



HAL
open science

Prépregs lin/époxy : influence des paramètres d'élaboration sur les propriétés mécaniques

Z. Cherif, C. Poilâne, A. Vivet, Jun Chen

► **To cite this version:**

Z. Cherif, C. Poilâne, A. Vivet, Jun Chen. Prépregs lin/époxy : influence des paramètres d'élaboration sur les propriétés mécaniques. 17èmes Journées Nationales sur les Composites (JNC17), Jun 2011, Poitiers-Futuroscope, France. pp.111. hal-00598103

HAL Id: hal-00598103

<https://hal.science/hal-00598103>

Submitted on 4 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.

Prépregs lin/époxy : influence des paramètres d'élaboration sur les propriétés mécaniques.

Flax/epoxy prepregs: influence of elaboration parameters on the mechanical properties.

Z. Cherif¹, C. Poilâne¹⁻², A. Vivet¹ et J. Chen¹

1 : Université de Caen Basse-Normandie, EA 4257, F-14032 Caen
e-mail : zine-eddine.cherif@unicaen.fr

2 : LAUM UMR CNRS 6613, Université du Maine, Av. O. Messiaen, 72085 LE MANS, France
e-mail : Christophe.Poilane@univ-lemans.fr

Résumé

Dans ce travail, afin d'améliorer les propriétés mécaniques des composites lin/époxy, des traitements chimiques ont été testés. Les fibres de lin subissent divers traitements pour des applications destinées au secteur textile : blanchiment, mercerisation, lessivage, traitement enzymatique ou traitement enzymatique avec détergent. Les composites ont été caractérisés mécaniquement par un essai de traction. Un test de sorption est effectué en utilisant une méthode gravimétrique. On montre que les traitements augmentent la rigidité et la résistance des composites lin/époxy, avec une diminution de la déformation. Cela signifie une amélioration de l'adhésion entre la résine époxy et les fibres de lin. Les meilleures performances sont atteintes avec les traitements de blanchiment et enzymatique.

Abstract

In this work, in order to improve the mechanical properties of flax fibers and epoxy resin based composites, chemical treatments were used. Flax fibers undergo various treatments for textile applications: bleaching, mercerization, leaching, enzymatic treatment or enzymatic treatment with a detergent. The composites were characterized mechanically by tensile test. A sorption test is performed using a gravimetric method. These treatments increase the stiffness and strength of flax/ epoxy composite, with a reduction of strain. That means an improvement of the adhesion between the epoxy resin and flax fibers. The best performances are achieved with bleaching and enzymatic treatments.

Mots Clés : composite, lin, propriétés mécaniques, interface, traitement textile.

Keywords : composite, flax, mechanical properties, interface, textile treatment.

1. Introduction

Les fibres naturelles, en particulier les fibres de lin, ont montré leur capacité pour être un bon candidat en tant que renfort de matériaux composites, grâce à une combinaison de propriétés : résistance et module spécifiques relativement élevés, faible densité et faible impact environnemental (matériau renouvelable) [1-2]. Cependant, cette fibre prometteuse présente aussi quelques caractéristiques négatives : elle est très hydrophile, elle présente une faible résistance thermique et une inconstance des propriétés [3-4]. Par ailleurs, la structure de la fibre élémentaire de lin est très complexe et composée de cellulose, hémicellulose, pectine, lignine et autres composants [2-5]. La fibre de lin est donc loin d'être considérée comme une simple fibre monofilamentaire.

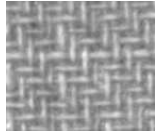
Les applications industrielles des composites renforcés par des fibres de lin existent déjà (raquette Artengo...) mais sont encore limitées à cause des faibles performances de ces matériaux. En plus des propriétés intrinsèques des fibres, les propriétés mécaniques finales d'un matériau composite dépendent en grande partie de l'adhésion entre les fibres et la matrice. Cette interface peut être améliorée par différentes méthodes physiques et chimiques [6-7]. Des traitements relativement simples, comme l'alcalisation, ont montré leurs utilités. De nombreuses études sont effectuées sur des matrices thermoplastiques telles que la résine polypropylène [2]. Notre étude se concentre sur

l'effet des traitements textiles conventionnels sur la qualité de l'interface d'un composite à base d'une matrice époxy.

2. Matériels et méthodes

2.1 Le matériau

Les prépregs utilisés pour élaborer le composite sont constitués de tissu sergé 2/2 de grammage contrôlé et une résine époxy standard. Les fibres ne subissent pas de sélection particulière. Les fils sont torsadés selon les techniques traditionnelles des filatures. A cette étape, un fil est constitué de faisceaux de fibres de lin, liées principalement par des pectines. Le lin peut subir divers traitements pour des applications destinées au secteur textile (pour faciliter la teinture par exemple). Ceux-ci sont effectués soit avant la filature : lessivage, pour les étoupes de teillage et de peignage, soit après tissage : blanchiment, mercerisation, lessivage, traitement enzymatique ou traitement enzymatique avec un détergent pour les fibres longues teillées et peignées. Les tissus subissent ensuite un traitement de compatibilisation (brevet LINEO NV) permettant d'assurer l'adhésion de la résine à la fibre. Les pré-imprégnés testés avec les différents prétraitements sont détaillés ci-dessous (Tab. 1).

Nom	Grammage du lin (g/m ²)	Type de fibres	Traitement textile	Aspect
ÉCRU	315	Fibres longues	néant	
FILS LESSIVÉS	315	Fibres courtes	lessivage des fils avant filature (filature au mouillé)	idem
LESSIVÉ	315	Fibres longues	lessivage du tissu	idem
MERCERISÉ	315	Fibres longues	mercerisation du tissu	idem
BLANCHI	315	Fibres longues	blanchiment du tissu	idem
TRAITEMENT ENZYMATIQUE	315	Fibres longues	Traitement enzymatique du tissu (pectinase)	idem
TRAITEMENT ENZYMATIQUE + DÉTERGENT	315	Fibres longues	Traitement enzymatique du tissu (pectinase + détergent)	idem

Tab. 1. Sergés 2/2 pré-imprégnés avec les différents traitements textiles, la référence est le sergé ÉCRU.

2.2 Elaboration des composites

Les plaques composites sont élaborées à partir des pré-imprégnés de lin/époxy à l'aide d'une matrice et d'une contre matrice selon les étapes suivantes :

- découpage de plis selon l'orientation choisie,
- cirage de la matrice et de la contre matrice,
- pose des cales ajustées permettant de choisir l'entrefer du moule,
- empilement des plis dans la matrice,
- pose et serrage par vis de la contre-matrice,
- réticulation en enceinte thermostatée sous pression atmosphérique,

- refroidissement à l'air et démoulage de la plaque composite.

Le cycle de cuisson recommandé par le fabricant de la résine (Fig. 1) comporte deux paliers : le premier à 80 °C, a pour but de diminuer la viscosité de la résine pour favoriser sa dispersion, un deuxième palier à 130 °C pendant une heure permet la réticulation.

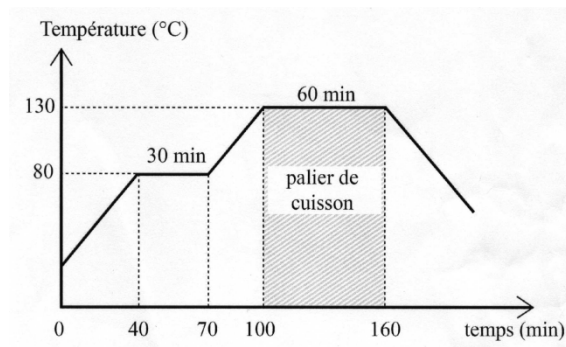


Fig. 1. Cycle de cuisson du composite.

2.3 Méthodes expérimentales

2.3.1 Essai de traction

Les essais de traction ont été réalisés dans la direction principale des fibres (chaîne), sur une machine de traction servohydraulique INSTRON 8800 de capacité 100 kN, avec une vitesse de déplacement de 2 mm/mn. Les dimensions des éprouvettes sont : 250 mm de longueur et 20 mm de largeur. La déformation est mesurée avec un extensomètre. Afin d'éviter la dégradation des éprouvettes dans les mors, des talons ont été collés des deux cotés de l'éprouvette.

2.3.2 Essai de sorption

Les mesures d'absorption d'eau d'un matériau composite peuvent être effectuées par une analyse gravimétrique. La méthode consiste en la mesure de la teneur en eau absorbée en fonction du temps d'exposition. L'éprouvette a une forme carrée de 200 mm de coté. La première étape consiste à éliminer toute trace d'humidité au sein du matériau. Pour cela, les échantillons sont mis à l'étuve pendant 24 heures. Afin d'éviter la reprise d'humidité par les bords de l'échantillon, ceux-ci sont recouverts d'une couche de silicone haute température. Ensuite l'échantillon est immergé dans un récipient d'eau à une température de 20°C. Un prélèvement de la masse des échantillons est effectué à intervalle régulier afin de déterminer le taux d'eau absorbée au cours du temps. La teneur en eau M_t est évaluée à l'aide de la formule suivante :

$$M_t = \frac{W_t - W_0}{W_0} \times 100 (\%) \quad (\text{Eq. 1}),$$

où W_0 est la masse de l'échantillon sec et W_t est la masse de l'échantillon à l'instant t .

Différents modèles ont été développés pour décrire le comportement d'absorption d'eau des matériaux composites. Pour une plaque plane d'épaisseur constante h , la loi de Fick décrit ce comportement par l'équation suivante :

$$\frac{M_t}{M_m} = 1 - \frac{8}{\pi^2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{(2n+1)^2} \exp\left(-\frac{(2n+1)^2 \pi^2 D t}{h^2}\right) \quad (\text{Eq. 2}).$$

Le coefficient de diffusion, D , est déterminé à partir de la formule suivante :

$$D = \frac{\pi}{(4M_m)^2} \left(\frac{M_t h}{\sqrt{t}}\right)^2 = \pi \left(\frac{k}{4M_m}\right)^2 \quad (\text{Eq. 3}),$$

où k est la pente de la partie linéaire de la courbe :

$$M_t = f\left(\frac{\sqrt{t}}{h}\right) \quad (\text{Eq. 4}).$$

2.3.3 Observation microscopique par MEB

L'appareil utilisé est un Princeton Gamma-Tech Cambridge. L'observation porte sur la section du composite et les faciès de rupture. Un dépôt d'or est réalisé avant l'introduction de l'échantillon dans l'appareil.

3. Résultats et discussion

3.1 Composite

Une plaque composite est élaborée par traitement. La connaissance du grammage des tissus, de la densité des fibres et de la résine, permet de calculer les fractions volumiques des constituants : (V_f) pour les fibres, (V_m) pour la matrice et (V_p) pour les porosités. Les résultats sont réunis dans le tableau ci-après (Tab. 2).

	E cru	Lessivé	Blanchi	Mercerisé	Fils lessivés	Enzymatique	Enzymatique + détergent
V_f (%)	47,5 ± 3,9	50,7 ± 4,2	47,6 ± 4,0	52,9 ± 4,3	48,1 ± 3,9	49,5 ± 4,1	50,7 ± 4,2
V_m (%)	37,9 ± 1,6	40,1 ± 1,7	39,3 ± 1,7	38,7 ± 1,7	33,7 ± 1,4	37,8 ± 1,6	43,4 ± 1,8
V_p (%)	14,7 ± 4,7	9,2 ± 5,0	13,2 ± 4,8	8,4 ± 5,2	18,2 ± 4,6	12,7 ± 4,9	5,9 ± 5,1

Tab. 2. Fractions volumiques : (f) fibre, (m) matrice, (p) pore des différents composites lin/époxy.

Les fractions volumiques des fibres sont proches. Le taux de pores est élevé, et varie d'un échantillon à l'autre.

3.2 Propriétés mécaniques

Les propriétés mécaniques du composite avec des fibres non traitées (écru), mesurées par un test de traction, sont présentées dans le Tab. 3. Les faibles performances montrent la nécessité de renforcer l'interface. Les traitements textiles peuvent jouer ce rôle.

	E_c (Gpa)	σ_c (Mpa)	ϵ_c (%)
Ecru (référence)	9,1 ± 0,3	79,5 ± 2,1	2,3 ± 0,2

Tab. 3. Propriétés mécaniques en traction du composite avec fibres non traitées (référence).

L'influence des traitements textiles sur les propriétés mécaniques des composites lin/époxy est présentée dans la Fig. 3. L'effet est exprimé en pourcentage d'amélioration (dégradation) par rapport au cas du composite avec fibres non traitées (référence). Comme attendu, les traitements augmentent globalement les propriétés mécaniques des composites (module d'Young et contrainte à rupture). On obtient jusqu'à 50% d'amélioration du module par un traitement enzymatique avec détergent et jusqu'à 50% d'amélioration de la résistance par un blanchiment. Cela s'explique par une amélioration de l'interface lin/époxy. Une diminution de la déformation est constatée jusqu'à -25%. Cette diminution est due à la réduction du glissement entre les fibres et la résine. Les faibles performances données par le composite élaboré à partir d'un tissu avec fils lessivés sont expliquées par la qualité médiocre des fibres (étoupe de teillage).

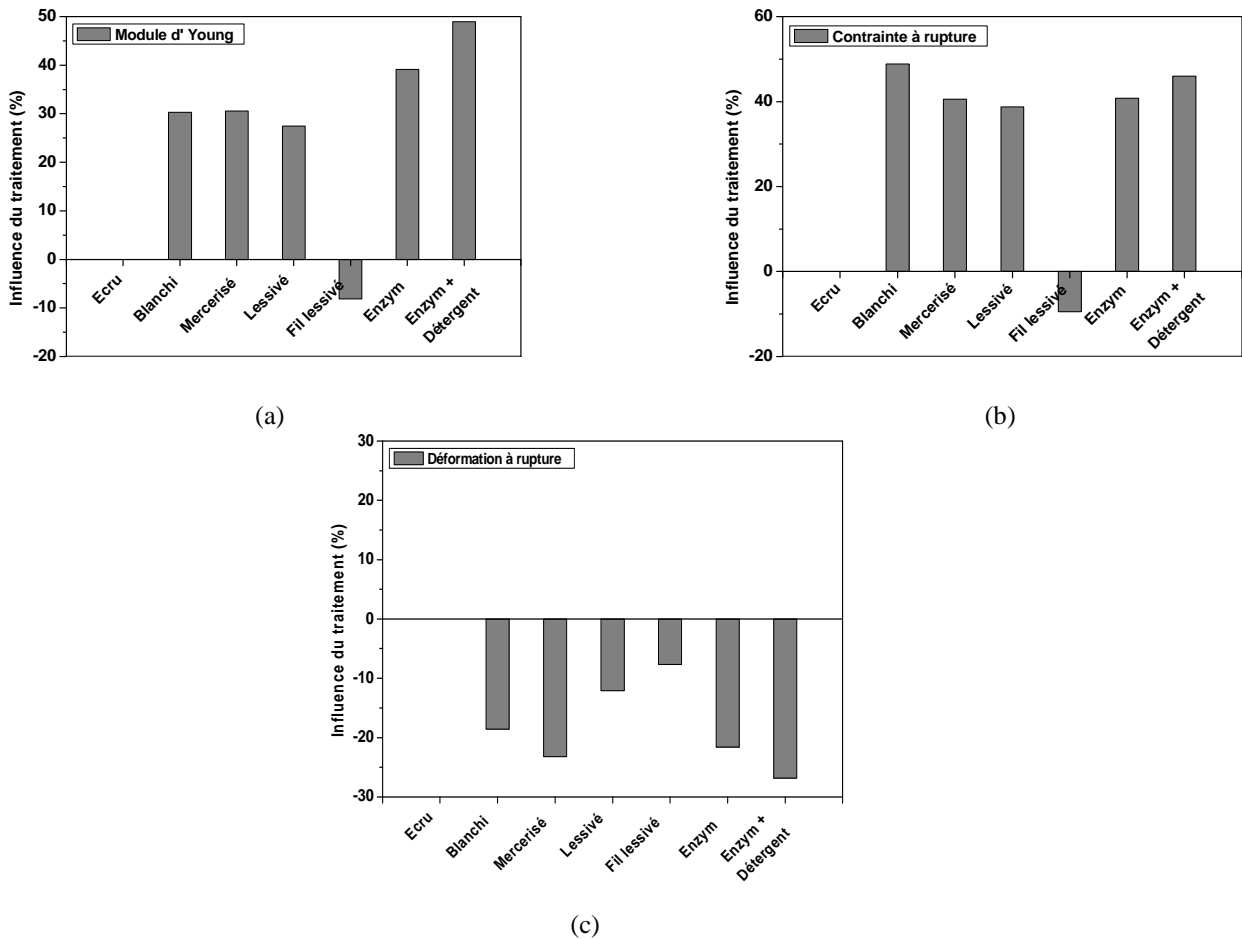


Fig. 2 .Effet des traitements textiles sur les propriétés en traction de composite lin/époxy :(a) module d'Young, (b) contrainte à rupture, (c) déformation à rupture.

Afin de s'affranchir de l'influence des fractions volumiques des fibres et des pores, un calcul de la rigidité et de la résistance du renfort est possible. Ce calcul est basé sur la loi des mélanges. La rigidité du composite peut être calculée avec la rigidité des fibres (f), de la matrice (m) et leurs fractions volumiques respectives :

$$E_c = V_f \cdot E_f + V_m \cdot E_m \quad (\text{Eq. 5}),$$

on en déduit, la rigidité du renfort :

$$E_f = \frac{E_c - V_m \cdot E_m}{V_f} \quad (\text{Eq. 6}).$$

Pour la résistance, on considère que la déformation de la matrice est supérieure à celle des fibres. Dans ce cas, la résistance du composite peut être écrite :

$$\sigma_c = V_f \cdot \sigma_f + V_m \cdot E_m \cdot \varepsilon_f \quad (\text{Eq. 7}),$$

relation dans laquelle on peut expliciter la déformation du renfort :

$$\sigma_c = V_f \cdot \sigma_f + V_m \cdot E_m \cdot \frac{\sigma_f}{E_f} \quad (\text{Eq. 8}),$$

on en déduit la résistance du renfort :

$$\sigma_f = \frac{E_f}{V_f \cdot E_f + V_m \cdot E_m} \cdot \sigma_c \quad (\text{Eq. 9}),$$

avec σ la contrainte, ε la déformation et E le module d'Young, et leurs indices respectifs : f pour le renfort, m pour la matrice et c pour le composite.

On peut dès lors comparer l'effet des traitements en calculant une rigidité apparente et une résistance apparente du renfort. Ces valeurs pour le composite avec des fibres non traitées sont présentées ci-dessous (Tab. 4).

	E_f (Gpa)	σ_f (Mpa)
Ecrû (référence)	16,3	142,8

Tab. 4. Rigidité apparente et résistance apparente du renfort non traité (référence).

L'influence des traitements sur la rigidité apparente (a) et la résistance apparente (b) est montrée dans la figure ci-dessous (Fig. 3). L'effet est exprimé en pourcentage d'amélioration (dégradation) par rapport au cas du composite avec fibre non traitée (référence).

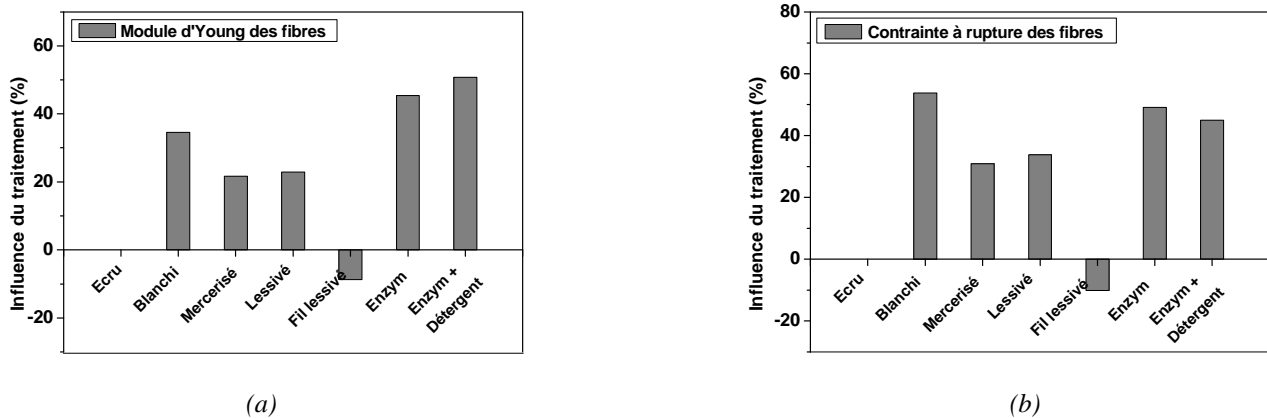
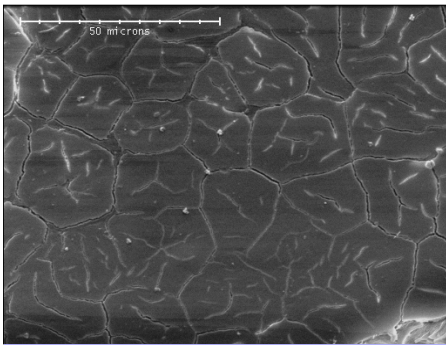


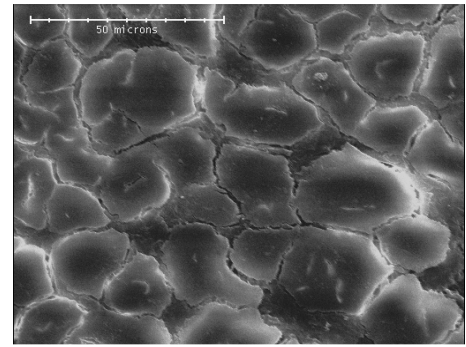
Fig. 3. influence des traitements textiles sur les propriétés mécaniques du renfort :
(a) rigidité apparente, (b) résistance apparente.

Pour la rigidité, les deux traitements enzymatiques offrent les meilleurs résultats avec près de 50% de gain. En terme de résistance, le traitement de blanchiment et le traitement enzymatique apportent les meilleures performances avec une amélioration de 50% environ.

L'effet du traitement textile permet, d'une part, le nettoyage de la surface des fibres, et d'autre part l'élimination des pectines, et facilite donc, la séparation des fibres les unes des autres. Dans ce cas, les liaisons naturelles faibles entre les fibres (pectine) sont remplacées par des liaisons d'interface fibre/résine (Fig. 4). En effet, on observe sur l'échantillon traité (mercerisé), une bonne séparation des fibres, les unes des autres, ce qui facilite la pénétration de la résine entre les fibres, contrairement au cas de l'échantillon non traité.



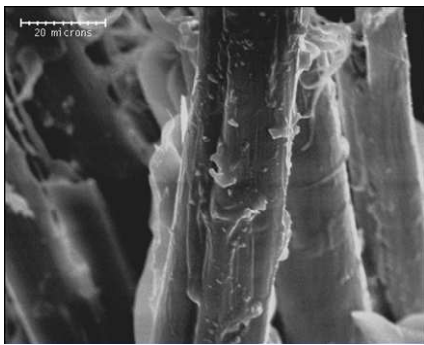
(a) non traité



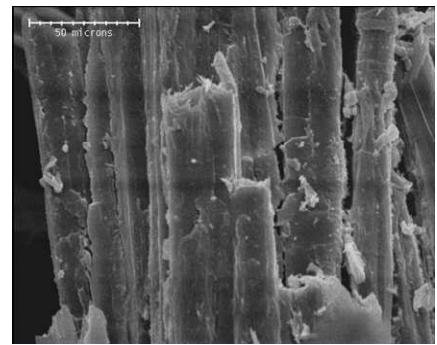
(b) mercerisé

Fig. 4. Micrographies MEB de composite (section) lin/époxy : (a) non traité ; (b) mercerisé.

Les faciès de rupture du composite avec des fibres non traitées (a), et des fibres traitées (mercerisé) (b) sont présentées ci-dessous (Fig. 5). On constate la présence de la résine sur les fibres pour l'échantillon traité (mercerisé), ceci confirme la bonne adhésion de la matrice sur le renfort, contrairement au cas de l'échantillon non traité.



(a) non traité



(b) mercerisé

Fig. 5. Les faciès de rupture de composite lin/époxy : (a) non traité ; (b) mercerisé.

3.3 Absorption d'eau

Les courbes de reprise d'eau pour les composites lin/époxy, avec les différents traitements sont présentées ci-dessous (Fig. 6). Les teneurs en eau à saturation et les coefficients de diffusion sont réunis dans le Tab. 5. L'absorption d'eau des composites lin/époxy suit un comportement Fickien avec une partie initiale linéaire et un plateau d'équilibre. L'absorption d'eau de ces composites est importante (jusqu'à 20% en masse). Cela est expliquée d'une part, par le caractère hydrophile des fibres végétales et d'autre part, par le taux élevé des pores dans le composite. La mise en évidence de l'effet des traitements sur l'absorption d'eau du composite lin/époxy est difficile à cause de la différence entre les taux de pores des matériaux testés. La modélisation de l'effet des porosités, prévue par ailleurs pour ce type de matériau [8], devrait permettre de normaliser et de comparer les résultats.

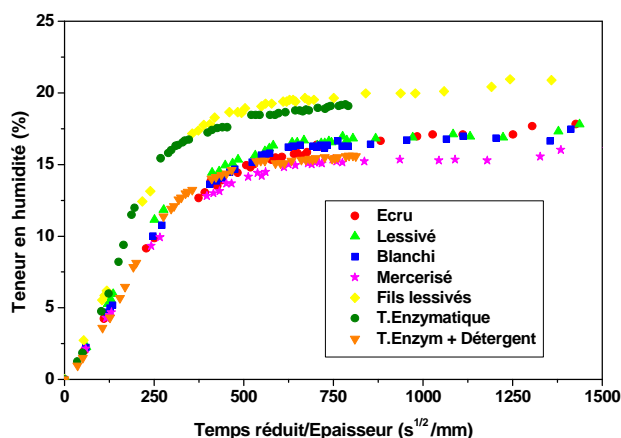


Fig. 6. Evolution de la teneur en eau absorbée des composites lin/époxy avec différents traitements textiles.

	écru	lessivé	blanchi	mercerisé	fils lessivés	enzymatique	enzymatique + détergent
h (mm)	2,61	2,37	2,41	2,46	2,74	2,66	2,59
V_p (%)	14,7	9,2	13,2	8,4	18,2	12,0	5,2
M_s (%)	17,1	16,9	16,9	15,3	19,9	19,1	15,6
D X 10⁻⁷ (mm²/s)	10,3	12,8	10,7	11,6	14,8	14,6	11,7

Tab. 5. Epaisseurs, fractions volumiques des pores, teneurs en eau à saturation et coefficients de diffusion des différents composites lin/époxy.

4. Conclusion

Ce travail a mis en évidence l'influence des traitements textiles (prétraitements) des fibres de lin sur les propriétés du composite lin/époxy. L'application de ces traitements améliore la résistance et la rigidité de ces matériaux. Cela est dû à l'amélioration de l'adhésion de la résine sur les fibres de lin. Cette amélioration de l'interface s'accompagne d'une diminution de la déformation. Les traitements facilitent la séparation des fibres les unes des autres, et le nettoyage de la surface de ces fibres. Les meilleurs résultats sont atteints avec les traitements de blanchiment et enzymatique avec détergent, pour la résistance du composite, avec des améliorations de 49% et 46% respectivement. Pour la rigidité, les meilleures performances sont données par les traitements enzymatique et enzymatique avec détergent, avec une augmentation de 40% et 50% respectivement. L'absorption d'eau des composites lin/époxy est importante. Elle est accentuée par le taux élevé des pores dans le matériau. Ce point doit faire l'objet d'une optimisation rigoureuse du protocole d'élaboration.

5. Références

- [1] K. Van de Velde , P. Kiekens, « Wettability of natural fibres used as reinforcement for composites ». Die Angewandte Makromolekulare Chemie , Vol. 272, pp. 87–93, 1999.
- [2] AK. Bledzki , J. Gassan, « Composites reinforced with cellulose based fibres ». Progress in Polymer Science, Vol. 24, pp. 221–274, 1999.
- [3] BV. Kokta, RG. Raj, C. Daneault, « Use of wood flour as filler in polypropylene: Studies on mechanical properties ». Polymer - Plastics Technology and Engineering, Vol. 28, pp. 247–259, 1989.
- [4] JM. Felix, P. Gatenholm, « The nature of adhesion in composites of modified cellulose fibers and polypropylene ». Journal of Applied Polymer Science, Vol. 42, pp. 609–620, 1991.

- [5] JEG. Van Dam et al. « Increased application of domestically produced plant fibres in textiles, pulp and paper production, and composite materials ». Study of the European Commission, 1994.
- [6] T. Truong Chi, « The effects of chemical treatment on the mechanical properties of flax fibre reinforced epoxy composites ». Eupoco thesis, Department of Metallurgy and Materials Engineering, Katholieke Universiteit Leuven, 2000.
- [7] J .Gassan, AK .Bledzki « Possibilities for improving the mechanical properties of jute epoxy composites by alkali treatment of fibres ». Composites Science and Technology, Vol. 59, pp. 1303–1309, 1999.
- [8] V .Hancoo, C .Poilâne « Composite lin/époxy : optimisation par plan d'expériences ». JNC 17, Poitiers, 2011.