



**HAL**  
open science

# Nouvelle méthode de fabrication des composites à fibres naturelles : Contribution d'une couche de papier à minimiser la disparité des propriétés mécaniques

Lotfi Toubal, Gilbert Lebrun

## ► To cite this version:

Lotfi Toubal, Gilbert Lebrun. Nouvelle méthode de fabrication des composites à fibres naturelles : Contribution d'une couche de papier à minimiser la disparité des propriétés mécaniques. 17èmes Journées Nationales sur les Composites (JNC17), Jun 2011, Poitiers-Futuroscope, France. pp.67. hal-00597940

**HAL Id: hal-00597940**

**<https://hal.science/hal-00597940>**

Submitted on 2 Jun 2011

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

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

# **Nouvelle méthode de fabrication des composites à fibres naturelles : Contribution d'une couche de papier à minimiser la disparité des propriétés mécaniques**

## ***A Novel method of manufacture of natural fibers composites: Contribution of a paper layer to minimize the disparity in mechanical properties***

**Lotfi Toubal<sup>1</sup> et Gilbert Lebrun<sup>1</sup>**

1 : Département de Génie Mécanique  
Université du Québec à Trois-Rivières, C.P.500, Trois-Rivières, Québec, Canada  
e-mail : lotfi.toubal@uqtr.ca, gilbert.lebrun@uqtr.ca

### **Résumé**

Dans cette étude, nous nous sommes intéressés à améliorer les propriétés mécaniques des matériaux composites unidirectionnels à fibres naturelles de chanvre et de lin. L'introduction d'une ou deux couches de papier dans le processus de fabrication de nos plaques composites a contribué à minimiser la disparité des propriétés mécaniques observée généralement dans ces matériaux. Avec un comportement quasi-linéaire et des contraintes de ruptures très proches pour les plaques munies de papier, nous croyons que la présence du papier a pour effet d'homogénéiser la taille des défauts présent dans les plis et donc minimiser la disparité des résultats. Ce travail se veut une première étape dans le développement de nouveaux matériaux pour la fabrication des composites à fibres naturelles. Par l'utilisation des couches de papier en surface des fibres naturelles, la disparité élevée des propriétés mécaniques (généralement observée dans la littérature pour ce type de renfort) est fortement diminuée. Cette nouvelle technique de fabrication n'est qu'au stade préliminaire, mais les résultats obtenus démontrent l'intérêt d'accoler des couches de papier aux fibres naturelles pour la fabrication de pièces composites à renfort biodégradable.

### **Abstract**

Natural continuous bast fibers (hemp, flax...) are gaining popularity in composite materials because they can advantageously replace glass fibers. In unidirectional (UD) composites, it is found that their intrinsic properties are equivalent to those of unidirectional glass fibre composites but it is difficult to get repeatable results because of the variability in the properties of bast fibers compared to glass. Their quality is largely affected by the weather conditions, the extraction location along the plant and the techniques used to extract them (retting, bleaching...). In this work, unidirectional hemp/paper/epoxy and flax/paper/epoxy composites are manufactured by adding one sheet of paper at the surface of a unidirectional layer of hemp or flax fibers before molding. The composites are tested under tensile loads and the results compared with those obtained for UD composites made without paper. The results show a significant increase of the reproducibility in strength and modulus of the composites when the paper is present. A significant increase in strength and modulus was also obtained compared to the base epoxy properties. Globally, the results suggest that adding thin sheets of paper at the surface of reinforcement layers stabilizes and increase the composite strength but it slightly reduces the Young's modulus.

**Mots Clés :** Fibre de lin, fibre de chanvre, papier, composite unidirectionnel

**Keywords:** Flax, hemp, kraft paper, unidirectional composites

## **1. Introduction**

De nos jours, une grande sensibilisation à l'environnement a contribué à augmenter l'usage des fibres naturelles comme renfort dans les composites. Ce tournant permet de diminuer l'effet de la croissance de nos besoins sur l'environnement. Plusieurs travaux démontrent que les performances mécaniques des matériaux composites à fibres naturelles (CFN) rapportées aux densités de ces dernières sont comparables à celles des composites à fibres de verre [1, 2]. Cependant, la disparité des propriétés obtenues couplée au caractère aléatoire des modes d'endommagement des CFN empêche leur utilisation à grande échelle, contrairement aux composites à fibres synthétiques, plus

fiables car produits dans des conditions contrôlées [1-3]. Ceci découle de la difficulté d'assurer une reproductibilité des propriétés physique et morphologique des fibres qui dépendent de divers paramètres tels l'origine des graines des plantes, etc. Le Canada, qui exporte plus de 30 % de la production mondiale des grains de lin, a souligné l'année internationale des fibres naturelles en 2009 par un investissement de plus de 9.6 M\$ dans un réseau multidisciplinaire mettant l'accent sur le développement de marchés à valeur ajoutée pour les fibres de lin et de chanvre<sup>1</sup>. Dans ce contexte, des activités de recherche liées au développement de matériaux naturels et écologiques deviennent un élément clé pour la croissance de l'industrie verte dans notre région.

Concernant les fibres naturelles, nous trouvons plusieurs travaux traitant des composites à fibres courtes. Cependant, le développement des matériaux composites à fibres continues reste une étape essentielle pour la fabrication de pièces qui peuvent être utilisées dans des applications structurales. Nous pouvons citer comme exemple les sociétés Lineo NV en France et Procotex en Belgique qui proposent des pré-imprégnés lin/époxy destinés à un renfort tissu ou unidirectionnel. Compte tenu de l'importance de l'interface fibre-matrice dans le comportement des composites, plusieurs travaux ont été consacrés à améliorer leur résistance par l'amélioration de la mouillabilité des fibres par la matrice [4-8]. Cependant, nous n'avons pas trouvé dans la littérature des travaux consacrés à la combinaison de fibres naturelles unidirectionnelles avec une couche mince de papier dans le but de produire des pré-imprégnés. Étant de même nature biodégradable, le papier contribue à faciliter la manipulation des fibres avant le moulage, et améliore les propriétés mécaniques du composite. Il peut aussi maintenir la cohésion et la rectitude des fibres dans le renfort unidirectionnel. De plus, la présence du papier pourrait contribuer à améliorer les propriétés au délaminage des stratifiés unidirectionnels, en augmentant les propriétés d'interface. Ces avantages sont particulièrement intéressants compte tenu des problèmes associés au tissage de fils pour produire des tissus en fibres naturelles. Pour tisser une toile, les fils doivent être torsadés afin d'avoir suffisamment de résistance à sec pour le processus de tissage. Cette torsion altère les propriétés de traction du fil dans le sens longitudinal [9].

Dans notre travail, des renforts à base de chanvre et de lin sont déposés sur une feuille de papier pour fabriquer des plaques : papier-chanvre/époxy et papier-lin/époxy. La matrice utilisée est une résine époxyde Adtech<sup>TM</sup> 820. Des éprouvettes ont été testées en traction et la résistance à la rupture, le module de Young et la déformation maximale ont été mesurés. Les résultats obtenus sont comparés avec des éprouvettes chanvre/époxy et lin/époxy sans couches de papier.

## **2. Élaboration du pré-imprégné**

### **2.1 Fibres**

Des fibres de chanvres de chez YugoHemp Inc. (Canada) et des fibres de lin de chez Safilin (Pologne) ont été utilisées comme renfort dans ce travail. Les fils humides de fibres de chanvre ou de lin sont déposés côte à côte sur une plaque en acier. Une fois les fibres alignées, la couche de fibres est placée dans un four à convection pour extraire l'eau des fibres à une température de 75 °C pendant 16 heures. Cette étape a permis de créer des liaisons entre les fibres, et donc une manipulation facile des plaques composées de fibres de chanvre ou de lin.

### **2.2 Feuilles de papiers**

Les feuilles de papier ont été fabriquées en utilisant un équipement de laboratoire composé d'une formette dynamique, d'un laminoir et d'un sécheur (Fig. 1). Ces dispositifs sont couramment utilisés pour fabriquer des échantillons de papier en laboratoire. Un passage par la centrifugeuse de la formette dynamique (Fig. 1a) nous donne une couche mince et humide de papier de densité surfacique uniforme à partir d'une solution de pâte Kraft.

<sup>1</sup> <http://www4.agr.gc.ca/AAFC-AAC/display-afficher.do?id=1261422847716&lang=fra>

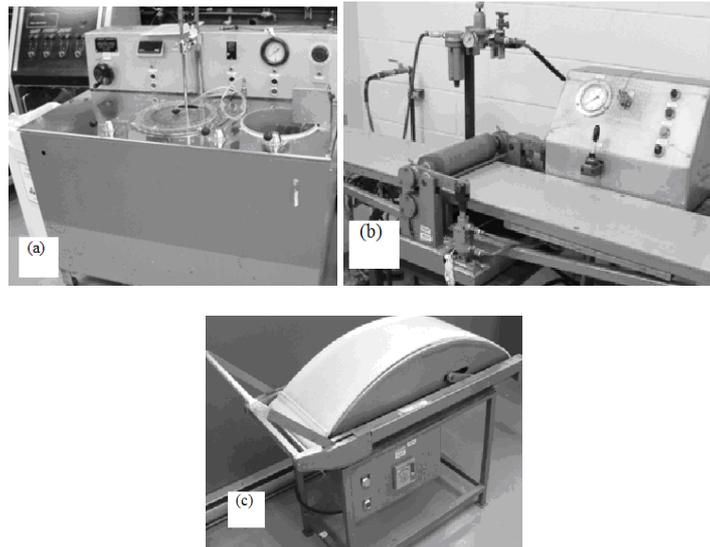


Fig. 1. Équipements pour la fabrication de papier, (a) Formette dynamique, (b) Laminoir et (c) Sécheur.

La deuxième étape consiste à venir laminer la feuille de papier sortie de la formette dynamique. La feuille humide est compactée plusieurs fois en augmentant progressivement la pression (Fig. 2b). Pour finir, la feuille de papier est séchée à 100 °C à l'aide d'un sécheur (Fig. 3c). C'est à cette étape que l'on vient déposer les fibres sur une feuille ou entre deux feuilles de papier.

### 2.3 Pré-imprégné

Dans le but d'évaluer l'influence du papier sur les propriétés de nos matériaux, des plaques avec et sans papier (fibres UD seulement) d'une surface de 15 cm x 30 cm ont été moulées. Pour les renforts de chanvre, la couche de fibres est placée entre deux feuilles de papier d'une densité surfacique de 75 g/m<sup>2</sup> et séchée à 100 °C pendant 15 minutes (Fig. 2). Nos plaques ont été moulées par l'imprégnation d'une couche de renfort avec une résine époxyde. Le moulage au contact a été réalisé avec un rouleau à la main, suivi d'une cuisson à température ambiante sous un vide de 20 in-Hg (0.67 Bar) pendant 24 heures. Au final, une post-cuisson est effectuée, avec les mêmes paramètres que pour le séchage des fibres, soit 16 heures à 75 °C. Les renforts de lin sont fabriqués selon la même procédure, sauf qu'ici, le papier kraft utilisé est issu d'un processus de fabrication du papier haut volume. Dans ce cas, une seule feuille de papier a été utilisée présentant une densité surfacique de 88 g/m<sup>2</sup>.

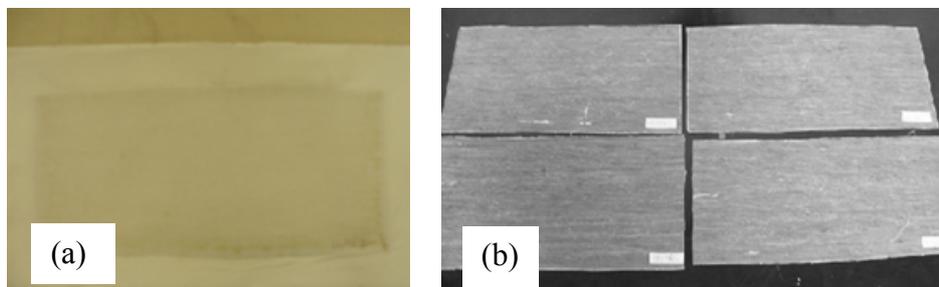


Fig. 2. Matériau de l'étude, (a) Papiers et fibres, (b) plaques après cuisson.

La figure ci-dessous (Fig. 3) montre des images prises au microscope sur la tranche d'une éprouvette de chanvre. Nous observons sur cette figure trois zones distinctes (Fig. 3b). Deux zones riches en résine qui se trouvent sur les parties supérieure et inférieure de notre plaque. Une zone

localisée au cœur du matériau est composée de fibres de chanvre et de la matrice époxyde. Une dernière zone, les feuilles de papier, confinées entre les deux zones précédentes.

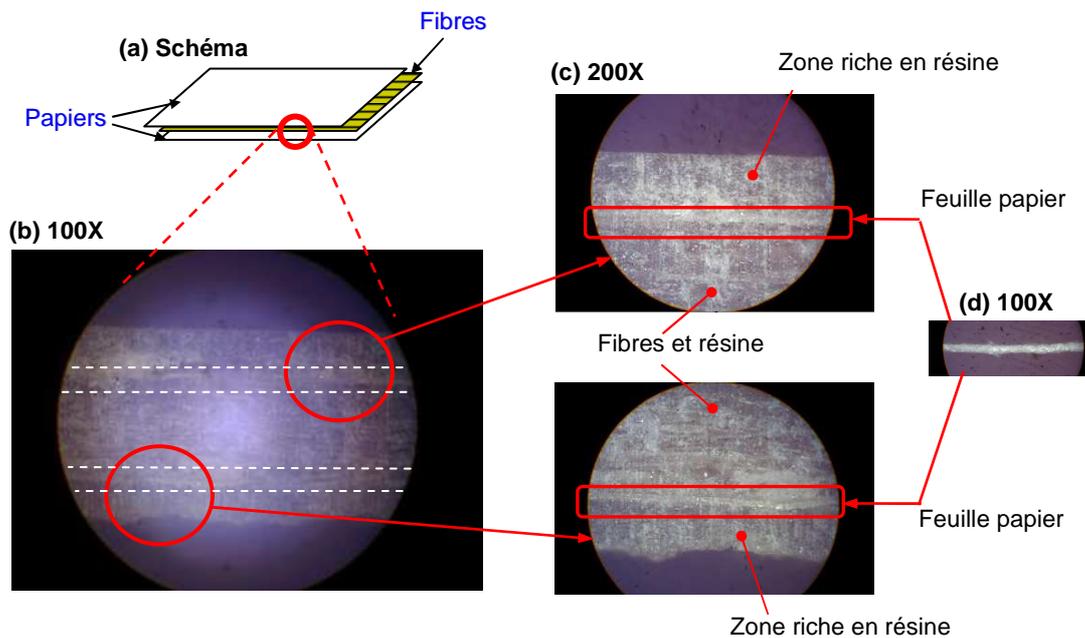


Fig. 3. Composition du laminé, (a) Schéma de l'empilement des couches, (b) Image suivant l'épaisseur 100X, (c) Image suivant l'épaisseur 200X, (d) Image du papier seul 100X.

## 2.4 Éprouvettes procédure expérimentale

Les essais sont réalisés en utilisant des éprouvettes présentant les dimensions suivantes : 170 mm X 12.7 mm X 1.6 mm. La fraction volumique des fibres de chanvre est de 25 % et celle des fibres de lin est autour de 38 %. Les fractions volumiques sont obtenues en utilisant la formule ci-dessous [10] :

$$V_f = \frac{\frac{M_f}{\rho_f}}{\frac{M_f}{\rho_f} + \frac{M_m}{\rho_m}} \quad (\text{Eq. 1})$$

$M_f$ ,  $M_m$ ,  $\rho_f$  et  $\rho_m$  désignent les teneurs en masses et les masses volumiques respectivement du renfort et de la matrice. Le tableau ci-dessous résume les fractions volumiques en fibre de nos plaques.

|           | Chanvre avec papier | Chanvre sans papier | Lin avec papier | Lin sans papier |
|-----------|---------------------|---------------------|-----------------|-----------------|
| $V_f(\%)$ | 25.2                | 31.6                | 38              | 35              |

Tab. 1. Les fractions volumiques des fibres.

Les essais sont réalisés sur une machine électromécanique Instron, équipée d'une cellule de charge de 150 kN, étalonnée dans une plage comprise entre 0 à 10 KN. Plusieurs paramètres peuvent être acquis simultanément (temps, charge appliquée, déformation) ; l'acquisition de ces données passe par l'utilisation de dispositifs extensométriques et de matériel informatique. Un extensomètre de 50 mm a été utilisé pour mesurer la déformation.

### 3. Résultats Expérimentaux

L'analyse des résultats est faite en se basant sur l'évolution de la contrainte en fonction de la déformation (Fig. 4). Pour les différents types de composites, cette évolution s'effectue selon les phases suivantes :

- Une première phase élastique linéaire caractérisée par un module élastique E (zone linéaire initiale de la vue agrandie de la Figure 4),
- une deuxième phase où la courbe perd sa linéarité initiale traduisant ainsi le début de l'endommagement du composite,
- la dernière phase est une rupture brutale de l'éprouvette.

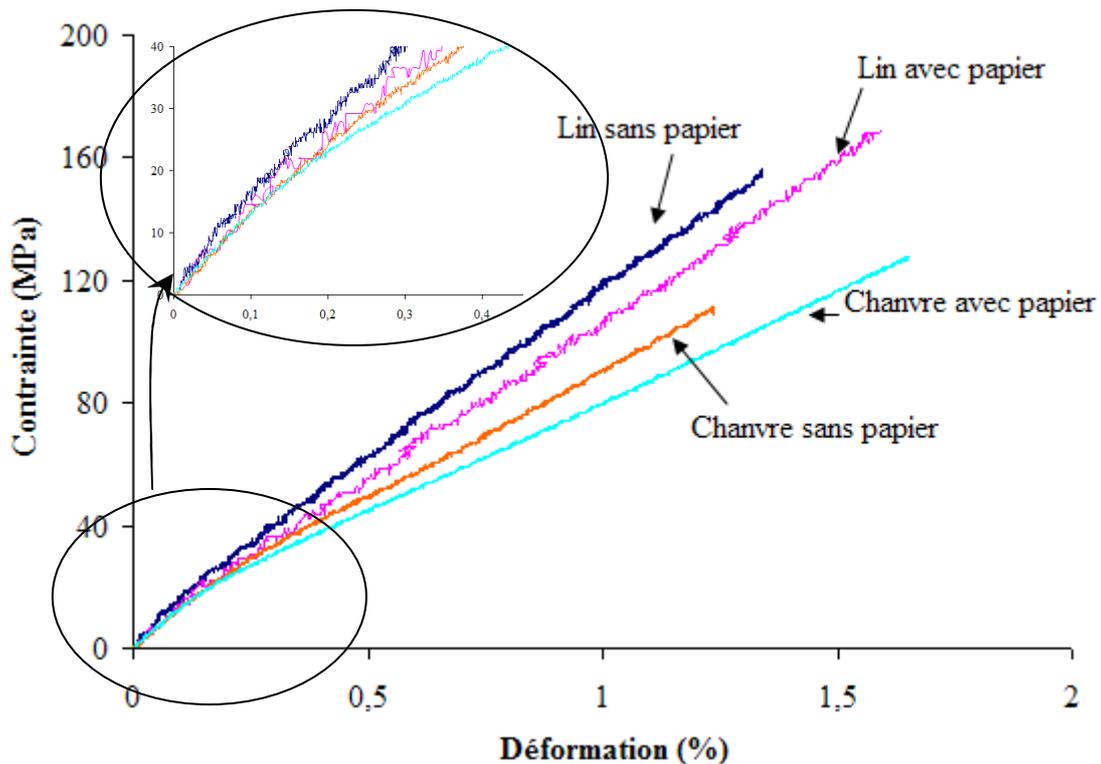


Fig. 4. Courbes contraintes/déformations.

Le résumé des propriétés mécaniques mesurées de nos matériaux est présenté ci-dessous.

| Éprouvettes       | Chanvre avec deux couches de papier |                      |                         | Chanvre sans papier |                      |                         |
|-------------------|-------------------------------------|----------------------|-------------------------|---------------------|----------------------|-------------------------|
|                   | E (GPa)                             | $\sigma_{rup}$ (MPa) | $\varepsilon_{rup}$ (%) | E (GPa)             | $\sigma_{rup}$ (MPa) | $\varepsilon_{rup}$ (%) |
| 1                 | 9.44                                | 125                  | 1.91                    | 12.21               | 75                   | 1,05                    |
| 2                 | 12.72                               | 127                  | 1.76                    | 12.51               | 77                   | 0,84                    |
| 3                 | 11.90                               | 129                  | 1.72                    | 12.21               | 95                   | 1,23                    |
| 4                 | 13.37                               | 138                  | 1.79                    | 10.60               | 108                  | 1,26                    |
| 5                 | 13.37                               | 139                  | 1.61                    | 14.01               | 111                  | 1,24                    |
| 6                 | 11.29                               | 139                  | 1.64                    | 15.54               | 118                  | 1,25                    |
| 7                 | 12.14                               | 139                  | 1.75                    | 11.67               | 123                  | 1,28                    |
| 8                 | 17.37                               | 140                  | 1.64                    | 12.81               | 143                  | 1,3                     |
| <b>Moyenne</b>    | 12.70                               | 134.4                | 1.72                    | 12.69               | 106.3                | 1.18                    |
| <b>Écart-type</b> | 2.28                                | 6.3                  | 0.09                    | 1.50                | 23.2                 | 0.15                    |

Tab. 2. Le module de Young, les contraintes et les déformations à la rupture pour les éprouvettes fibres de chanvre avec et sans papiers.

| Éprouvettes       | Lin avec une couche de papier |                      |                         | Lin sans papier |                      |                         |
|-------------------|-------------------------------|----------------------|-------------------------|-----------------|----------------------|-------------------------|
|                   | E (GPa)                       | $\sigma_{rup}$ (MPa) | $\varepsilon_{rup}$ (%) | E (GPa)         | $\sigma_{rup}$ (MPa) | $\varepsilon_{rup}$ (%) |
| 1                 | <30.25>                       | 171                  | 1.49                    | 16.75           | 157                  | 1.36                    |
| 2                 | 12.35                         | 169                  | 1.59                    | 16.08           | 172                  | 1.41                    |
| 3                 | 12.42                         | 171                  | 1.77                    | 17.72           | 133                  | 1.13                    |
| 4                 | 13.90                         | 188                  | 1.84                    | 14.80           | 160                  | 1.42                    |
| 5                 | 12.91                         | 167                  | 1.62                    | 14.47           | 144                  | 1.38                    |
| <b>Moyenne</b>    | 12.72                         | 173.1                | 1.66                    | 15.97           | 153.6                | 1.34                    |
| <b>Écart-type</b> | 0.79                          | 8.3                  | 0.14                    | 1.34            | 15.1                 | 0.12                    |

Tab. 3. Le module de Young, les contraintes et les déformations à la rupture pour les éprouvettes fibres de chanvre avec et sans papiers.

Pour les modules de Young, nos plaques composites : (chanvre-papier)/époxy, chanvre/époxy et lin-papier/époxy présentent une valeur moyenne de 12.7 GPa. Avec un écart type très faible, les valeurs des modules d'élasticité ne présentent pas de grandes fluctuations. Pour le lin sans papier, nous avons mesuré un module de Young plus important, une moyenne de 15.97 GPa. Nous pouvons conclure que pour nos essais, la présence du papier a pour effet de réduire légèrement les modules d'élasticité. Ce n'est pas surprenant étant donné que le papier dans le composite, avec son module plus faible que les fibres, contribue à réduire le module global du composite, mais cette diminution reste limitée. Concernant la déformation à la rupture, nous dénotons une amélioration moyenne de 25 % pour les plaques avec papier. Globalement, les résultats sont intéressants si on considère qu'aucun traitement n'a été effectué sur les fibres afin d'améliorer la cohésion à l'interface fibre-matrice. En comparant les plaques, les résultats montrent que le papier a un effet bénéfique sur la résistance à la rupture du composite.

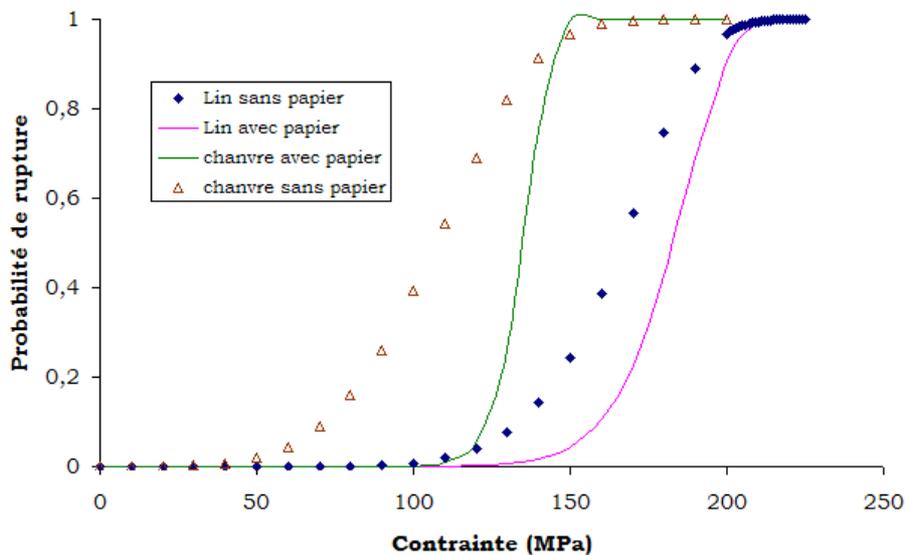


Fig. 5. Courbes de probabilités de rupture.

La figure 5 montre les courbes de Weibull de la probabilité de rupture des plaques de chanvre et de lin avec et sans papier. Les résultats démontrent une forte diminution de la disparité des contraintes de rupture et des modules d'élasticité mesurés expérimentalement. Cette diminution est confirmée par une augmentation importante de la constante  $m$  de l'équation de Weibull (Eq. 2). Pour les

éprouvettes de chanvre  $m$  passe de 5 à 21 pour des essais sans et avec papier respectivement (Tab. 4).

$$P_R(\sigma) = 1 - \text{Exp} \left[ - \left( \frac{\sigma}{\sigma_0} \right)^m \right] \quad (\text{Eq. 2})$$

Dans cette équation,  $\sigma_0$  est le coefficient qui permet de régler la contrainte aux alentours de laquelle se produisent les ruptures et  $m$  est le module de Weibull réglant la largeur de la distribution de contraintes.

| Éprouvettes                        | Chanvre     |             | Lin         |             |
|------------------------------------|-------------|-------------|-------------|-------------|
|                                    | Avec papier | Sans papier | Avec papier | Sans papier |
| <b>m</b>                           | 21          | 5           | 13.7        | 8.7         |
| <b><math>\sigma_0</math> (MPa)</b> | 138         | 116         | 188         | 173         |

Tab. 4. Coefficients de Weibull.

Avec un comportement quasi-fragile jusqu'à la rupture (Fig. 4) et une très grande valeur de  $m$  pour les plaques munies de papier, il est possible que la présence du papier ait pour effet d'homogénéiser la taille des défauts présent entre les fibres (les fibres courtes du papier pouvant s'insérer entre les fibres longues pour réduire la taille des zones riches en résine) pour ainsi minimiser la disparité des contraintes à la rupture. Non seulement la contrainte moyenne à la rupture est améliorée en présence du papier, mais les fluctuations observées généralement sur les propriétés élastiques dans ces matériaux ont diminué. Cette diminution de la disparité des résultats est intéressante étant donné que les propriétés des fibres naturelles, affectées par de nombreux facteurs environnementaux, sont toujours plus disparates que celles des fibres synthétiques fabriquées dans des environnements plus contrôlés. La rupture fragile (rupture des l'amorçage d'une fissure sur le premier défaut) combiné à une grande variation dans les dimensions des défauts (vides) dans les éprouvettes sont à l'origine de ces fluctuations. Dans notre cas, nous pensons que cette amélioration peut être expliquée par une homogénéisation des défauts avec la présence d'une couche de papier. En utilisant des couches de papier pour la fabrication de renforts unidirectionnels, le problème de fluctuation des propriétés élastiques des composites à fibres naturelles pourrait être partiellement résolu.

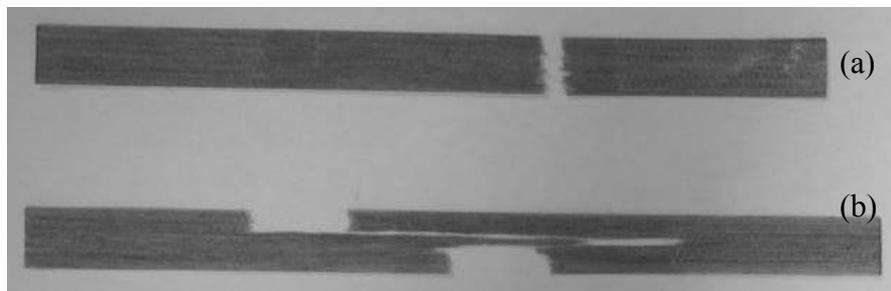


Fig. 6. Ruptures fibres de chanvre, a) avec papier, b) sans papier

La figure 6 montre le type de rupture obtenu pour deux éprouvettes avec et sans papier, (a) et (b) respectivement. Pour les éprouvettes avec papier, nous observons une rupture suivant la largeur de l'éprouvette et perpendiculaire à la direction de la charge appliquée. Les éprouvettes sans papier présentent un faciès de rupture non uniforme avec la présence de fissures longitudinales parallèles aux fibres.

#### 4. Conclusion

Dans ce travail, une nouvelle approche de fabrication des composites à fibres naturelles est proposée, par l'ajout d'une couche de papier accolée aux fibres de chanvre et de lin. Les résultats démontrent une forte diminution de la disparité des contraintes de rupture et des modules d'élasticité mesurés expérimentalement. Nous croyons que la présence du papier a pour effet d'homogénéiser la taille des défauts et donc de minimiser la disparité des résultats. Les mêmes observations peuvent être faites sur le module, où les fluctuations de ce dernier sont largement atténuées par la présence du papier.

Ce travail se veut une première étape dans le développement de nouveaux matériaux pour la fabrication des composites à fibres naturelles CFNs. Par l'utilisation de couches de papier en surface des fibres naturelles, la disparité élevée des propriétés mécaniques (généralement observée dans la littérature pour ce type de renfort) est fortement diminuée.

#### Références

- [1] P. Wambua, J. Vans, I. Verpoest. « Natural fibres: can they replace glass in fibre reinforced plastics? ». *Compos Sci Tech.* Vol. 63. pp. 1259-64, 2003.
- [2] J. Biagotti, D. Puglia, JM. Kenny. « A review on natural fibre-based composites – part I: structure, properties and processing of vegetable fibres ». *J Nat Fibers.* Vol. 1(2). pp. 37-68, 2004.
- [3] L.S. Penn, S.M. Lee. « Interpretation of experimental results in the single pull-out filament test ». *J of Composites Techn and Research.* Vol. 11(1). Pp. 23-30, 1989
- [4] A.K. Bledzki, H.P. Fink, and K. Specht, « Unidirectional hemp and flax EP- and PP-composites: Influence of defined fiber treatments ». *J. Appl. Polym. Sci.* Vol. 93(5). pp. 2150-2156, 2004.
- [5] I. Van de Weyenberg, et al., « Improving the properties of UD flax fibre reinforced composites by applying an alkaline fibre treatment ». *Compos Part A: App Sci and Manufacturing.* Vol. 37(9). pp. 1368-1376, 2006.
- [6] Pickering, K.L., et al., « Optimising industrial hemp fibre for composites ». *Compos Part A: App Sci and Manufacturing.* Vol. 38(2). pp. 461-468, 2007.
- [7] M.S. Islam, and K.L. Pickering. « Influence of alkali treatment on the interfacial bond strength of industrial hemp fibre reinforced epoxy composites: Effect of variation from the ideal stoichiometric ratio of epoxy resin to curing agent ». in *Ad Mater Research.* 2007.
- [8] Bledzki, A.K. and J. Gassan, « Composites reinforced with cellulose based fibres ». *Progress in Polymer Sci.* Vol. 24(2). pp. 221-274, 1999.
- [9] S. Goutianos, et al., « Development of Flax Fibre based Textile Reinforcements for Composite Applications ». *App Compos Mater.* Vol. 13(4). pp. 199-215, 2006.
- [10] D. Gay. « matériaux composites ». Ed., Hermes/Lavoisier, 5<sup>ème</sup> Éd. 668p.