomètre (25.4 mm). Il est donc possible que les broches de contact de l'extensomètre soient entraînées par une fissuration du papier, perturbant ainsi la mesure de l'élongation sur une très courte plage

de déformation, le temps de stabiliser les broches. La fissure de la couche PLA/papier entrainerait aussi une perte de charge soudaine, qui serait immédiatement reprise par les autres couches constituées des fibres de lin. Le phénomène de fissuration est plus souvent observé avec des composites à matrice fragile [51, 52]. La matrice, cédant à une elongation moindre que celle de la fibre, entraine une reprise de charge par la fibre, générant ainsi des sauts dans la courbe de traction. Dans le cas présent cependant, il fut observé, lors des essais de traction de la matrice seule (Figure 26), que celle-ci supportait une elongation bien supérieure à celles des deux composites. De plus, aucune déviation n'est observée à la Figure 26, excluant ainsi un problème de fonctionnement de l'extensomètre.

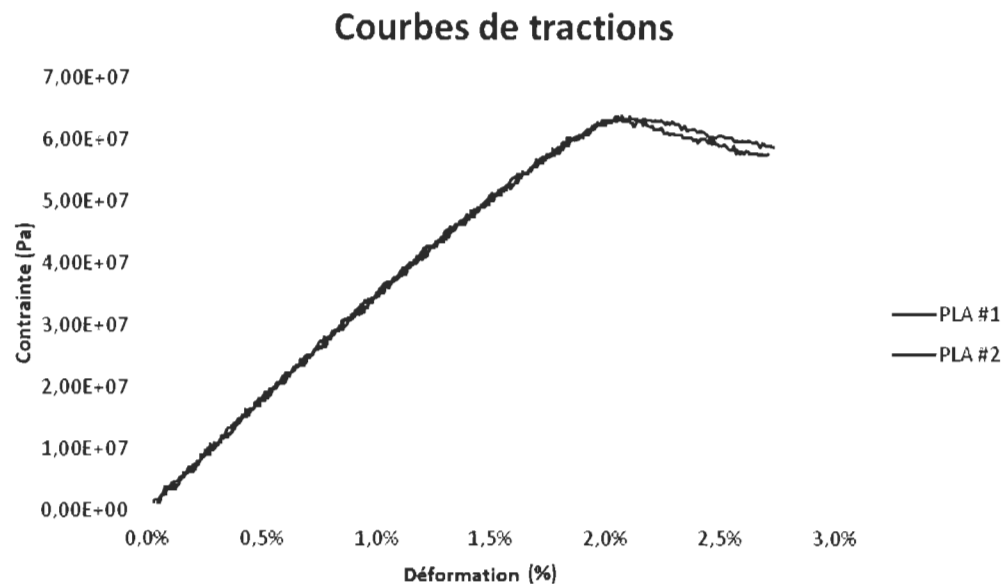


Figure 26: Courbes de tractions du PLA

Un niveau plus élevé de porosité dans la couche de papier pourrait donc être à l'origine de la fissuration. L'inspection visuelle des éprouvettes (Figure 27) montre une cassure non-uniforme autant pour les éprouvettes du composite PLA & lin que celles en PLA & lin & papier. Ce comportement diffère de celui obtenu des travaux précédents où la présence du papier avait pour effet de confiner la rupture à un endroit précis de l'éprouvette [7]. D'où l'hypothèse ici d'une présence accrue de porosité dans la couche papier du composite (induites par la combinaison de la faible perméabilité du papier et de la viscosité élevée du PLA), provoquant une fissuration non-uniforme et étendue le long de l'éprouvette, similaire aux composites PLA & lin. Une simple inspection visuelle n'a cependant pas fourni d'indice significatif sur l'influence de la couche de papier. Une analyse plus détaillée des faciès de rupture sera requise.

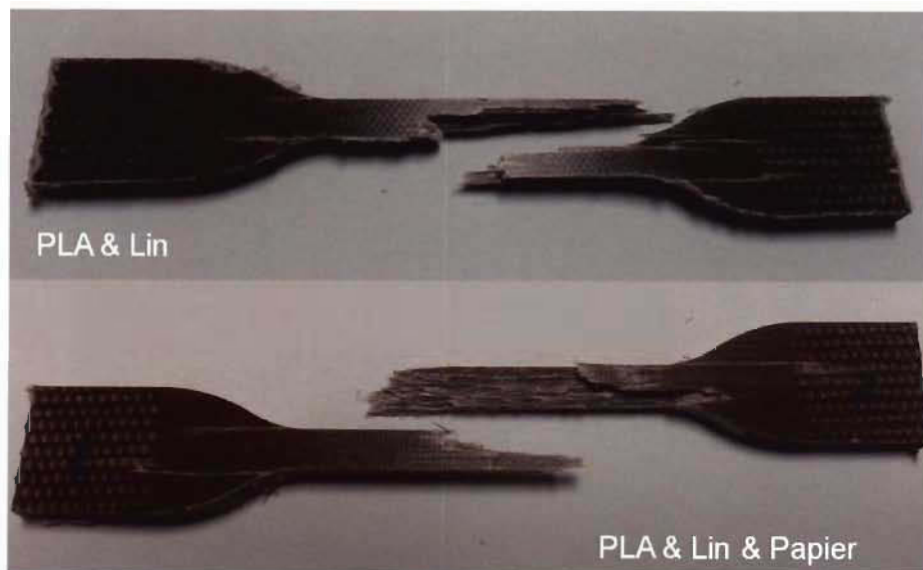


Figure 27: Éprouvettes de traction après rupture

3.1.1.2 Contraintes et modules de traction

La moyenne des contraintes ultimes, des modules d'élasticité initiaux (entre 0% et 0.075% d'élongation) et des modules d'élasticité (entre 0.4% et 0.9% d'élongation) ainsi que les écarts-type sont représentés aux Figure 28 à 30.

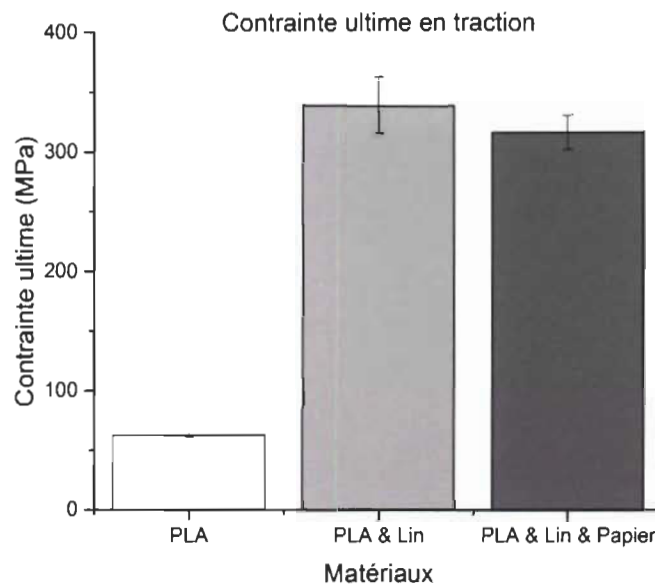


Figure 28: Contrainte ultime en traction

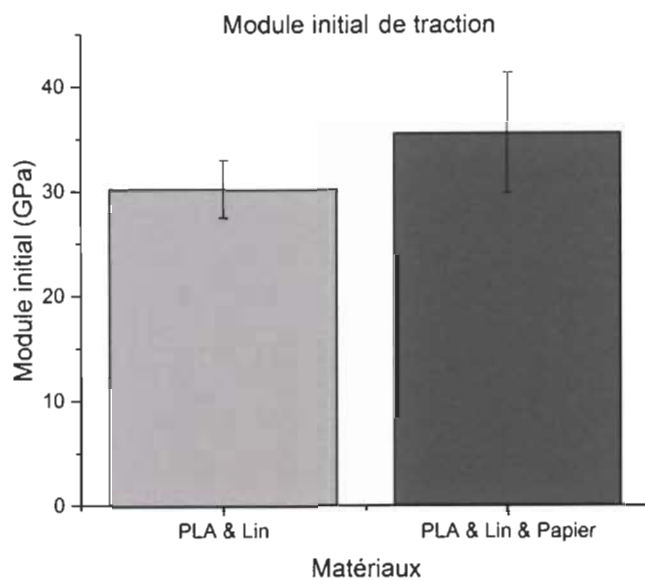


Figure 29: Module initial en traction

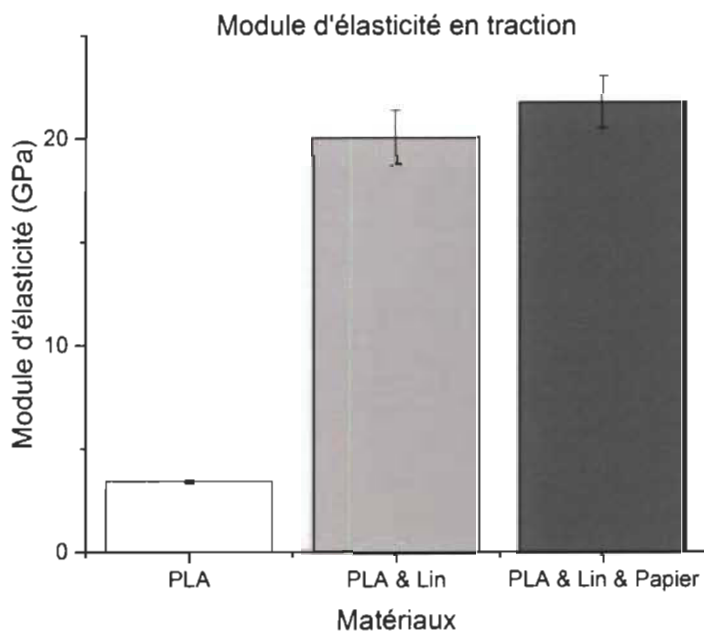


Figure 30: Module d'élasticité en traction

La résistance des deux composites est largement supérieure à celle de la matrice seule par un facteur de 5.5 ($339 \pm 23 / 62 \pm 1.4$ MPa) pour le composite PLA & lin et de 5.1 ($316 \pm 14 / 62 \pm 1.4$ MPa) pour le composite PLA & lin & papier. La couche de papier, ayant pour fonction d'assurer la cohésion du renfort lors des manipulations, se doit d'être suffisamment mince pour permettre l'imprégnation complète à la résine puisque celle-ci diminue largement la perméabilité du renfort. La diminution de la contrainte à la rupture du composite en lin-papier vient renforcer cette idée. L'augmentation du module d'élasticité est encore plus grande et ce par un facteur de 5.9 ($19.6 \pm 1.3 / 3.4 \pm 0.1$ GPa) pour le composite à base de lin et PLA et 6.1 ($20.8 \pm 0.9 / 3.4 \pm 0.1$ GPa) pour celui à base de lin, papier et PLA.

Le module initial d'élasticité est de 30 ± 2.8 GPa pour le composite PLA & lin et 35 ± 5.7 GPa pour le composite PLA & lin & papier. Cette chute de module, observée en comparant le module initial au module d'élasticité fut également observée par Huges et al. [50] avec un composite en lin unidirectionnel et polyester et pourrait être attribuable à une déformation non-linéaire des fibres de lin. Cette déformation non-linéaire serait causée par les défauts de la fibre (bandes et coudes) qui réduiraient le transfert des charges. De plus, le réalignement des microfibrilles présentes à l'intérieur de la fibre de lin pourrait contribuer à cette non-linéarité. Afin d'évaluer la position de la partie non-linéaire

de la courbe de traction, l'intersection des pentes E_i et E fut calculée pour chaque essais de traction (Figure 31).

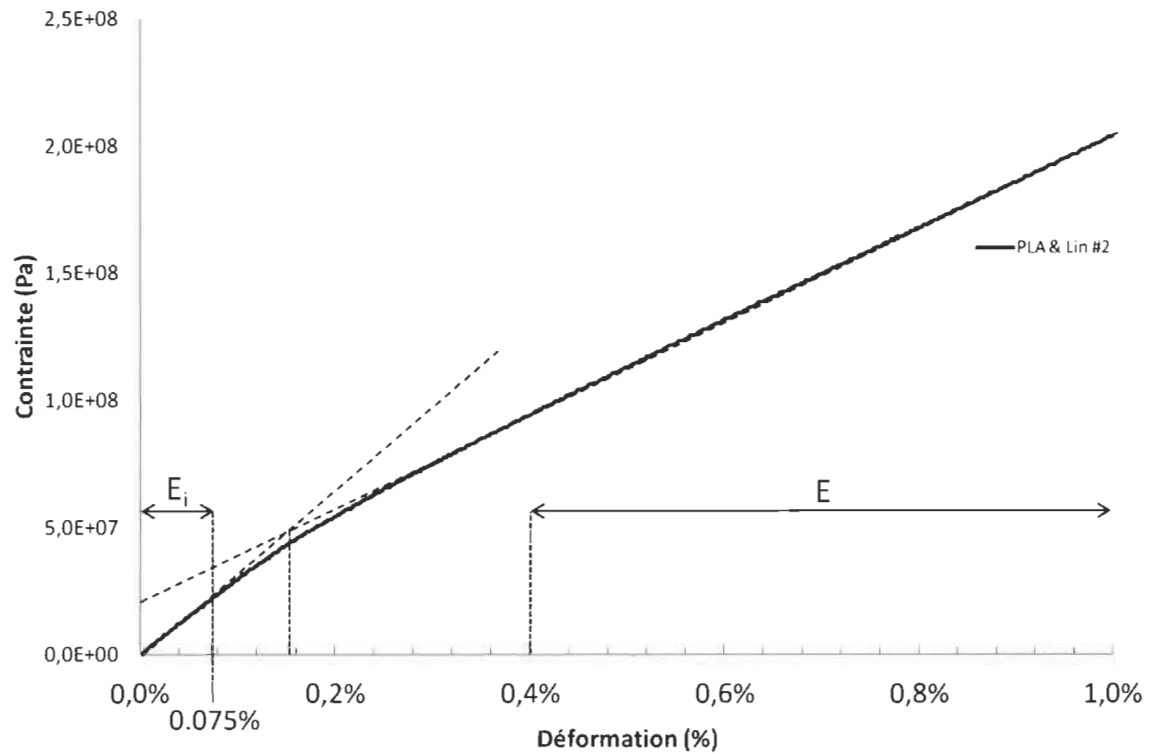


Figure 31: Intersection des pentes de E_i et E

L'intersection calculée pour le composite lin est située à $0.158\% \pm 0.006\%$ d'élongation et celle du lin et papier à $0.149\% \pm 0.016\%$. La couche de papier n'a donc que très peu d'impact sur le phénomène de non-linéarité.

3.1.1.3 Comparaison des propriétés en traction avec les résultats de la revue de littérature sur les composites PLA/lin et PLA/papier

L'augmentation impressionnante des propriétés mécaniques est grandement supérieure à celle observée dans plusieurs publications où la fibre de lin et le PLA sont les principaux constituants. La raison de cette augmentation est principalement due à l'orientation des fibres de lin. En effet, le caractère unidirectionnel des renforts permet de fabriquer un composite dont les charges sont reprises par des fibres orientées dans la direction de la charge. En comparaison, Oksman et al. [40] ont obtenu, avec un composite obtenu par injection composé de PLA et 40% massique de fibres courtes de lin orientées aléatoirement, une moyenne de contrainte ultime de 44 MPa pour un module d'élasticité de 7.3 GPa. Bax et al. [45] ont obtenu une moyenne de contrainte ultime de 54.15 MPa pour un module de 6.31 GPa avec un composite fait de PLA et 30% massique de fibres courtes de lin. Cette énorme différence illustre bien la distinction du procédé utilisé et des composites qu'on obtient. En effet, les deux auteurs ont eu recours au moulage par injection, qui nécessite l'utilisation de granules de composites qui sont chauffées et injectées dans un moule. Les fibres du composite sont donc petites et d'orientation quelconque. Les résultats des travaux réalisés par Allimuzzaman et al.[46], qui utilise des mats à fibre de lin moulés par compression avec du PLA, à un pourcentage massique similaire, se rapprochent davantage des résultats obtenus dans cette

étude avec une contrainte ultime de 80.2 MPa pour un module de 9.9 GPa. L'orientation quelconque des fibres du mat ne favorise cependant pas la reprise de la charge dans une direction unique de sollicitation, contrairement au renfort UD. La comparaison entre les résultats obtenus pour les échantillons en lin et ceux en lin et papier semble indiquer que la couche de papier réduit légèrement la contrainte ultime, tout en augmentant légèrement le module. Huda S. et coll. [33, 34] ont obtenu des résultats similaires en comparant du PLA seul avec un composite en PLA et papier. En assumant que le transfert de charge de fibre en fibre par le biais de la matrice s'effectue en cisaillement, la fibre doit nécessairement être d'une certaine longueur pour permettre de transférer efficacement la charge sans glisser et se déchausser. Cette longueur critique de la fibre, basée sur les travaux de Kelly et Tyson [53] varie selon la résistance de la fibre, son diamètre et la qualité de l'interface fibre-matrice. Peijs et coll. [54] suggèrent que la longueur de fibre minimale pour un composite à base de polypropylène et mat de lin formé par empilement de couches devrait être de 25 mm. La fibre de bois du papier, étant d'une longueur de l'ordre du mm et moins, bien en deçà de la longueur critique, ne permettrait pas un transfert de charge adéquat.

3.1.1.4 Comparaison des propriétés en traction avec les résultats antérieurs d'un composite lin/lin-papier et époxy.

Des travaux antérieurs réalisés sur des composites en lin/époxy et lin-papier/époxy ont permis de démontrer que la couche de papier avait un effet positif sur la contrainte ultime et un effet négatif sur les modules [7]. Cette tendance est opposée à celle présentée dans les résultats ci-dessus.. Cette inversion de tendance est directement liée au procédé de moulage employé. Les échantillons décrits dans [7] furent fabriqués en imprégnant manuellement (par moulage au contact) une couche de résine époxy au travers des renforts lin et lin & papier, qui furent par la suite recouverts d'un tissu d'arrachage, d'une couche de feutre absorbant et d'un sac sous vide. Le moulage se faisait donc à pression contrôlée (sous vide), permettant ainsi à la résine de s'écouler à travers le renfort pour être absorbée par le feutre. Ainsi, l'excédent de résine fut absorbé par le feutre. En ce qui concerne les échantillons de l'étude actuelle, ils furent moulés par une presse chauffante à volume contrôlé de par l'épaisseur constante du moule (cadre de moulage). Tout d'abord sous forme de minces couches de pré-imprégnés, de 0.6 mm chacune, et par la suite en empilant 7 couches de pré-imprégnés pour former la plaque finale de 4 mm d'épais. Afin de distinguer la différence entre les deux composites actuels (PLA/lin et PLA/lin-papier), les échantillons furent observés au microscope optique à un grossissement de 50x, 100X et 200X (Figure 32-33 et Annexe C).

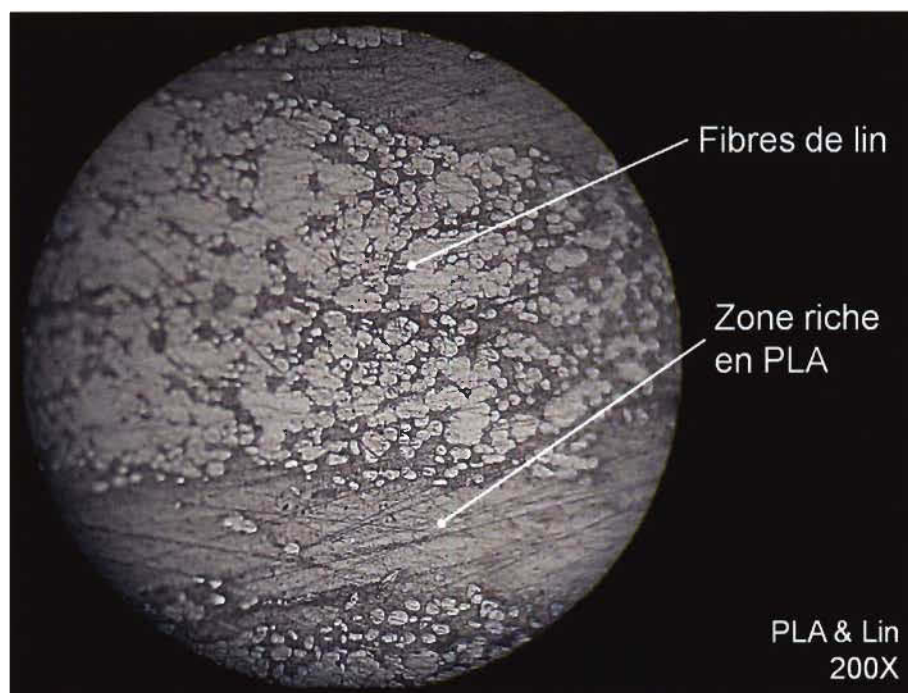
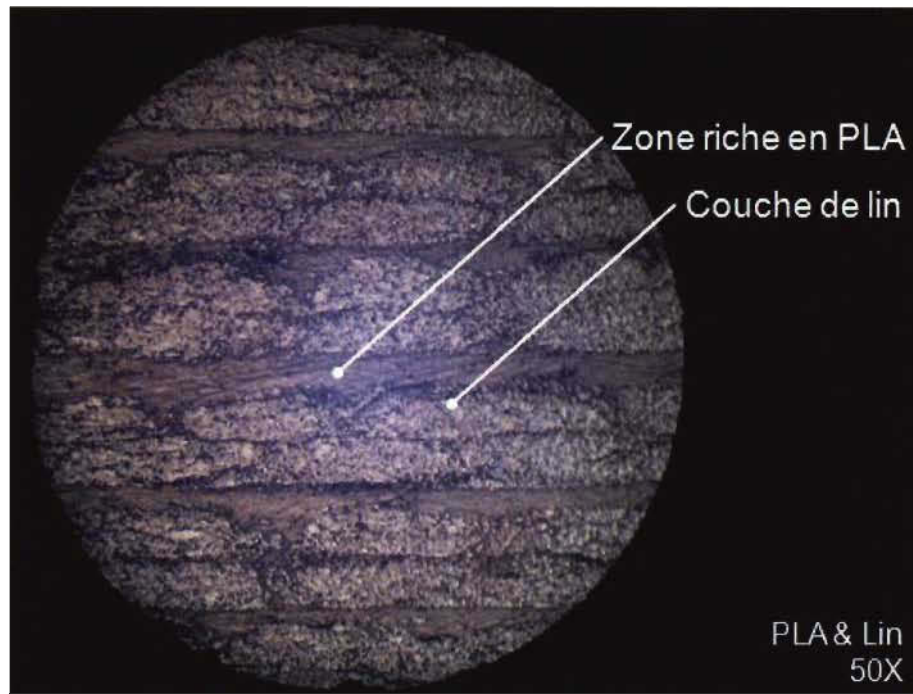


Figure 32: Micrographie à 50X et 100X du composite PLA & Lin

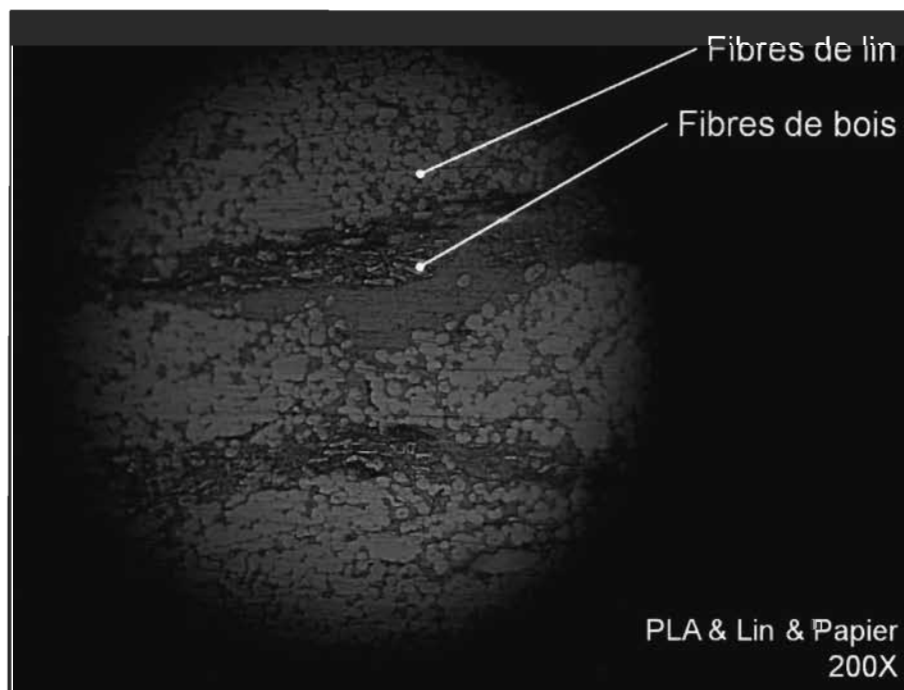
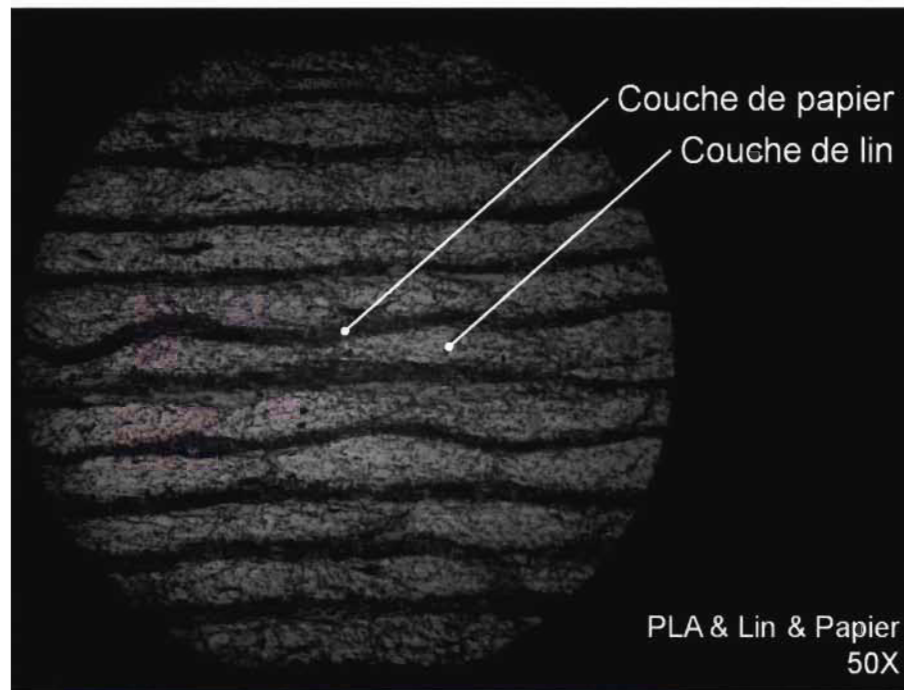


Figure 33: Micrographie à 50X et 200X du composite PLA & Lin & Papier

Les deux composites semblent avoir été complètement imprégnés de PLA autant au niveau de la couche de lin que de la couche de papier. On constate aussi que la couche de papier est toujours accolée à la couche de lin mais qu'aucune fibre de bois ne semble avoir pénétrée au travers de celle-ci. L'observation du composite en PLA et lin démontre deux zones distinctes qui correspondent aux paires de couches de lin et un excès de PLA entre celles-ci. Ces zones riches en PLA indiquent que lorsque le composite fut pressé et chauffé, les fibres de lin ne se sont pas dispersées uniformément selon l'épaisseur contrôlée par le cadre de 0.6 mm. La pression de moulage était donc suffisante pour bien imprégner les renforts mais la viscosité du thermoplastique était trop grande pour laisser les renforts retrouver leur épaisseur initiale. Cela a donc eu pour effet de former deux minces couches d'excédent de PLA, une de chaque côté du pré-imprégné, qui lors du moulage final formèrent une couche interne d'excédant de PLA.

Lorsqu'on regarde le composite en lin et papier, on constate que les zones riches en PLA sont presque absentes et que la distribution des fibres selon l'épaisseur est beaucoup plus uniforme. Il semblerait donc que la couche de papier ait absorbé l'excédent de PLA, éliminant presque complètement les zones riches. Le composite PLA/lin-papier présente donc des modules supérieurs à ceux du composite PLA & lin considérant que la couche de PLA & papier possède un module supérieur à celle du PLA seul [33, 34].

La différence de tendance de la contrainte ultime pourrait quant à elle être causée par la fissuration de la couche PLA & papier qui entrainerait une rupture prématurée du composite. Cette fissuration pourrait provenir d'une qualité d'imprégnation de la fibre de papier inférieure à celle obtenue par le procédé de moulage sous vide créant ainsi des porosités et/ou d'une interface fibre-matrice inférieure à celle du PLA et lin.

3.1.1.5 Analyse statistique

À la lumière des résultats de la section précédente, des tests statistiques ont été réalisés afin de mieux évaluer l'impact de la couche de papier sur la variabilité des résultats. Un test d'égalité des variances (F-Test) fut effectué suivi d'une analyse des moyennes. Le Tableau 11 résume les conclusions de ces analyses (Annexe F).

Tableau 11: Résultats des tests d'égalité des variances et moyennes pour les essais en traction

Valeur	Résultats du test d'égalité des variances	Type d'analyse des moyennes	Résultats de l'analyse de moyenne
Contrainte de traction	$\sigma_{\text{PLA \& Lin}} = \sigma_{\text{PLA \& Lin \& Papier}}$	Analyse de variance à un facteur	$\mu_{\text{PLA \& Lin}} > \mu_{\text{PLA \& Lin \& Papier}}$
Module initial de traction (E_i)	$\sigma_{\text{PLA \& Lin}} < \sigma_{\text{PLA \& Lin \& Papier}}$	Test d'égalité des espérances: deux observations de variances différentes	$\mu_{\text{PLA \& Lin}} < \mu_{\text{PLA \& Lin \& Papier}}$
Module de traction (E)	$\sigma_{\text{PLA \& Lin}} = \sigma_{\text{PLA \& Lin \& Papier}}$	Analyse de variance à un facteur	$\mu_{\text{PLA \& Lin}} < \mu_{\text{PLA \& Lin \& Papier}}$
Intersection des pentes E et E_i	$\sigma_{\text{PLA \& Lin}} < \sigma_{\text{PLA \& Lin \& Papier}}$	Test d'égalité des espérances: deux observations de variances différentes	$\mu_{\text{PLA \& Lin}} = \mu_{\text{PLA \& Lin \& Papier}}$

Selon un seuil de signification de 5%, on ne peut pas affirmer qu'il y a une différence significative entre les variabilités des résultats de contraintes et de modules de traction. L'hypothèse statistique d'égalité est donc retenue. Toutefois, on peut affirmer que la variabilité du module initial de traction et de l'intersection des pentes E et E_i est inférieure pour le composite PLA & lin.

Une analyse de variance à un facteur fut effectuée afin d'évaluer si la couche de papier influence la moyenne des contraintes et des modules de traction. Un test d'égalité des espérances pour variances différentes fut pour sa part réalisé sur les résultats du module initial de traction et sur l'intersection des pentes E et E_i . Selon le seuil de signification de 5%, on peut affirmer avec confiance que la couche de papier influence négativement la moyenne de la contrainte de

traction et positivement les deux modules de traction. En ce qui a trait à l'intersection des pentes E_i et E , l'influence de la couche de papier est considérée négligeable puisqu'on ne peut pas distinguer les deux moyennes.

3.1.1.6 Comparaison des propriétés spécifiques en traction

Une comparaison des propriétés spécifiques en traction des deux types de composites avec celles de différents matériaux est présentée au Tableau 12. Les composites PLA-Lin et PLA-Lin-Papier ont des contraintes spécifiques équivalentes au tissé de fibre de verre. Les valeurs obtenues sont également doublement supérieures à celles de l'aluminium. Le module spécifique quant à lui dépasse légèrement celui du tissé en verre mais demeure inférieur à celui de l'aluminium. Les propriétés spécifiques demeurent cependant en dessous de celle de l'unidirectionnel de verre. La similarité des propriétés spécifiques des composites de cette étude avec les propriétés du composite en verre tissé et celle de l'aluminium démontre que ces composites biodégradables et bio-sourcés peuvent faire concurrence à leurs homologues synthétiques.

Tableau 12: Comparaison des propriétés spécifiques

Matériaux	Pourcentage volumique de fibres	Masse volumique	Contrainte spécifique	Module spécifique	Réf.
	Vf	ρ	σ/ρ	E/ ρ	
	%	g/cm ³	MPa·cm ³ ·g ⁻¹	GPa·cm ³ ·g ⁻¹	
PLA & Lin	45	1.34	252.26	14.95	
PLA & Lin & Papier	44 Lin, 10 Papier	1.45	217.95	15.00	
Époxy & UD verre E	55	1.97	578.68	20.81	[28]
Époxy & Tissé verre E	43.0 - 50	1.75 - 1.97	227.90 - 278.17	12.69 - 13.89	[28, 55]
Aluminium 6061-T6	-	2.70	114.82	25.52	[27]

Outre le PLA, plusieurs matrices peuvent être utilisées avec la fibre de lin afin d'obtenir un composite partiellement biodégradable. Une comparaison de plusieurs formulations et de leurs propriétés en traction est présentée au Tableau 13. Une représentation graphique de la contrainte ultime en fonction du pourcentage volumique de fibres démontre qu'à pourcentage similaire, le composite PLA & Lin offre une résistance supérieure (Figure 34a). Quant au module d'élasticité, les composites PLA & lin se classent dans la moyenne (Figure 34b).

La contrainte ultime est parmi les meilleures et le module d'élasticité dans la moyenne pour les deux formulations de cette étude lorsqu'on les compare aux composites à matrice époxy ou polyester (Figure 34c). Les propriétés élevées du composite à base de PLA et lin permettraient de privilégier l'utilisation de ce composite pour des applications à charge modérée, à température ambiante et où l'on souhaiterait éventuellement pouvoir éliminer le matériau par biodégradation.

Tableau 13: Comparaison des contraintes ultimes et modules d'élasticité avec ceux tirés de la littérature

Matériaux	Procédé de moulage	Vf	σ	E	Réf.
		(%)	(MPa)	(GPa)	
PLA & Lin UD	Compression	44.4	339.0 \pm 22	19.6 \pm 1.3	
PLA & Lin UD & Papier	Compression	44 Lin, 10 Papier	316.7 \pm 13	20.80 \pm 0.9	
PP & Lin UD	Compression	51	320.7 \pm 16.1	28.2 \pm 1.4	[47]
PP & Lin UD	Compression	40	71.20	5.8	[56]
PP & Lin UD	Calandrage	40	143.4	7.34	[48]
Polyester & Lin UD	Compression	57.6	304	29.9	[50]
Époxy & Lin UD	Compression	65	353 \pm 12	33.6 \pm 4.1	[57]
Époxy & Lin UD	Pré-imprégnés	48	268 \pm 26	32 \pm 1	[58]
Époxy & Lin UD	Pré-imprégnés	44	259	26.3	[59]
Époxy & Lin UD	Compression	40	328 \pm 18	22.5 \pm 1.5	[60]
Époxy & Lin UD	Sac sous vide	33.5	153.6 \pm 15	15.97 \pm 1.3	[7]
Époxy & Lin UD & Papier	Sac sous vide	30.7 Lin, 15.7 Papier	173.1 \pm 8.3	12.72 \pm 0.8	[7]
Époxy & Lin UD	Imprégnation manuelle et compression	20	127 \pm 14	16.7 \pm 3.7	[61]
Époxy & Lin UD	RTM	32	210 \pm 25	15.0 \pm 2.7	[62]
Époxy & Lin UD	RTM	32	132	15	[63]
Époxy & Lin UD	RTM	28	160	15	[64]
Acrodur & Lin UD	Pré-imprégnés	35	96.0 \pm 11	18.0 \pm 1.0	[65]

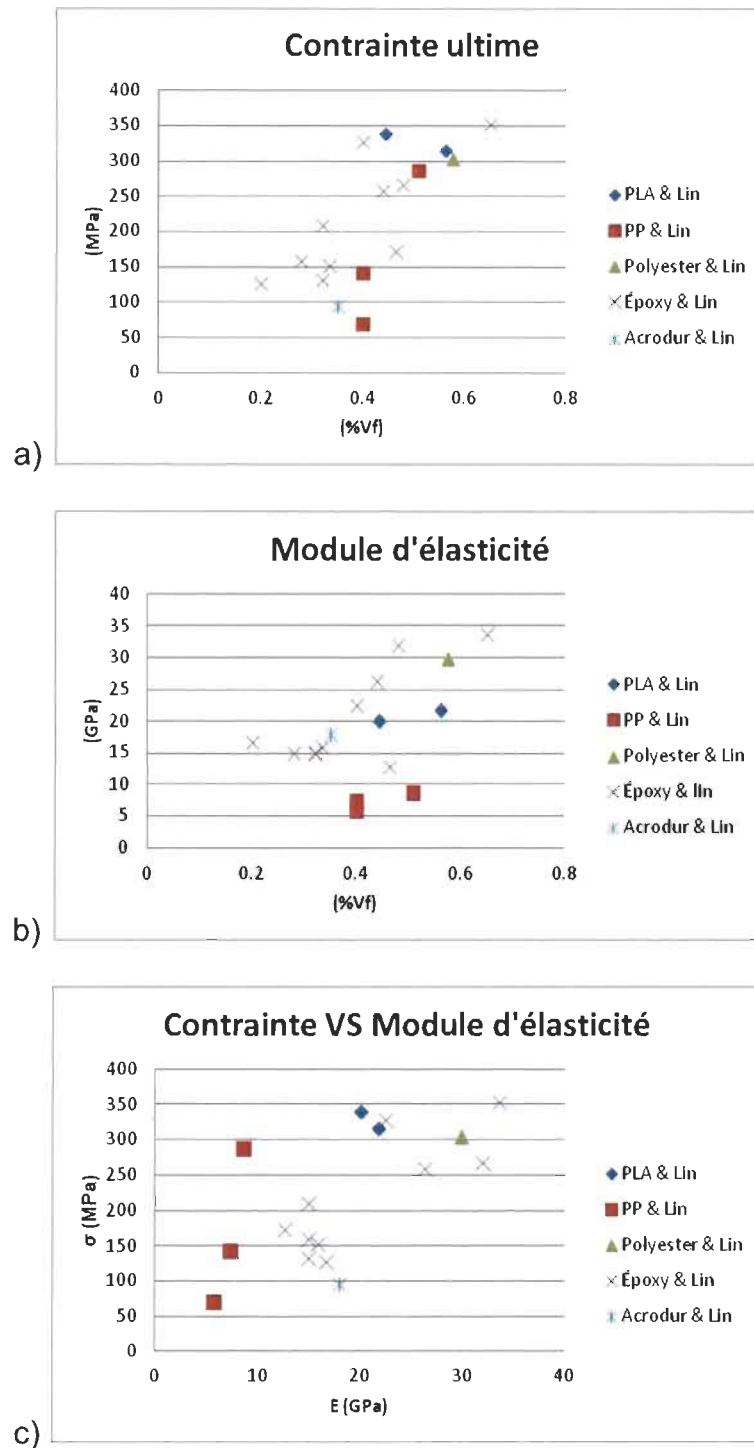


Figure 34: Représentation des propriétés en traction de plusieurs composites de lin UD avec différentes résines.

3.1.2 Propriétés en flexion

La contrainte ultime en flexion et le module de flexion des deux composites sont comparés à ceux du PLA seul à la Figure 35.

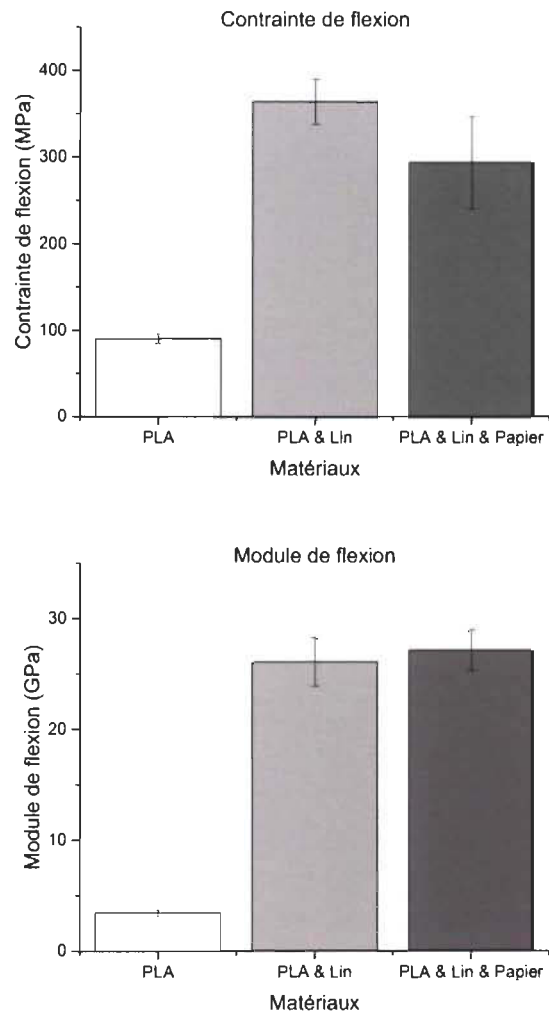


Figure 35: Contraite et module de flexion obtenus pour le PLA seul et les composites PLA-lin-papier et PLA-lin

La contrainte ultime en flexion du composite en lin est fortement supérieure à la contrainte du PLA seul par un facteur de 4 (363 / 90 MPa) avec une augmentation de l'écart type par un facteur de 5 (26 / 5 MPa). Le module de flexion suit la même tendance avec une augmentation par un facteur de 7 (26 / 3.4 GPa) et par un facteur de 8 (2.2 / 0.27 GPa) pour l'écart type. La contrainte ultime du composite en lin est 20% (292 / 363 MPa) supérieure à celle du composite en lin et papier et son écart type est 36% moins élevé (26 / 41 MPa). De par la nature de l'essai de flexion, les couches externes de l'échantillon sont toujours plus sollicitées que le cœur. Des défauts présents dans les couches externes, possiblement causés par une interface plus faible entre la couche de lin et de papier, pourraient avoir contribué à l'augmentation de la variabilité de la contrainte ultime. Cette hypothèse devra cependant être vérifiée. En ce qui concerne les modules de flexion, la proximité des moyennes et la variabilité ne permettent pas de les différencier. En effet, un test d'égalité des variances avec un seuil de signification de 5% exclue l'hypothèse que les variances soient différentes. Une analyse de variance à un facteur et à un seuil de signification de 5% exclut l'hypothèse que les moyennes soient, hors de tout doute, différentes (Tableau 14, Annexe F). L'alignement des fibres est ce qui rend les deux composites aussi résistants en flexion. En comparaison, Alimuzzaman et coll. [46] ont obtenu une contrainte maximale de 138.5 MPa pour un module de 7.9 GPa avec un composite en fibres longues de lin sous forme de mat et PLA.

Tableau 14: Résultats des tests d'égalité des variances et moyennes pour les essais en flexion

Valeur	Résultats du test d'égalité des variances	Type d'analyse des moyennes	Résultats de l'analyse de moyenne
Contrainte de flexion	$\sigma_{\text{PLA \& Lin}} < \sigma_{\text{PLA \& Lin \& Papier}}$	Test d'égalité des espérances: deux observations de variances différentes	$\mu_{\text{PLA \& Lin}} > \mu_{\text{PLA \& Lin \& Papier}}$
Module de flexion	$\sigma_{\text{PLA \& Lin}} = \sigma_{\text{PLA \& Lin \& Papier}}$	Analyse de variance à un facteur	$\mu_{\text{PLA \& Lin}} = \mu_{\text{PLA \& Lin \& Papier}}$

3.1.3 Propriétés en flexion – éprouvettes courtes

Afin d'évaluer la résistance au cisaillement, de courtes éprouvettes ont été soumises à un essai de flexion à trois points sur appuis rapprochés. La condition d'arrêt retenue pour tous les essais fut une perte de charge de 30% car aucune rupture en deux pièces ni déplacement supérieur à l'épaisseur de l'éprouvette ne furent observés (Figure 36).

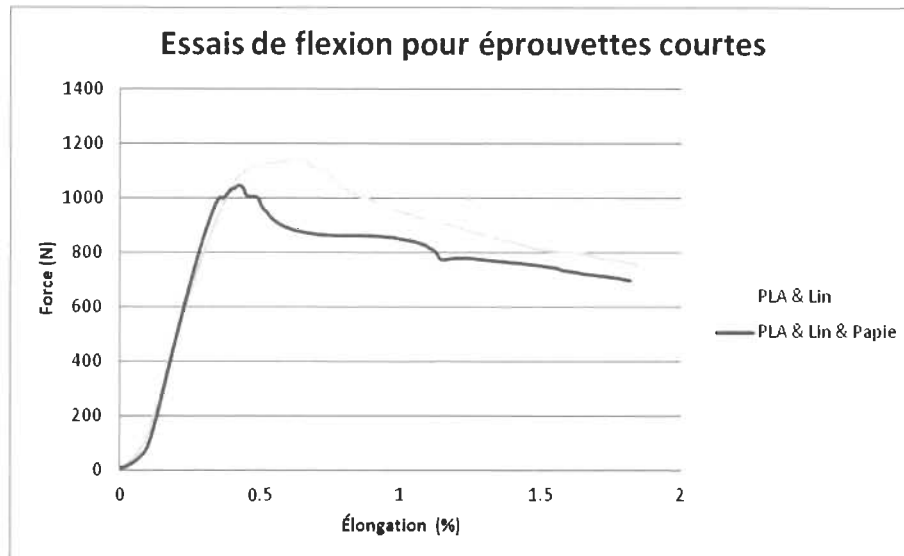


Figure 36: Courbes de flexion pour éprouvettes courtes

Le mode de rupture des deux types de composite fut une déformation inélastique et aucun délaminage ne fut observé (Figure 38). Les contraintes calculées ne peuvent donc pas être directement associées aux propriétés en cisaillement. Tout comme pour les essais de flexion, la résistance en flexion (calculée à l'aide de l'équation 3) des éprouvettes courtes en PLA & lin (26.00 ± 0.82) est supérieure à celle des éprouvettes avec papier (22.75 ± 0.78) (Figure 37). L'absence de rupture par cisaillement dans les deux formulations pourrait indiquer que lors du moulage, le PLA a bien atteint le centre des renforts, sans quoi la rupture aurait dû apparaître à l'endroit où les fibres auraient été moins imprégnées. Les porosités présentes dans un composite [66] peuvent provenir de la fibre (lumen), de l'interface fibre/matrice, de l'imprégnation du renfort ou de la matrice (bulles). Il se peut qu'à un niveau de porosité donné, combiné à la

présence de fibres naturelles peu rigides dans le sens radial [67] et d'une matrice ductile, la compression directe (sous les appuis) génère d'autres modes de ruptures comme le flambement ou la rupture de fibres en tension due à la compression élastique sous les appuis [68]. Dans ce cas, la porosité de la fibre de lin et le caractère ductile de la matrice seraient en partie responsable de l'absence de délaminage dans les essais de flexion.

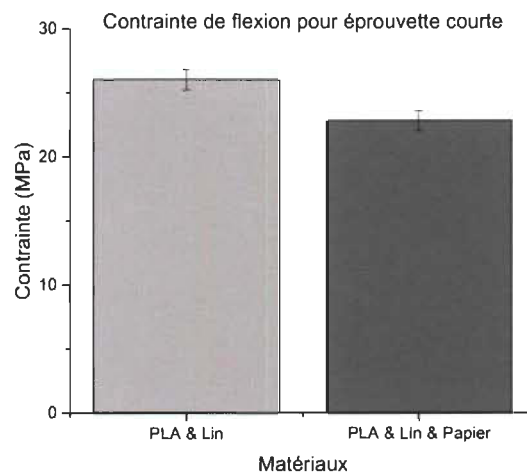


Figure 37: Contrainte de flexion pour éprouvette courte



Figure 38: Éprouvettes courtes après essais de flexion

3.1.4 Propriétés à l'impact

L'énergie d'impact des deux composites est comparée avec le PLA seul et les résultats sont présentés à la Figure 40. L'énergie d'impact nécessaire pour briser le composite en lin est de loin supérieure à celle nécessaire pour briser le PLA et ce par un facteur de 55 ($880 / 15 \text{ J/m}$). Le mode de rupture observé pour toutes les éprouvettes est la rupture et déchaussement des fibres. Aucun délaminage ne fut observé lors des essais et toutes les éprouvettes composites ont rompu (Figure 39).

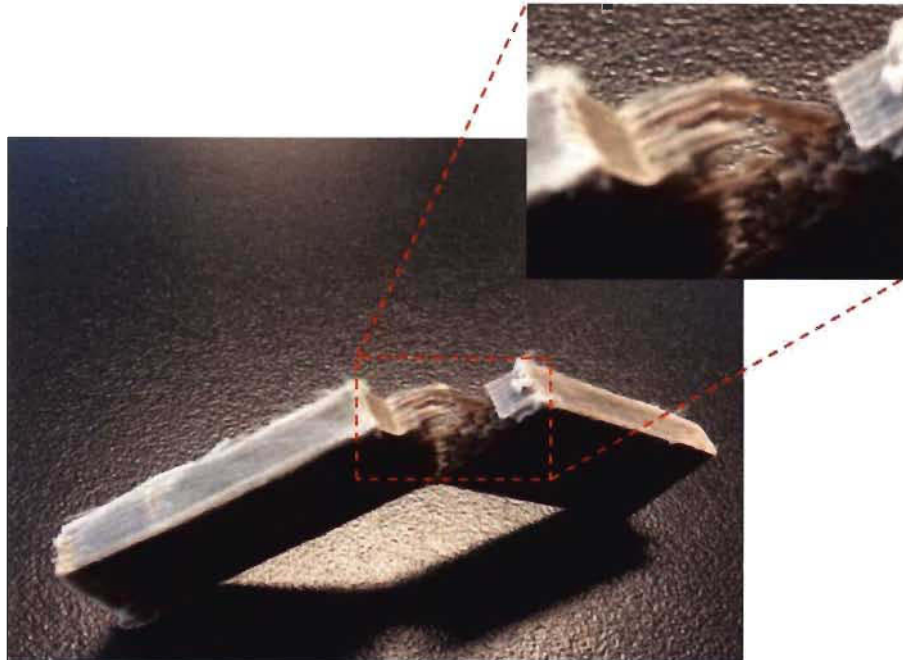


Figure 39: Éprouvette d'impact du composite PLA & lin & papier après essai

Le composite en lin et papier surpasse lui aussi le PLA même si le résultat est 27% inférieur à celui du composite en lin. Un test d'égalité des variances au seuil de signification de 5% exclue l'hypothèse que les variances des composite PLA & lin et PLA & lin & papier soient égales (Tableau 15, Annexe F.). L'écart type de l'énergie d'impact du composite en lin et papier est donc inférieur à celui du composite en lin par un facteur de 2.2 ($121 / 54 \text{ j/m}$).

Tableau 15: Résultats des tests d'égalité des variances et moyennes pour les essais d'impact

Valeur	Résultats du test d'égalité des variances	Type d'analyse des moyennes	Résultats de l'analyse de moyenne
Énergie d'impact	$\sigma_{\text{PLA \& Lin}} > \sigma_{\text{PLA \& Lin \& Papier}}$	Test d'égalité des espérances: deux observations de variances différentes	$\mu_{\text{PLA \& Lin}} > \mu_{\text{PLA \& Lin \& Papier}}$

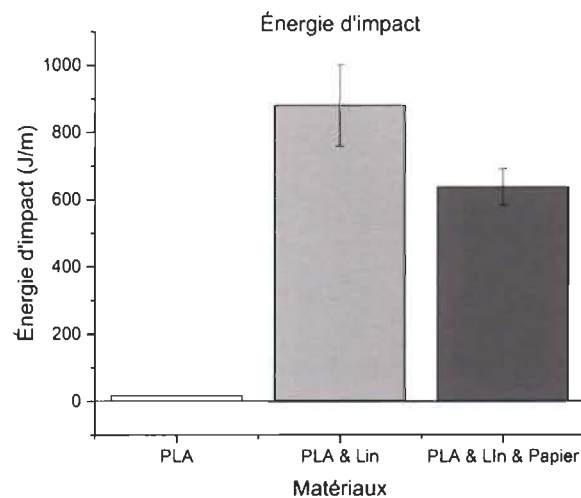


Figure 40: Énergie d'impact

3.2 Propriétés thermiques

3.2.1 DSC

La température de transition vitreuse (T_g), la température de fusion (T_f) et l'enthalpie de fusion (ΔH_m^0) sont présentés au Tableau 16 pour le PLA avant et après moulage et pour les deux composites. En prenant comme référence le polymère totalement cristallin, et guidé par des publications antérieures [36, 69], le degré de cristallinité (χ %) fut calculé (Annexe D) avec l'équation :

$$\chi = \Delta H_m / \Delta H_m^0 \quad (4)$$

Où :

ΔH_m est l'enthalpie expérimentale et

ΔH_m^0 est l'enthalpie de fusion du PLA 100% cristallin (93.7 J/g).

Le PLA seul fut évalué avec le DSC avant et après le moulage et les deux composites furent testés après moulage. Les degrés de cristallinité du PLA seul avant et après moulage sont de 25% et 54%, respectivement. Les degrés de cristallinité des composites en PLA & lin et PLA & lin & papier sont de 24% et 26%. Cette baisse du taux de cristallinité pourrait être causée par le fait que la fibre de lin est plus amorphe que le PLA [46]. De façon générale, une augmentation du degré de cristallinité est caractérisée par une augmentation des propriétés mécaniques [70].

Tableau 16: Températures et taux de cristallinité

Matériaux	Température de transition vitreuse	Température de fusion	Enthalpie de fusion	Taux de cristallinité
	°C	°C	J/g	%
PLA avant moulage	63.35	167.22	23.31	25.1
PLA après moulage	63.88	167.08	50.41	54.2
PLA & lin	60.36	166.78	23.60	25.4
PLA & lin & papier	61.72	166.70	24.89	26.8

3.2.2 TGA

La température de début de dégradation, de dégradation maximale, de dégradation finale et les résidus de carbonisation à 800°C sont énumérés au Tableau 17. La température de début de dégradation du PLA est la plus élevée ce qui suggère que l'ajout de fibres de lin réduit légèrement la stabilité thermique du composite c'est à dire sa résistance à la dégradation à haute température. Cependant, l'ajout du papier hausse légèrement la température et donne une stabilité presque équivalente à celle du PLA seul. L'ajout de fibres de lin a aussi un effet sur le pourcentage de résidus de carbonisation. En effet, le lin hausse drastiquement ce pourcentage de 1% à 9% mais en contre partie, l'ajout de fibres de papier diminue cette hausse pour un pourcentage de 7%. Ceci indique que le papier comporte moins de matière non-cellulosique que le lin [71]. En ce qui concerne les essais isothermes, où le lin et lin & papier furent

chauffés à 180 °C pendant 20 min, aucune différence notable ne fut observée, indiquant que la durée et la température du procédé de moulage sont adéquates pour ces fibres [60, 72, 73].

Tableau 17: Températures de dégradations et résidus

Matériaux	Température de début de dégradation	Température de dégradation maximale	Température de dégradation finale	Résidus de carbonisation
	°C	°C	°C	%
Lin	336	365	381	16
Lin & Papier	341	364	381	10
PLA	344	374	385	1
PLA & Lin	324	354	377	9
PLA & Lin & Papier	338	364	381	7

3.2.3 TDC

La température de déflexion sous charge est un paramètre important pour évaluer le temps de refroidissement nécessaire pour démouler une pièce sans trop la déformer (pièce suffisamment rigide à la température de démoulage). Les températures requises pour plier de 250 μm les éprouvettes soumises à une charge de 0.46 MPa sont énumérées au Tableau 18. La température de fléchissement des deux composites est largement supérieure à celle du PLA par un facteur de 2.9. Les deux composites ont des températures similaires qui correspondent à la température de fusion du PLA. Ces valeurs sont similaires à celles obtenues par Huda et coll. [34] pour un composite polypropylène-verre à

fibres courtes 70% en poids de fibres), lequel atteint 172.9 °C. Cette proximité des TDC renforce l'idée que le composite lin-papier pourrait remplacer les homologues non-biodégradables pour une utilisation à des températures élevées.

Tableau 18: Température de fléchissement

Composite	HDT (°C)
PLA	58
PLA & Lin	169
PLA & Lin & Papier	168
PP & Verre [34]	172.9

Chapitre 4 - Conclusions

4.1 Retour sur les objectifs

Un premier objectif de ce travail consistait à combler le vide d'informations relatif aux composites à fibres longues et unidirectionnelles de lin et PLA en présentant les résultats d'essais mécaniques et thermiques. Dans cette étude, deux types de renforts, un en lin et un en lin & papier furent fabriqués, caractérisés et moulés avec du PLA par compression. Les deux composites ont été soumis à des essais de traction, flexion et impact. Leurs propriétés thermiques furent également évaluées.

Les résultats des essais de traction, flexion et impact démontrent que les deux composites sont largement plus résistants et rigides que la matrice PLA seule. Lors de l'essai de traction, le composite à fibre de lin présente une contrainte ultime supérieure à celle du lin & papier mais les modules sont inférieurs. Lors de l'essai de flexion, le composite à fibres de lin présente une contrainte ultime supérieure à celle du lin & papier. Leurs modules sont cependant comparables. Lors de l'essai de flexion sur éprouvettes courtes, aucun délaminage ne fut observé. Lors de l'essai d'impact, le composite en lin a atteint une énergie d'impact supérieure à celle du composite en lin et papier. La température de

fusion des deux composites correspond à celle du point de fusion du PLA ce qui favorise leurs utilisation à des températures élevées.

La comparaison des propriétés en tractions des composites en PLA & lin et PLA & lin & papier avec d'autres composites à fibre de lin met en évidence leur potentiel compte tenu de leur positionnement élevé par rapport à leurs homologues. Démontrant des propriétés presque équivalentes à celles observées avec un tissé de fibres de verre et époxy, ces deux composites bio-sourcés et biodégradables ont la capacité de concurrencer les matériaux synthétiques tant du point de vue mécanique qu'économique et ce, tout en contribuant à la valorisation des ressources primaires et industries locales.

Le deuxième objectif consistait à évaluer l'impact de la présence d'une couche de papier sur les moyennes et variabilités des propriétés mécaniques du composite. Bien que l'impact de la couche de papier sur la variabilité des propriétés mécaniques fût difficilement évaluable compte tenu de l'indissociabilité des variances, une réduction marquée de la variabilité de l'énergie d'impact du composite PLA & lin & papier fut observée. La couche de papier fait augmenter la variabilité du module initial en traction et du module de flexion. La couche de papier affecte négativement la résistance mécanique (traction, flexion, impact) mais en revanche elle affecte positivement le module d'élasticité. La couche de papier contribue également de façon positive à la stabilité thermique du composite.

4.2 Recommandations

L'évaluation plus approfondie des niveaux de porosité présents dans les deux types composites pourrait aider à mieux comprendre les phénomènes qui font fluctuer l'influence de la couche papier sur la variabilité. Des essais sur des composites à différent taux de fibres de lin et de papier permettraient également d'étudier l'influence du pourcentage volumique des fibres sur les propriétés mécaniques. L'utilisation d'une technique d'imagerie plus précise offrirait un meilleur aperçu visuel des constituants du composite. Casser un échantillon de composite préalablement refroidit à l'azote liquide produirait probablement un faciès plus facile et plus naturel à observer au microscope que la technique de sablage actuel. Avec ces données additionnelles, il serait alors possible d'ajuster la composition du renfort et du composite afin d'optimiser la valeur et même la robustesse d'un ou de plusieurs paramètres mécaniques du composite.

Références

1. Dittenber, D.B. and H.V.S. Gangarao, *Critical review of recent publications on use of natural composites in infrastructure*. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2012. **43**(8): p. 1419-1429.
2. LUCINTEL, *Opportunities in Natural Fiber Composites*. 2011.
3. Ahmad, F., H.S. Choi, and M.K. Park, *A review: Natural fiber composites selection in view of mechanical, light weight, and economic properties*. Macromolecular Materials and Engineering, 2014.
4. groop, R.v.e.s., *The technology roadmap for plant/crop-based renewable resources 2020*. 1999.
5. LUCINTEL, *Natural Fiber Composites Market Trend and Forecast 2011-2016*. 2011.
6. FAOSTAT, *World flax seed production , world pulp and paper production*. Food and agriculture organization of the United Nations, statistics division, 2012.
7. Lebrun, G., A. Couture, and L. Laperrière, *Tensile and impregnation behavior of unidirectional hemp/paper/epoxy and flax/paper/epoxy composites*. Composite Structures, 2013. **103**: p. 151-160.
8. Md. Tahir, P., et al., *Retting process of some bast plant fibres and its effect on fibre quality: A review*. BioResources, 2011. **6**(4): p. 5260-5281.
9. Biagiotti, J., D. Puglia, and J.M. Kenny, *A review on natural fibre-based composites - Part I: Structure, processing and properties of vegetable fibres*. Journal of Natural Fibers, 2004. **1**(2): p. 37-68.
10. Ulrich, A., *Challenges to Producing Flax in Canada*. Saskatchewan Flax Development Comission.
11. Baley, C. and A. Bourmaud, *Average tensile properties of French elementary flax fibers*. Materials Letters, 2014. **122**: p. 159-161.
12. Charlet Karine, J.J.-P., Gomina Moussa, Baley Christophe, Bizet Laurent, Bréard Joël, *Morphology and mechanical behavior of a natural composite: the flax fiber*. 16th International Conference on Composite Materials, 2007.
13. Yan, L., N. Chouw, and K. Jayaraman, *Flax fibre and its composites - A review*. Composites Part B: Engineering, 2014. **56**: p. 296-317.

14. Hughes, M., *Defects in natural fibres: Their origin, characteristics and implications for natural fibre-reinforced composites*. Journal of Materials Science, 2012. **47**(2): p. 599-609.
15. Bos, H.L. and A.M. Donald, *In situ ESEM study of the deformation of elementary flax fibres*. Journal of Materials Science, 1999. **34**(13): p. 3029-3034.
16. Andersons, J., E. Poriķe, and E. Sparņiņš, *The effect of mechanical defects on the strength distribution of elementary flax fibres*. Composites Science and Technology, 2009. **69**(13): p. 2152-2157.
17. Lilholt, H. and J.M. Lawther, *1.10 - Natural Organic Fibers*, in *Comprehensive Composite Materials*, A.K. Zweben, Editor. 2000, Pergamon: Oxford. p. 303-325.
18. Mohanty, A.K., M. Misra, and G. Hinrichsen, *Biofibres, biodegradable polymers and biocomposites: An overview*. Macromolecular Materials and Engineering, 2000. **276-277**: p. 1-24.
19. Baley, C., et al., *Influence of chemical treatments on surface properties and adhesion of flax fibre-polyester resin*. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2006. **37**(10): p. 1626-1637.
20. Pillin, I., et al., *Could oleaginous flax fibers be used as reinforcement for polymers?* Industrial Crops and Products, 2011. **34**(3): p. 1556-1563.
21. Lefeuvre, A., et al., *Tensile properties of elementary fibres of flax and glass: Analysis of reproducibility and scattering*. Materials Letters, 2014. **130**: p. 289-291.
22. Baley, C., *Analysis of the flax fibres tensile behaviour and analysis of the tensile stiffness increase*. Composites - Part A: Applied Science and Manufacturing, 2002. **33**(7): p. 939-948.
23. Aslan, M., et al., *Strength variability of single flax fibres*. Journal of Materials Science, 2011. **46**(19): p. 6344-6354.
24. Lefeuvre, A., et al., *A study of the yearly reproducibility of flax fiber tensile properties*. Industrial Crops and Products, 2013. **50**: p. 400-407.
25. Charlet, K., et al., *Tensile deformation of a flax fiber*. Procedia Engineering, 2009. **1**(1): p. 233-236.
26. Bledzki, A.K. and J. Gassan, *Composites reinforced with cellulose based fibres*. Progress in Polymer Science (Oxford), 1999. **24**(2): p. 221-274.
27. www.matweb.com.

28. Daniel, I.M. and O. Ishai, *Engineering mechanics of composite materials*. Oxford university press, 2006.
29. Hardy, R., *L'exploitation forestière dans l'histoire du Québec et de la Mauricie*. Histoire Québec, 2001. **6**(3): p. 6-7.
30. Bourgeois, V., *La capitale mondiale du papier journal*. Cap-aux-Diamants : la revue d'histoire du Québec, 2009. **98**: p. 19-21.
31. Campbell, M.D. and R.S.P. Coutts, *Wood fibre-reinforced cement composites*. Journal of Materials Science, 1980. **15**(8): p. 1962-1970.
32. Blomstedt, M., *Modification of Cellulosic Fibers by Carboxymethyl Cellulose – Effects on Fiber and Sheet Properties*. Doctoral dissertations of the former Helsinki University of Technology (TKK) and Aalto University Schools of Technology, 2007.
33. Huda, M.S., et al., *Wood-fiber-reinforced poly(lactic acid) composites: Evaluation of the physicomechanical and morphological properties*. Journal of Applied Polymer Science, 2006. **102**(5): p. 4856-4869.
34. Huda, M.S., et al., *Chopped glass and recycled newspaper as reinforcement fibers in injection molded poly(lactic acid) (PLA) composites: A comparative study*. Composites Science and Technology, 2006. **66**(11-12): p. 1813-1824.
35. Roberts, J.C., *The Chemistry of Paper*. 1996: Royal Society of Chemistry.
36. Garlotta, D., *A literature review of poly(lactic acid)*. Journal of Polymers and the Environment, 2001. **9**(2): p. 63-84.
37. Bajpai, P.K., I. Singh, and J. Madaan, *Development and characterization of PLA-based green composites: A review*. Journal of Thermoplastic Composite Materials, 2014. **27**(1): p. 52-81.
38. NOVA, *Press release : Growth in PLA bioplastics: a production capacity of over 800,000 tonnes expected by 2020*. NOVA Institute, 2012.
39. Puglia, D., J. Biagiotti, and J.M. Kenny, *A review on natural fibre-based composites - Part II: Application of natural reinforcements in composite materials for automotive industry*. Journal of Natural Fibers, 2004. **1**(3): p. 23-65.
40. Oksman, K., M. Skrifvars, and J.F. Selin, *Natural fibres as reinforcement in polylactic acid (PLA) composites*. Composites Science and Technology, 2003. **63**(9): p. 1317-1324.
41. Graupner, N., et al., *Fibre/matrix adhesion of cellulose fibres in PLA, PP and MAPP: A critical review of pull-out test, microbond test and single fibre fragmentation test*

- results*. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2014. **63**(0): p. 133-148.
42. Le Duigou, A., et al., *A multi-scale study of the interface between natural fibres and a biopolymer*. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2014. **65**: p. 161-168.
 43. Coroller, G., et al., *Effect of flax fibres individualisation on tensile failure of flax/epoxy unidirectional composite*. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2013. **51**: p. 62-70.
 44. Le Duigou, A., P. Davies, and C. Baley, *Interfacial bonding of Flax fibre/Poly(l-lactide) bio-composites*. Composites Science and Technology, 2010. **70**(2): p. 231-239.
 45. Bax, B. and J. Müssig, *Impact and tensile properties of PLA/Cordenka and PLA/flax composites*. Composites Science and Technology, 2008. **68**(7-8): p. 1601-1607.
 46. Alimuzzaman, S., R.H. Gong, and M. Akonda, *Nonwoven polylactic acid and flax biocomposites*. Polymer Composites, 2013. **34**(10): p. 1611-1619.
 47. Madsen, B. and H. Lilholt, *Physical and mechanical properties of unidirectional plant fibre composites—an evaluation of the influence of porosity*. Composites Science and Technology, 2003. **63**(9): p. 1265-1272.
 48. Miao, M. and M. Shan, *Highly aligned flax/polypropylene nonwoven preforms for thermoplastic composites*. Composites Science and Technology, 2011. **71**(15): p. 1713-1718.
 49. Li, H. and M.M. Sain, *High stiffness natural fiber-reinforced hybrid polypropylene composites*. Polymer - Plastics Technology and Engineering, 2003. **42**(5): p. 853-862.
 50. Hughes, M., J. Carpenter, and C. Hill, *Deformation and fracture behaviour of flax fibre reinforced thermosetting polymer matrix composites*. Journal of Materials Science, 2007. **42**(7): p. 2499-2511.
 51. Lee, S.M. and S. Lee, *Handbook of Composite Reinforcements*. 1992: Wiley.
 52. Aveston, J. and A. Kelly, *Theory of multiple fracture of fibrous composites*. Journal of Materials Science, 1973. **8**(3): p. 352-362.
 53. 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.

54. Peijs, T., et al., *Thermoplastic composites based on flax fibres and polypropylene: Influence of fibre length and fibre volume fraction on mechanical properties*. Macromolecular Symposia, 1998. **127**: p. 193-203.
55. *Composite materials handbook*. US Department of defense handbook 2002. **2**.
56. Kannan, T.G., et al., *Effect of reinforcement on the mechanical and thermal properties of flax/polypropylene interwoven fabric composites*. Journal of Industrial Textiles, 2013. **42**(4): p. 417-433.
57. Martin, N., P. Davies, and C. Baley, *Comparison of the properties of scutched flax and flax tow for composite material reinforcement*. Industrial Crops and Products, 2014. **61**: p. 284-292.
58. Van de Weyenberg, I., et al., *Improving the properties of UD flax fibre reinforced composites by applying an alkaline fibre treatment*. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2006. **37**(9): p. 1368-1376.
59. Cherif, Z.E., et al., *Flax/epoxy prepreg: Effect of processing parameters on mechanical properties*. Materiaux et Techniques, 2012. **100**(5): p. 459-466.
60. Baley, C., et al., *Influence of drying on the mechanical behaviour of flax fibres and their unidirectional composites*. Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 2012. **43**(8): p. 1226-1233.
61. 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.
62. Oksman, K., et al., *Morphology and mechanical properties of unidirectional sisal-epoxy composites*. Journal of Applied Polymer Science, 2002. **84**(13): p. 2358-2365.
63. Oksman, K., *High quality flax fibre composites manufactured by the resin transfer moulding process*. Journal of Reinforced Plastics and Composites, 2001. **20**(7): p. 621-627.
64. Goutianos, S., et al., *Development of Flax Fibre based Textile Reinforcements for Composite Applications*. Applied Composite Materials, 2006. **13**(4): p. 199-215.
65. Khalfallah, M., et al., *Innovative flax tapes reinforced Acrodur biocomposites: A new alternative for automotive applications*. Materials & Design, 2014. **64**(0): p. 116-126.
66. Madsen, B., A. Thygesen, and H. Lilholt, *Plant fibre composites - porosity and volumetric interaction*. Composites Science and Technology, 2007. **67**(7-8): p. 1584-1600.

67. Baley, C., et al., *Transverse tensile behaviour of unidirectional plies reinforced with flax fibres*. Materials Letters, 2006. **60**(24): p. 2984-2987.
68. Whitney, J.M. and C.E. Browning, *On short-beam shear tests for composite materials*. Experimental Mechanics, 1985. **25**(3): p. 294-300.
69. Turner li, J.F., et al., *Characterization of drawn and undrawn poly-L-lactide films by differential scanning calorimetry*. Journal of Thermal Analysis and Calorimetry, 2004. **75**(1): p. 257-268.
70. Godinho, J., A.M. Cunha, and R.J. Crawford. *Property variations in polyethylene articles produced by a variety of moulding methods*. in *Proceedings of the 1997 55th Annual Technical Conference, ANTEC. Part 3 (of 3)*. 1997. Brookfield, CT, United States Toronto, Can: Soc of Plastics Engineers.
71. Soares, S., G. Camino, and S. Levchik, *Comparative study of the thermal decomposition of pure cellulose and pulp paper*. Polymer Degradation and Stability, 1995. **49**(2): p. 275-283.
72. Van De Velde, K. and E. Baetens, *Thermal and mechanical properties of flax fibres as potential composite reinforcement*. Macromolecular Materials and Engineering, 2001. **286**(6): p. 342-349.
73. Battegazzore, D., J. Alongi, and A. Frache, *Poly(lactic acid)-Based Composites Containing Natural Fillers: Thermal, Mechanical and Barrier Properties*. Journal of Polymers and the Environment, 2014. **22**(1): p. 88-98.

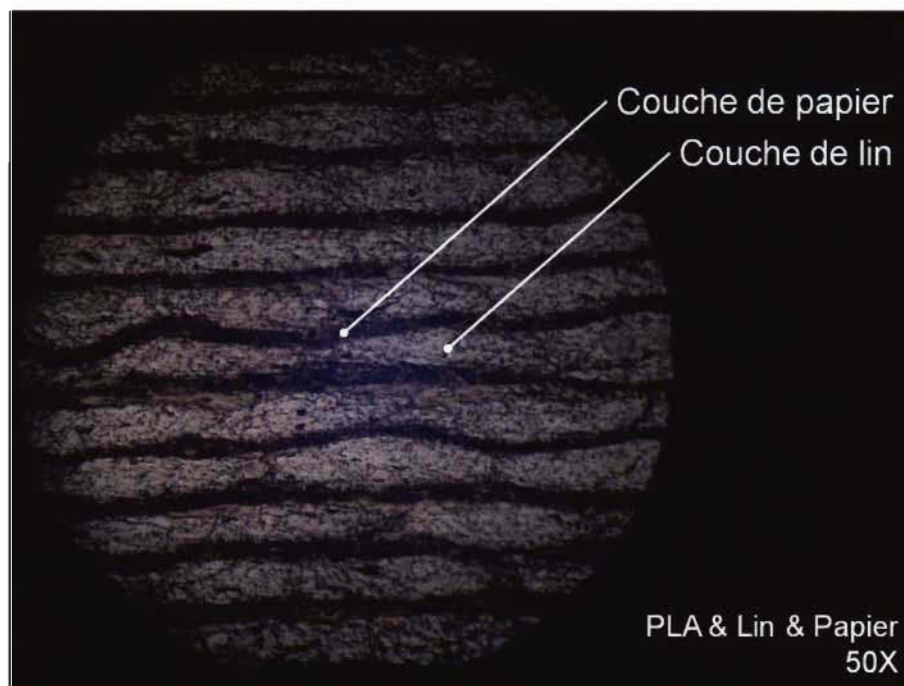
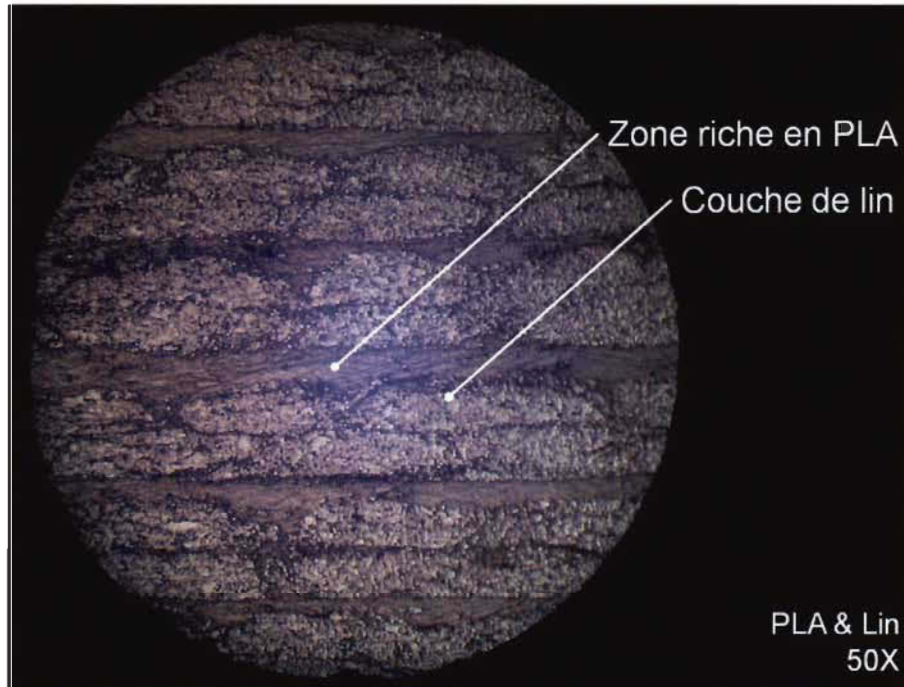
Annexe A - Procédure pour formette dynamique

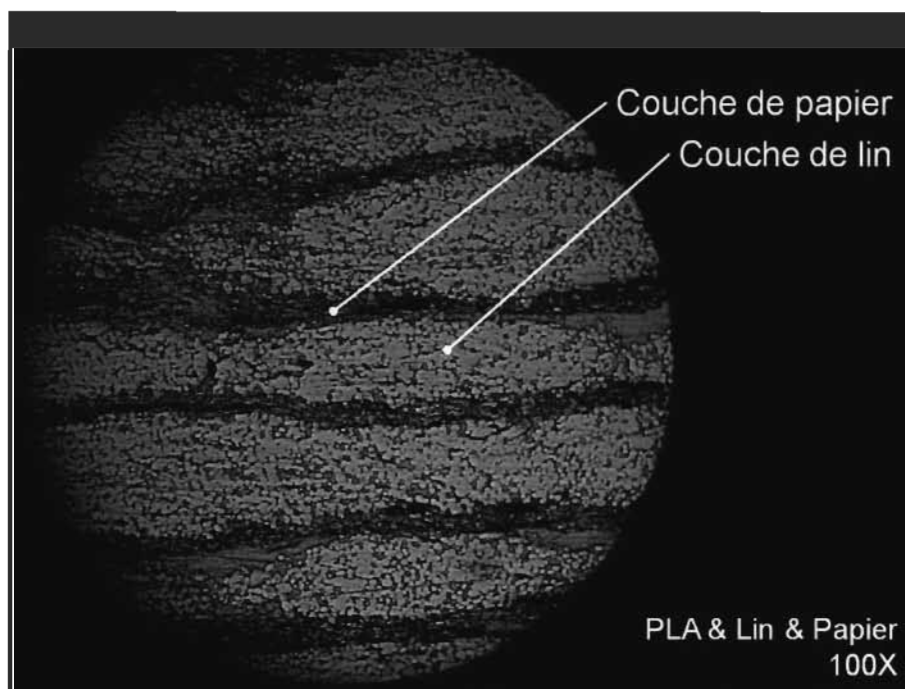
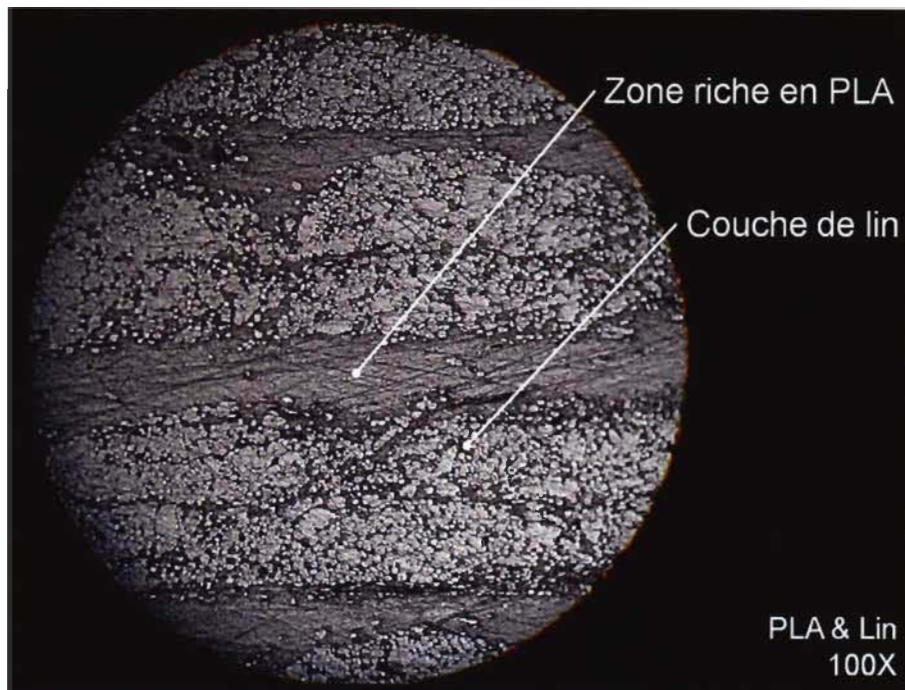
- La pâte humide et concentrée est diluée dans l'eau selon les proportions voulues, le mélange est ensuite versé dans le réservoir et maintenu homogène grâce à l'agitateur.
- Un feutre de formation, installé à l'intérieur du tambour, sert de surface de projection pour la feuille en devenir.
- La rotation du tambour est amorcée.
- Le tambour en rotation est arrosé d'eau afin de former un mur d'eau (soit une mince couche d'eau) qui recouvre le feutre grâce à la force centrifuge.
- Le mouvement de va-et-vient du bras de projection est ensuite amorcé et s'étend du bas du tambour jusqu'au haut de celui-ci.
- La pompe est démarrée afin de projeter la pâte de papier sur la surface d'eau recouvrant le feutre.
- Lorsque le volume de pâte est entièrement projeté, la pompe est arrêtée.
- Une manivelle contrôlant une lame située à l'extérieure du tambour rotatif est graduellement actionnée afin de retirer l'eau en la déviant vers un drain situé au centre de l'assemblage.
- Une fois l'eau évacuée, le tambour est arrêté par un frein actionné par une manivelle.
- Le feutre, maintenant couvert d'une mince couche de papier humide, est soigneusement retiré.

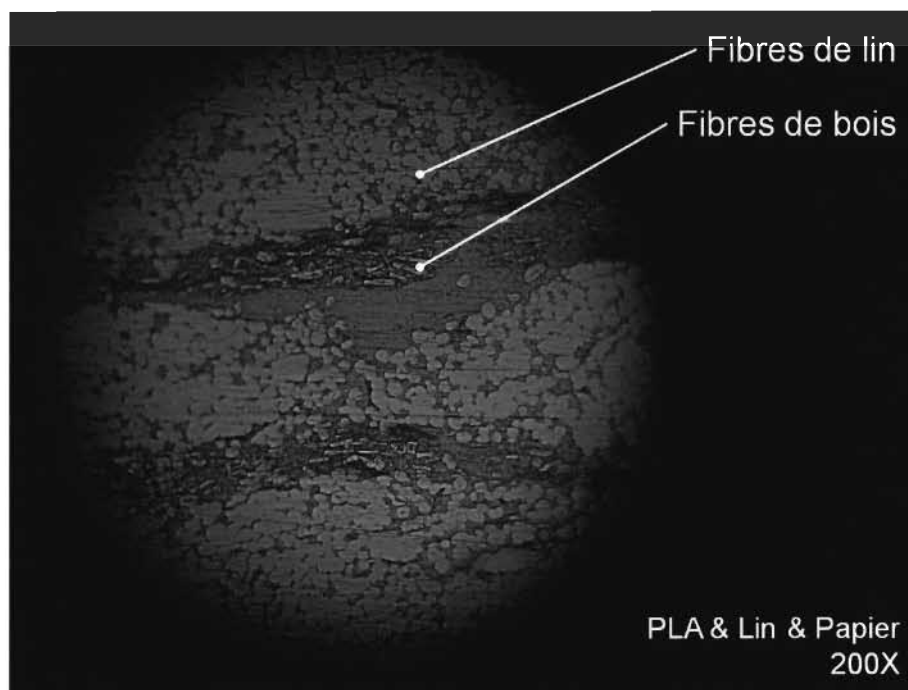
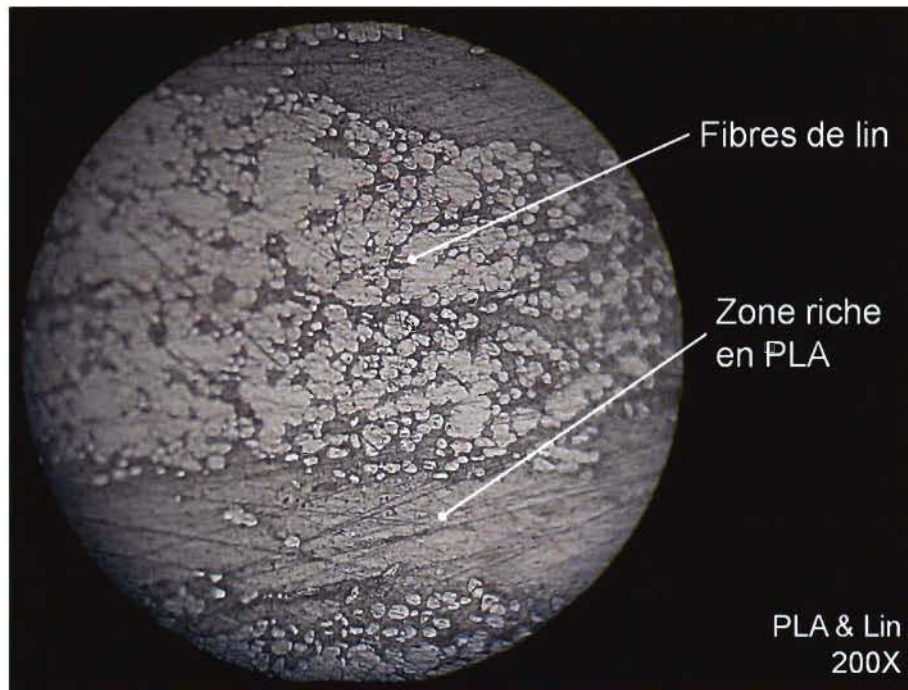
Annexe B - Procédure de pressage des renforts

- Le renfort humide provenant de la formette dynamique est retiré du feutre de formation et déposé sur une toile de formation et ensuite recouvert d'une autre toile de formation.
- L'empilement toile-renfort-toile est ensuite déposé sur un feutre de formation et recouvert d'un autre feutre afin de distribuer graduellement la pression des rouleaux sur le renfort.
- L'empilement est pressé une première fois à une pression de 0.5 bar à vitesse réduite.
- L'empilement est pressé une deuxième fois à une pression de 1 bar à vitesse réduite.
- L'empilement est pressé une dernière fois à une pression de 2 bars à vitesse réduite.

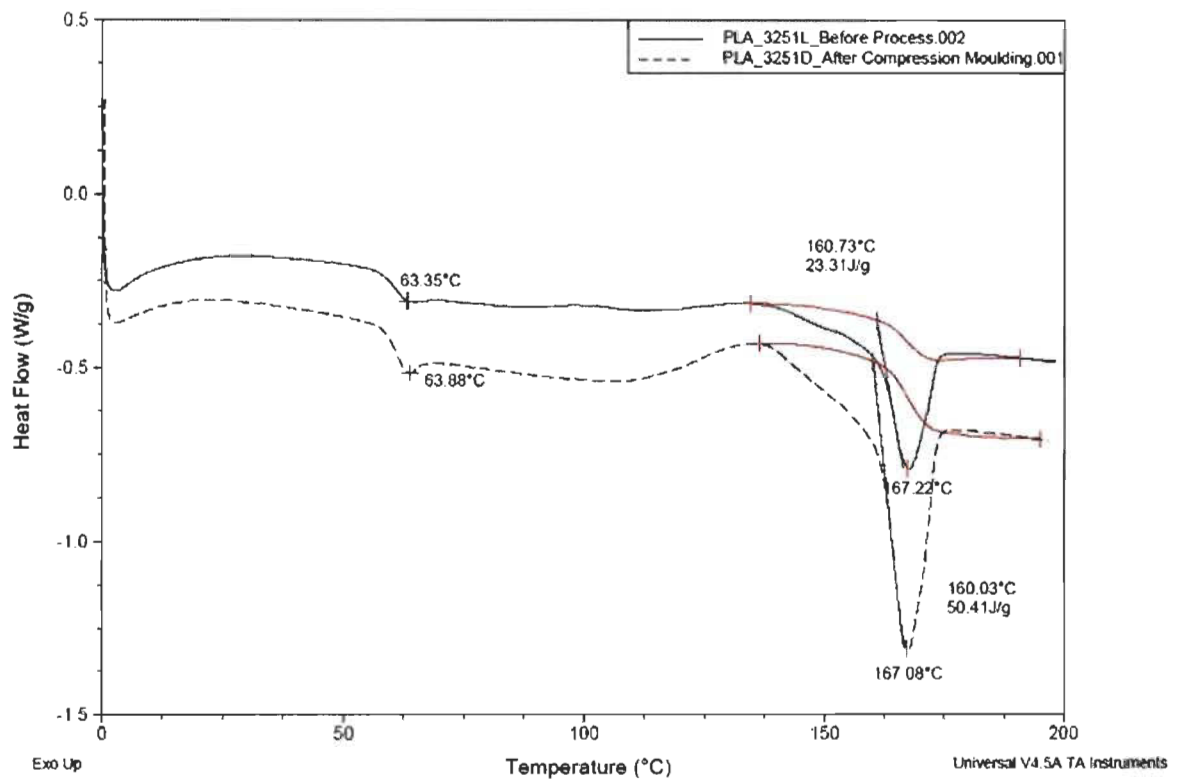
Annexe C - Micrographies







Annexe D - Calculs des taux de cristallinité



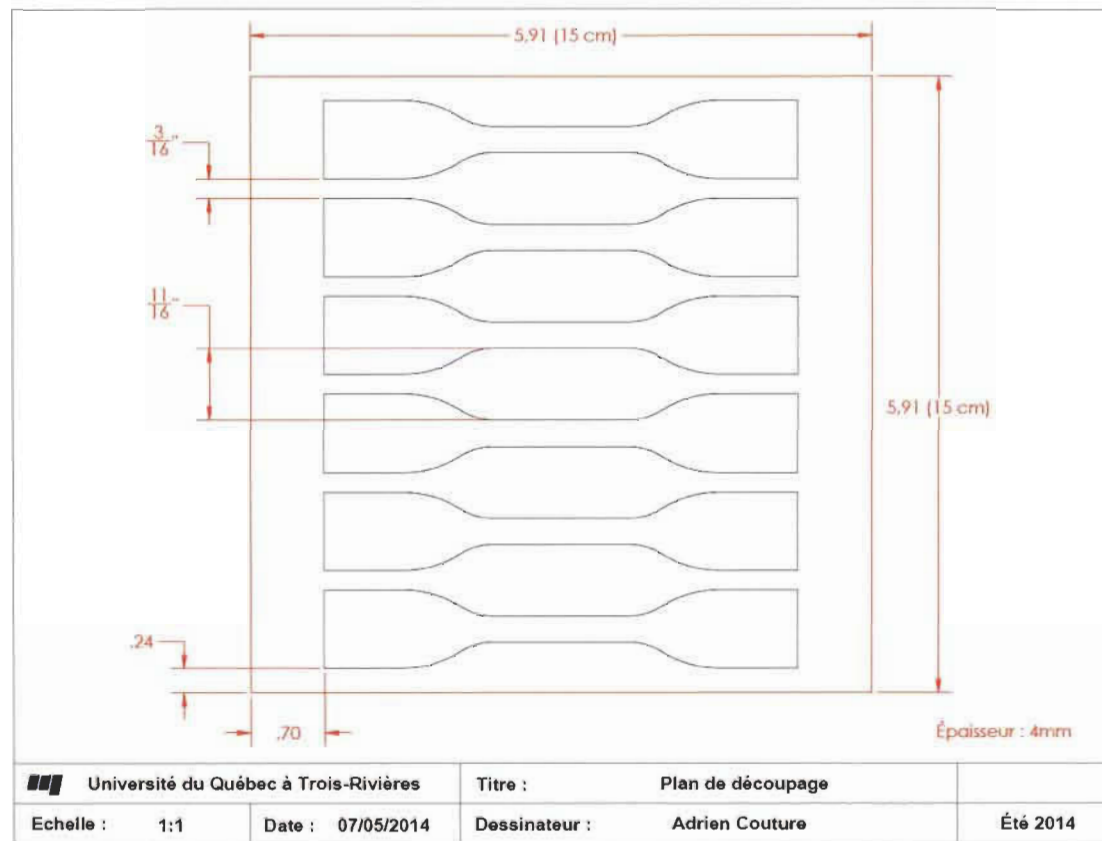
$$\chi = \frac{\Delta H_m}{\Delta H_m^0} \times 100\%$$

$$\Delta H_m^0 = 93,0 \text{ J/g}$$

$$\chi_{avant} = \frac{23,31}{93,0} \times 100\% = 25,1\%$$

$$\chi_{après} = \frac{50,41}{93,0} \times 100\% = 54,2\%$$

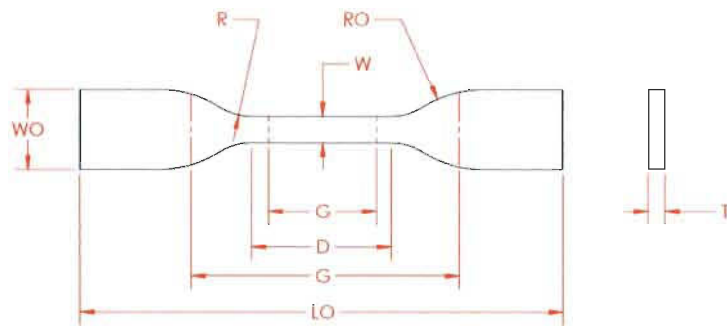
Annexe E : Plan de découpe des échantillons en traction



ASTM D638

Standard Test Method for Tensile Properties of Plastics

W - Width of narrow section : 0.25 in. (6 mm)
 L - Length of narrow section : 1.30 in. (33 mm)
 WO - Width overall : 0.75 in. (19 mm)
 LO - Length overall : 4.5 in. (115 mm)
 G - Gage length : 1.0 in. (25.4 mm)
 D - Distance between grips : 2.5 in. (65 mm)
 R - Radius of fillet : 0.56 in. (14 mm)
 RO - Outer radius : 1.0 in. (25 mm)
 T - Thickness : 4 in. (0.16 mm) or under



 Université du Québec à Trois-Rivières	Titre : ASTM D638 type IV	
Echelle : 1:1	Date : 07/05/2014	Dessinateur : Adrien Couture

Été 2014

Annexe F: Analyses statistiques

Contrainte en tension (Pa)		
Test d'égalité des variances (F-Test)		Seuil : 5%
H0 : $\text{variance}^2(\text{PLA \& Lin}) = \text{variance}^2(\text{PLA \& Lin \& Papier})$		
H1 : $\text{variance}^2(\text{PLA \& Lin}) \neq \text{variance}^2(\text{PLA \& Lin \& Papier})$		
	<i>PLA & Lin</i>	<i>PLA & Lin & Papier</i>
Moyenne	3.39E+08	3.17E+08
Variance	5.58E+14	2.02E+14
Observations	10	8
Degré de liberté	9	7
F	2.762568214	
P(F<=f) unilatéral	0.09703396	
Valeur critique pour F (unilatéral)	3.676674699	
Hypothèse retenue :	H0	

Analyse de variance: un facteur		Seuil : 5%				
H0 : moyenne(PLA & Lin) = moyenne(PLA & Lin & Papier)						
H1 : moyenne(PLA & Lin) != moyenne(PLA & Lin & Papier)						
Groupes	Nombre d'échantillons	Somme	Moyenne	Variance		
PLA & Lin	10	3390328000	339032800	5.5803E+14		
PLA & Lin & Papier	8	2533447000	316680875	2.02E+14		
Source des variations	Somme des carrés	Degré de liberté	Moyenne des carrés	F	Probabilité	Valeur critique pour F
Entre Groupes	2.22048E+15	1	2.22048E+15	5.51994648	0.031970084	4.493998418
A l'intérieur des groupes	6.43624E+15	16	4.02265E+14			
Total	8.65673E+15	17				
Hypothèse retenue :	H1					

Module initial en traction (Pa)		
Test d'égalité des variances (F-Test)		Seuil : 5%
H0 : variance²(PLA & Lin) = variance ²(PLA & Lin & Papier)		
H1 : variance²(PLA & Lin) != variance ²(PLA & Lin & Papier)		
	PLA & Lin & Papier	PLA & Lin
Moyenne	3,56E+10	3,02E+10
Variance	3,28E+19	7,62E+18
Observations	8	10
Degré de liberté	7	9
F	4,309	
P(F<=f) unilatéral	0,023	
Valeur critique pour F (unilatéral)	3,293	
Hypothèse retenue :	H1	

Module initial en traction (Pa)		
Test d'égalité des espérances: deux observations de variances différentes		Seuil : 5%
H0 : moyenne(PLA & Lin) = moyenne(PLA & Lin & Papier)		
H1 : moyenne(PLA & Lin) != moyenne(PLA & Lin & Papier)		
	PLA & Lin & Papier	PLA & Lin
Moyenne	3,56E+10	3,02E+10
Variance	3,28E+19	7,62E+18
Observations	8	10
Différence hypothétique des moyennes	0	
Degré de liberté	10	
Statistique t	2,438	
P(T<=t) unilatéral	0,017	
Valeur critique de t (unilatéral)	1,812	
P(T<=t) bilatéral	0,035	
Valeur critique de t (bilatéral)	2,228	
Hypothèse retenue :	H1	

Module de traction (Pa)		
Test d'égalité des variances (F-Test)	Seuil : 5%	
H0 : variance ² (PLA & Lin) = variance ² (PLA & Lin & Papier)		
H1 : variance ² (PLA & Lin) != variance ² (PLA & Lin & Papier)		
	<i>PLA & Lin</i>	<i>PL & Lin & Papier</i>
Moyenne	1,96E+10	2,08E+10
Variance	1,66E+18	7,84E+17
Observations	10	8
Degré de liberté	9	7
F	2,115	
P(F<=f) unilatéral	0,168	
Valeur critique pour F (unilatéral)	3,677	
Hypothèse retenue :	H0	

Module de traction (Pa)						
Analyse de variance: un facteur						Seuil : 5%
H0 : moyenne(PLA & Lin) = moyenne(PLA & Lin & Papier)						
H1 : moyenne(PLA & Lin) != moyenne(PLA & Lin & Papier)						
RAPPORT DÉTAILLÉ						
Groupes	Nombre d'échantillons	Somme	Moyenne	Variance		
PLA & Lin	10	1,95652E+11	1,96E+10	1,66E+18		
PL & Lin & Papier	8	1,66139E+11	2,08E+10	7,84E+17		
ANALYSE DE VARIANCE						
Source des variations	Somme des carrés	Degré de liberté	Moyenne des carrés	F	Probabilité	Valeur critique pour F
Entre Groupes	6,42E+18	1	6,42E+18	5,038	0,039	4,494
A l'intérieur des groupes	2,04E+19	16	1,27E+18			
Total	2,68E+19	17				
Hypothèse retenue :	H1					

Intersection des pentes E _i et E		
Test d'égalité des variances (F-Test)	Seuil : 5%	
H0 : variance ² (PLA & Lin) = variance ² (PLA & Lin & Papier)		
H1 : variance ² (PLA & Lin) != variance ² (PLA & Lin & Papier)		
	<i>PLA & Lin & Papier</i>	<i>PLA & Lin</i>
Moyenne	0,1487%	0,1575%
Variance	2,51E-08	4,36E-09
Observations	8	10
Degré de liberté	7	9
F	5,747	
P(F<=f) unilatéral	0,009	
Valeur critique pour F (unilatéral)	3,293	
Hypothèse retenue :	H1	

Intersection des pentes E _i et E		
Test d'égalité des espérances: deux observations de variances différentes	Seuil : 5%	
H0 : moyenne(PLA & Lin) = moyenne(PLA & Lin & Papier)		
H1 : moyenne(PLA & Lin) != moyenne(PLA & Lin & Papier)		
	<i>PLA & Lin</i>	<i>PLA & Lin & Papier</i>
Moyenne	0,1575%	0,1487%
Variance	4,36402E-09	2,50788E-08
Observations	10	8
Différence hypothétique des moyennes	0	
Degré de liberté	9	
Statistique t	1,476	
P(T<=t) unilatéral	0,087	
Valeur critique de t (unilatéral)	1,833	
P(T<=t) bilatéral	0,174	
Valeur critique de t (bilatéral)	2,262	
Hypothèse retenue :	H0	

Contrainte de flexion (MPa)		
Test d'égalité des variances (F-Test)		Seuil : 5%
H0 : variance ² (PLA & Lin) = variance ² (PLA & Lin & Papier)		
H1 : variance ² (PLA & Lin) != variance ² (PLA & Lin & Papier)		
	<i>PLA & Lin & Papier</i>	<i>PLA & Lin</i>
Moyenne	292.701	362.933
Variance	2811.313499	676.4503789
Observations	10	10
Degré de liberté	9	9
F	4.155978896	
P(F<=f) unilatéral	0.022663307	
Valeur critique pour F (unilatéral)	3.178893105	
Hypothèse retenue :	H1	

Test d'égalité des espérances: deux observations de variances différentes		Seuil : 5%
H0 : moyenne(PLA & Lin) = moyenne(PLA & Lin & Papier)		
H1 : moyenne(PLA & Lin) != moyenne(PLA & Lin & Papier)		
	<i>PLA & Lin</i>	<i>PLA & Lin & Papier</i>
Moyenne	362.933	292.701
Variance	676.450	2811.319
Observations	10	10
Différence hypothétique des moyennes	0	
Degré de liberté	13	
Statistique t	3.7606	
P(T<=t) unilatéral	0.0011	
Valeur critique de t (unilatéral)	1.7709	
P(T<=t) bilatéral	0.0023	
Valeur critique de t (bilatéral)	2.1603	
Hypothèse retenue :	H1	

Module de flexion (MPa)		
Test d'égalité des variances (F-Test)		Seuil : 5%
H0 : variance ² (PLA & Lin) = variance ² (PLA & Lin & Papier)		
H1 : variance ² (PLA & Lin) != variance ² (PLA & Lin & Papier)		
	<i>PLA & Lin</i>	<i>PLA & Lin & Papier</i>
Moyenne	25994.1	27036.922
Variance	4828400.544	3415339.715
Observations	10	10
Degré de liberté	9	9
F	1.413739466	
P(F<=f) unilatéral	0.307151357	
Valeur critique pour F (unilatéral)	3.178893105	
Hypothèse retenue :	H0	

Analyse de variance: un facteur		Seuil : 5%				
H0 : moyenne(PLA & Lin) = moyenne(PLA & Lin & Papier)						
H1 : moyenne(PLA & Lin) != moyenne(PLA & Lin & Papier)						
Groupes	Nombre d'échantillons	Somme	Moyenne	Variance		
PLA & Lin	10	259941	25994.1	4828400.54		
PLA & Lin & Papier	10	270369.22	27036.922	3415339.71		
Source des variations	Somme des carrés	Degré de liberté	Moyenne des carrés	F	Probabilité	Valeur critique pour F
Entre Groupes	5437388.618	1	5437388.62	1.31915573	0.26577842	4.4138734
A l'intérieur des groupes	74193662.33	18	4121870.13			
Total	79631050.95	19				
Hypothèse retenue :	H0					

Énergie d'impact (J/m)		
Test d'égalité des variances (F-Test)		Seuil : 5%
H0 : variance ² (PLA & Lin) = variance ² (PLA & Lin & Papier)		
H1 : variance ² (PLA & Lin) != variance ² (PLA & Lin & Papier)		
	<i>PLA & Lin</i>	<i>PLA & Lin & Papier</i>
Moyenne	880.2999	636.919
Variance	14737.91619	2936.258188
Observations	10	10
Degré de liberté	9	9
F	5.019284834	
P(F<=f) unilatéral	0.012377286	
Valeur critique pour F (unilatéral)	3.178893105	
Hypothèse retenue :	H1	

Test d'égalité des espérances: deux observations de variances différentes		Seuil : 5%
H0 : moyenne(PLA & Lin) = moyenne(PLA & Lin & Papier)		
H1 : moyenne(PLA & Lin) != moyenne(PLA & Lin & Papier)		
	<i>PLA & Lin</i>	<i>PLA & Lin & Papier</i>
Moyenne	880.2999	636.919
Variance	14737.91619	2936.258188
Observations	10	10
Différence hypothétique des moyennes	0	
Degré de liberté	12	
Statistique t	5.789178292	
P(T<=t) unilatéral	4.30893E-05	
Valeur critique de t (unilatéral)	1.782287548	
P(T<=t) bilatéral	8.61786E-05	
Valeur critique de t (bilatéral)	2.178812827	
Hypothèse retenue :	H1	