

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE

MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE  
SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE ABBES LAGHROUR  
KHENCHELA

FACULTE DES SCIENCES & DE LA  
TECHNOLOGIE

DEPARTEMENT DE GENIE  
INDUSTRIEL



جامعة عباس لغرور خنشلة

كلية العلوم و التكنولوجيا

قسم: الهندسة الصناعية

No. Réf. : / /

**Mémoire**

Présenté par :

**KERFAH KHADIDJA**

**MARIR RANDA**

Pour obtenir le diplôme de **MASTER (LMD)**

**OPTION : Génie des Procédés et Environnement**

*Thème*

**Élaboration et caractérisation d'un nouveau  
matériau composites PEHD/fibre de Lin**

**Devant le jury :**

Mr. S. BAHLOULI

Président

U.A.L.K

Mr. MAKHLOUF AZZEDINE

Rapporteur

U.A.L.K

Mr. A. MAKHLOUFI

Examineur

U.A.L.K

**Année universitaire: 2018–2019**

## REMERCIEMENT

Les recherches qui font l'objet de ce mémoire ont été menées au Laboratoire LSPN Faculté de Technologie, Université de 8 mais 1954 GUELMA, dirigées par monsieur le professeur H.SATHA.

Tous d'abord, nous tiens à remercier Dieu de notre avoir donné la force et le courage de mener à terme ce modeste travail. Bien entendu, les paroles ne suffiront jamais pour reconnaître à Dieu tous les biens dont il nous a comblés. Comme, c'est un plaisir de remercier tous ce qui a contribué à la Réalisation de ce mémoire :

En premier lieu, nous voudrions exprimer notre remerciements les plus sincères à notre promoteur le professeur AZZEDINE MAKHLOUF, pour notre avoir guidé pour la réalisation de cette étude et le soutien scientifique et moral.

Nos vifs remerciements iront aux membres de jury qui nous ferons l'honneur de juger notre travail.

Nous tenons également à remercier toutes les personnes qui ont participées de près ou de loin à la réalisation de ce projet.

<b>Liste des tableaux</b>	<b>Pages</b>
<b>Tableau II.1</b> :Caractéristiques majeurs des différentes familles des polyéthylènes.	34
<b>Tableau II.2</b> : Classification et exemples de fibres naturelles.	37
<b>Tableau II.3</b> :Différents stades de croissance d'une plante de lin.	45
<b>Tableau II.4</b> :Composition des fibres de lin suivant différents auteurs.	50
<b>Tableau IV.1</b> : Résultat RX.	71
<b>Tableau IV.2</b> : Résultats de DSC.	73
<b>Tableau IV.3</b> : Résultats de l'ATG.	75
<b>Tableau IV.4</b> : Valeurs de module d'Young, contrainte max, déformation et résistance à la rupture.	78

<b>Liste des figures</b>	<b>Pages</b>
<b>Figure I.1 :</b> Représentation de la chaîne d'un polymère linéaire.	07
<b>Figure I.2:</b> Représentation schématique d'un polymère bidimensionnel: le carbone graphite.	08
<b>Figure I.3 :</b> Représentation schématique d'un polymère tridimensionnel.	08
<b>Figure I.4 :</b> Représentation schématique d'un polymère thermoplastique.	09
<b>Figure I.5 :</b> Les principaux groupes de polymères.	11
<b>Figure I.6:</b> Formation d'un polymère.	12
<b>Figure I.7:</b> Différentes sollicitations mécaniques.	12
<b>Figure I.8:</b> Résistance des matériaux en fonction de leur densité.	18
<b>Figure I.9:</b> Croissance du pourcentage de matériau composite en aéronautique au fil des années.	18
<b>Figure I.10:</b> Constituants d'un matériau composite.	19
<b>Figure I.11 :</b> Exemples de charges utilisées dans les CMO : (a) microbilles de verre, (b) noir de carbone, (c) silice.	21
<b>Figure I.12 :</b> Classification schématique des différents types de composites.	22
<b>Figure I.13 :</b> Constitution d'un stratifié.	23
<b>Figure I.14 :</b> Exemples d'architectures utilisées avec les CMC : (a) tissu 2D équilibré, (b) tissu 3D tri-orthogonal, (c) tissu « 4D » (renforcé selon les quatre diagonales d'un cube).	24
<b>Figure I.15 :</b> Matériaux sandwichs à âmes pleines.	24
<b>Figure I.16 :</b> Schéma d'un matériau composite.	24
<b>Figure I.17:</b> Quelques applications des CMO "haute performance" : (a) un catamaran, (b) le support de la charge utile d'Ariane 5, (c) des skis de compétition (image de Thomas Grollier).	25
<b>Figure I.18:</b> Quelques applications des CMC : (a) la tuyère d'un moteur spatial, (b) le disque à aubes d'une turbine (image GE Energy), (c) un disque de frein haut de gamme (image Porsche).	25
<b>Figure I.19 :</b> Exemples d'applications des composites à matrice métallique.	26
<b>Figure II.1. :</b> Illustration schématique de la structure d'un composite.	32

<b>Figure II.2 :</b> Types de matrice.	32
<b>Figure II.3 :</b> structure du polyéthylène.	33
<b>Figure II.4 :</b> Structure du bois (observations multi échelles).	37
<b>Figure II.5 :</b> Modèle de description de la structure d'une fibre végétale.	38
<b>Figure II.6 :</b> Représentation schématique d'une fibre de bois.	39
<b>Figure II.7 :</b> Molécule de la cellulose (n répétitions du motif cellobiose).	39
<b>Figure II.8 :</b> Structures d'hémicelluloses principalement rencontrées chez les plantes terrestres.	40
<b>Figure II.9 :</b> Structure de l'homogalacturonane riche en unités d'acide galacturonique avec une fraction estérifiée en galacturonate de méthyl.	41
<b>Figure II.10:</b> Cycle complet d'une plante de lin du semis jusqu'aux fibres techniques.	44
<b>Figure II.11 :</b> Photographies des différents stades de croissance d'une plante de lin : levée des plantes (a), début de la croissance rapide (b), floraison des plantes (c) et maturité des plantes (d).	45
<b>Figure II.12 :</b> Photographies et schémas des différentes étapes de la plante aux fibres longues : l'arrachage (a), le rouissage (b), le teillage (c) : broyage (gauche) et battage (droite), le peignage (d), la filature (e et f) : l'étirage (e) et le filage (f).	47
<b>Figure II.13:</b> Section transversale de la tige de lin.	48
<b>Figure II.14 :</b> Les parois cellulaires d'une fibre de lin.	49
<b>Figure III.1 :</b> Poudre du PEHD.	59
<b>Figure III.2 :</b> fibre de lin.	59
<b>Figure III.3 :</b> Plan de travail expérimental.	60
<b>Figure III.4 :</b> Élaboration de bio-composite PE/lin.	60
<b>Figure III.5:</b> Méthode d'élaboration des plaques bio composites entre les deux cylindres.	61
<b>Figure III.6 :</b> Le moule entre les deux résistances.	61
<b>Figure III.7:</b> Plaque obtenue après le pressage.	61
<b>Figure III.8 :</b> Démonstration de la loi de Bragg.	63
<b>Figure III.9 :</b> Diffractomètre à rayons X type Bruker D8 Advance (Laboratoire de recherche LSPN-Université de GUELMA, Algérie).	64
<b>Figure III.10 :</b> Calorimètre différentiel à balayage de marque NETZSCH.DSC/TG CC 300 (Laboratoire de recherche LSPN-Université de GUELMA, Algérie).	66

<b>Figure III.11:</b> Appareil de traction de type Sun 500.	67
<b>Figure III.12 :</b> L'emplacement de l'éprouvette entre les deux mors et l'évolution de son profil.	68
<b>Figure IV.1 :</b> Diagramme RX de polyéthylène vierge.	70
<b>Figure IV.2 :</b> Diagramme RX de fibre de lin.	70
<b>Figure IV.3 :</b> Diagramme RX de matériau composite PE/20%Lin.	71
<b>Figure IV.4 :</b> Thermogramme DSC de fibre de fibre lin.	72
<b>Figure IV.5 :</b> Thermogramme DSC de PE vierge.	72
<b>Figure IV.6:</b> Thermogramme DSC/ATG : PE/20% Fibres de LIN.	73
<b>Figure IV.7 :</b> Thermogramme TG de PE pur.	74
<b>Figure IV.8 :</b> Thermogramme TG de fibre de lin.	74
<b>Figure IV.9:</b> Thermogramme TG de composite PE/10%Lin	75
<b>Figure IV.10 :</b> Thermogramme TG de composite PE/20%Lin.	75
<b>Figure IV.11 :</b> Epreuve de traction pour PEHD/Fibres de Lin.	76
<b>Figure IV.12 :</b> Variation de la contrainte en fonction de déformation du PEHD.	77
<b>Figure IV.13 :</b> Variation de la contrainte en fonction de déformation de la fibre de lin (10%).	77
<b>Figure IV.14 :</b> Variation de la contrainte en fonction de déformation de fibre de lin (20%).	78

## LISTE DES ABREVIATIONS

**(%m)**: Pourcentage massique.

**ADEME** : Agence de l'environnement et de la maîtrise de l'énergie.

**ATG**: Analyse thermogravimétrique.

**CMC** : Les composites à matrices céramiques.

**CMM** : Les composites à matrices métalliques.

**CMO** : les composites à matrice organique.

**DP** : Degré de polymérisation.

**DRX** : Diffraction des Rayons X.

**DSC** : Calorimétrie Différentielle à Balayage.

**GD** : Les composites de Grande Diffusion.

**HP** : les composites Haute Performance.

**HRGP** : Hydroxyproline Rich GlycoProteins.

**Mpa** : Méga pascal.

**PE** : Polyéthylène.

**PE/LIN** : le polyéthylène / fibre de lin

**PEBD** : le polyéthylène basse densité.

**PEBDL** : le polyéthylène basse densité linéaire.

**PEBDr** : polyéthylène basse densité ramifié.

**PEHD** : le polyéthylène haute densité.

**PEMD** : le polyéthylène moyenne densité.

**PP** : polypropylène.

**PS** : Polystyrène.

**PU** : polyuréthane.

**PVC** : Polychlorure de vinyle.

**R** : le radical.

**T<sub>d</sub>** : la température de décomposition thermique.

**TD** : les polymères thermodurcissables.

**T<sub>f</sub>** : la température de fusion.

**T<sub>g</sub>** : la température de transition vitreuse.

**TP** : les polymères thermoplastiques.

**UV** : Lumière ultraviolette.

SOMMAIRE	Page
Liste des tableaux.....	
Liste des figures.....	
Liste des abréviations.....	
Introduction générale.....	1
<b>ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE</b>	
<b>CHAPITRE I : Généralité sur les polymères et les matériaux composites</b>	
I.1 Introduction.....	3
I.2 Historique sur les polymères.....	3
I.3 Définition.....	4
I.4 Nomenclature des polymères.....	5
I.5 Classification des polymères.....	6
I.5.1 Selon leur nature chimique.....	6
I.5.2 Selon l'origine.....	6
I.5.3 Selon leur domaine d'application.....	7
I.5.4 Selon l'architecture(dimensionnalité).....	7
I.5.5 Selon leur comportement thermique.....	8
I.6 Propriétés des polymères.....	11
I.7 Synthèse de polymérisation.....	15
I.7.1 Polycondensation.....	15
I.7.2 Polymérisation en chaîne.....	15
I.8 Isomérisation de configuration.....	15
I.9 Applications des polymères.....	17
I.10 Les matériaux composites.....	17
I.10.1 Présentation générale.....	19
I.10.2 Composants.....	19
I.10.2.1 Matrices.....	20
I.10.2.2 Renfort.....	21
I.10.2.3 Charges et additifs.....	21
I.10.2.4 L'interface.....	22
I.10.3 Classification des composites.....	22

I.10.3.1 Selon la géométrie.....	22
- I.10.3.1.1 Composites à fibres.....	
- I.10.3.1.2 Composites à particules.....	
- I.10.3.1.3 Composites structuraux.....	
I.10.3.2 Selon la nature des constituants.....	25
I.10.4 Avantages et inconvénients des composites.....	26
I.11 Conclusion.....	27
Référence bibliographique.....	28
<b>Chapitre II : Le matériau de l'étude PE/LIN</b>	
II.1. Introduction.....	30
II.2 Les agro-composites.....	31
II.3 Agro-Composites polyéthylène/ fibre du lin.....	31
II.3.1 Matrice.....	32
II.3.1.1 le polyéthylène PE.....	32
II.3.1.2 Structure.....	33
II.3.1.3. Différent types de polyéthylènes.....	33
II.3.1.4 Caractéristiques générales des polyéthylènes.....	34
II.3.2 Agent de renforcement.....	35
II.3.2.1 Composites renforcés par fibres naturelles de lin.....	35
II.4 Généralités : Composites polymères renforcés par fibres végétales.....	35
II.4.1 Enjeux des fibres naturelles comme renfort.....	35
II.4.2 Les fibres végétales.....	36
II.4.2.1 Définition.....	36
II.4.2.2 Classification des fibres végétales.....	36
II.4.2.3 Structure de la fibre végétale.....	37
II.4.2.4 Composition chimique des fibres végétales.....	38
II.4.3 Présentation de la fibre de lin.....	43
II.4.3.1 De la plante à la fibre de lin.....	44
II.4.3.2 De la tige à la fibre.....	45
II.4.3.3 Composition de la fibre de lin.....	47
II.4.3.4 Caractéristiques et propriétés de la fibre de lin.....	49
II.5 L'intérêt de travailler avec les fibres de lin.....	51

II.6 Conclusion.....	52
Référence Bibliographique.....	52
<b>ETUDE EXPERIMENTALE</b>	
<b>Chapitre III : Matériaux utilisés et technique de caractérisation de PEHD/Lin</b>	
III.1. L'objectif.....	58
III.2 Matériel utilisé.....	59
III.1.1 Résine.....	59
III.1.2 Charge.....	59
III. 3. Organigramme.....	60
III.4 Méthode de préparation des échantillons.....	60
III.5 Méthode de caractérisation et mode opératoire.....	62
III.5.1 Caractérisation structural.....	62
III.5.1.1 L'essai de Diffraction à Rayons X (DRX).....	62
III.5.2 Caractérisation thermique.....	64
III.5.2.1 Caractérisation thermique par l'Analyse Calorimétrique Différentielle (DSC).....	64
III.5.2.2 Caractérisation Thermogravimétrie TG.....	65
III.5.3 Caractérisation mécanique.....	66
III.5.3.1 L'essai de traction.....	66
III.6 Conclusion.....	68
Références bibliographique.....	69
<b>Chapitre IV : Résultats et discussion</b>	
IV.1 Analyse par Diffraction des rayons X.....	70
IV.2 Analyse thermique.....	72
IV.2.1 l'Analyse Calorimétrique Différentielle (DSC).....	72
IV.2.2 Caractérisation Thermogravimétrie TG.....	74
IV.3 Analyse de la performance mécanique.....	76
IV.3.1 Préparation des éprouvettes.....	76
IV.3.2 Comportement en traction.....	77
Conclusion générale.....	78

### Introduction générale

Aujourd'hui, les matières plastiques sont présentes dans presque tous les secteurs de l'activité humaine. Ils sont devenus, ces dernières années indispensables dans de nombreux domaines de haute technologie.

Les avantages les plus importants des polymères sont la facilité de mise en œuvre, la productivité et la réduction des coûts. Pour de nombreuses applications, les propriétés des polymères sont modifiées en utilisant des renforts pour optimiser les propriétés mécaniques. Les matériaux polymères renforcés par des fibres synthétiques, comme les fibres d'aramide, les fibres de carbone ou les fibres de verres sont très utilisés dans divers domaines d'application, comme ceux de l'automobile, de la construction, de l'aéronautique, et des sports. Les fibres de verres sont les plus utilisées grâce à leur faible coût, leur facilité de production et leurs propriétés mécaniques spécifiques importantes. Cependant, le problème rencontré lors de l'utilisation de ces matériaux vient de leurs impacts négatifs pour l'homme et pour l'environnement (allergie de la peau, cancer pulmonaire...etc.) [1].

Les composites renforcés de fibres naturelles ont donc attiré une attention de plus en plus grande en raison de leur faible coût, leur densité peu élevée, leur biodégradabilité et leur disponibilité leur facilité de mise en œuvre, leur haut module spécifique, et leur capacité à être recyclé, Ces avantages présentent de l'intérêt pour des applications dans divers domaines comme par exemple la vie quotidienne (mobilier, plancher, pots...), l'industrie automobile les constructeurs automobiles utilisent des tapis fabriqués à base d'abaca. Notamment, le lin et le chanvre sont utilisés dans la fabrication des portes à panneaux pressés, tablettes arrière, dossiers de siège, boucliers moteur et appuie-tête. Pour les consommateurs, les composites à base des fibres végétales dans les voitures fournissent une meilleure isolation thermique et acoustique, par rapport aux fibres synthétiques [2].

Dans cette étude, nous avons élaboré un nouveau matériau composite Polyéthylène/ fibres de lin. Le composite obtenu a été soumis à plusieurs techniques de caractérisations à savoir les caractérisations structurales par la diffraction des rayons X (DRX), les tests mécaniques (traction), thermiques (l'analyse calorimétrique différentielle (DSC) et l'analyse thermogravimétrique (ATG).

Ce mémoire s'articule sur deux grandes parties: une étude bibliographique et un protocole expérimental.

L'étude bibliographique se répartit en deux chapitres :

Le premier chapitre est un rappel de généralités et de notions fondamentales sur les polymères, et les matériaux composites (matrice, renfort, charge et additifs) et leur classification.

Le deuxième chapitre, est une présentation de notre matériau d'étude PE/LIN.

Le protocole expérimental est constitué de deux chapitres:

Le troisième chapitre, comprend les matériaux utilisés ainsi que les techniques expérimentales utilisées.

Le quatrième chapitre est consacré à la discussion de l'ensemble des résultats obtenus à partir des différents tests effectués.

Enfin, dans la conclusion, nous évoquerons les principaux résultats trouvés.

***ETUDE  
BIBLIOGRAPHIQUES***

## I.1 Introduction

Les matériaux polymères sont généralement utilisés pour leurs propriétés mécaniques particulières et leur aptitude à être mis en œuvre. Ces qualités sont étroitement liées à leur structure et il est possible, à partir d'une structure moléculaire donnée, d'imaginer la morphologie qui en découle et les propriétés qui s'y rattachent, ce chapitre a pour objet une présentation des principales générales sur les polymères, et en particulier le polyéthylène [3].

## I.2 Historique

### a) La science des polymères

Le mot polymère vient du grec « polus » plusieurs, et « meros » partie. Un polymère est une macromolécule, organique ou inorganique, constituée de l'enchaînement répété d'un même motif, le monomère (du grec monos: un seul ou une seule, et meros ; partie), reliés les uns aux autres par des liaisons covalentes, les travaux de Staudinger dans les années 1920 constituent la base de la science des polymères (Nobel en 1953) ou macromolécules. Flory énoncera plus tard les principes fondamentaux sur les polymères (Nobel 1974) [4].

### b) L'industrie des matières plastiques

« Les matières plastiques » : Les matières plastiques sont des matériaux organiques de synthèse fondés sur l'emploi des macromolécules (polymères). Les caoutchoucs sont aussi regroupés sous cette appellation [4].

Matière plastique = résine de base + adjuvants + additifs

Cas du caoutchouc : vers 1839 l'Anglais Thomas Hancock et l'Américain Charles Goodyear découvrent le procédé de vulcanisation du caoutchouc en chauffant du caoutchouc naturel en présence de soufre. Le procédé industriel sera développé à partir de 1850,

En dehors du caoutchouc, les premières matières plastiques sont apparues à la fin du XIXème siècle et existaient plutôt à l'échelle artisanale qu'industrielle, parmi ces matériaux, on peut citer ceux d'origine naturelle comme le Celluloïd (toute première matière plastique, 1870) ou le nitrate de cellulose (coton-poudre ou fulmicoton, produit inflammable utilisé dans les canons),

La Galalithe, littéralement « pierre de lait », obtenue à partir de la caséine du lait, et utilisée en remplacement de la corne et de l'écaille dans la fabrication de peignes, de boutons... On trouve des brevets de fabrication de colle à base de caséine dès 1873 et déjà

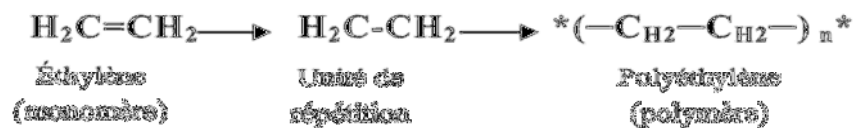
utilisée dans l'ancienne Egypte. De façon générale, les protéines peuvent être considérées comme des polymères naturels, car constituées d'enchaînement d'acides aminés, Feretti invente le Lanital ou fibre de lait (Brevet Feretti, 1935) [4].

Le véritable essor de la chimie des matières plastique se fait à partir de 1920 par l'exploitation des résines formo-phénoliques (1909, Baekeland = Belge). C'est la naissance de la Bakélite, il s'agit du premier polymère thermodurcissable entièrement synthétique et ouvre la voie aux résines à base de phénol, de 1920 à 1940 se développent les résines « phénol/formol » ; l'acétate de cellulose remplace le celluloïd trop inflammable dans des applications type films photo ou cinématographique, les premières matières thermoplastiques sont produites en grande quantité [4].

### I.3 Définition

- Un polymère : Les polymères – du grec 'poly' (plusieurs) et 'meros' (parties) – sont un groupe de produits chimiques qui partagent un même principe de formation [5].

Un polymère est en effet une macromolécule obtenue par la répétition d'une unité constitutive, encore appelée unité de répétition, comportant un groupe d'atomes liés par des liaisons covalentes [5].



Les termes « unité constitutive » et « unité de répétition » sont, de nos jours, préférés à « motif monomère » ou « unité monomère ». Un polymère peut être schématisé par l'enchaînement covalent suivant, dénommé chaîne macromoléculaire :



Les polymères définis ci-dessus sont obtenus par la répétition d'une seule unité constitutive: ce sont des homopolymères, Par opposition, les copolymères ont des chaînes comportant plus d'un type d'unité de répétition [6].

- Un monomère est un composé constitué de molécules simples pouvant réagir avec d'autres monomères pour donner un polymère. Contrairement au polymère, un monomère a une faible masse moléculaire, le terme macromolécule est souvent utilisé à la place de polymère [7].

- Polymérisation : est la réaction qui, à partir des monomères, forme en les liants des composés de masse moléculaire plus élevée [7].
- Degré de polymérisation : Le degré de polymérisation (**DP**) représente le nombre moyen de monomères dans les macromolécules d'un polymère, qui désigne la réaction chimique de fabrication des macromolécules. Il peut être calculé par le rapport de la masse moléculaire moyenne **M** d'une macromolécule du polymère considéré, à la masse moléculaire **M<sub>0</sub>** du monomère correspondant.

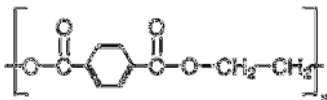
$$(\text{DP}) = \frac{M}{M_0} \quad \dots\dots\dots\text{Equation I.1}$$

Lorsque ce degré de polymérisation (DP) est inférieur à 30, on parle d'oligomère et lorsqu'il est supérieur à 30, c'est un polymère [8].

La masse moléculaire d'un polymère est le produit de la masse moléculaire du motif élémentaire par l'indice de polymérisation [8].

- n < 10** et des **M < 1.000** : systèmes moléculaires,
- 10 < n < 50** et **1.000 < M < 5.000** : Oligomères,
- n ≥ 50** et des masses **M ≥ 5.000** : macromolécules ou polymères.

Exemple : tergal



$$M \text{ motif} = 10.M C + 8.M H + 4.M O$$

$$M \text{ motif} = 10 \cdot 12 + 8 \cdot 1 + 4 \cdot 16$$

$$M \text{ motif} = 192 \text{ g.mol}^{-1}$$

$$M \text{ tergal} = n \cdot 192$$

#### I.4 Nomenclature des polymères

Le nom des polymères est généralement dérivé de celui du monomère en ajoutant le préfixe "poly". Pour le nom du monomère : il est formé de plusieurs mots, il est mis entre parenthèses et précédé de poly (préfixe) : [9]

Exemple :

poly(chlorure de vinyle).

Pour le copolymère, on utilise un unifix pour décrire ce que l'on connaît de l'agencement des unités constitutives. Ils sont désignés par : le polymère alterné. [9].

Exemple :

Poly [styrène-Co-(méthacrylate de méthyle)].

Généralement, les polymères sont très utilisés dans les matières plastiques, les fibres, élastomères, peintures, adhésifs,...etc. [9].

### I.5 classification des polymères

Il existe plusieurs modes de classification des polymères que peuvent être classés selon divers critères :

#### I.5.1 Selon leur nature chimique

- Polymères minéraux : Ils sont constitués soit de chaînes renfermant un seul corps simple : diamant, graphite, phosphore, soufre... Ou de chaînes renfermant plusieurs hétéroatomes : (silicates acides polyphosphoriques, chlorure de polyphosphonitrile) [10].
- Polymères organiques : C'est la classe la plus riche comme : les polydiène, les polyacryliques, les polyamides, les polyvinyliques [10].
- Polymères mixtes : Doués de propriétés intéressantes dont une bonne résistance thermique (~300°C – 350°C) comme les silicones [10].

#### I.5.2 Selon l'origine

On distingue les polymères naturels, les polymères Artificiels et les polymères Synthétiques :

- Les polymères naturels : Issus des règnes végétal, animal ou minéral leur économique et le rôle qu'ils jouent dans les mécanismes vitaux leur à assuré une place de premier choix depuis une trentaine d'années [9,11].

Exemples :

- Les polysaccharides (cellulose, amidon...),
- Les protéines (la laine, la soie ...),
- Le caoutchouc naturel... [9,11],
- Les polymères artificiels : (dérivés des polymères naturels).

Sont obtenue par modification chimique de polymères naturels de façon à transformer certaines de leurs propriétés.

Exemples :

- les esters celluloseux (nitrocellulose, acétate de cellulose ...etc.),
- ébonite (caoutchouc fortement réticulé par le soufre) [9,11],

- Les polymères synthétiques : Les molécules monomères qui permettent de les obtenir n'existent pas dans la nature. Cependant, on peut remarquer que les structures réalisées par synthèse sont souvent proches de celles des polymères naturels [9,11].

### I.5.3 Selon leur domaine d'application

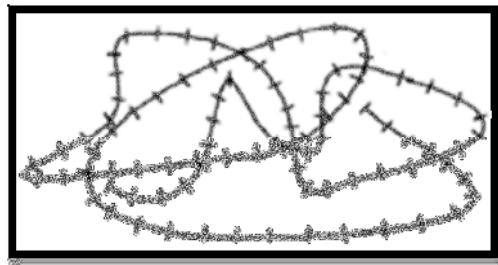
- Les polymères de grande diffusion : Encore appelés polymères de commodité, dont la production annuelle s'évalue par millions de tonnes, sont devenus d'un emploi quotidien pour tous. Le polyéthylène, le polystyrène, le poly (chlorure de vinyle) et quelques autres sont à classer dans cette catégorie d'une importance économique considérable [9].
- Les polymères techniques : Ont des caractéristique qui leur permettent de se substituer, de plus en plus aux matériaux traditionnels (métaux, céramiques...) pour nombreuses application ; les polyamides, les polyacétales...fond partie de cette famille [9].
- Les polymères spéciaux : Ou polymères de fonction Présentent généralement une propriété qui induit leur utilisation pour une application particulière. C'est dans cette catégorie que se trouvent les polymères conducteurs, photo actifs, thermostables, adhésifs, etc. [9].

### I.5.4 Selon l'architecture (dimensionnalité)

Les polymères peuvent encore être classés en trois catégories :

#### ➤ Polymères linéaires ou monodimensionnels :

Pour lesquels, chaque chaîne macromoléculaire est constituée d'un nombre (éventuellement) élevé mais fini d'unités monomères ; de tels systèmes correspondent à la polymérisation de monomères bivalents et une macromolécule linéaire peut être très schématiquement représentée par un trait continu divisé en intervalles figurant chacun une unité monomère (**Figure I.1**) chaînes polymères est constitué de longueur variable, propriété désignée par le terme poly molarité [9].

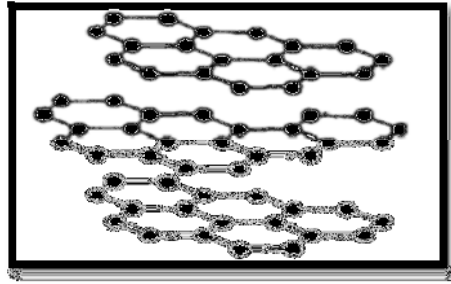


**Figure I.1** : Représentation de la chaîne d'un polymère linéaire [9].

#### ➤ Polymères bidimensionnels :

Dont certains peuvent être produits par la nature (carbone graphite, kératine...) ; dans le domaine des polymères synthétiques ce sont encore des curiosités de laboratoire.ils se

présentent sous la forme de feuillets bidimensionnels, d'épaisseur comparable à celle des molécules simples (**Figure I.2**) [9].

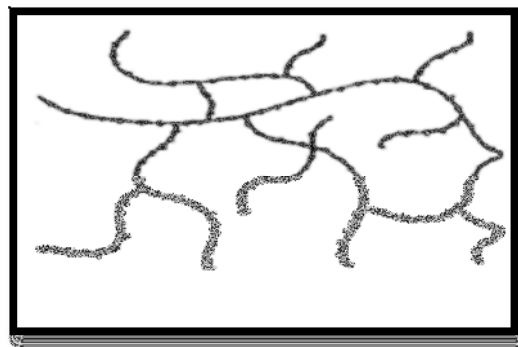


**Figure I.2:** Représentation schématique d'un polymère bidimensionnel: le carbone graphite[9].

➤ **Polymères tridimensionnels :**

Qui résultent de la polymérisation de monomères dont la valence moyenne est supérieure à deux ou encore de la réticulation (formation d'un réseau tridimensionnel), par voie physique ou chimique, de polymères linéaires [9].

Leur dimension moléculaire peut être considérée comme infinie puisque toutes les unités monomères constituées d'un objet sont liées de façon covalente pour former une seule macromolécule [9]. Les liaisons se développent dans les trois dimensions et un élément de volume d'un tel peut être représenté sur la (**figure I.3**) [9].



**Figure I.3 :** Représentation schématique d'un polymère tridimensionnel [9].

### I.5.5 Selon leur comportement thermique

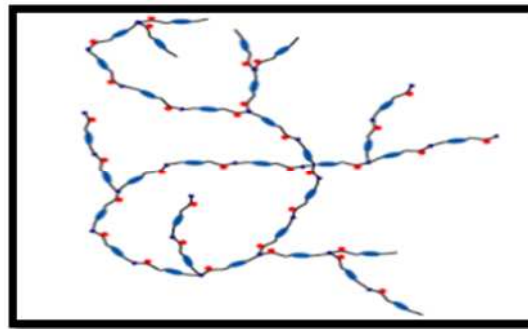
Les propriétés des polymères permettent des usages très variés. On peut ainsi les regrouper dans quatre familles :

- Les thermoplastiques,
- Les thermodurcissables,
- Les élastomères,
- Les élastomères thermoplastiques [12 ,13].

Tous ces polymères peuvent être des homopolymères ou des copolymères et peuvent être obtenus par polymérisation (polymérisation en chaîne ou polycondensation). Ils se différencient par l'architecture de leurs macromolécules (linéaire, ramifié ou réseau tridimensionnel), par leur mise en œuvre plus ou moins aisée et par leur propriété d'élasticité [12,13].

### A) Les thermoplastiques

Un thermoplastique est un polymère linéaire ou ramifié pouvant être ramolli par chauffage et durci par refroidissement dans un intervalle de température spécifique. Ces polymères peuvent cristalliser thermoplastes amorphes ou thermoplastes semi-cristallins comme le polyéthylène (PE), le poly (chlorure de vinyle) (PVC) ou le polystyrène (PS) sont mis en forme par diverses techniques comme l'injection, l'injection-soufflage, l'extrusion ou le rotomoulage. (**Figure I.4**), Dans la majorité des cas, le polymère ayant la forme désirée récupère son état partiellement cristallin ou amorphe après refroidissement [12,13].



**Figure I.4 :** Représentation schématique d'un polymère thermoplastique [12,13].

### B) Les thermodurcissables

Un thermodurcissable est un produit (poudre à mouler solide ou résine liquide transformé irréversiblement par polymérisation en un réseau tridimensionnel infusible et insoluble que l'on qualifie de thermodurci,

Il est souvent d'usage, dans l'industrie, d'employer abusivement le terme thermodurcissable pour désigner à la fois le système réactif initial, soluble et fusible et le produit final et infusible [12,13].

Le réactif initial peut être composé d'un monomère ou d'un mélange de monomère (résines aminoplastes et phénoplastes, silicone,...) ou plus fréquemment d'un mélange de polymère linéaire de faible masse molaire et de monomère (résine époxy, résines polyesters insaturés,...) [12,13].

Dans tous les cas, la réticulation s'effectue sous l'action de la chaleur et / ou de catalyseurs. Ces polymères amorphes ont une température de transition vitreuse élevée (80 °C à + de 150 °C) mais, du fait de la réticulation, ne présentent pas d'état caoutchouteux ni d'état liquide,

La mise en œuvre des thermodurcissables est donc moins aisée que celle des thermoplastiques car il faut impérativement effectuer la mise en forme en même temps que la réaction chimique de réticulation. Cependant, les thermodurcissables présentent une résistance mécanique, chimique et thermique plus élevées que les thermoplastiques [12,13].

### C) les élastomères

Un élastomère est un polymère linéaire ou ramifié transformé par vulcanisation en un réseau tridimensionnel faiblement réticulé infusible et insoluble. Les élastomères se différencient des thermodurcissables par leur propriété d'élasticité caoutchouteuse, c'est-à-dire la capacité à subir de très grandes déformations réversibles sous l'action de contraintes mécaniques,

Ils peuvent atteindre de très grandes allongements (jusqu'à 500 %) tout en étant capables de retrouver leur géométrie initiale en restituant au milieu l'énergie qui leur a été fournie lors de la déformation [12,13].

### D) les élastomères thermoplastiques

Un élastomère thermoplastique est un polymère linéaire ou ramifié présentant les propriétés d'élasticité caoutchoutique d'un élastomère et de facilité de mise en œuvre d'un thermoplastique. Les élastomères thermoplastiques sont le souvent des copolymères à blocs (ou des mélanges d'homopolymères et /ou copolymère) dont la structure à l'état solide résulte toujours de l'association d'au moins deux phases distinctes non miscibles :

- une phase souple (température de transition vitreuse comprise entre 90 °C et 40 °C) associée à une phase rigide (température de transition vitreuse ou température de fusion supérieure à 90 °C). C'est donc un matériau multiphasé où la phase rigide est dispersée dans la phase souple [13].

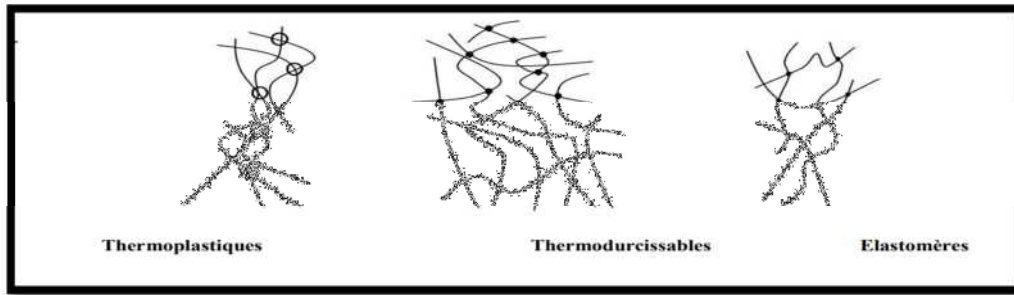


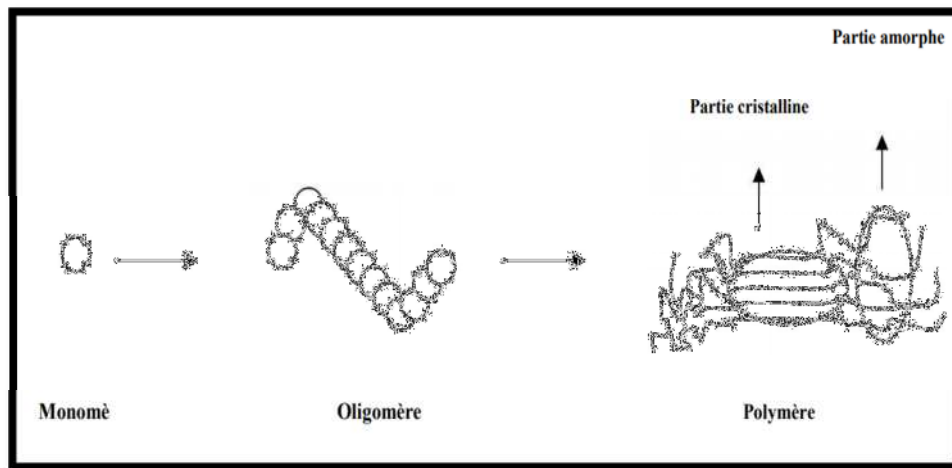
Figure I.5 : Les principaux groupes de polymères [14].

## I.6 Propriétés des polymères

### Propriétés physique

En fonction de la structure physique des polymères, on peut les classer en quatre types d'état :

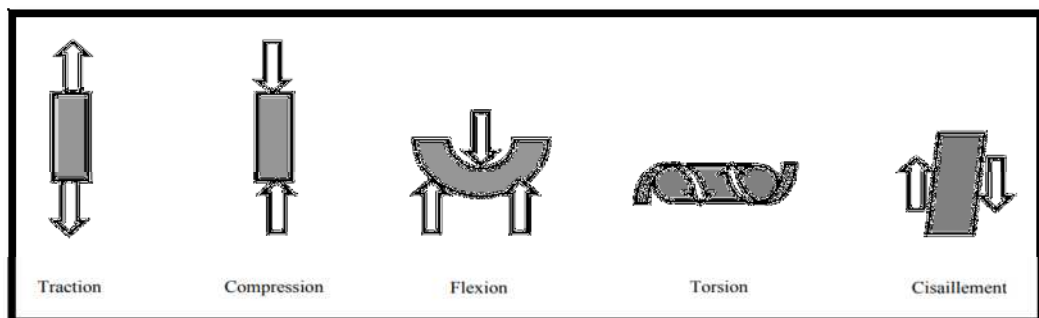
- L'état amorphe, dans lequel les arrangements moléculaires n'ont pas d'ordre prédéfini. Les macromolécules sont enchevêtrées en pelotes. Cette absence d'ordre engendre une absence de point de fusion, l'existence d'une température de transition vitreuse qui marque le passage d'un état vitreux (où le matériau se comporte comme un verre, c'est-à-dire dur et cassant) à un état caoutchouteux (où les chaînes peuvent glisser plus facilement), ainsi qu'une transparence dans le visible comme cela est le cas du polystyrène « cristal » ou du poly (chlorure de vinyle) « cristal » qui sont tous deux amorphes.
- L'état amorphe orienté, où les arrangements moléculaires sont tous orientés dans la même direction.
- L'état cristallin, caractérisé par un arrangement organisé des molécules. Les chaînes s'organisent de façon ordonnée et compacte. Le cristal polymère est décrit par son réseau et son motif. Le réseau caractérise la périodicité dans les trois directions de l'espace. Les principales caractéristiques de l'état cristallin sont une compacité supérieure à celle de la phase amorphe, l'existence d'un point de fusion et l'absence de transition vitreuse, une rigidité supérieure à celle de la phase amorphe.
- L'état semi cristallin, qui associe à la fois un arrangement organisé et des zones amorphes [14].



**Figure I.6:** Formation d'un polymère [14].

### Propriétés mécaniques

Les propriétés mécaniques décrivent le comportement des matériaux soumis à des sollicitations mécaniques telles que des pressions, des étirements, des torsions, des frottements, des cisaillements, des chocs ou sous l'effet de la pesanteur (**Figure I.6**). Elles dépendent fortement du type de contrainte appliquée [14].



**Figure I.7:** Différentes sollicitations mécaniques [14].

C'est la structure du réseau résultant de l'enchevêtrement des chaînes qui confère aux polymères leurs propriétés mécaniques les plus importantes, à savoir l'élasticité caoutchouteuse et le comportement viscoélastique à l'état fondu d'une part, et un comportement à la fois vitreux et ductile à l'état solide d'autre part [14].

### Propriétés optiques

Les plastiques diffèrent par leur capacité à transmettre la lumière. Certains plastiques sont transparents, proposant des propriétés optiques similaires à celles du verre, d'autres sont opaques et ne laissent passer aucune lumière, les plastiques translucides laissent passer un peu de lumière, mais les images sont floues [14].

Enfin, certains plastiques sont semi-opaques, c'est-à-dire qu'il laisse passer une quantité de lumière suffisante pour pouvoir voir des ombres et des formes. Comme les valeurs de transmission de lumière correspondant à ces différentes catégories ne sont pas clairement définies, quelques règles ont été établies, si un journal est placé de l'autre côté du plastique et est facilement lisible, le plastique est transparent, si l'image est floue et qu'on ne peut rien lire, mais que les formes générales peuvent être distinguées, le plastique est translucide, si seulement de vagues ombres peuvent être discernées, le plastique est semi-opaque. Si aucune lumière n'est transmise, le plastique est opaque [14].

Certains plastiques sont utilisés pour leur transparence : le polycarbonate, le polystyrène. Ils sont utilisés pour fabriquer des lentilles pour les yeux, des vitres pare-balle, des éclairages de voiture. Contrairement au verre, une exposition prolongée aux U.V. dégrade les polymères qui deviennent jaunes et perdent de leur transparence [14].

Les propriétés optiques d'un polymère sont déterminées par sa structure chimique. En effet, un polymère semi-cristallin dont les cristallites ont au moins une dimension voisine de celle de la longueur d'onde de la lumière va la diffuser. Le matériau sera alors opaque ou translucide. Par contre, un polymère amorphe, isotrope à la lumière visible, est en général transparent. L'ajout de renforts ou d'additifs conduit bien souvent à une réduction de la transmission de lumière [14].

### **Propriétés thermique :**

Lorsque la température augmente, l'énergie thermique fournie aux molécules augmente leur mobilité : les rotations autour des liaisons C-C du squelette des chaînes sont plus aisées (changements de conformations). Le nombre de liaisons de faible intensité, Vander Waals, diminue quand la température augmente ce qui libère les mouvements moléculaires [4].

Nous considèrerons que la température de transition vitreuse d'un matériau  $T_g$ , est la température en-dessous de laquelle les molécules ont une faible mobilité relative ou autrement dit, a la plus grande modification de la capacité de déformation. La température  $T_g$  est habituellement utilisée pour les phases totalement ou partiellement amorphes telles que les verres et les plastiques. Les polymères thermoplastiques (non-réticulés) sont complexes car, en plus de posséder une température de fusion,  $T_f$ , au-dessus de laquelle leur structure cristalline disparaît, de tels plastiques ont une seconde température, plus basse,  $T_g$  en-dessous de laquelle ils deviennent rigides et cassants, et peuvent fissurer ou se briser en éclats. Au-

dessus de  $T_g$ , les liaisons secondaires (Van der Waals) non-covalentes entre les chaînes des polymères deviennent faibles en comparaison de l'agitation thermique, et le polymère devient souple et capable de se déformer élastiquement ou plastiquement sans rupture [4].

Ce comportement est l'une des propriétés qui rendent la plupart des plastiques si utiles. Un tel comportement n'existe pas pour les plastiques thermodurcissables réticulés qui, une fois fabriqués, le sont de manière irréversible et se briseront en éclats plutôt que se déformer, sans jamais redevenir plastiques ni fondre en étant chauffés [4].

#### a) État vitreux : $T < T_g$

Dans une phase cristalline, les molécules sont rangées et alignées. Elles n'ont en revanche aucun ordre dans une phase vitreuse : elles forment des pelotes enchevêtrées. La mobilité des molécules de la phase vitreuse est d'autant plus faible que la température est basse. Ce qui confère à tous les polymères en général une bonne rigidité, une bonne résistance mécanique, et une faible capacité de déformation [4].

#### b) État caoutchouteuse : $T_g < T < T_f$ ou $T_d$

Il est dû à la phase amorphe et existe dans la quasi totalité des polymères. Il démarre généralement aux alentours de la température de transition vitreuse  $T_g$  et il est limité. Supérieurement par la température de fusion des zones cristallines si elles existent ou par la température de décomposition thermique  $T_d$ ,

Dans cet état la phase cristalline n'évolue pas et sa structure reste identique à ce qu'elle était à  $T < T_g$ . La phase amorphe subit des changements : l'activation thermique provoque un déplacement des molécules, une rupture des liaisons de faibles énergies entre les molécules et une augmentation du volume du polymère. Il en résulte une grande facilité de mouvement des molécules [4].

#### c) État fluide : $T_f < T < T_d$ :

Cet état ne concerne que les thermoplastiques. La phase cristalline n'existe plus car  $T > T_f$ , il n'y a plus qu'une phase amorphe. Toutes les molécules (celles provenant de la phase amorphe et celle provenant de la phase cristalline) forment des pelotes. Les nœuds d'enchevêtrement disparaissent par reptation, le matériau s'écoule comme un fluide. Le polymère est malléable : peu de résistance mécanique, peu rigide.... [4].

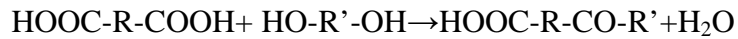
### I.7 Synthèse de polymérisation

Les principales méthodes de polymérisation sont : la polymérisation par étapes (polycondensation), et la polymérisation en chaîne.

### I.7.1 Polycondensation :

Cette polymérisation se fait par étapes, car les chaînes de polymères croissent par des réactions de condensation se produisant entre des molécules ayant des degrés de polymérisation différents [15].

L'exemple le plus souvent utilisé pour ce type de polymérisation est la polyestérification :



### I.7.2 Polymérisation en chaîne:

La polymérisation radicalaire suit un mécanisme de réaction en chaîne, l'espèce active est un radical libre : elle s'applique à un grand nombre de monomères. Cette polymérisation comporte trois étapes essentielles : l'amorçage, la propagation, et la terminaison des chaînes.

- Amorçage : il correspond à l'activation d'un monomère grâce à un amorceur A ; le début de la réaction de polymérisation en chaîne est de la forme :



- Propagation : la propagation est la séquence de réaction d'addition du monomère M sur un centre actif  $\text{AM}^*$ , conduisant ainsi à la croissance de la chaîne macromoléculaire [15].



- Terminaison : Les réactions de terminaisons sont celles qui conduisent à la destruction des centres actifs et à la fin des réactions de la croissance des chaînes [15].



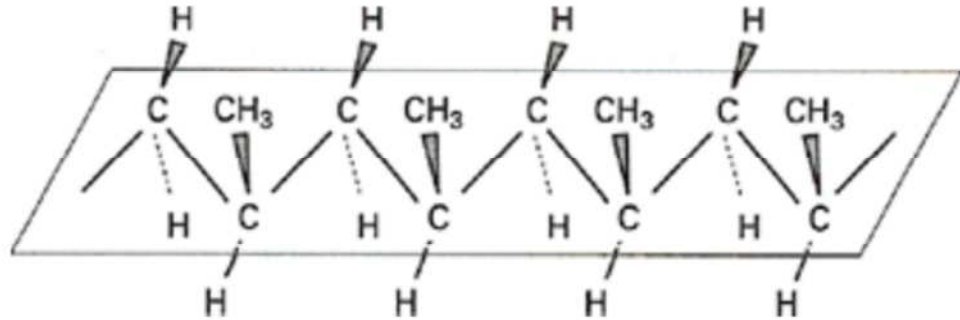
### I.8 Isomérisation de configuration

a) **Tacticité** : La tacticité ne concerne que les molécules asymétriques ; il s'agit de molécules de même formule chimique dont l'arrangement des radicaux monovalents R le long du squelette de la molécule est différent d'une chaîne à l'autre. Prenons le cas de l'éthylène et du PE sur lequel on a greffé un radical R à la place d'un atome d'hydrogène. R peut être un

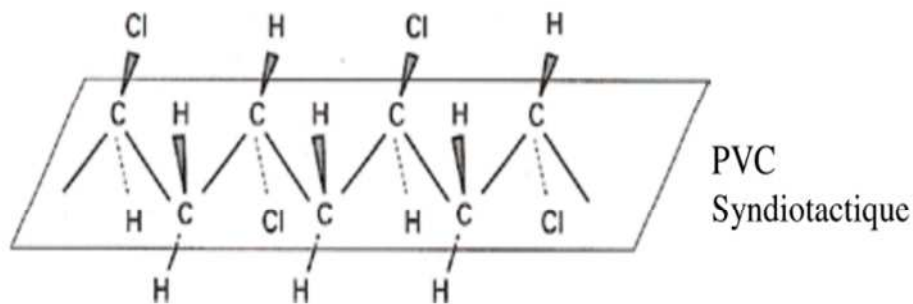
atome de Cl, F ou un groupe CH<sub>3</sub> ou C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>. Le groupement R rend le monomère asymétrique ; Il y a plusieurs façons de le lier sur le squelette de la chaîne – [CH<sub>2</sub> –CH<sub>2</sub>]<sub>n</sub> [4]:

-Les radicaux R sont tous du même côté du plan : on a un polymère linéaire isotactique.

Polypropylène  
isotactique



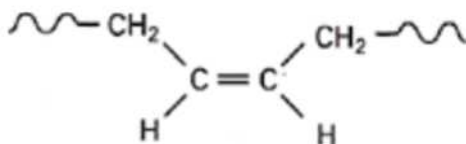
-Les radicaux R sont situés alternativement de part et d'autre du plan : le polymère est linéaire syndiotactique.



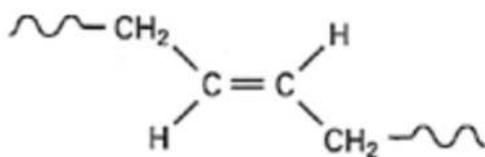
-les radicaux R sont fixés au hasard, de façon aléatoire : le polymère est linéaire atactique.

**b) Isomérisie cis-trans :** Certaines polymérisations, comme celle des diènes conjugués, [le butadiène-1,4 –CH<sub>2</sub>=CH-CH=CH<sub>2</sub>- en particulier] peuvent donner lieu au maintien de doubles liaisons dans le squelette macromoléculaire.

- Soit en positions cis :



- soit en position trans :



## I.9 Applications des polymères

Les polymères sont devenus l'élément essentiel d'un nombre très important d'objets usuels et courants, dans lesquels, ils ont souvent remplacé les substances naturelles. Les cinq familles les plus utilisées sont:

- Les polychlorures de vinyles (PVC) utilisés comme pièces rigides, tuyauterie, films d'étanchéité ;
- Les polyéthylènes (PE) utilisé comme emballages transparents, pièces rigides ;
- Les polypropylènes (PP) et les polystyrènes (PS): pièces rigides, fibres;
- Les polyesters saturés: cosmétiques, revêtements de surface, peintures, vernis, plastifiants pour autres polymères; et les polyesters insaturés: films, fibres textiles, matériaux composites ;
- les polyuréthanes (PU). Citons également les élastomères, qui proviennent pour certains de ces différentes familles et ou du caoutchouc naturel, et dont la principale utilisation se trouve dans le domaine des pneumatiques [16].

## I.10 Les matériaux composites

### I.10.1 Présentation générale

Un matériau composite est un assemblage de deux constituants non-miscibles, ou plus, dont les propriétés physiques sont supérieures à celles de ces constituants pris séparément. Les principaux constituants d'un composite sont le renfort qui supporte la charge et la matrice qui lui transfère cet effort,

Les principaux atouts des composites sont, d'une part, leur importante résistance spécifique (**Figure I.8**), et d'autre part, la possibilité de les concevoir pour répondre de façon optimale aux besoins fonctionnels. En fait, l'orientation du renfort et sa concentration permettent de façonner un matériau dont l'anisotropie est parfaitement adaptée aux sollicitations qu'il doit supporter [17].

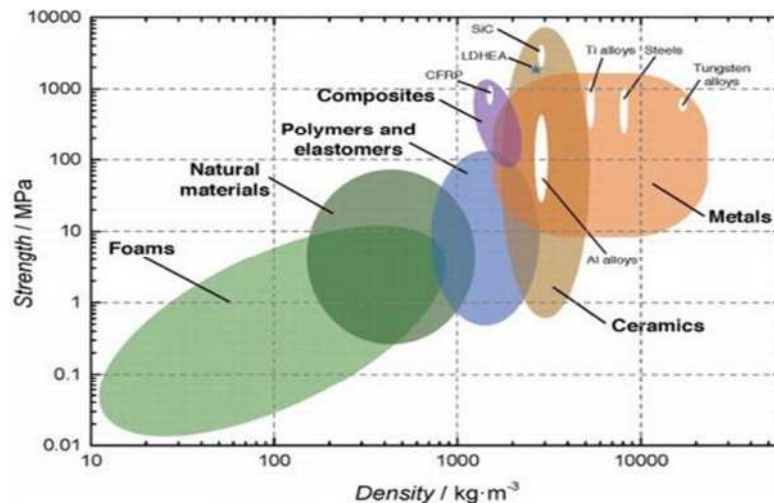


Figure I.8: Résistance des matériaux en fonction de leur densité [17].

De par leurs résistances spécifiques supérieures, les matériaux composites permettent d'alléger les structures en se substituant aux alliages métalliques, quand l'environnement d'application le permet, notamment les conditions thermiques. Cette alternative suscite un grand intérêt industriel, particulièrement pour les industries du transport (aéronautique, spatiale, ferroviaire, automobile, navale,...) où le poids représente un défi majeur car synonyme de consommation du carburant. Dans cette optique, les constructeurs aéronautiques continuent d'introduire de plus en plus de pièces en composite dans leurs appareils en vue d'un allègement optimal de la structure (figure I.9) [18].



Figure I.9: Croissance du pourcentage de matériau composite en aéronautique au fil des années [18].

Selon l'objectif de leur utilisation, les matériaux composites peuvent se classer en deux catégories : Les composites de Grande Diffusion (GD), dont l'utilisation a pour but

principal l'optimisation des coûts, et les composites Haute Performance (HP), employés pour leurs performances mécaniques ou thermiques optimales [18].

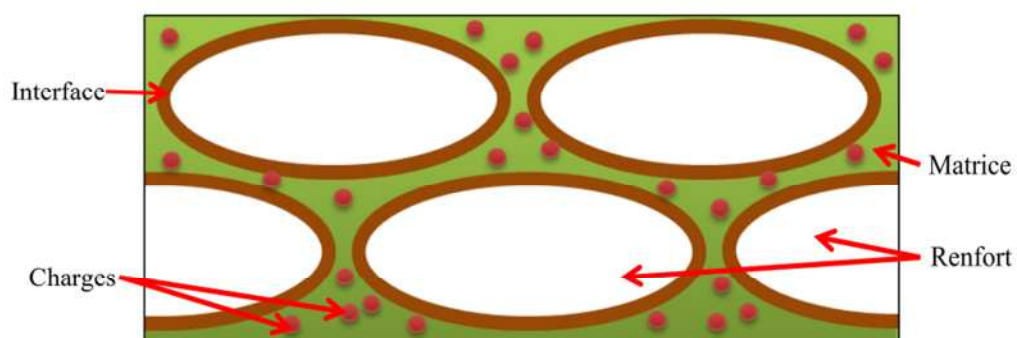
Les composites GD représentent environ 95% des matériaux composites utilisés. Ils sont peu coûteux et compatibles avec des productions en grandes séries (automobile, loisir...). En revanche, leurs propriétés mécaniques sont plus faibles que celles des matériaux de référence tels que l'acier et s'emploient généralement pour des pièces non structurales [18].

Les composites HP présentent des caractéristiques mécaniques spécifiques supérieures à celles des métaux. Ces matériaux sont assez onéreux à cause du coût élevé de leurs matières premières et de leurs procédés de fabrication. Ils sont utilisés pour des applications de pointe comme l'aéronautique, le spatial, l'armement, les voitures de luxe et de formula 1...etc. [18].

### I.10.2 Composants

Les matériaux composites se constituent principalement d'un renfort et d'une matrice, le renfort représente le squelette qui assure la tenue mécanique de la pièce composite, la matrice, quant à elle, est le liant qui maintient le renfort dans sa forme. Le rôle de la matrice est, essentiellement, la transmission des efforts au renfort et la protection de celui-ci contre les agressions environnementales,

En outre, d'autres composants peuvent être ajoutés aux matériaux composites comme les charges qui augmentent la résistance de la matrice, les interfaces pour améliorer l'adhésion fibres/matrice et les additifs qui protègent le composite contre l'humidité et les UVs (**figure I.10**) [18].



**Figure I.10:** Constituants d'un matériau composite [18].

#### I.10.2.1 Matrices

Les matériaux composites peuvent être classés en fonction du type de leur matrice. Les composites les plus répandus (à 95% de l'ensemble des composites), et qui font l'objet de

cette étude, sont les composites à matrice organique CMO, il existe par ailleurs d'autres types de composites comme les composites à matrice céramique, utilisés pour leur tenue à très haute température, ou les composites à matrice métallique, employés pour des applications en aérospatiale [18].

On distingue deux familles de matrices organiques : les thermoplastiques TP qui sont des polymères qui imprègnent le renfort après fusion puis se solidifient par refroidissement, et les thermodurcissables TD, qui sont des résines liquides qui se solidifient par réaction chimique de réticulation [18].

Les matrices thermoplastiques offrent une bonne résistance mécanique, ces résines ont plusieurs avantages : Leur coût est faible, leur temps de stockage est illimité et leurs chutes sont recyclables. Cependant, leur importante viscosité reste le plus grand frein à leur utilisation, notamment dans les procédés à basse pression d'injection (10 bars au maximum) [18].

Les matrices thermodurcissables sont plus adaptées à ce genre de procédés. Leur faible viscosité leur permet d'imprégner des renforts de grandes dimensions avec une faible pression d'injection. De plus, leurs propriétés mécaniques sont plus élevées que celles des TP. Cependant, leur prix d'achat cumulé avec leur coût de stockage à froid est assez conséquent, contrairement aux TP. De plus, la réticulation des TD se produit pendant le procédé, si bien que la résine restant après le procédé n'est plus utilisable pour la fabrication d'autres pièces, ce qui requière la bonne maîtrise de la quantité de résine nécessaire à la réalisation de chaque pièce [18].

### **I.10.2.2 Renfort**

Souvent sous forme de fibres, le but des renforts dans les matériaux composites est essentiellement d'accroître leurs propriétés mécaniques (rigidité, résistance à la rupture, dureté, etc.) et d'améliorer des propriétés physiques, tels les comportements au feu et à l'abrasion, la tenue en température ou les propriétés électriques. Les caractéristiques recherchées dans les renforts sont une masse volumique faible, une compatibilité avec les matrices et une facilité de mise en œuvre [19].

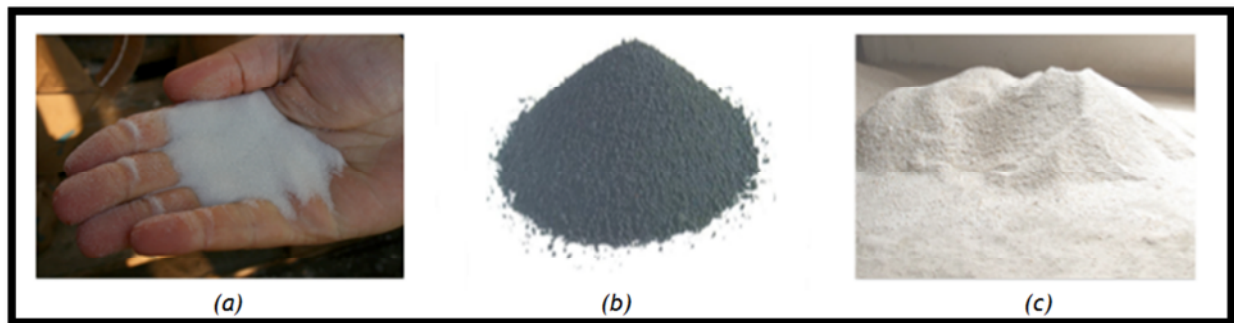
Cette étude s'intéresse aux applications des renforts en fibres longues. On distingue deux types de matériau de fibres: les fibres naturelles (lin, coton, chanvre, cellulose...) [18], dans notre cas c'est les fibres de lin.

### **I.10.2.3 Charges et additifs**

L'objet de la charge renforçant est d'améliorer les caractéristiques mécaniques de la résine, ou diminuer le coût des résines en conservant les performances des résines. En générales ces charges sont des microbilles ou des particules (poudre) [20].

Les principales charges utilisées sont :

- microbille en (verre, carbone, époxyde, phénolique, polystyrène, etc. ...),
- des poudres ou paillettes métalliques : (cuivre, fer, aluminium, etc. ...),
- des particules de carbone (noir de carbone) [20].



**Figure I.11** : Exemples de charges utilisées dans les CMO :

(a) microbilles de verre, (b) noir de carbone, (c) silice [20].

Les additifs sont nécessaires pour assurer une adhérence suffisante entre le renfort fibreux et la matrice et de modifier l'aspect ou les caractéristiques de la matière à laquelle ils sont ajoutés. Les additifs se trouvent en faible quantité (quelques % et moins) et interviennent comme :

- lubrifiants et agents de démoulage,
- pigments et colorants,
- agents anti-retraits,
- agents anti-ultraviolets,
- accélérateur,
- catalyseur [20].

#### I.10.2.4 L'interface

En plus de ces fibres et la matrice, il faut rajouter : une interface qui assure la compatibilité renfort/matrice, qui transmet les contraintes de l'un à l'autre sans déplacement relatif, Bonne adhérence en couche fine,

Des produits chimiques entre aussi dans la composition du composite, l'interphase etc. qui peut jouer sur le comportement mécanique, mais n'interviennent pratiquement jamais dans le calcul de structure composite [20].

### I.10.3 Classification des composites

Il existe aujourd'hui un grand nombre de matériaux composites qu'on peut classer soit selon la forme des composants ou suivant la nature des composants [21].

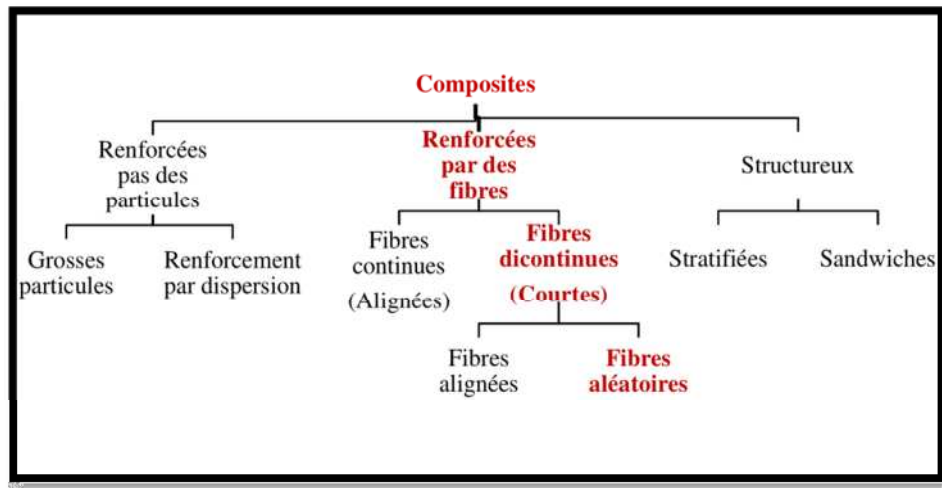


Figure I.12 : Classification schématique des différents types de composites [21].

#### I.10.3.1 Selon la géométrie

##### I.10.3.1.1 Composites à fibres

Un matériau composite est un composite à fibres si le renfort se trouve sous forme de fibres. Les fibres utilisées se présentent soit sous forme de fibres continues, soit sous forme de fibres discontinues : fibres coupées, fibres courtes, L'arrangement des fibres, leur orientation permettent de moduler à la carte les propriétés mécaniques des matériaux composites, pour obtenir des matériaux allant de matériaux fortement anisotropes à des matériaux isotropes dans un plan [22].

##### I.10.3.1.2 Composites à particules

Un matériau composite est un composite à particules lorsque le renfort se trouve sous forme de particules. Une particule, par opposition aux fibres, ne possède pas de dimension privilégiée. Les particules sont généralement utilisées pour améliorer certaines propriétés des matériaux ou des matrices, comme la rigidité, la tenue à la température, la résistance à l'abrasion, la diminution du retrait, etc.... [22].

Dans de nombreux cas, les particules sont simplement utilisées comme charges pour réduire le coût du matériau, sans en diminuer les caractéristiques [22].

### I.10.3.1.3 Composites structuraux

La fabrication d'un renfort peut se faire avec des fibres dispersées au hasard ou orientées dans une ou plusieurs directions. Des axes de renforcement peuvent être définis par le croisement de fils (le tissage), des structures 3D ont également été développées afin d'améliorer le renforcement du matériau et d'apporter une solution aux problèmes de délaminage [22].

- **Les stratifiés**

Un stratifié est constitué d'un empilement de monocouches ayant chacun une orientation propre à un référentiel commun aux couches et désigné comme le référentiel du stratifié, en jouant sur l'ordre et l'orientation de ces couches, il est possible d'adapter finement les propriétés mécaniques du stratifié aux sollicitations extérieures, et donc d'atteindre un haut niveau d'optimisation en mettant la matière là où elle est le plus utile [22].

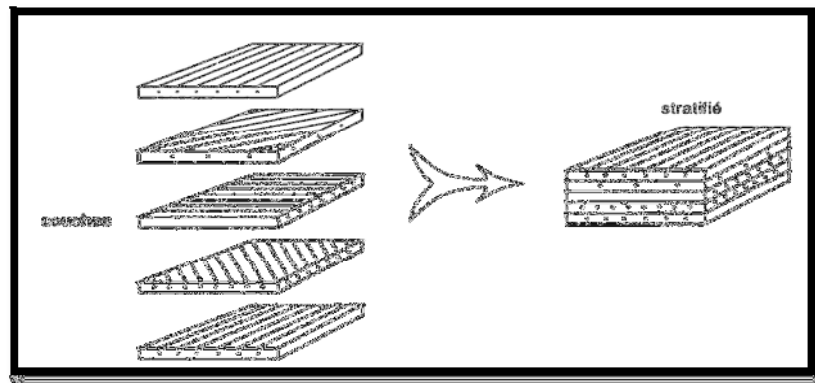
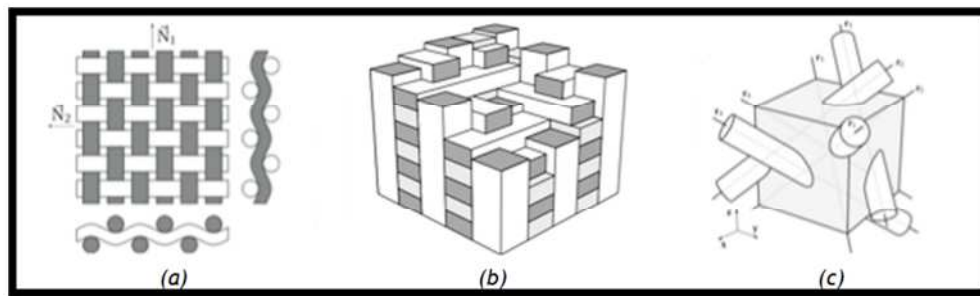


Figure I.13 : Constitution d'un stratifié [22].

- **Les Composites tissés**

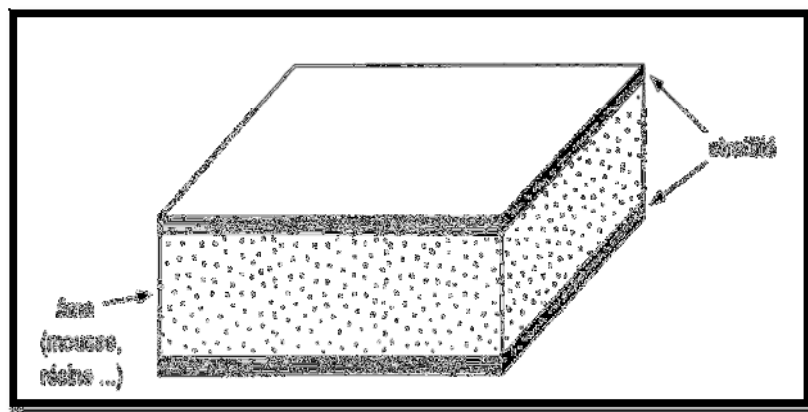
Dans ces structures, les fibres sont tressées ou alignées en "câbles" nommés torons ou simplement fils, comptant chacun quelques centaines ou milliers de fibres, ces fils sont ensuite tissés selon des motifs plus ou moins sophistiqués, les motifs du tissu peuvent être extrêmement variés selon les caractéristiques voulues du matériau [22].



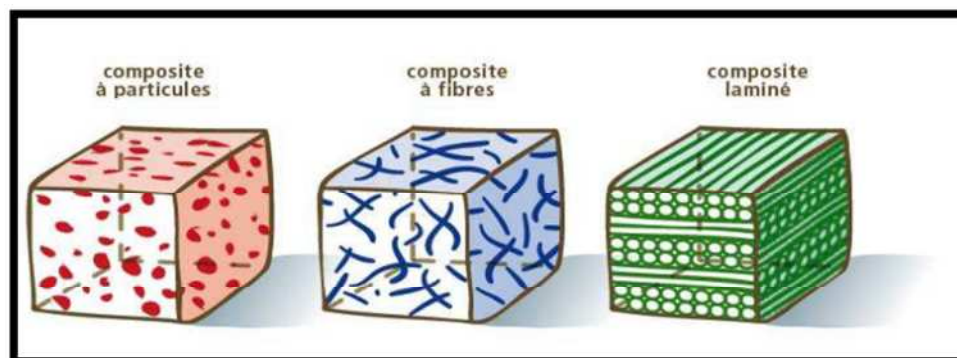
**Figure I.14** : Exemples d'architectures utilisées avec les CMC : (a) tissu 2D équilibré, (b) tissu 3D tri-orthogonal, (c) tissu « 4D » (renforcé selon les quatre diagonales d'un cube) [22].

- **Les sandwichs**

Matériaux composés de deux semelles (ou peaux) de grande rigidité et de faible épaisseur enveloppant une âme (ou cœur) de forte épaisseur et faible résistance, l'ensemble forme une structure d'une grande légèreté, le matériau sandwich possède une grande légèreté en flexion et c'est un excellent isolant thermique [22].



**Figure I.15** : Matériaux sandwichs à âmes pleines [22].

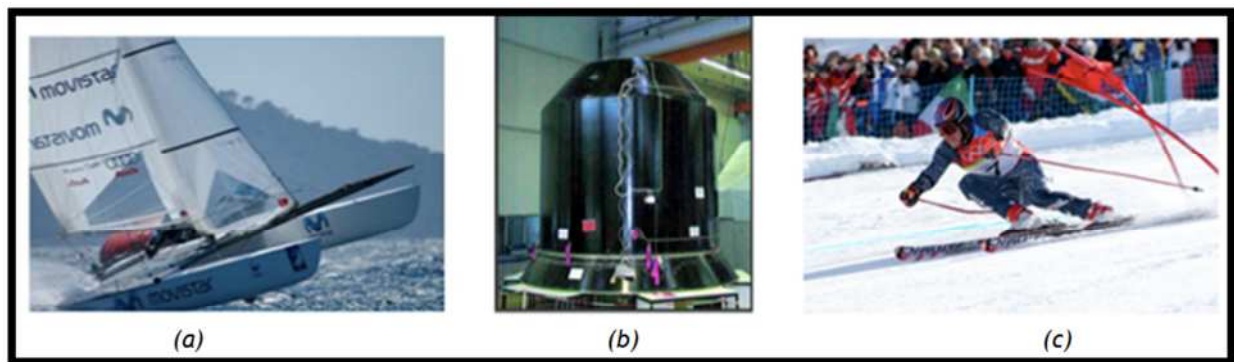


**Figure I.16** : Schéma d'un matériau composite [22].

### I.10.3.2 Selon la nature des constituants

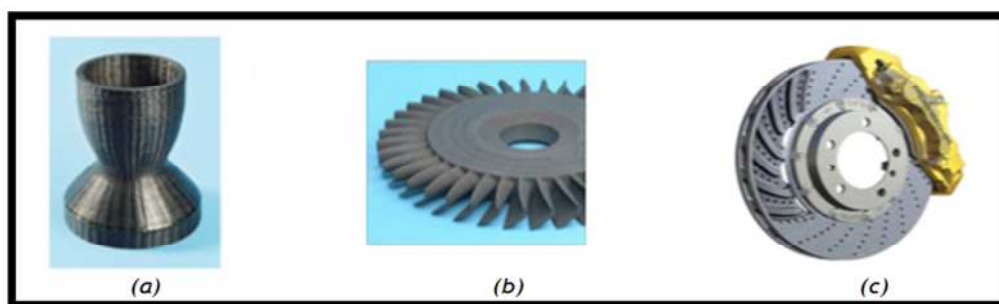
Selon la nature de la matrice, les matériaux composites sont classés et divers renforts sont associés à ces matrices. Seules certaines associations entre matrices et fibres sont possibles et ont actuellement un usage industriel, d'autres faisant l'objet d'un développement dans les laboratoires de recherche,

-Les composites à matrices organiques (CMO) qui constituent, de loin, les volumes les plus importants aujourd'hui à l'échelle industrielle [22].



**Figure I.17:** Quelques applications des CMO "haute performance" : (a) un catamaran, (b) le support de la charge utile d'Ariane 5, (c) des skis de compétition (image de Thomas Grollier) [23].

-Les composites à matrices céramiques (CMC) sont réservés aux applications de très haute technicité et travaillant à haute température comme dans les domaines spatial, nucléaire et militaire.



**Figure I.18:** Quelques applications des CMC : (a) la tuyère d'un moteur spatial, (b) le disque à aubes d'une turbine (image GE Energy), (c) un disque de frein haut de gamme (image Porsche) [24].

-Les composites à matrices métalliques (CMM) : Enfin, les composites à matrice métallique ont été élaborés pour tenter de concilier les qualités des métaux (ductilité, bonne tenue face au

vieillissement et au feu...) avec la légèreté et les bonnes caractéristiques mécaniques propres aux structures composites. Ce sont des matériaux performants, mais pénalisés par un coût de revient encore élevé et réservés à des applications relativement exigeantes, dans divers domaines (**Figure I.19**).



**Figure I.19** : Exemples d'applications des composites à matrice métallique [25].

#### I.10.4 Avantages et inconvénients des composites

Les composites sont préférés à d'autres matériaux parce qu'ils offrent des atouts liés à :

- leur légèreté ;
- Grande résistance à la fatigue ;
- Faible vieillissement sous l'action de l'humidité, de la chaleur, de la corrosion
- Insensibilité aux produits chimiques ;
- Possibilité de prendre plusieurs formes (pièces complexes) ;
- Bonne tenue au feu (attention aux dégagements toxiques) ;

Cependant certains inconvénients freinent leur diffusion :

- les coûts des matières premières et des procédés de fabrication ;
- La sensibilité à la chaleur ;
- la gestion des déchets engendrés et la réglementation de plus en plus stricte [22].

**I.11 Conclusion**

Pour aborder ce chapitre, nous avons rappelé quelques définitions et notions de base sur les polymères ainsi que les différentes propriétés physique, thermiques, optique. Un rappel sur le concept de polarisation. Nous avons vu également, une description des différents matériaux composites.

**Référence bibliographique :**

- [1].A. M. Brandt. « Fiber reinforced cement-based (FRC) composites after 40 years of development in building and civil engineering». Composite Structures., Vol. 86, 2008, pp. 3-9.
- [2].C. Baley. Fibres naturelles de renfort pour matériaux composites. Technique de l'ingénieur, traité génie des procédés, Vol. AM5, 2004, pp. 130.
- [3]. I. Teraoka, Polymer Solutions, An introduction to physical properties, Ed. Polytechnic University Brooklyn, New York, (2002).
- [4].<https://cellulosepelakanal.pagesperso-orange.fr/Un%20peu%20d%20histoire%20des%20polymeres.htm>.
- [5]. Commission Européenne, Document de référence sur les meilleures techniques disponibles, Fabrication des polymères, Août 2007, P : 1-3, 141, 142, 145.
- [6]. J-M. Haudin, Elaboration des polymères, P: 42, 44, 45.
- [7]. P. Weiss, La chimie des polymères, Société Francophone de Biomateriau Dentaires, 2009-2010, P: 4, 6, 9.
- [8]. Aide-mémoire science des matériaux livre écrit par Michel Dupeux.
- [9]. Michel Fontanille ; Yves Granou ; Chimie et physico-chimie des polymères 2e et 3e cycles ; 2002.
- [10]. Makdour Mohamed ; Polymères, Synthèse Macromoléculaire ; Tome 1 ; Office des publications universitaires O.P.U. Alger. 1982.
- [11]. Jacques Beson ; Anne-Francoise ; Gourgues-Lorenzon ; Matériaux pour l'ingénieur ; 2006.
- [12]. Hans-Henning Kausch et al ; Matériaux polymères ; Propriétés mécaniques et physiques ; 2001.
- [13]. Christophe Chassanier ; Hervé LeFebvre ; Sagario Pascual ; L'indispensable en polymères ; 2008.
- [14]. A.Seyni, «Propriétés physico-chimiques et d'usage de matériaux composites à charge dégradable produits par co-broyage», thèse de doctorat en Génie des Procédés et Environnement, université de Toulouse, 2008.

- [15]. M. Correga et al. Matériaux polymères, matériaux industriels.
- [16]. M. Medkour, Polymères: synthèse macromoléculaire; offices des publications universitaires (année).
- [17]. K. M. Youssef, A. J. Zaddach, C. Niu, D. L. Irving et C. C. Koch, «A Novel Low-Density, High-Hardness, High-entropy Alloy with Close-packed Single-phase Nanocrystalline Structures,» *Materials Research Letters*, vol. 3, n° 12, pp. 95-99, 2015.
- [18]. F. Laurin, Introduction générale sur les matériaux composites, Aussois, 2011.
- [19]. Anglès MN, Dufresne A. Plasticized starch/tunicin whiskers nanocomposites. 1. Structural analysis. *Macromolecules* 2000;33:8344–53.
- [20]. Berthelot J.M., "Matériaux composites comportement mécanique et analyse des structures ", Masson (1992).
- [21]. Zainuddina SY, Ahmada I, Kargarzadeha H, Abdullaha I, Dufresne A. Potential of using multiscale kenaf fibers as reinforcing filler in cassava starch-kenaf biocomposites. *Carbohydr Polym.* 2013; 92:2299–305.
- [22]. Sandali A, Rabhi N. comportement au choc des stratifiées composites renforcées par des fibres naturelles, mémoire de master, université KasdiMarbah de Ouargla, 2013.
- [23]. <http://www.aerospace-technology.com/projects/ariane5/>.
- [24]. <http://cs.astrium.eads.net/sp/launcher-propulsion/manufacturing/ceramic-matrix-composites.html>.
- [25]. <http://web.mit.edu/3.082/www/team1/notebook.html>.

## II.1. Introduction

Un matériau composite est l'association d'une matrice et d'un renfort, il existe différents matériaux pour les matrices et les renforts d'un composite, d'une part, les matrices se classifient en trois familles : matrices métalliques, céramiques et organiques, d'autre part, le renfort peut être sous forme de fibres ou de particules.

On se limite dans ce travail de thèse à des composites à matrices organiques renforcées par des fibres naturelles de lin [1].

Actuellement, les fibres les plus utilisées comme renforts sont celles synthétiques telles que les fibres de verre et de carbone, la fabrication de ces fibres demande beaucoup d'énergie et ce type de renforts à des limites environnementales, elles ne sont ni naturelles ni renouvelables, pour ces différentes raisons, depuis plusieurs années, des chercheurs et des industriels ont commencé à chercher d'autres ressources afin de remplacer une partie des fibres conventionnelles citées ci-dessus par des fibres naturelles [1].

Les fibres naturelles (d'origine végétale, animale et minérale) sont de plus en plus étudiées et employées comme renforts des matériaux composites, cela permet non seulement la valorisation de ressources locales mais aussi le développement de matériaux et de technologies prenant en compte l'environnement, Les fibres naturelles ont montré des propriétés mécaniques intéressantes et comparables à celles des fibres artificielles, notamment en termes de valeur spécifique. Parmi ces fibres organiques, les fibres végétales dont le lin, le chanvre,... sont les plus disponibles et les plus utilisées en Europe et en France plus précisément [1].

Le remplacement de fibres artificielles par de nouvelles fibres "vertes" fait partie de la protection de l'environnement et du développement durable, a ces dernières peut être associées l'utilisation de matrices "vertes", parmi les trois familles de matrice citées ci-dessus, les matrices organiques peuvent être classées en deux grandes catégories : thermodurcissable et thermoplastique. Les thermodurcissables ne sont pas recyclables, à l'inverse des thermoplastiques [1].

Un agro-composite utilisant des fibres végétales ainsi qu'une matrice "verte" offrira donc non seulement des avantages environnementaux et mais aussi des avantages économiques, cependant, à côté des points forts des agro-composites, ces matériaux ont des inconvénients, compte tenu de l'origine naturelle des renforts, leurs performances sont parfois dispersées, la composition chimique et la structure complexe de la fibre influencent les propriétés de l'interface fibre/matrice [1]. De plus, cette interface n'est pas toujours parfaite

en raison des propriétés différentes entre la fibre végétale hydrophile et la matrice hydrophobe. Par conséquent, un des mécanismes d'endommagement les plus répandus des matériaux agro-composites est la rupture de l'interface fibre/matrice, pour ces raisons, la caractérisation de l'interface fibre/matrice dans ces matériaux devient indispensable [1].

## II.2 Les agro-composites

Un matériau dit agro-composite résulte d'un assemblage d'une matrice en polymère thermoplastique avec des fibres agro-sourcées (lin, chanvre, bois,...), ces matériaux ont plusieurs avantages, d'un point de vue technique, ils permettent d'alléger les pièces ainsi qu'améliorer leurs caractéristiques d'amortissement, d'un point de vue écologique ce matériau possède plusieurs avantages, on peut citer :

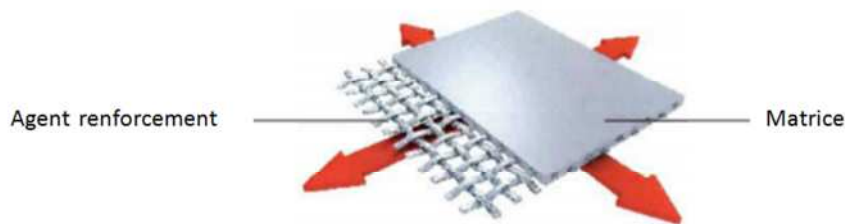
- absence de toxicité du renfort grâce à sa source végétale,
- l'utilisation de cette source fait diminuer la consommation des ressources fossiles [1].

En outre, les agro-composites peuvent être biodégradables et recyclables dans certains cas. D'autre part, les agro-composites sont économiquement intéressants. En effet, les fibres végétales proviennent d'une source renouvelable. Aussi, cette valorisation des ressources issues de l'agriculture locale ouvre de nouveaux débouchés à fort potentiel de développement, la culture des plantes et la transformation des fibres nécessitent moins d'énergie. Enfin, l'allègement des structures est un grand atout économique pour les industries automobile, aéronautique ou du bâtiment, ...

Le développement des agro-composites n'est pas nouveau. Ils sont de plus en plus étudiés et utilisés pour remplacer les matériaux composites traditionnels (croissance de 7300% prévue à l'horizon 2030 selon l'ADEME, 320 miles tonnes de fibres végétales par an), ils permettent de développer de nouveaux matériaux et de nouvelles technologies en respectant mieux l'environnement, pour ces raisons, depuis quelques dernières années, les recherches sont accélérées sur cette thématique évoluent fortement. [1].

## II.3 Agro-Composites polyéthylène/ fibre du lin

Un matériau composite est constitué dans le cas le plus général d'une ou plusieurs phases discontinues réparties dans une phase continue. La phase discontinue, appelée renfort ou matériau renforçant, est habituellement plus dure avec des propriétés mécaniques supérieures à celles de la phase continue, appelée matrice [2].

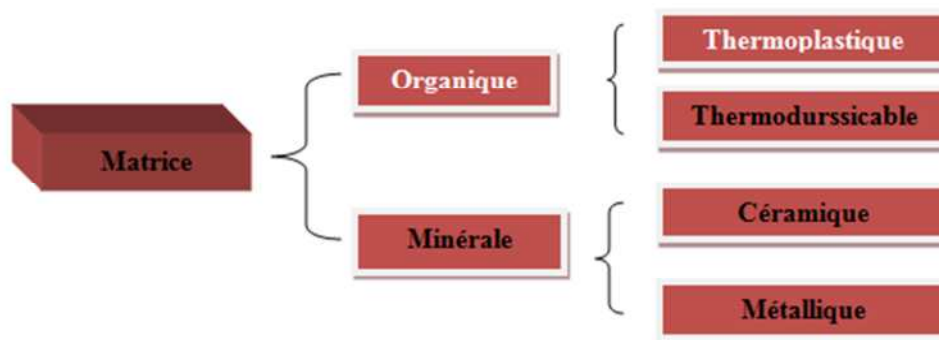


**Figure II.1.** : Illustration schématique de la structure d'un composite [3].

De surcroît, le terme de « bio composite », ou « composite bisourcé », est employé lorsque la matrice et/ou l'agent de renforcement est d'origine naturelle, diminuant ainsi son impact environnemental [3].

### II.3.1 Matrice

Comme énoncé précédemment, un composite est un matériau constitué d'une matrice et d'un agent de renforcement. Au sein de cette étude, la matrice d'intérêt est le polyéthylène, d'origine pétrochimique, sa faible densité ainsi que son faible coût de production en font un choix des plus judicieux comme polymère pour la synthèse de composites, l'association de fibres naturelles et de matrices artificielles permet d'équilibrer le coût écologique et économique des composites ainsi formés [3].



**Figure II.2** : Types de matrice

#### II.3.1.1. Le polymère (PE)

Le polyéthylène, de formule  $\text{-(CH}_2\text{-CH}_2\text{)}_n\text{-}$  est probablement le polymère que vous voyez le plus souvent dans la vie de tous les jours, c'est le polymère dont sont faits les sacs des supermarchés, les bouteilles de shampoing, les jouets des enfants, et même les gilets pare-balle [4].

Le **polyéthylène (PE)** est l'un des plastiques les plus utilisés au monde, les plus simples et les moins chers, et concerne un nombre incalculable d'industries, de segments et d'applications, le PE permet d'emballer les produits alimentaires de façon économique tout en prolongeant leur durée de vie, de transporter et de distribuer des produits chimiques en toute

sécurité, d'acheminer l'eau potable auprès des populations, de protéger les carrosseries des voitures neuves contre les rayures, et pléthore d'autres applications utiles de la vie quotidienne [5].

Le polyéthylène est synthétisé à partir d'éthylène, un gaz de masse molaire de 28 g/mol, l'assemblage suivant un processus bien défini d'un grand nombre de molécules d'éthylène, soit  $n$  molécules, conduit au polyéthylène, un solide, sa masse molaire moyenne pouvant aller de 10 000 à 4 000 000 [6]. Composé dérivé du gaz naturel ou du pétrole, c'est essentiellement un thermoplastique, ce qui implique qu'il peut être fondu et remoulé à la forme désirée, le rendant réutilisable et rentable [7].

### II.3.1.2 Structure

Ce matériau qui a des usages aussi variés a une structure très simple, la plus simple de tous les polymères du commerce.

Une molécule de polyéthylène n'est rien de plus qu'une longue chaîne d'atomes de carbone, avec deux atomes d'hydrogène attachés à chaque atome de carbone, c'est ce que montre la figure en haut de la page, mais il est peut-être plus simple de le dessiner comme sur la figure ci-dessous, simplement avec la chaîne d'atomes de carbone longue de plusieurs milliers d'atomes [4]:



Figure II.3 : structure du polyéthylène.

### II.3.1.3. Différent types de polyéthylènes

Les PE (polyéthylène) font partie des thermoplastiques, c'est-à-dire qu'ils ont des propriétés qui leur confèrent une malléabilité à chaud et une thermo-plasticité réversible, mais ils sont de natures différentes selon les modes de polymérisation:

- à partir d'un procédé à haute pression, on obtient un polymère très ramifié appelé le polyéthylène basse densité PEBD (il contient deux types principaux : le polyéthylène basse densité linéaire PEBDL et polyéthylène basse densité ramifié PEBDr),
- à l'inverse on utilise un procédé à basse pression pour obtenir le polyéthylène haute densité PEHD,

Il existe, par ailleurs, un autre type de PE, le PEMD (moyenne densité) ; mais c'est en réalité un intermédiaire entre des deux formes et n'a pas de caractéristique particulière ou intéressante qui mérite d'être développée [8].

### II.3.1.4 Caractéristiques générales des polyéthylènes

La température de fusion des zones cristallines les mieux formées se situe à 135 °C. Les séquences non cristallisées subissent le phénomène de transition vitreuse à ~ -110 °C, Cette transition (dite « $\gamma$ ») correspond au mouvement de courtes séquences (3 à 4 groupe méthylène) et est observée dans tous les types de PE [8].

On admet que le PE présente une seconde transition 40 à ~ -20 °C (transition « $\beta$ ») qui est liée au mouvement de segments plus longs et qui n'est pratiquement pas décelable dans les polymères des cristallinité élevée, le taux de cristallinité des polyéthylènes est étroitement dépendant de leur structure ; il peut varier de 30 % à 70 % selon que la proportion des ramifications (ou celle du comonomère) est élevée ou faible, un cas particulier est celui des PE linéaire de très forte masse molaire ( $M_w > 3.106 \text{ g.mol}^{-1}$ ) dont la cristallisation peut être partiellement inhibée ( $d = \sim 0.94$ ), non par la proportion des branches, qui est faible, mais par la viscosité très élevée du milieu, la forte densité d'énergie cohésive des zones cristallines est responsable de la faible solubilité du polyéthylène : il est insoluble dans tous les solvants à la température ambiante et n'est soluble, à haute température ( $T > 80 \text{ °C}$ ) que dans certains hydrocarbures (décahydronaphtalène...) des hydrocarbures halogéné (o-dichlorobenzène, trichlorobenzène...) ou bien des cétones, des esters et des éthers portant des groupe alkyle lourds (diamyl éther), l'insolubilité du PE à la température ambiante a nécessité, pour sa caractérisation structurale en solution, la mise au point de technique opérant à haute température, en raison de sa structure paraffinique le PE présente un caractère hydrophobe marqué et une inertie chimique, sa résistance à la dégradation thermo-oxydante est en étroite relation avec son taux de ramification car les hydrogènes tertiaires sont plus sensibles que les secondaires à l'attaque de l'oxygène moléculaire [8].

**Tableau II.1** :Caractéristiques majeurs des différentes familles des polyéthylènes [9].

Type de polyéthylène	Masse volumique (g/cm <sup>3</sup> )	Taux de cristallinité (%)	Température de fusion (°C)	Température de transition vitreuse (°C)	Module d'Young en traction (MPa)
<b>PEBD</b>	0,915 - 0,935	41 – 58	95 - 117	-133 à -103	120 – 135
<b>PEMD</b>	0,930 - 0,945	55 – 65	125 -130	-	350 – 800
<b>PEHD</b>	0,945 - 0,970	65 – 80	130 - 138	-120	800 – 1300

### II.3.2 Agent de renforcement

Comme énoncé précédemment, les fibres de renforcement utilisées dans cette étude sont les fibres de Lin.

#### II.3.2.1 Composites renforcés par fibres naturelles de lin

Comme nous l'avons constaté, l'utilisation de polymères renforcés de fibres présentent de nets avantages : une résistance importante, une faible densité, une bonne résistance à la corrosion, et peu de frais de maintenance. Toutefois ces matériaux par leur nature peuvent difficilement être considérés comme écologiques, et sont difficilement recyclables. Les fibres de verre et de carbone sont synthétisées à partir de ressources pétrochimiques non renouvelables. De plus, leur transformation est énergivore et peut générer des composés toxiques pour le transformateur. Enfin, leur gestion de fin de vie est complexe et peu viable économiquement. Or les débris dus à la construction et démolition représentaient près de 10% à 30% des entrées de déchets dans les décharges [10]. Qui plus est, l'augmentation du prix des dérivés des matières fossiles et une prise de conscience écologique des populations conduisent à un véritable mouvement de « mise au vert » de l'industrie, que ce soit dans le développement de nouveaux bioplastiques ou bien de nouveaux emballages, et ce dans tous les domaines, aussi bien l'automobile que le génie civil [11].

### II.4 Généralités : Composites polymères renforcés par fibres végétales

#### II.4.1 Enjeux des fibres naturelles comme renfort

Les fibres naturelles semblent être une alternative de moindre impact environnemental que les fibres issues de matières fossiles, grâce à leur faible densité, leur faible coût et leurs propriétés spécifiques compétitives.

Le terme « fibres naturelles » regroupe les fibres organiques d'origine végétale (cellulosique) et animale (protéinique), et les fibres minérales comme l'amiante. Toutefois dans le cadre de ce travail, les fibres naturelles désigneront plus spécifiquement les fibres végétales. Parmi les fibres végétales se distinguent les fibres provenant des poils séminaux des graines comme le coton ; les fibres libériennes extraites de tiges de plantes comme le lin, le chanvre ou le jute ; et les fibres issues de feuilles comme le sisal, de troncs ou d'enveloppes de fruits comme la noix de coco, les fibres végétales comme le jute, sisal ou la coco sont très abondantes dans les pays en voie de développement comme l'Inde, le Sri Lanka et certains pays africains, mais ne sont pas toujours exploitées de façon optimale [12].

Ces fibres sont utilisées pour la production de textiles, de fils, de cordes, de nattes ou de papier, ainsi que des articles variés comme les décors de mur, nappes, sacs à mains ou

portefeilles. Toutefois ces applications habituelles des fibres naturelles sont de plus en plus remises en question par l'introduction de matières synthétiques plastiques comme le nylon, il y a donc un réel besoin de diversification des débouchés de ces fibres [12].

## II.4.2 Les fibres végétales

### II.4.2.1 Définition

Les fibres végétales sont des structures biologiques fibrillaires composées de cellulose, hémicelluloses et de lignine, en proportion relativement faible d'extractibles non azoté, de matière protéique brute, de lipide et de matières minérales, les proportions de ces constituants dépendent énormément de l'espèce, de l'âge et des organes de la plante [13].

### II.4.2.2 Classification des fibres végétales

Il existe plusieurs critères de différenciation des fibres:

- suivant l'organe de la plante dont elles sont issues, les fibres végétales peuvent être classées en fibres de tiges (Kénafe, jute, lin, ramie), et de feuilles (Sisal, abaca, paille de graminée) [14].
- Suivant leur teneur en holocellulose (cellulose et hémicellulose) et en lignine, on peut distinguer les fibres ligneuses (dures et rigides provenant de matériels ligneux tels que le bois d'œuvre, les résidus de l'industrie du bois et les fibres non ligneuses (douces, souples, issues de végétaux non ligneux souvent annuels relativement moins riches en lignine tels que le kénafe, le chanvre, le sisal, le jute et le lin) [13].
- Suivant leur longueur, les fibres végétales peuvent être groupées en deux catégories : fibres longues, dites libériennes, provenant des tiges et d'écorce de tiges de plantes annuelles. Elles sont douces, tandis que les fibres longues issues de feuilles ou de troncs d'arbre sont plus dures et plus rigides à cause de leur richesse en lignine. et fibres courtes ou étoupes qui sont associées aux fibres longues [14].

Tableau. II.2 : Classification et exemples de fibres naturelles [15]

Origine	Provenance	Exemples
Végétale	Graines fruits	Coton, kapok, Asclépiade Noix de coco
	Ecorces Feuilles Bois Tiges	Lin, chanvre, jute, ramie, kénaf. Sisal, henequen, abaca, Ananas
	Cannes et roseau	Blé, maïs, orge, seigle, avoine, riz Bambou, bagasse, alfa, roseau
Animal	Laine/poils Vers à soie	Laine, poils, Cachemire Soie de tussah, soie de mûrier
Minérale		Amiante, Wollastonite

#### II.4.2.3 Structure de la fibre végétale

La fibre végétale est un composite en elle-même. Le renfort est constitué par les couches de microfibrille cellulosiques en partie cristalline, ce dernier est enrobé d'une matrice polysaccharidique amorphe (hémicellulose et pectine) qui est associée par liaison hydrogène et covalentes à la lignine [16].

La fibre végétale est composée de plusieurs parois parallèles à l'axe de la fibre et disposée en couche superposée dans le sens radiale. Ces différentes couches qui forment la lamelle mitoyenne, la paroi primaire et la paroi secondaire, ces dernières bordent un lumen de diamètre variable suivant l'espèce, la paroi secondaire est composée de trois couches de microfibrilles (S1, S2, S3) (figure II.4) [17].

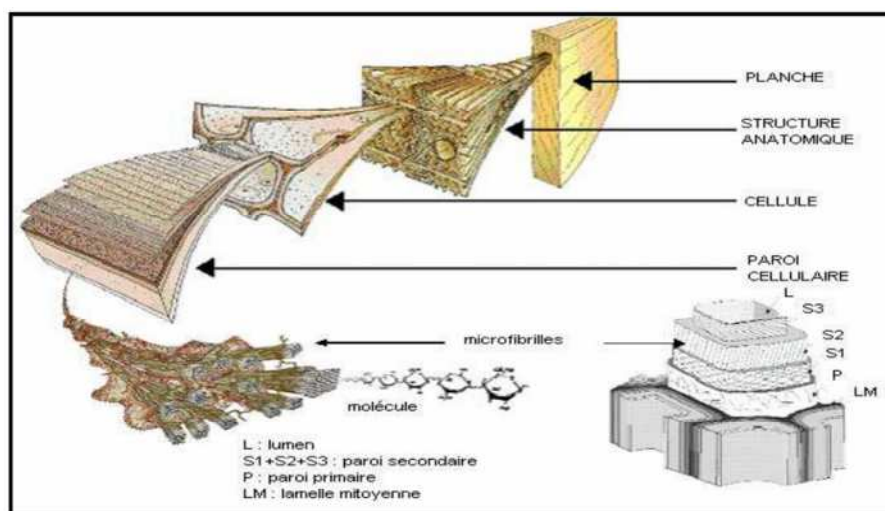
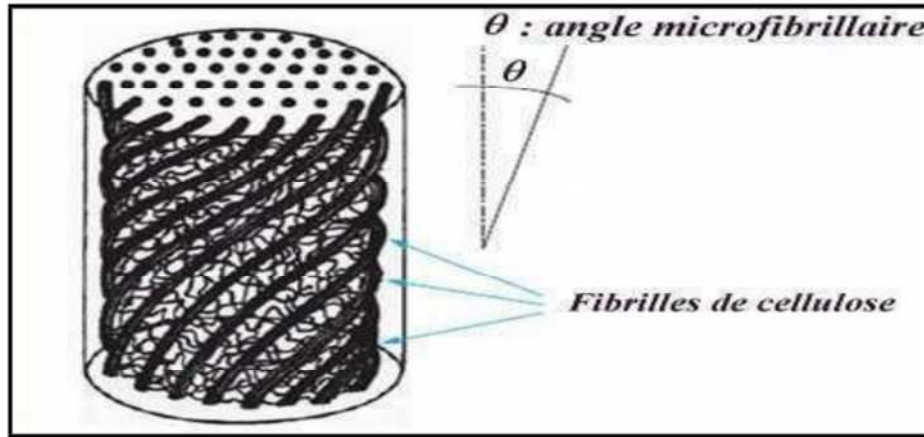


Figure II.4 : Structure du bois (observations multi échelles) [13].

Les microfibrilles décrivent par rapport à l'axe de la fibre, un angle microfibrillaire (MAF) dont la valeur varie d'une espèce à l'autre. L'orientation des microfibrilles par rapport à l'axe de la cellule joue un grand rôle dans les propriétés mécaniques des parois des fibres, plus que l'angle des microfibrilles augmente, le module de Young (une mesure de la rigidité) décroît, tandis que l'extensibilité des parois augmente [17].

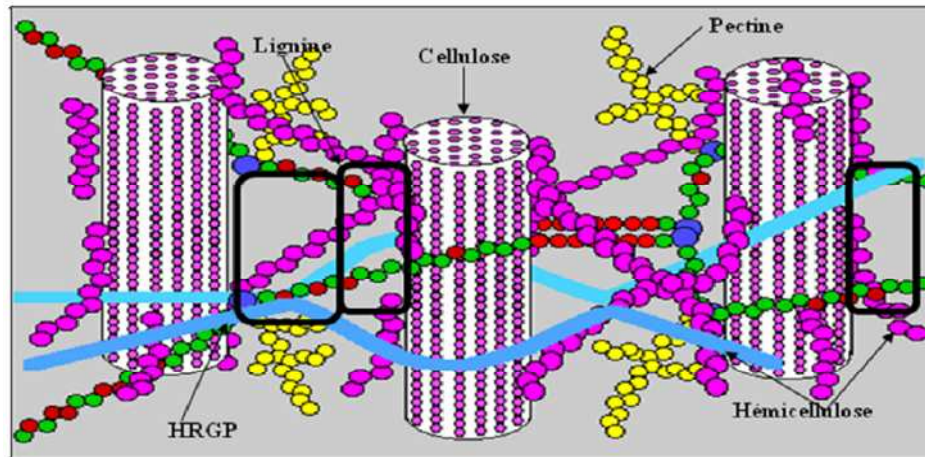


**Figure II.5 :** Modèle de description de la structure d'une fibre végétale [16].

#### II.4.2.4 Composition chimique des fibres végétales

La biomasse végétale est constituée de plusieurs macromolécules étroitement liées entre elles au sein de la paroi végétale. Comme nous l'avons vu précédemment les composés les plus majoritaires sont la cellulose, l'hémicellulose les pectines et les lignines. Ces différents constituants sont agencés de manière très complexe

Dans le bois, la cellulose est concentrée à l'intérieur de la fibre (**figure II.5**). Les parois extérieures de la fibre sont composées principalement de lignines et d'hémicelluloses et les lamelles de jonction inter fibres sont composées presque uniquement de lignine. Un réseau supplémentaire de pectines (polymères de polysaccharides acides) augmente la complexité de la matrice. Le réseau polysaccharidique peut également être solidifié par un réseau secondaire de protéines HRGP (Hydroxyproline Rich GlycoProteins) [18].



**Figure II.6 :** Représentation schématique d'une fibre de bois [18].

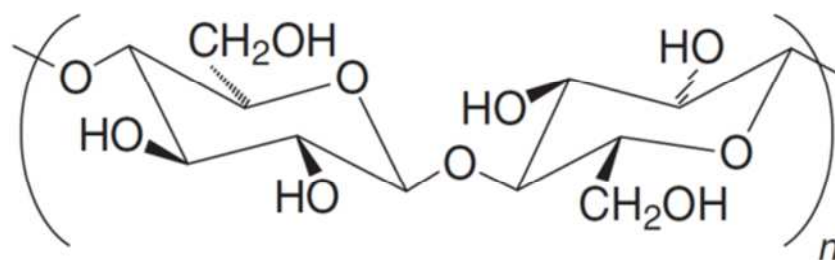
- **Les polysaccharides**

Les polysaccharides sont les constituants majeurs de la plupart des fibres naturelles végétales. Il s'agit majoritairement d'holocellulose qui regroupe la cellulose et les hémicelluloses, et de faibles quantités d'amidon et de pectines. L'holocellulose constitue au moins 65 à 70% de la masse sèche de la biomasse lignocellulosique. Ces polymères riches en groupements hydroxyles sont responsables de la sorption de l'humidité à travers les liaisons hydrogène. Autrement dit, ces groupements sont responsables du caractère hydrophile des fibres végétales [19].

- **La cellulose**

La cellulose est la matière organique renouvelable la plus abondante sur Terre. Elle joue le rôle de soutien dans les parois cellulaires des végétaux. C'est un homopolymère constitué par une chaîne de motifs D-glucopyranose (connus aussi comme dextrose ou D-glucose) liés par des liaisons glucosidiques de type  $\beta$ -(1-4) (**Figure II.7**) [19], le degré de polymérisation de la cellulose varie entre 1000 et 30000 avec une large polydispersité [20].

Le contenu de cellulose varie d'un type de fibre à un autre. La majorité des plantes contiennent au moins 45 – 50% de cellulose de la masse des fibres sèches.



**Figure II.7 :** Molécule de la cellulose (n répétitions du motif cellobiose) [19].

Les macromolécules de cellulose sont orientées aléatoirement et ont tendance à former des régions cristallines qui peuvent atteindre 80% du volume total de la cellulose. La phase cristalline de la cellulose naturelle est connue sous le nom de cellulose I. Ceci est dû à la présence des groupements hydroxyles qui forment des liaisons hydrogène entre elles ce qui oriente les zones cristallines de la cellulose et détermine les propriétés physiques de la cellulose [19], la cellulose est également formée d'une tige mince comme des microfibrilles cristallines, l'arrangement en spirale des régions cristallines de cellulose forme l'angle microfibrillaire qui régule la rigidité des fibres [21].

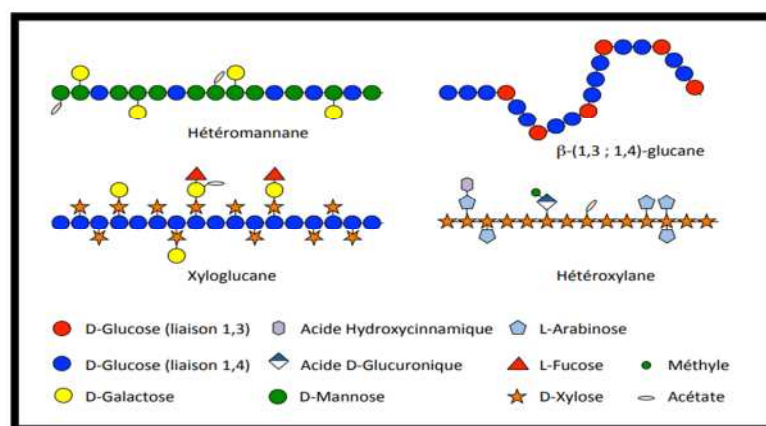
L'angle microfibrillaire est défini comme étant l'angle entre l'axe des fibres et les microfibrilles de cellulose [22].

### o Hémicelluloses

Les hémicelluloses font partie d'une fraction de la biomasse lignocellulosique qui consiste en une série de polysaccharides ayant un degré de polymérisation inférieur à celui de la cellulose, elles sont constituées principalement des sucres D-xylopyranose, D-glucopyranose, D-galactopyranose, L-arabinofuranose, D-manopyranose et l'acide D-glucopyranosyluronic etc.

Ce sont des chaînes ayant des unités de sucre répétitives (**Figure II.8**) et liées avec des liaisons  $\beta$ -(1-4) avec des points de ramification (1-2), (1-3) et/ou (1-6) [19].

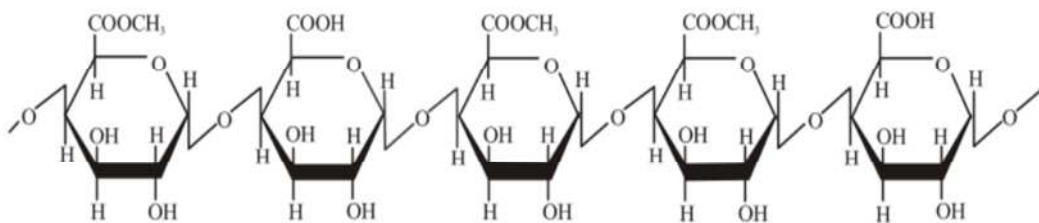
Une fraction des hémicelluloses est formée de motifs de sucres à 5 carbones nommés pentose comme le D-xylose et L-arabinose. Les hémicelluloses, à l'état natif, sont des polymères ramifiés de faible poids moléculaire qui ne sont pas cristallisables mais qui contribuent encore à la structure des cellules végétales en tant que composants de la matrice [23]. une des classes d'hémicelluloses les plus étudiées correspond aux xyloglucanes [24].



**Figure II.8 :** Structures d'hémicelluloses principalement rencontrées chez les plantes terrestres. [24].

### ○ Pectines

Les pectines sont des polysaccharides complexes acides de haut poids moléculaire dont le squelette de la chaîne est riche en acide galacturonique avec différents degrés d'estérification galacturonate de méthyle (**Figure II.9**). Les pectines les plus courantes présentes dans les fibres naturelles sont les homogalacturonanes linéaires et les rhamnogalacturonanes ramifiés. elles agissent comme adhésifs dans les lamelles moyennes entre les cellules végétales et contribuent à la résistance mécanique des parois cellulaires [25, 26]. les fibres non ligneuses ont une quantité significative de pectines dans leur structure. Les fibres de lin contiennent par exemple 1,8 %m de pectine [27].



**Figure II.9 :** Structure de l'homogalacturonanes riche en unités d'acide galacturonique avec une fraction estérifiée en galacturonate de méthyl [28].

La pectine joue un rôle important dans la fibre en tant que composant qui lie les fibres en faisceaux et détermine également le toucher de la fibre, on peut trouver deux fractions de pectine dans les plantes fibreuses : une fraction soluble dans l'eau et l'autre insoluble dans l'eau. La fibre technique est constituée de cellules collées l'une à l'autre par une lamelle, elle-même composée principalement de pectine insoluble dans l'eau et d'une petite quantité de pectine soluble, la pectine soluble dans l'eau peut être facilement séparée et même peut être décomposée par les bactéries et les moisissures tandis que la pectine insoluble dans l'eau reste dans la fibre et détermine la densité de la fibre, la séparation complète de la pectine cause la désintégration des faisceaux de fibres en fibres élémentaires. les cires et les graisses sont également importantes en termes technologiques, elles déterminent un toucher doux, un faible frottement et donc une facilité de déplacement de la fibre [29]

### • La lignine

Les lignines sont les polymères aromatiques les plus abondants [30]. la lignine est un polymère hydrocarboné de structure très complexe en trois dimensions constitué d'éléments aliphatiques et aromatiques, la lignine joue le rôle de gaine entourant les microfibrilles et les fibres et améliore ainsi leur résistance à la compression [31]. Par analogie avec les matériaux composites, cette 'colle' joue le rôle de matrice, elle permet aux plantes de former une

structure rigide et aux arbres de grande hauteur de rester debout, la lignine est répartie à travers les parois cellulaires primaires et secondaires, avec la plus forte concentration se trouvant au niveau de la lamelle mitoyenne. La lignine agit également comme une barrière pour l'eau, limitant sa pénétration à travers la paroi cellulaire. Elle possède des propriétés mécaniques largement inférieures à celle de la cellulose, environ 4GPa en module élastique alors que pour la cellulose cette valeur peut aller jusqu'à 135 Gpa [32]. L'élimination de la lignine devient donc souhaitable pour de meilleures propriétés mécaniques des fibres unitaire, la lignine est considérée comme un polymère thermoplastique présentant une température de transition vitreuse de l'ordre de 90°C et une température de fusion d'environ 170°C [33]. Pendant les traitements d'élimination de l'eau des parois cellulaires des fibres, tel que le séchage, la lignine peut être éliminée [34]. La lignine est aussi sensible aux UV ainsi qu'agents chimiques.

- **Les inorganiques**

La quantité des inorganiques est connue d'après la quantité de cendres obtenue après la dégradation des fibres à une température de  $575 \pm 25$  °C sous air. Ce sont des sels minéraux et d'autres matières inorganiques. Leur quantité est généralement élevée dans les plantes contenant de grandes quantités de silice [19]. Les fibres de lin, kénaif, coton et sisal sont pauvres en inorganiques (entre 0,8 et 5 %m) [35].

- **Les protéines et les extractibles**

Les protéines sont des polymères d'acides aminés parmi lesquels on trouve les enzymes et les toxines. Souvent, la quantité des protéines est considérée comme étant une partie du contenu de la lignine puisque les deux sont isolés par la même procédure [19].

Les extractibles constituent en général entre 0,3 et 3% de la masse des fibres naturelles. Cependant, certaines fibres peuvent être riches en extractibles tel que les cosses et les pailles de riz [36]. Ils constituent les membranes cellulaires telles que la graisse, les acides gras, les alcools gras, les terpènes, les stéroïdes, les résines et les cires. Ils peuvent être des monomères, dimères et polymères. Leur nomenclature comme « extractibles » provient de la facilité de leur extraction par une simple procédure qui sera décrite dans le chapitre suivant [19].

### II.4.3 Présentation de la fibre de lin

Comme les autres fibres libériennes (chanvre, jute, kéna), la fibre de lin représente l'une des plus importantes fibres naturelles utilisées comme renfort dans la fabrication de matériaux composites particulièrement en Europe et en Amérique du nord. Ceci provient de ses caractéristiques, de ses propriétés particulières et de sa disponibilité [37, 38].

Le lin cultivé (*Linum usitatissimum*) est une plante annuelle de la famille des Linacées qui pousse aussi bien en Asie qu'en Europe, elle est cultivée principalement pour ses fibres, mais aussi pour ses graines oléagineuses, les fibres de lin, extraites des tiges de la plante, ont une longueur élevée, en moyenne 25 mm, ce qui constitue en plus de leur bonne résistance, un avantage, ces fibres sont deux à trois fois plus résistantes que le coton et leur rendement est très nettement supérieur à la production de ce dernier (jusqu'à 2 t/an/ha), la fibre de lin possède une structure tubulaire à faible élasticité (allongement à la rupture de 1 à 2%), mais à forte ténacité (l'une des fibres naturelles les plus rigides). elle est également hautement absorbante et bonne conductrice de chaleur [39,40].

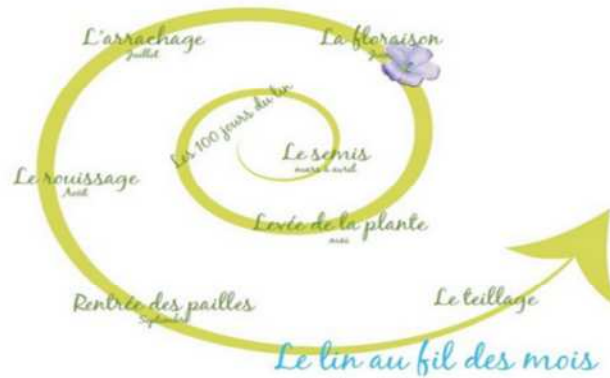
Fibreux et oléagineux, le lin offre une palette de produits (fibres longues, étoupes, anas, graines, poussières ou poudres) qui se prêtent à une large gamme de valorisations. Ses propriétés uniques, sa qualité de matière renouvelable et son aspect naturel concourent à son intérêt et à son image positive dans toutes ses applications. Ainsi, les fibres longues de lin, la partie la plus noble, sont utilisées dans l'industrie textile pour la confection de toile de luxe, tandis que les fibres courtes, ou «étoupes», sont valorisées en papier ou en ficelle [41,42].

De nouveaux débouchés techniques sont apparus tirant parti des qualités du lin. Ainsi, on, trouve, selon leur qualité, des étoupes de lin dans le rembourrage de sièges (le lin absorbe la transpiration) ou dans la fabrication de matériaux composites [43,44].

Des applications nouvelles, sous forme de matériaux non-tissés, apparaissent dans la fabrication de membranes respirantes pour les bâtiments, des écrans de sous-toiture ou des «house- wrapping». Les «anas», ou «paillettes de lin» sont valorisés dans la fabrication de panneaux en aggloméré ou en litière pour chevaux et animaux domestiques (toujours pour les capacités d'absorption du lin), ainsi que couvre-sol en horticulture ou comme matière isolante. Enfin, les graines de lin sont utilisées pour produire de l'huile ou du solvant, tandis que la poussière de lin est valorisée comme compost [41,42].

### II.4.3.1 De la plante à la fibre de lin

Cette partie est tout d'abord dédiée à la description du processus de croissance d'une plante de lin. Par la suite, les principales étapes pour l'obtention des fibres de lin seront présentées.





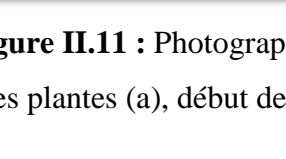
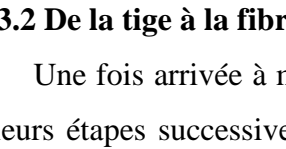
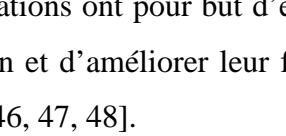


**Figure II.10:** Cycle complet d'une plante de lin du semis jusqu'aux fibres techniques [43].

La culture du lin se réalise de mars (semis) à septembre (rentrée des andains). La plante se développe en 100 jours environ selon différents stades (**Tableau II.3**) avec des vitesses de croissance bien spécifiques [44,45].

- Entre 15 et 40 jours minimum (de la levée au stade 10 cm) : la vitesse de croissance est lente car les nutriments que la plante absorbe sont destinés au développement des racines. Celles-ci atteignent environ 60 cm et regorgent des minéraux essentiels au développement de la plante (azote et zinc) ;
- Entre 40 et 80 jours minimum (hauteur comprise entre 10 et 60 cm) : la vitesse de croissance est rapide. Cette étape détermine le rendement en fibres ;
- Au-delà de 80 jours (hauteur > 60 cm) : la floraison met fin à la croissance rapide de la plante. La floraison ne dure que quelques heures [46]. Durant cette phase, il y a formation des derniers centimètres apicaux de la tige et également formation puis maturation des graines. La maturation des fibres se poursuit jusqu'à l'arrachage des tiges [44].

Tableau II.3 : Différents stades de croissance d'une plante de lin [44].

Stade de croissance	Levée	Stade 4 cm	Stade 10 cm	Croissance rapide	Stade mi-floraison	Stade capsule	Stade maturité
jours	>15 <sup>ème</sup>	>30 <sup>ème</sup>	>40 <sup>ème</sup>		>80 <sup>ème</sup>	>90 <sup>ème</sup>	>110 <sup>ème</sup>
Phénotype							
Hauteur de la tige	<1 cm	6 cm	10 cm		60 cm	80 cm	90 cm
Teneur massique en fibres					37%	39%	41%

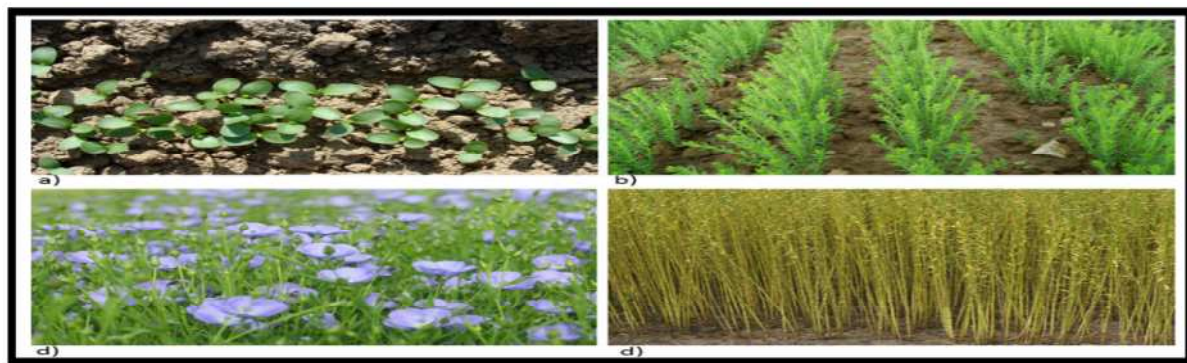


Figure II.11 : Photographies des différents stades de croissance d'une plante de lin : levée des plantes (a), début de la croissance rapide (b), floraison des plantes (c) et maturité des plantes (d) [47].

#### II.4.3.2 De la tige à la fibre

Une fois arrivée à maturité (couleur de tige jaunâtre), les plantes vont être soumises à plusieurs étapes successives jusqu'à l'obtention des fibres longues (voir Figure II.12). Ces opérations ont pour but d'éliminer progressivement tous composants autres que les faisceaux de lin et d'améliorer leur finesse en les divisant au maximum. Les étapes sont les suivantes [43,46, 47, 48].

-L'arrachage (voir Figure II.12.a) :

A maturité des plantes, vers fin juillet, celles-ci sont arrachées de la terre et sont ensuite étalées en andain sur le sol pour le rouissage. Lors de cette étape, les fibres (sous forme de faisceaux) sont très liées au reste de la tige, on dit qu'elles sont « vertes ».

- Le rouissage (voir Figure II.12.b) :

Cette opération consiste à séparer au maximum les faisceaux entre eux et du reste de la tige, la séparation est obtenue naturellement par l'action des champignons et bactéries au niveau du sol (Références), au contact de la terre et en fonction des conditions météorologiques, les plantes vont être soumises à une forte concentration de micro-organismes (bactérie aérobies, champignons ou moisissures) qui vont détruire plus ou moins intégralement le ciment pectique (lamelle mitoyenne) qui lie les faisceaux entre eux, cette étape se déroule sur une période de 5 à 8 semaines lorsque les conditions d'humidité et de température sont favorables (généralement au mois d'août), les tiges sont retournées en cours de rouissage afin d'homogénéiser l'attaque microbienne, lorsque le rouissage est jugé suffisant, les andains sont enroulés sous forme de balle puis sont stockés avant le teillage.

- Le teillage (voir Figure II.12.c) :

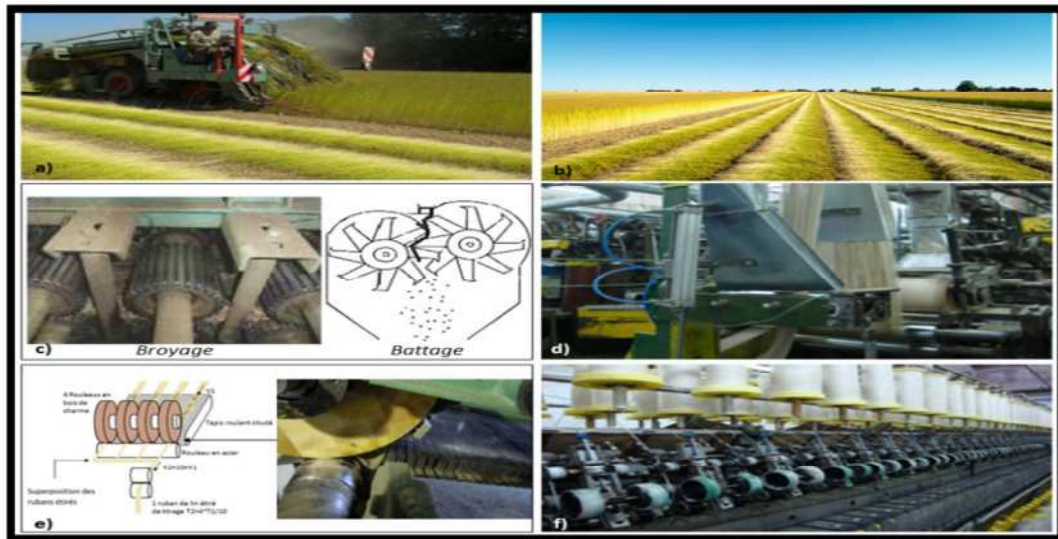
Cette étape permet d'extraire mécaniquement le bois (anas) constitutif des tiges. Elle consiste, tout d'abord, à broyer la paille centrale (le broyage) sans détériorer les fibres ; ensuite, les anas sont séparés de la filasse en procédant par battage. Ce procédé permet l'élimination des fibres courtes (étoupes) et des déchets de bois. En fin d'opération, seuls les longs faisceaux de fibres (filasse) sont récupérés.

- Le peignage (voir Figure II.12.d) :

Le peignage est l'étape ultime de préparation de la filasse et la première étape avant la mise au point d'un ruban de fibres continu. Il consiste à peigner les faisceaux, de plus en plus finement, afin de les dénouer, les aligner et les diviser le plus possible. Il permet aussi de supprimer les fibres courtes restantes.

- La filature (voir Figure II.12.e.et. Figure II.12.f.) :

Avant de réaliser le tissage des fibres en tissus techniques, les rubans de fibres sont soumis à une opération d'étirage (Figure II.12.e.) dans le but de réduire le titre (masse de 1 km de fibres) du ruban, d'augmenter sa régularité et d'obtenir une qualité de fibres constante. L'étirage consiste à produire un ruban plus fin par mélangeage de n rubans plus gros. Les rubans sont ensuite filés en appliquant une torsion (Figure II.12.f.) afin d'obtenir un fil de lin qui permettra le tissage du tissu textile ou technique souhaité (unidirectionnel, sergé ...).



**Figure II.12** : Photographies et schémas des différentes étapes de la plante aux fibres longues : l'arrachage (a), le rouissage (b), le teillage (c) : broyage (gauche) et battage (droite), le peignage (d), la filature (e et f) : l'étirage (e) et le filage (f) [46], [44].

#### II.4.3.3 Composition de la fibre de lin

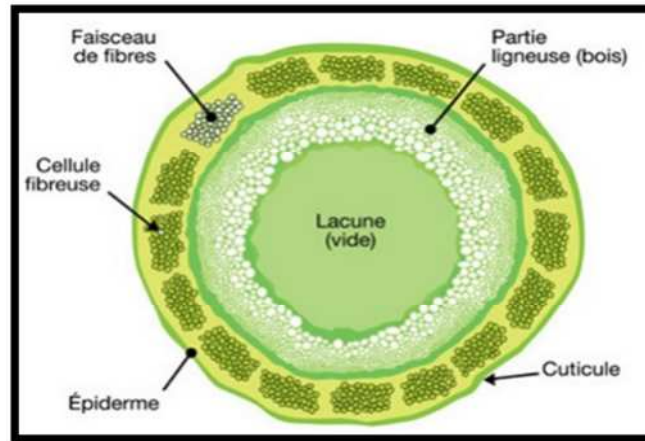
Le lin est une plante de la famille des Linacées et du genre *Linum*, qui comporte plus de deux cents espèces.

Cette plante est constituée d'une tige dont l'extrémité est formée de plusieurs petites fleurs bleues, elle contient sur toute sa hauteur de longues fibres qui lui confèrent sa rigidité.



Sont précisément ces fibres qui ont des bonnes caractéristiques physiques et mécaniques comparables à celles de quelques fibres synthétiques, qui font du lin un renfort envisageable de matrices polymère [49].

Une tige de lin, qui à maturité mesure entre 80 et 120 cm, est composée de plusieurs parts. Dans sa section, du centre vers la périphérie, on peut trouver : la lacune, le xylème, le cambium, le phloème (qui est la part que nous va intéresser plus parce que il contient les faisceaux fibreux), le cortex et l'épiderme [49].



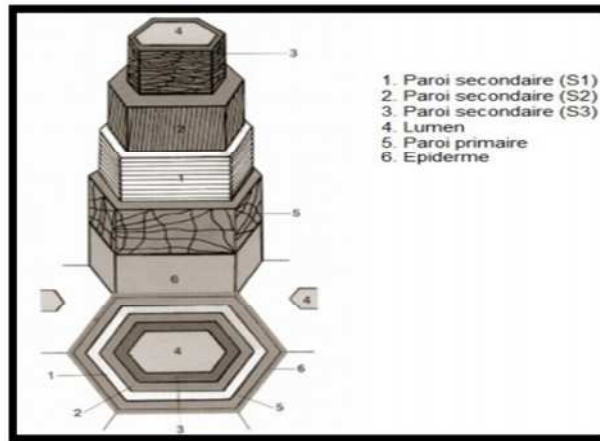
**Figure II.13:** Section transversale de la tige de lin [50].

Les faisceaux sont à l'intérieur du phloème et ils ont une longueur de plusieurs dizaines de centimètres et regroupent jusqu'à une quarantaine de fibres collées entre elles par une interphase à base de pectines que s'appelle lamelle mitoyenne. La fibre a une longueur de l'ordre du centimètre et un diamètre de quelques dizaines de microns, ce qui fait un ratio d'un ordre de magnitude de  $L/d \approx 103$ . Sa section peut être polygonale, avec 5 à 7 cotés, ou elliptique, et est composée de parois cylindriques concentriques [49].

En son centre elle possède une cavité appelée lumen qui contribue à la circulation de l'eau et sa taille permet de déterminer la qualité et le degré de maturité de la fibre. L'influence du lumen au centre de la fibre est importante mais souvent négligée. Quand le diamètre du lumen est important par rapport à celui de la fibre, la section réelle des parois de la fibre est plus faible, ce qui conduit à une diminution de ses propriétés [49].

Autour de lumen se trouve la paroi secondaire qui constitue la majorité du volume de la fibre et qui peut être divisée en 3 couches différentes (S1, S2 et S3), la couche S2 est la plus épaisse et est constituée de lamelles concentriques de cellulose parallèles entre elles dans une matrice de pectines, l'interphase matrice-lamelles est d'hémicellulose. Dans ces lamelles il y a des micro-fibrilles qui possèdent des bonnes propriétés mécaniques [49].

Finalement, la paroi plus externe de la fibre est la paroi primaire d'épaisseur d'environ  $0,2 \mu\text{m}$ . Elle est très poreuse, élastique et continue. Ses constituants principaux sont des pectines mais elle contient aussi quelque micro-fibrille de cellulose orientée aléatoirement [49].



**Figure II.14 :** Les parois cellulaires d'une fibre de lin [51]

Les micro-fibrilles sont situées à l'intérieur de la paroi secondaire de la fibre, elles sont regroupées en macro-fibrilles enroulées en spirale dans les lamelles concentriques. Chaque micro-fibrille est composée d'environ vingt fibres élémentaires appelées micelles, lesquelles ont de 50 à 100 molécules de cellulose [49].

En ce qui concerne le développement des fibres, on peut dire que le taux de remplissage de chaque fibre par ces différentes couches et la proportion des différents polymères matriciels dépendent non seulement de la variété de lin, mais aussi de son environnement et de la position de la fibre dans la tige, puisque chaque zone de la tige a une histoire météorologique particulière [49].

#### II.4.3.4 Caractéristiques et propriétés de la fibre de lin

La composition biochimique des fibres de lin varie selon les différents auteurs et dépend notamment de la variété considérée, des conditions climatiques durant sa croissance et encore de la qualité du sol où a été cultivée la plante. Les méthodes d'extraction de la fibre unitaire à partir de la tige (arrachage, rouissage, teillage, peignage et traitements finaux) modifient également ces caractéristiques [49].

Les différents composants sont [49] :

- Cellulose : elle est le principal constituant de la fibre de lin. C'est un polymère dont le taux de cristallinité est élevé, ce qui confère à lui une rigidité importante, avec un module d'élasticité particulièrement élevé pour un polymère (estimé à 137GPa). La teneur en cellulose est de l'ordre de 64-74%,
- Hémicelluloses : ce sont des polymères non linéaires responsables de l'absorption d'eau. Leur module d'élasticité varie beaucoup en fonction de l'humidité relative. Elles constituent l'interphase entre le ciment pectique et les micro-fibrilles. Sa teneur est entre 10 et 20%,

- Pectines : elles assurent la cohésion du faisceau et sont présentes notamment dans les jonctions entre cellules et dans la paroi primaire. Elles contrôlent la porosité des parois et la croissance de la plante, car le ralentissement de l'élongation de la plante correspond à une abondance de pectines acides. Sa teneur est environ 2%,
- Lignine : Par rapport aux autres fibres végétales, la lignine n'est présente qu'en faible proportion (2%) dans la fibre de lin,
- Eau : L'eau représente environ 8 à 10% de la masse d'une fibre de lin et est principalement liée aux groupes hydroxyles des pectines.

Nous pouvons conclure que son fort taux massique de cellulose et sa faible teneur en lignine, fait du lin un végétal à tenir compte comment un renfort pour les composites, puisque ses fibres sont particulièrement rigide [49].

**Tableau II.4** : Composition des fibres de lin suivant différents auteurs.

Auteurs	Cellulose (%)	Lignine (%)	Hémicelluloses et pectines (%)
Kozlowski et al. [35]	64 – 71	2 - 5	18,6 - 20,6
Kozlowski et al. [29]	64 – 84	0,6 - 5	19
Baley et al [27]	64 – 74	2 - 3	11 – 17
Dorez et al [28]	81	2,7	13

### ➤ Propriétés physiques

- Densité : Elle varie peu d'une espèce de fibre végétale à une autre et elle est de l'ordre de 1,5 Kg/l concrètement pour la fibre de lin, elle vaut 1,54 Kg/l (Il a été estimé que la porosité de la fibre de lin était de l'ordre de 10%, par conséquent sa densité apparente valait 1,38),

- Dimensions : Une fibre de lin à une longueur comprise entre 5 et 80 mm et sa moyenne est située autour de 30mm. Son diamètre peut atteindre plusieurs dizaines de microns, avec une moyenne de 20µm. Les fibres de lin, par comparaison avec d'autres fibres végétales, sont parmi les plus fines et les plus longues. En fait leur rapport  $L/d = 1500$  est élevé et capital lorsqu'il s'agit de fabriquer un composite unidirectionnel, car le renfort doit être le plus continu possible et la surface de contact entre la matrice et les fibres suffisante pour assurer le transfert de charge,

- Angle micro-fibrillaire : Il est un point de différenciation très déterminant en les propriétés physiques d'une fibre. La fibre de lin possède des micro-fibrilles orientées majoritairement à 10° de l'axe de la fibre dans la couche S2 de la paroi secondaire, et cette désorientation est minimale. Les bonnes propriétés mécaniques de la fibre de lin peuvent s'expliquer en

partie sur la base de cette organisation micro-fibrillaire, car, par exemple, par rapport à la fibre de coton, qui n'a pas un angle micro-fibrillaire constante ( $1-45^\circ$ ) mais des bonnes proportions de teneur en cellulose (83-90%) et en lignine (méprisable), la fibre de lin a des meilleurs propriétés mécaniques,

- Défauts : C'est le principal point faible de la fibre de lin. Certains d'entre eux sont produits irréversiblement pendant la croissance de la plante. Le procédé de décortication peut engendrer également des défauts, et finalement il existe aussi des défauts micro-structuraux. Les défauts sont une importante cause de la dispersion des résultats qu'on verra après [49].

### ➤ Propriétés mécaniques

La fibre de lin se situe parmi les fibres végétales le plus résistantes avec un module d'élasticité d'environ 50 GPa et une contrainte à la rupture généralement supérieure à 1000 MPa.

En revanche, son allongement à la rupture est particulièrement faible.

- En traction : Les essais mécaniques sont délicats à mettre en place. La plupart provient d'essais réalisés avec une cellule de faible charge et des mors adaptés.
- En compression : Elles peuvent être estimées grâce au test de la boucle élastique, que on ne va pas expliquer, mais qui nous apporte un valeur de contrainte de rupture en compression de  $1200 \text{ MPa} \pm 370 \text{ MPa}$ ,
- Propriétés mécaniques des composants de la fibre : La fibre de lin peut être assimilée à un composite dont les micros fibrilles de cellulose sont les éléments renforçant et les polymères pectiques la matrice incrustante [49].

### II.5 L'intérêt de travailler avec les fibres de lin

L'intérêt porté aux fibres de lin comme renfort dans des composites unidirectionnels à matrice organique, est motivé par plusieurs raisons : La première raison est environnementale et géographique. Tout d'abord la fibre de lin est un matériau naturel dont la culture est relativement neutre vis-à-vis de l'environnement, donc il semble pouvoir répondre à la préservation de la nature tout en fournissant des matériaux industrialisables compétitifs. De plus, en termes de production, le lin est parmi les plantes les plus cultivées au monde et en France c'est un produit largement cultivé. Autre raison est sa densité, significativement inférieure à celle des fibres de verre. Cette différence conduit à des propriétés spécifiques comparables ou même supérieures, ce qui serait un avantage dans les domaines des transports (Les fibres de lin sont déjà utilisées dans le domaine de l'automobile) [49].

De plus, son grand rapport longueur/diamètre, son faible angle micro fibrillaire et sa forte teneur en cellulose, vaut à la fibre de lin d'être envisageable comme renfort de composites unidirectionnels. Pour conclure, le lin à également un avantage économique par rapport aux fibres synthétiques, bien que c'est vrai qu'il existe des forts écarts pour le même genre de fibres puisque les prix dépendent surtout de la qualité des fibres (longueur, finesse, résistance, traitement...) [49].

## II.6 Conclusion

Dans ce chapitre, nous présentons une étude bibliographique portant tout d'abord sur une description générale des matériaux utilisés dans cette étude, à savoir les fibres de lin, la résine polyéthylène et le composite associé.

-Le polyéthylène est un des polymères le plus simple, le plus utilisé et le moins dispendieux. Cependant, avec la simplicité viennent souvent des propriétés mécaniques un peu moins intéressantes. C'est pourquoi il est peu utilisé dans les matériaux composites

-Les fibres végétales ont une structure complexe et une composition chimique variable qui est fortement influencée par différents facteurs tels que : les conditions climatiques, l'âge de la plante et la nature de sol ; ce qui les rend difficile à étudier. En revanche, les fibres présentent plusieurs avantages prometteurs pour l'utilisation dans des applications composites. De plus, la structure creuse et poreuse des fibres, leur offre de bonnes propriétés isolantes thermiques et acoustiques. En outre, la forte capacité d'absorption d'eau et la dégradation de certaines composantes chimiques des fibres comme l'hémicellulose et la lignine dans des milieux alcalins, limite leur utilisation en tant que renfort.

Notons que la cellulose, la lignine et la pectine sont les composantes chimiques qui sont respectivement responsables de la résistance, la rigidité et la flexibilité des plantes.

La disponibilité des fibres végétales dans le monde entier contribue à l'augmentation de leur utilisation.

**Référence Bibliographique**

- [1]. C. Baley, "Fibres naturelles de renfort pour matériaux composites," Techniques de l'ingénieur, vol. AM 5 130v2, pp. 1–17, 2013.
- [2]. B. Agoudjil, L. Ibos, J. C. Majesté, Y. Candau, and Y. P. Mamunya, "Corrélation between transport properties of Ethylene Vinyl Acetate/glass, silver-coated glass spheres composites," Composite: Part A, vol. 39, pp. 342-351, 2008.
- [3]. CompositesWorld. Site compositesworld [Enligne]  
<http://www.compositesworld.com/articles/biocomposites-update-beyond-eco-branding>.
- [4]. <https://pslc.ws/french/pe.htm>.
- [5]. <http://guichon-vannes.com/focus-application-ldpe-lldpe-hdpe/>.
- [6]. Krawczak P, VILLOUTREIX G, AGASSANT JF, BINETRUY C, LACRAMPE MF. - Plastiques et composites - Avant-propos Techniques de l'Ingénieur, AM15, 2003. 4 p.
- [7]. <https://www.plasticseurope.org/fr/about-plastics/what-are-plastics/how-plastics-are-made>.
- [8]. Michel Fontanille., Yves Gnanou., Chimie et Physico-chimie Des Polymères (cours), 2e et 3e cycles ., Ecoles d'ingénieurs., Nouvelle présentation 2005. Dunod, Paris, 2002, p. 4-8 et 478-485.
- [9].R .Yallaoui, F.Mellahi «étude de la diffusion d'un antioxydant phénolique au sein de la matrice d'un composite à base de pehd», mémoire master en génie des procédés, université de Bejaia ,2016, p.7-10.
- [10].Fishbein B. Building for the Future: Strategies to Reduce Construction and Demolition Waste in Municipal Projects. New York, NY: INFORM, Inc., 1998.
- [11]. Bledzki A.K., Gassan J. Composites reinforced with cellulose based fibers, Progress in Polymer Science, 1999, vol. 24(2), pp. 221-274.
- [12]. Satyanarayana K.G., Sukumaran K., Mukherjee P.S., Pavithran C., Pillai S.G.K. Natural Fibre – Polymer Composites. Cement&Concrete Composites, 1990, vol. 12, pp. 117- 136.
- [13]. F. Michaud, "Rhéologie de panneaux composites bois/thermoplastiques sous chargement thermomécanique : Aptitude post formage" thèse Phd, univ Laval, 2003, p. 102
- [14]. A. Y. Nenonene,"Elaboration et caractérisation mécanique de panneaux de particules de tige de kénaf et de bioadhésifs à base de colle d'os, de tannin ou de mucilage", thèse de doctorat de l'université de Toulouse, Institut National Polytechnique de Toulouse, Sciences des Agro ressources, 2009, p. 120-130.

- [15]. Bismarck A., Mishra S., Lampke T., (2005), *Plant Fibres as Reinforcement for Green Composites, Natural fibres, Biopolymers and Biocomposites*, CRC Press, Boca Raton (FL), p. 240-245.
- [16]. A.K. Bledzki, J. Gassan, "Composites reinforced with cellulose based fibers", *Prog. Polym. Sci.* 24 221–274, 1999.
- [17]. F.Laurans, A.Déjardin, J.Pilate, "Physiologie de la formation des parois de fibres de bois", *composites et matériaux avancés*, Vol.16, pp.27-39,2006.
- [18]. C Couhert. *Pyrolyse flash à haute température de la biomasse ligno- cellulosique et de ses composés - production de gaz de synthèse*", Thèse de pour obtenir le de Doctorat de l'Ecole des Mines de Paris Energétique.2007, p. 82- 90.
- [19]J. S. Han and J. S. Rowell, "Chemical Composition of Fibers," in *Paper and composite from agro-based resources*, vol. 283, 2008, pp. 83–134.
- [20]. D. Klemm, B. Philipp, T. Heinze, U. Heinze, and W. Wagenknecht, "Fundamentals and analytical methods," *Comprehensive cellulose chemistry*, vol. 1, p. 236, 1998.
- [21]. R. M. Rowell, J. S. Han, and J. S. Rowell, "Characterization and factors effecting fiber properties," *Natural Polymers and Agrofibers Bases Composites. EmbrapaInstrumentacaoAgropecuaria*, P. O. Box 741, Sao Carlos, 13560-970 SP, Brazil, 2000., pp. 115–134, 2000.
- [22]. T. H. Mokhothu and M. J. John, "Review on hygroscopic aging of cellulose fibers and their biocomposites," *Carbohydrate Polymers*, vol. 131, pp. 337–354, 2015.
- [23]. R. C. Pettersen, "The Chemical Composition of Wood," pp. 57–126, 1984.
- [24]. Desveaux, D., Faik, A., &Maclachlan, G. (1998). Fucosyltransferase and the Biosynthesis of Storage and Structural Xyloglucan in Developing Nasturtium Fruits1.*Plant physiology*, 118(3), 885-894.Doi: 10.1104/pp.118.3.885.
- [25]. M. C. Jarvis, "Structure and properties of pectin gels in plant-cell walls," *Plant Cell and Environment*, vol. 7, pp. 153–164, 1984.
- [26]. C. Morvan, C. Andème-Onzighi, R. Girault, D. S. Himmelsbach, A. Driouich, and D. E. Akin, "Building flax fibres: More than one brick in the walls," *Plant Physiology and Biochemistry*, vol. 41, no. 11–12, pp. 935–944, 2003.
- [27]. C. Baley, Y. Grohens, G. Levesque, F. Busnel, C. Pomel, and O. Sire, "Influence des traitements chimiques sur les propriétés interfaciales et l'adhérence du système fibre de lin-résine polyester," *Matériaux*, pp. 1–4, 2002.

- [28]. G. Dorez, L. Ferry, R. Sonnier, A. Taguet, and J.-M. M. Lopez-Cuesta, "Effect of cellulose, hemicellulose and lignin contents on pyrolysis and combustion of natural fibers," *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*, vol. 107, pp. 323–331, 2014.
- [29]. R. M. Kozasowski, M. Mackiewicz-Talarczyk, and A. M. Allam, "Bastfibres: flax," in *Handbook of Natural Fibres*, Elsevier, 2012, pp. 56–113.
- [30]. J. H. Lora and W. G. Glasser, "Recent Industrial Applications of Lignin: A Sustainable Alternative to Non renewable Materials," *Journal of Polymers and the Environment*, vol. 10, no. 1/2, pp. 39–48, 2002.
- [31]. Eichhorn S.J., Baillie C.A., Zafeiropoulos N., Mwaikambo L.Y., Ansell M.P., Dufresne A., Entwistle K.M., Herrera-Franco P.J., Escamilla G.C., Groom L., Hughes M., Hill C., Rials, T.G., Wild P.M., (2001), Current international research into cellulosic fibres and composites, *Journal of Materials Science*, Vol.36(9), pp. 2107-2131.
- [32]. Bledzki A.K., Gassan J., (1999), Composites reinforced with cellulose based fibers, *Review, Progress in Polymer Science*, Vol. 24, Issue 2, pp. 221-274.
- [33]. Thomas S., Paul S.A., Pothan L.A., Deepa B., (2011), *Natural Fibres: Structure, Properties and Applications*, Springer, Verlag Berlin Heidelberg.
- [34]. Kacik F., Kacikova D., Bubenikova T., (2006), Spruce wood lignin alterations after infrared heating at different wood moistures, *Cellulose chemistry and technology*, Vol. 40, no8, pp. 643-648.
- [35]. Klyosov A.A., (2007), *Wood-plastic composites*, John Wiley & Sons, Inc.
- [35]. R. Kozlowski and M. Wladyka-Przybylak, "Natural Fibers, Plastics and Composites," Frederick t. Wallenberger, Norman Weston. Kluwer Academic, pp. 249–257, 2004.
- [36]. O. Faruk, A. K. Bledzki, H.-P. Fink, and M. Sain, "Biocomposites reinforced with natural fibers: 2000–2010," *Progress in Polymer Science*, vol. 37, no. 11, pp. 1552– 1596, Nov. 2012.
- [37]. Bos H. The potential of flax fibres as reinforcement for composite materials [Doctoral thesis]: Technische Universiteit Eindhoven; 2004.
- [38]. Panigrahy BS, Rana A, Chang P, Panigrahi S. Overview of flax fiber reinforced thermoplastic composites. In: CSBE/SCGAB 2006 Annual Conference, Paper No. 06- 165. Alberta/Canada, July, 2006.
- [39]. Faruk O, Bledzki AK, Fink H-P, Sain M. Biocomposites reinforced with natural fibers: 2000–2010. *Progress Polym Sci*. 2012; 37(11):1552–1596.

- [40]. Centre d'Animation Régional en Matériaux Avancés (C.A.R.M.A.). Glossaire des matériaux composites renforcés de fibres d'origine renouvelable. In: <http://www.materiatech-carma.net>; 2006.
- [41]. Mosiniak M. Du végétal aux textiles. In: <http://www.futura-sciences.com>; Décembre 2005. Dernière visite: Août 2014.
- [42]. Akin DE, Dodd RB, Foulk JA. Pilot plant for processing flax fiber. *IndCropProd*. 2005; 21(3):369–378.
- [43]. “Histoire du lin : La plante,” Groupe DEPESTELE, 18-Jan-2018. [Online]. Available: <http://www.groupedepestele.com/index.html>.
- [44]. A. Barbulée, “Compréhension des effets du défibrage sur la morphologie, les propriétés et le comportement mécanique des faisceaux de fibres de lin. Etude d'un composite dérivé lin- époxyde,” Thèse de doctorat, Université de Basse-Normandie, Caen, 2015.
- [45]. A. Roudier, “Analyse multi-échelle du comportement hygro-mécanique des fibres de lin,” Thèse de doctorat, Université Blaise Pascal-Clermont-Ferrand II, 2012.
- [46]. “Le lin européens : La carte du lin,” Le lin & le chanvre européens, 18-Jan-2018. [Online]. Available: <http://www.mastersoflinen.com>.
- [47]. “Lin cultivé,” Wikipédia, 18-Jan-2018. [Online]. Available: <https://www.lelin.cotenature.fr>.
- [48]. S. K. Batra, Other long vegetable fibers: abacá, banana, sisal, henequen, flax, ramie, hemp, sunn and coir, 3rd edition. USA: Taylor & Francis Group, LLC., 2007.
- [49]. Introduction: E.R.M.II (Universidad Carlos III de Madrid) <http://www.librecours.org/cgi-bin/course?callback=info&elt=8752> : Cours matériaux composites (Université de Versailles, Saint-Quentin-En-Yvelines) Maurice REYNE, Editions Hermès, 1995 : « Technologie des composites ». <http://www.compositec.com/compositec-promotion/moulage-par-injection-rtm>.
- [50]. <http://plante-a-fibres.goum.info/images/stories/toutsur/coupe.jpg>.
- [51]. [http://www.oag-bvg.gc.ca/internet/images/content/186p\\_3.jpg](http://www.oag-bvg.gc.ca/internet/images/content/186p_3.jpg).

### III.1 L'objectif

Le but de cette étude est l'élaboration et la caractérisation d'un nouveau matériau composite à base de polyéthylène renforcé par les fibres végétale de lin. Le choix de ces produits est justifié par les raisons suivantes :

-la disponibilité du polyéthylène sur marché,

-Le choix du renfort de lin est justifié par ses propriétés très intéressantes lui permettant des applications très prometteuses.

Nous avons étudié l'évolution des propriétés structurales (Diffraction à Rayons X DRX), mécaniques (l'essai de traction), thermiques (L'analyse enthalpique différentielle DSC et Thermogravimétrie TG) des composites PE/Lin au sein du laboratoire de recherche LSPN à l'université de GUELMA.

## III.2 Matériel utilisé

### III.1.1 Résine

La matière première qui a été utilisée dans cette étude pour la préparation des formulations comporte le polyéthylène haute densité de grade 5502 (PEHD) comme résine, c'est un produit commercialisé par « POLYMED » (de l'unité POLYMED CP2 /K situé a la zone industrielle de Skikda). Il se présente sous forme de poudre et granulés.



**Figure III.1 :** Poudre du PEHD.

### III.1.2 Charge

La charge utilisée dans cette étude est : fibre végétale de Lin que nous avons acheté du marché, et nous l'avons coupé à une longueur de 5mm.

Trois différentes concentrations massiques en fibre ont été étudiées:

- PEHD pur.
- Fibre de lin.
- Composite 1 ———> 125 g PEHD + 15 g fibre de Lin (donc la masse de fibre représente 10% de la masse totale).
- Composite 2 ———> 120 g PEHD + 30 g fibre de Lin (donc la masse de fibre représente 20 % de la masse totale).



**Figure III.2 :** fibre de lin.

### III.3 Organigramme

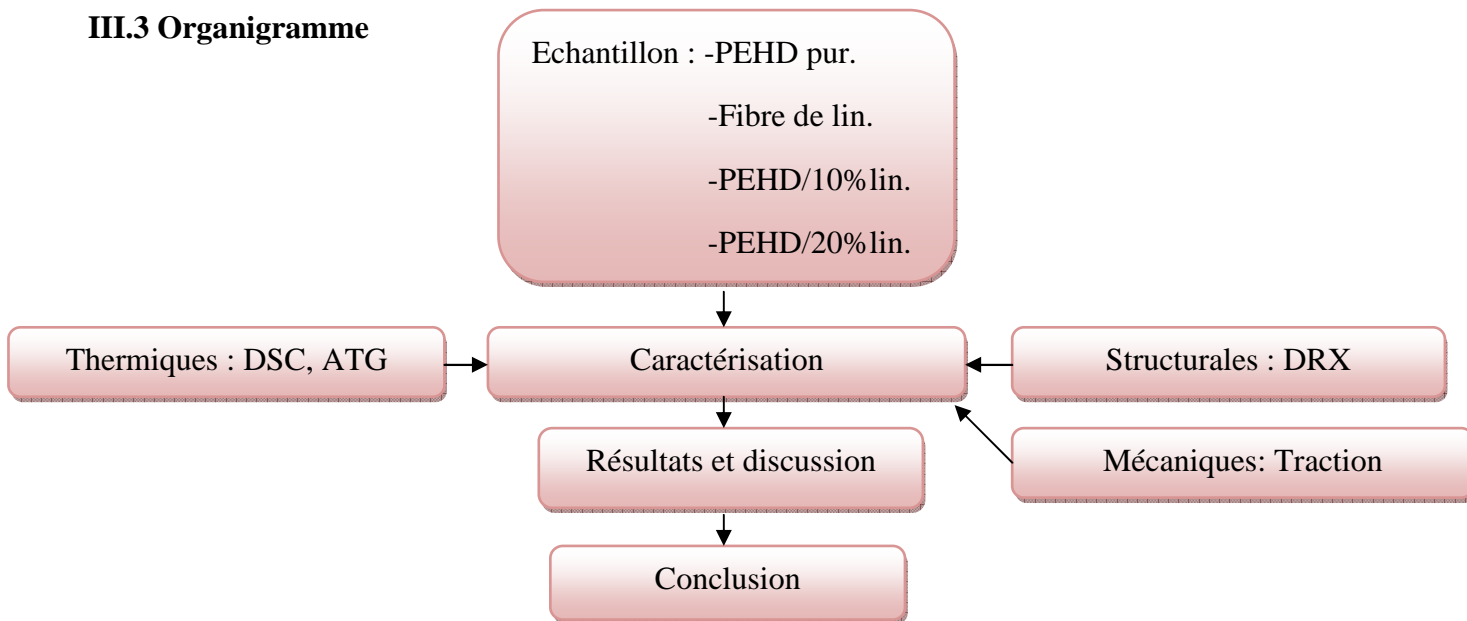


Figure III.3 : Plan de travail expérimental.

### III.4 Méthode de préparation des échantillons

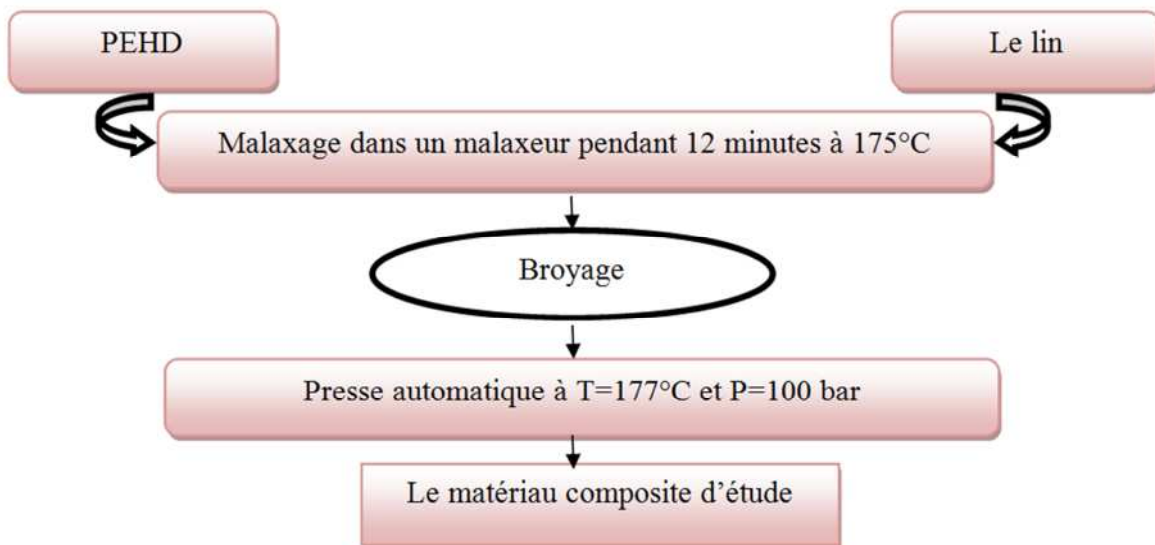


Figure III.4 : Elaboration de bio-composite PE/lin.

Les composites ont été élaborés dans un malaxeur comportant deux cylindres tournant en sens inverse à une vitesse angulaire de 32 tour par minute et à une température de 175°C.

On Introduit le mélange entre les deux cylindres durant 12 minutes, ce qui assurait une fusion complète du mélange de polymère. Nous pouvons obtenir une feuille (refroidir à l'aire libre) coupées en petits morceaux de 2,5 à 4cm (voire **Figure III.5**).

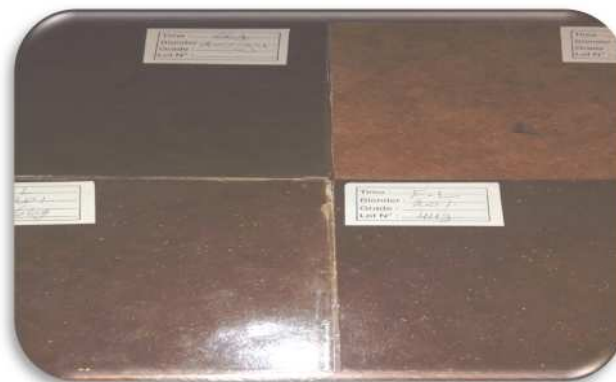
Les échantillons ont été fabriqués à l'aide d'une presse chauffante réglée à 177°C et d'un moule constitué de plaques d'aluminium (**Figure III.6**). On a fabriqué des plaques pour les tests mécaniques de traction (**voir figure III.6 et figure III.7**).



**Figure III.5** : Méthode d'élaboration des plaques bio composites entre les deux cylindres.



**Figure III.6** : Le moule entre les deux résistances.



**Figure III.7**: Plaque obtenue après le pressage.

### III.5 Méthode de caractérisation et mode opératoire

#### III.5.1 Caractérisation structural

##### III.5.1.1 L'essai de Diffraction à Rayons X (DRX)

La diffraction aux rayons X est une technique d'analyse non destructive la plus avancée pour identifier la structure cristalline et le taux de cristallinité de la matière analysée. C'est une méthode d'analyse physico-chimique basée sur la capacité des matériaux de diffracter le rayon X. Elle ne fonctionne que sur la matière cristallisée (minéraux, métaux, céramiques, polymères semi-cristallins, produit organique cristallisé) et non sur la matière amorphe dont l'arrangement des atomes est irrégulier (liquide, polymère amorphes, verres) [1].

La base physique de diffraction des rayons X est la loi de Bragg, découverte, en 1912 par Sir William Henry Bragg (1862 - 1942) (père) et son fils William Lawrence Bragg (1890 - 1971), qui ont été alors âgés de 50 et 22 ans, respectivement. Ils ont reçu, en 1915, le prix Nobel de physique pour leurs services dans l'analyse de la structure cristalline au moyen des rayons X. Cette loi permet de calculer la position des atomes dans un cristal en utilisant la façon dont ce réseau cristallin diffracte les rayons X. Bragg a expliqué ces résultats par la modélisation du cristal comme un ensemble de plans parallèles discrets, séparés par une distance constante  $d$ . Lorsque l'on bombarde un cristal à l'aide de rayons X d'une longueur d'onde  $\lambda$ , les rayons incidents sont réfléchis comme par un miroir par chacun des atomes des différents plans parallèles, produisant un phénomène de diffraction, ces rayons diffractés, interfèrent entre eux, le pic de Bragg ne se produit que si lorsqu'un faisceau monochromatique de rayon X incident est diffracté par les plans atomiques, interfère de façon constructive conformément à la loi de Bragg [2, 3, 4]. Une interférence constructive se produit, si la différence du chemin optique entre les rayons X qui sont diffractés à partir des plans successifs (plan d'atomes parallèles) est  $2d\sin\theta$ , est égal à un multiple entier de la longueur d'onde ( $\lambda$ ) des rayons X (**figure III.8**) ; d'où la loi de Bragg [2].

$$2d\sin\theta = n\lambda$$

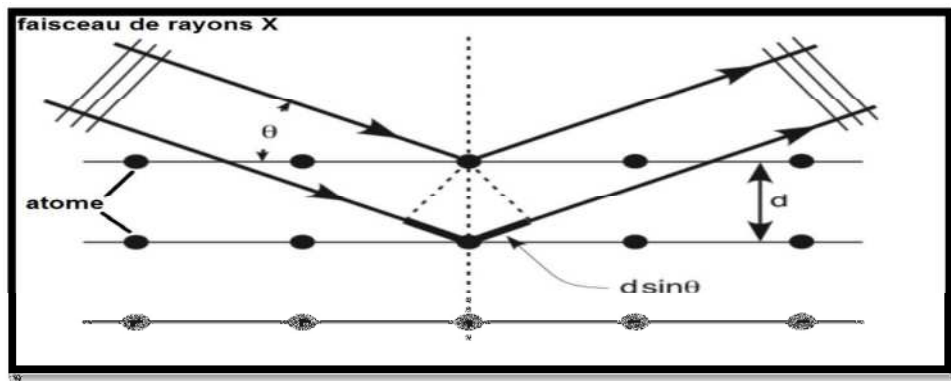
Où :

$d$  = distance inter-réticulaire, c'est-à-dire distance entre deux plans cristallins,

$\theta$  = l'angle entre la direction incidente des rayons X et le plan diffracté,

$n$  = ordre de réflexion (nombre entier),

$\lambda$  = longueur d'onde des rayons X incidents [2].



**Figure III.8 :** Démonstration de la loi de Bragg [2].

Dans cette étude, afin d'évaluer l'influence des traitements sur la cristallinité de composites, des analyses par diffraction aux rayons X ont été appliquées. L'échantillon a été placé sur le porte échantillon et nivelé pour obtenir une exposition totale et uniforme aux rayons X [2].

Ensuite, le porte échantillon est installé dans un support standard au cœur du cercle goniométrique du diffractomètre. Les échantillons ont été analysés à l'aide d'un diffractomètre à rayons X de type Bruker D8 Advance à température ambiante en utilisant un rayonnement  $K\alpha$  du cuivre ayant une longueur d'onde  $\lambda$  ( $k\alpha$  Cu) égale à 1.5418 Å (**figure III.9**) L'intensité diffractée du rayonnement  $K\alpha$  Cu a été enregistré entre  $2\theta$  compris entre  $5^\circ$  et  $40^\circ$ , avec des incréments de  $0,019478409^\circ$ , en utilisant une tension de 40 kV et un courant de 25 mA, et un temps de mesure de 0,300 secondes/pas.

Le pilotage du diffractomètre est fait par un micro-ordinateur et l'acquisition de données est effectuée à l'aide du logiciel XRD Commander, donnant la possibilité de choisir les exigences opératoires. Les diagrammes résultant des intensités diffractées en fonction de l'angle  $2\theta$  ont été enregistrés sous forme de fichier [2]



**Figure III.9 :** Diffractomètre à rayons X type Bruker D8 Advance (Laboratoire de recherche LSPN-Université de GUELMA, Algérie).

➤ **Indice de Cristallinité :** La cristallinité des fibres naturelles a été évaluée à partir de l'indice de cristallinité, qui est calculé selon la méthode empirique de Segal [5]. à partir de l'équation (1) qui utilise les intensités maximales des raies 002 ( $I_{002}$ ) à un angle  $2\theta$  compris entre  $21^\circ$  et  $23^\circ$  et l'intensité minimale  $I_{am}$ , pour l'angle  $2\theta$  compris entre  $18^\circ$  et  $20^\circ$ , Segal a développé leur méthode empirique afin d'estimer le degré de cristallinité :

$$I_{Cr} = \frac{(I_{002} - I_{am})}{I_{002}} \times 100 \quad \text{.....Equation 1}$$

Où :

$I_{002}$  est l'intensité maximale de diffraction du pic treillis (002) à un angle  $2\theta$  compris entre  $21^\circ$  et  $23^\circ$ , ce qui représente à la fois les matériaux cristallins et amorphes.  $I_{am}$  est l'intensité de la diffraction du matériau amorphe, qui est prise à un angle de  $2\theta$  entre  $18^\circ$  et  $20^\circ$  où l'intensité est au minimum [5,6].

### III.5.2 Caractérisation thermique

#### III.5.2.1 Caractérisation thermique par l'Analyse Calorimétrique Différentielle (DSC)

Cette technique est utilisée pour étudier les différentes transitions thermiques des polymères lorsqu'ils subissent une variation de température. Son principe de fonctionnement est de mesurer la différence d'énergie entre un creuset contenant l'échantillon et un creuset vide de référence, en fonction de la température. Lorsqu'une différence de température est générée entre l'échantillon et la référence, le calorimètre ajuste la puissance d'entrée de

manière à réduire cette différence. Un signal proportionnel à la puissance fournie à l'échantillon (ou à la référence) est enregistré [7].

Le principe de mesure consiste à déterminer la quantité d'énergie à apporter au matériau pour que la température de l'échantillon soit identique à celle de l'échantillon de référence. Le signal enregistré est proportionnel à la différence de chaleur fournie à l'échantillon. Les mesures ont été effectuées au moyen d'un calorimètre différentiel à balayage de marque NETZSCH.DSC CC 300 avec des échantillons de 20 mg dans la gamme de température allant de 25°C à 600°C, pour une vitesse de chauffage de 10°C/min [7].

### III.5.2.2 Caractérisation Thermogravimétrie TG

Il a pour but la caractérisation de la dégradation des matériaux par mesure directe de leur variation de masse en fonction de la température et (ou) du temps (conditions isothermes). ce type d'analyse peut être utilisé pour déterminer la température de décomposition d'une substance ainsi que la quantité d'eau liée dans un échantillon, etc. Autrement dit, cette analyse est largement utilisée comme moyen pour suivre la stabilité thermique d'un matériau polymère, les constituants les plus sensibles à la chaleur disparaissent en premier pour des niveaux de température donnés et ainsi de suite. Les données sont enregistrées sous forme d'une courbe thermogravimétrique avec en ordonnée la masse et en abscisse la température [8].

Dans la présente étude, cette technique a été utilisée pour déterminer les températures de dégradation des composites ainsi que la stabilité thermique après ajout des fibres [8]. Les mesures ont été effectuées sous azote, composée typiquement d'une enceinte étanche permettant de contrôler l'atmosphère de l'échantillon, d'un four permettant de gérer la température, d'un module de pesée (microbalance), et d'un thermocouple pour mesurer la température. La température de chauffage est entre 25 et 600 °C), avec une vitesse de chauffe de 10 °C/min et la masse de chaque échantillon est d'environ 20 mg [8].



**Figure III.10** : Calorimètre différentiel à balayage de marque NETZSCH.DSC/TG CC 300  
(Laboratoire de recherche LSPN-Université de GUELMA, Algérie).

### III.5.3 Caractérisation mécanique

Les essais mécaniques constituent la plus ancienne discipline des essais de matériaux et leur importance n'a cessé de croître. D'ailleurs certaines caractéristiques peuvent être déterminées par ces essais et notre présent travail sera consacré aux essais de traction.

#### III.5.3.1 L'essai de traction

Essai de traction est un essai mécanique de basse le plus courant permet de déterminer la loi de comportement mécanique d'un matériau. Il consiste à soumettre une éprouvette du matériau à étudier à une traction et à mesurer l'allongement  $\Delta l$  correspondant à une force  $F$ . Le comportement mécanique des composites en mode traction a été analysé à l'aide de la machine Sun 500 munie d'un capteur de force de 5KN selon les normes ASTM D-648, couplée à un logiciel d'acquisition. Les mesures ont été réalisées à température ambiante (23°C), et à une vitesse de déformation de 5 mm/min pour les composites et de 50 mm/min pour la matrice vierge. Les résultats des essais mécaniques représentent la moyenne de 3 mesures.



**Figure III.11:** Appareil de traction de type Sun 500.

Tout d'abord fixé l'éprouvette entre les mâchoires l'un mobile et l'autre fixe, et relié à un capteur de force qui rassemble à un système d'entraînement. Fixé ensuite la longueur initiale de l'éprouvette et faisons l'expérience puis tracé la courbe.

D'après la courbe contrainte-déformation en obtenue :

➤ **Module d'élasticité**

C'est le rapport de la contrainte de traction à la déformation correspondante dans la limite de contrainte maximale qu'une matière peut supporter. Il représente un critère de rigidité, il s'exprime comme suit :

$$E = \tau / \epsilon \text{ (N/m}^2\text{)} \quad \text{.....Equation 2}$$

**E:** Module d'élasticité (MPa);

**$\tau$ :** Contrainte (N/m<sup>2</sup>);

**$\epsilon$ :** Déformation (%).

➤ **Contrainte**

C'est la charge de traction supportée par l'éprouvette par unité de surface, elle est donnée par l'expression suivante:

$$T = F/S \text{ (N/m}^2\text{)} \quad \text{.....Equation 3}$$

**F:** Charge de traction supportée par l'éprouvette (N);

**S:** Section initiale (m<sup>2</sup>).

➤ **Contrainte à la rupture**

C'est la charge de traction supportée par l'éprouvette à l'instant de sa rupture par unité de surface.

➤ **Allongement à la rupture**

C'est l'augmentation de la distance entre les repères sur la partie calibrée de l'éprouvette produite par une charge de traction au moment de la rupture de l'éprouvette. Il est indiqué en pourcentage sous la forme suivant :

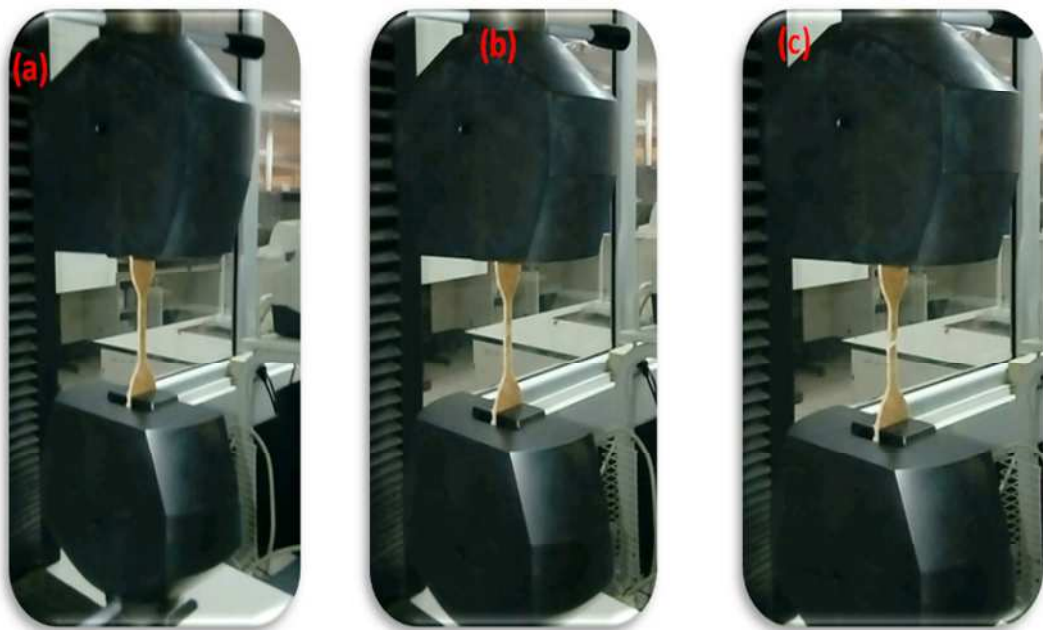
Il est indiqué en pourcentage sous la forme suivante:

$$\epsilon_r = \Delta l / l_0 (\%) \quad \dots\dots\dots\text{Equation 4}$$

$\Delta l = l - l_0$ : Allongement à la rupture;

$l_0$ : Longueur initiale de l'éprouvette;

$l$ : Longueur finale de l'éprouvette.



**Figure III.12** : L'emplacement de l'éprouvette entre les deux mors et l'évolution de son profil.

### III.6 Conclusion

Dans ce troisième chapitre, nous avons présenté les méthodes expérimentales utilisées dans cette étude. Par ailleurs, nous avons détaillé les différentes techniques de caractérisation (DRX, DSC, TG, traction). Nous avons également montré les protocoles d'essais utilisés dans cette recherche.

**Références bibliographique**

- [1]. Hamidi A. (2016), “Elaboration et Caractérisation d’oxydes mixtes de type weberite de formule chimique  $A_2 Sb_2 O_7$  (A=Ca;Sr): application catalytique”. Thèse de Magister, Université des sciences et de la technologie d’oran mohamed boudiaf, p. 127.
- [2]. Bragg W.H. (1912), “X-Rays and Crystals”. Nature, Vol, 90, pp. 360-361.
- [3]. Robotti N. (2013), “The discovery of X-ray diffraction”. Rendiconti Lincei, Vol. 24, pp. 7-18.
- [4]. Duchatelet A. (2012), “Synthèse de couches minces de  $Cu (In,Ga)Se_2$  pour cellules solaires par électrodépôt d’oxydes mixtes de cuivre-indium-gallium”. Thèse de Doctorat, Université lille 1, p. 266.
- [5]. Segal L., Creely, J.J., Martin, A.E., Conrad, C.M. (1959), “An empirical method for estimating the degree of crystallinity of native cellulose using the X-ray diffractometer”. Text. Res. J, Vol. 29, pp.786-794.
- [6]. Dai D., Fan M., Collins P. (2013), “Fabrication of nanocelluloses from hemp fibers and their application for the reinforcement of hemp fibers”. Industrial Crops and Products Vol. 44, pp. 192-199.
- [7]. ISO. « Analyse Calorimétrique Différentielle (DSC) ». EN ISO 11357-1:1997 F, Belgique, 1997, pp. 1.
- [8]. Julien JM, Développement de polymères et Composites alvéolaires bio-sourcés à Base de poly (acide lactique) thèse de doctorat, l’université de Lille 1–Sciences et technologies ,2011.

## IV.1 Analyse par Diffraction des rayons X

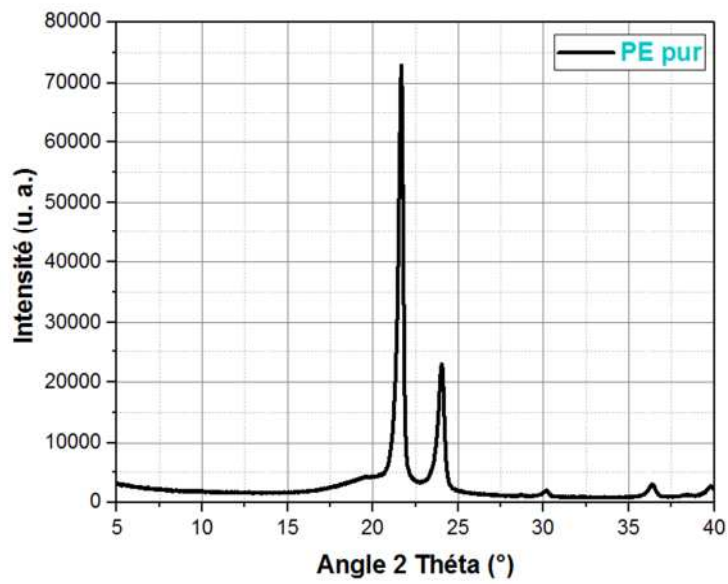


Figure IV.1 : Diagramme RX de polyéthylène vierge.

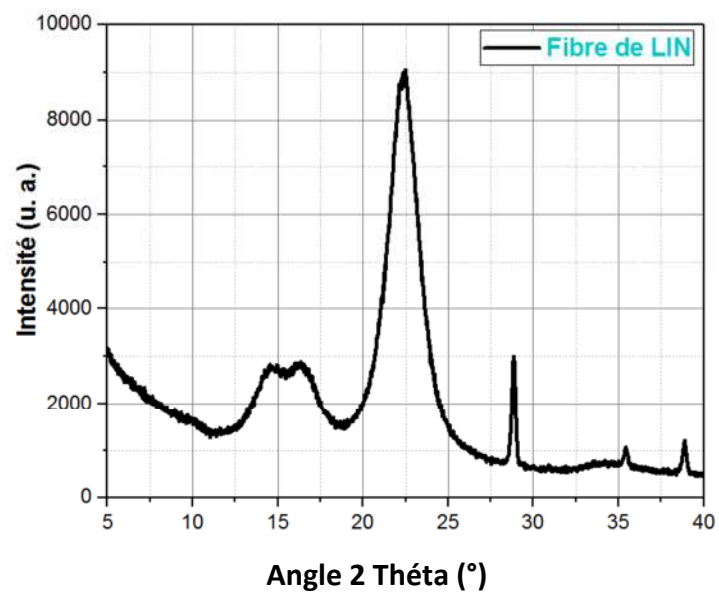
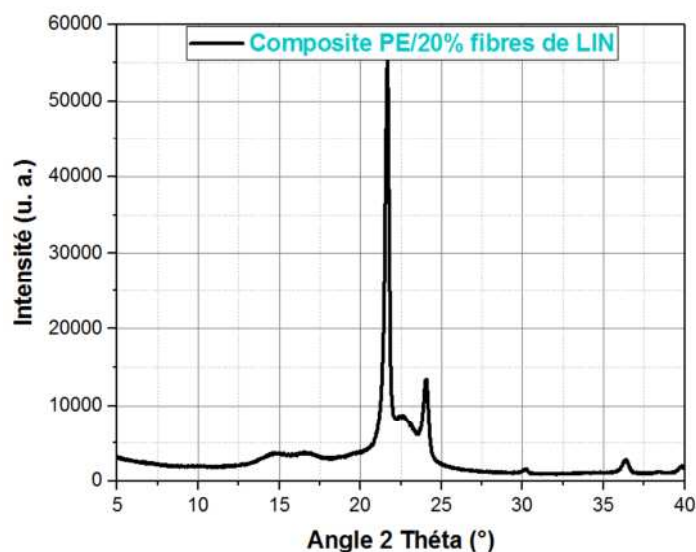


Figure IV.2 : Diagramme RX de fibre de lin.



**Figure IV.3:** Diagramme RX de matériau composite PE/20%Lin.

**Tableau IV.1 :** Résultat RX.

		<b>Fibre de lin</b>	<b>PE</b>	<b>PE/20%lin</b>
<b>Intensité</b>	<b>Pic1</b>	<b>2900</b>	<b>74000</b>	<b>55000</b>
	<b>Pic2</b>	<b>9000</b>	<b>24000</b>	<b>14000</b>
	<b>Pic3</b>	<b>3000</b>	<b>4000</b>	
	<b>Pic4</b>	<b>1000</b>		
	<b>Pic5</b>	<b>1200</b>		
<b>Angle 2Théta (°)</b>	<b>Pic1</b>	<b>16</b>	<b>21.5</b>	<b>21.5</b>
	<b>Pic2</b>	<b>22.5</b>	<b>24</b>	<b>24</b>
	<b>Pic3</b>	<b>28.5</b>	<b>36</b>	
	<b>Pic4</b>	<b>35.5</b>		
	<b>Pic5</b>	<b>39</b>		

Les résultats de DRX pour les composites de l'étude montrent que l'ajout de la charge de fibres de lin n'a affecté la structure du composite que légèrement, c.à.d. : le diffractogramme affiche trois pics au même angle 2 théta que pour le PE ; la seule différence est dans l'intensité des pics qui diminue avec le taux de charge incorporé dans la matrice du PE.

Alors on peut conclure que l'ajout de cette charge comme renfort de la matrice du PE ne modifie pas la structure de ce matériau.

## IV.2 Analyse thermique

## IV.2.1 l'Analyse Calorimétrique Différentielle (DSC)

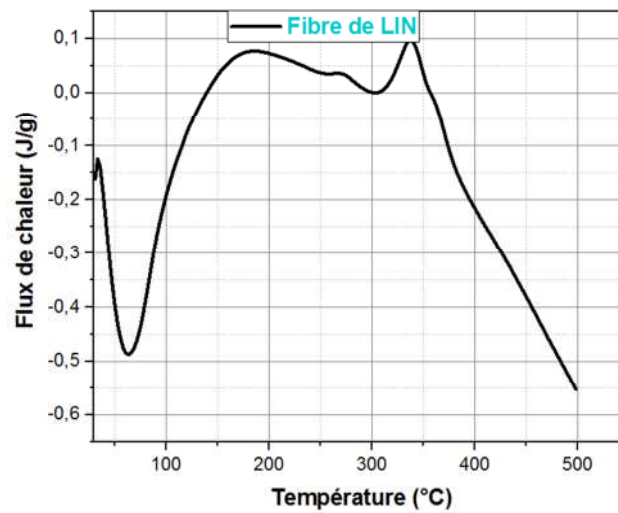


Figure IV.4 : Thermogramme DSC de fibre de fibre lin.

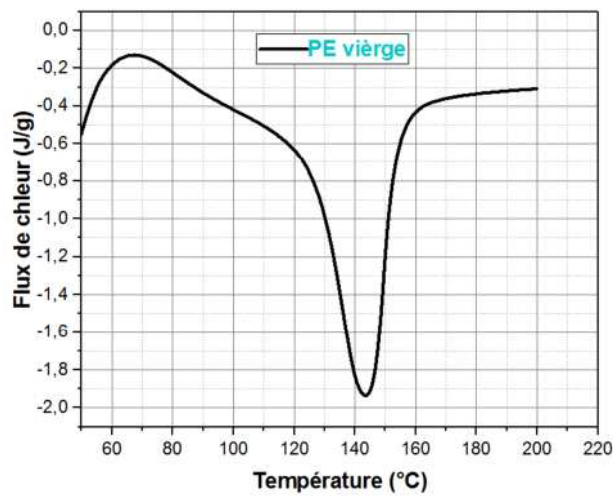
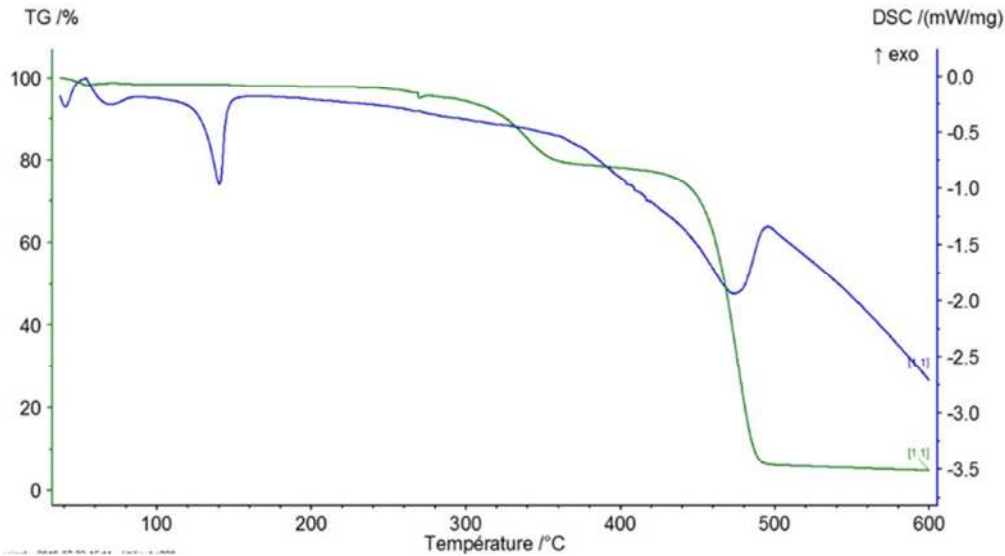


Figure IV.5 : Thermogramme DSC de PE vierge.



**Figure IV.6 :** Thermogramme DSC/ATG : PE/20% Fibres de LIN.

**Tableau IV.2 :** Résultats de DSC.

Echantillon		T <sub>f</sub> (C°)
PE		143
Fibre de lin		120
PE/10%Lin	PE	478
	F.lin	138
PE/20%Lin	PE	485
	F.lin	142

En regardant les résultats illustrés dans le tableau IV.2, on constate que le comportement thermique du composite préparé a changé dans le sens de hautes températures et cela pour les deux pourcentages de renfort en fibre de lin à savoir la température de fusion du PE passe de 143 à 478 pour une charge de 10% en masse et de 143 à 485 pour le renfort de 20% en masse.

## IV.2.2 Caractérisation Thermogravimétrie TG

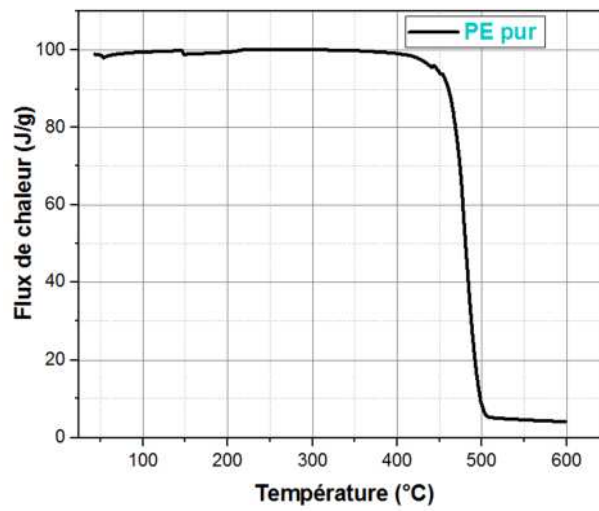


Figure IV.7 : Thermogramme TG de PE pur.

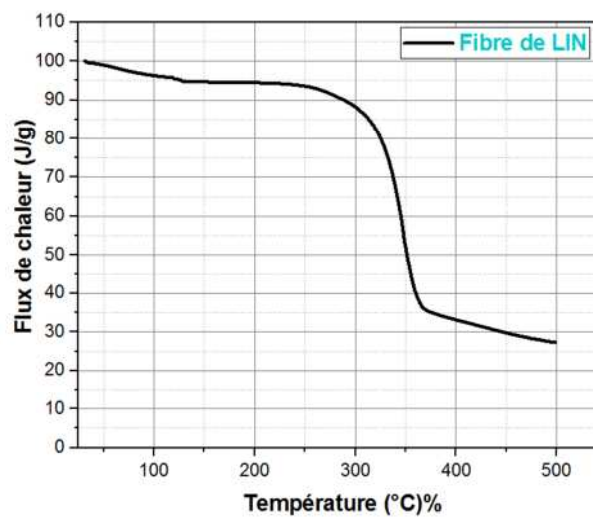


Figure IV.8 : Thermogramme TG de fibre de lin.

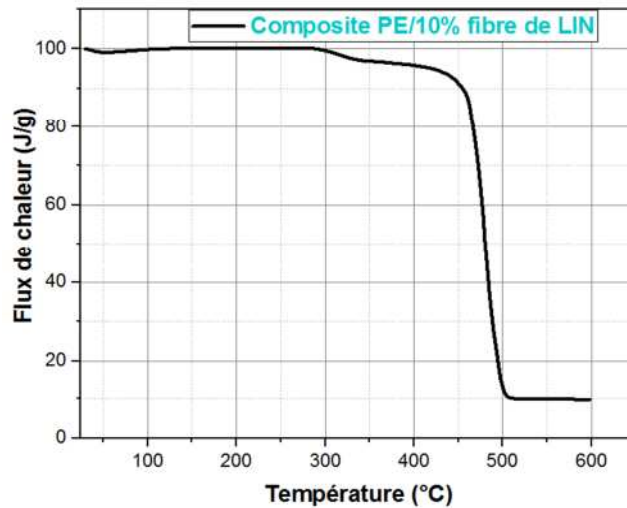


Figure IV.9 : Thermogramme TG de composite PE/10% Lin

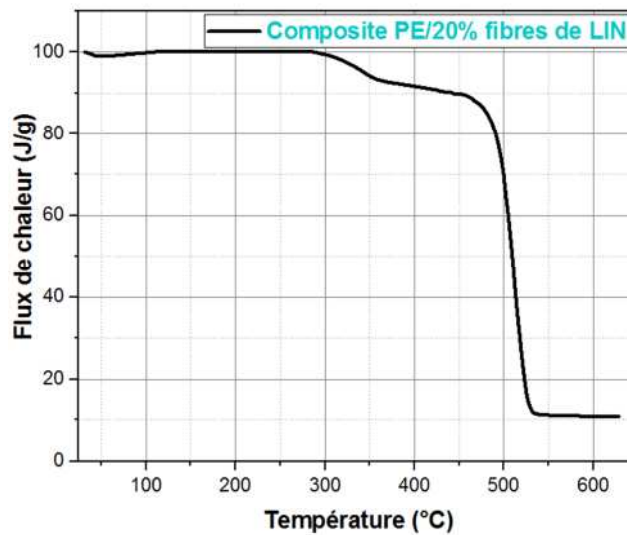


Figure IV.10 : Thermogramme TG de composite PE/20% Lin.

Tableau IV.3 : Résultats de l'ATG.

Echantillon		$T_{\text{onset}} (C^{\circ})$	$T_{\text{offset}} (C^{\circ})$
PE pur		380	502
Fibre de lin		240	370
PE/10%Lin	PE	475	504
	F.Lin	280	430
PE/20%Lin	PE	490	530
	F.Lin	280	475

Les résultats de l'ATG regroupés dans le tableau IV.3 montrent que l'incorporation de la charge de renfort de lin a modifié le comportement thermique du composite obtenu en décalant la température de début de dégradation vers les hautes températures de 380 à 475 °C pour 10 % de charge et de 380 à 490 °C pour 20% de charge en masse alors que pour la fin du processus de dégradation le décalage était léger de 502 à 530 pour 20% de charge en masse.

### IV.3 Analyse de la performance mécanique

#### IV.3.1 Préparation des éprouvettes

Les éprouvettes destinées aux essais mécaniques en traction, a été moulés par un appareil d'une découpeuse marque CEAST. Les plaques sont placées dans la fenêtre du moule et découpées pour chaque mélange, la taille des éprouvettes dépendra du moule.

- **La traction** : une éprouvette de 2 mm d'épaisseur, 11,5 cm de longueur et 2,5 cm de largeur..



**Figure IV.11** : Eprouvette de traction pour PEHD/Fibres de Lin.

### IV.3.2 Comportement en traction

Les courbes de la contrainte en fonction de déformation des essais de traction des différentes fibres et différents pourcentages représentés dans les courbes suivants :

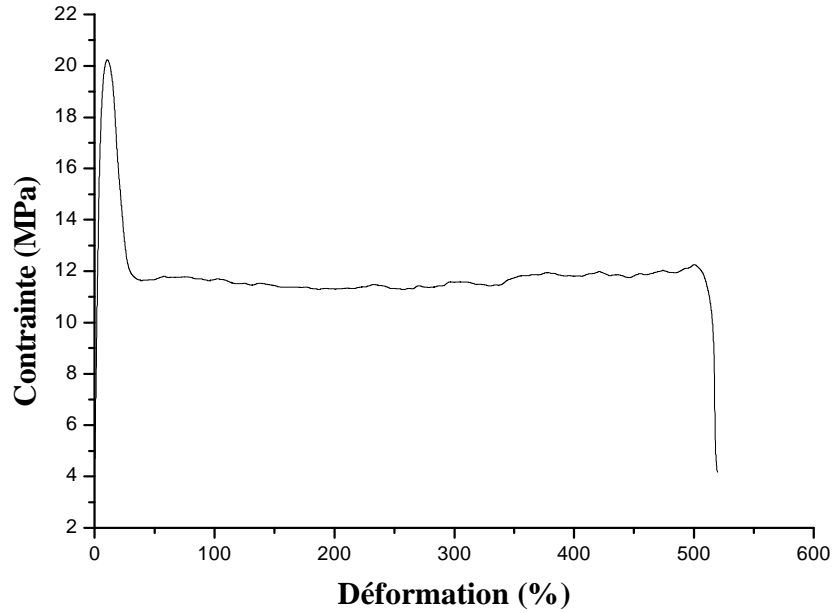


Figure IV.12 : Variation de la contrainte en fonction de déformation du PEHD.

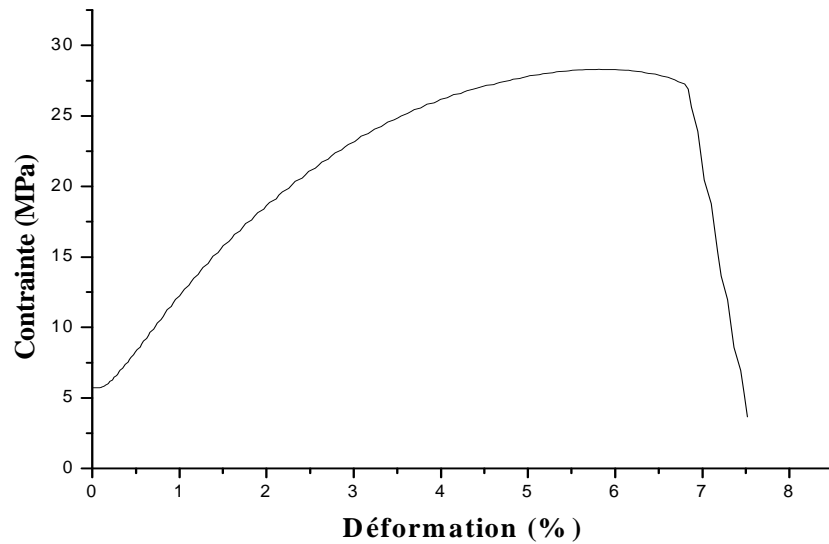
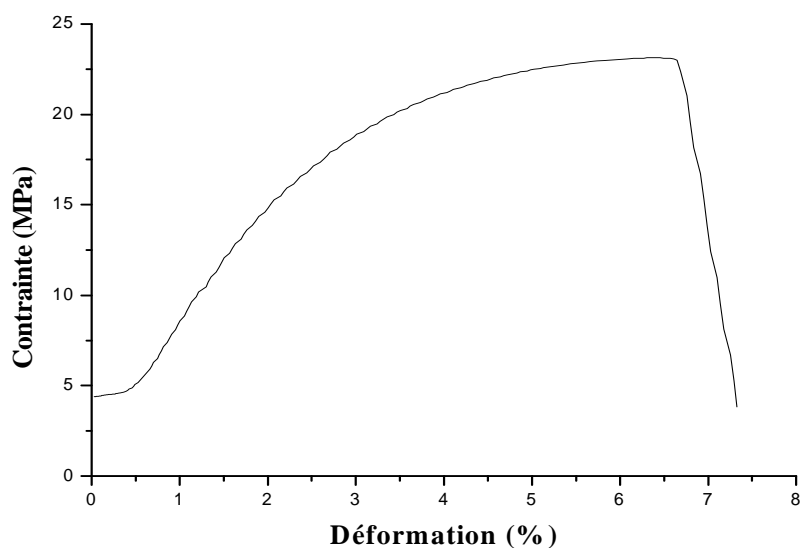


Figure IV.13 : Variation de la contrainte en fonction de déformation de la fibre de lin (10%).



**Figure IV.14** : Variation de la contrainte en fonction de déformation de fibre de lin (20%).

L'effet de la charge sur les propriétés mécaniques de PEHD a été suivi par le changement des valeurs suivant :

**Tableau IV.4** : Valeurs de module d'Young, contrainte max, déformation et résistance à la rupture.

Charge (%)	Résistance à la traction [MPa]	Résistance à la rupture [MPa]	Déformation à la rupture (%)	Module d'Young [MPa]	
PEHD (vierge)	22,00	13,94	606,71	2,15	
Fibre de lin	10	25,00	23,97	6,94	5,91
	20	22,63	21,22	6,32	6,20

D'après le **tableau IV.4** on observe une diminution de la déformation à la rupture après l'ajout de la charge, en effet, la diminution de la déformation la plus significative est observée dans le matériau brut (PEHD).

On note une augmentation de résistance à la traction du bio-composite avec l'ajout de la charge végétale. Pour la variation de la contrainte à la rupture en fonction du taux de fibre, on constate une amélioration de la contrainte à la rupture. L'augmentation de la contrainte à la rupture est attribuée à la bonne répartition de la fibre dans la matrice du PEHD qui est la phase dominante, ce qui lui permet de bien jouer son rôle de liant.

On remarque une augmentation du module d'élasticité du bio-composite avec l'ajout de la charge végétale. Cet effet de renforcement, met en évidence une certaine adhésion entre les fibres et la matrice du biocomposite. Cependant, les valeurs du module d'élasticité des biocomposites avec les taux (20%) de différentes fibres sont élevées par rapport à celles avec le taux (10%) de fibres.

En d'autres termes l'introduction des fibres dans la matrice PEHD conduit à une plus grande rigidité du polymère chargé.

# *Conclusion générale*

L'objectif principal de ce travail de l'élaboration d'un composite constitué d'une matrice de polyéthylène haute densité (PEHD), renforcé par des fibre naturelle d'origine végétale :les fibre de lin à des pourcentages de 10%, 20% de la masse totale de matériau composite, Ceci nous a permis, grâce aux techniques de caractérisations, de recueillir des informations intéressantes relatifs à l'effet du taux de charge sur les propriétés des composites élaborés.

En général, l'ajout des fibres augmente bien les propriétés mécaniques des composites à cause de la compatibilité entre les fibres et la matrice et de leurs propriétés mécaniques élevées.

L'analyse des résultats expérimentaux nous conduisent donc à affirmer que :

L'ensemble des données recueillies sur les propriétés thermiques des composites par ATG/DSC, montrent que la charge lignocellulosique retarde sensiblement la décomposition du polyéthylène. Autrement dit, elle joue le rôle d'inhibiteur de la dégradation thermique.

Les résultats de DRX pour les composites de l'étude montrent que l'ajout de la charge de fibres de lin n'a affecté la structure du composite que légèrement.

Les résultat de l'essais de traction on observe une diminution de la déformation à la rupture après l'ajout de la charge, en effet, la diminution de la déformation la plus significative est observée dans le matériau brut (PEHD).

On note une augmentation de résistance à la traction du bio-composite avec l'ajout de la charge végétale.

## **Résumé**

Cette étude montre l'intérêt de mettre en œuvre une charge végétale biodégradable dans les matériaux composites.

Les agro-composites présentent de nombreux avantages physico-chimiques, mécaniques, environnementales et économiques. Ces matériaux sont un assemblage de fibres naturelles noyées dans une matrice polymère synthétique ou bionaturelle renforcée. L'utilisation de ces agro-matériaux est devenue un enjeu majeur et le sera encore plus dans un avenir proche et à long terme. L'objectif de notre travail est l'élaboration d'un nouveau matériau composite PEHD/Lin avec différents pourcentages de charge PEHD/10%Lin, PEHD/20%Lin. Les composites obtenus ont été soumis à plusieurs techniques de caractérisations à savoir les caractérisations structurales par la diffraction des rayons X (DRX), les tests mécaniques (traction) thermiques (l'analyse calorimétrique différentielle (DSC) et l'analyse thermogravimétrique (ATG)) afin d'étudier leur comportement.

## **Abstract**

This study shows the interest of implementing a biodegradable vegetable filler in composite materials.

Agro-composites have many physico-chemical, mechanical, environmental and economic benefits. These materials are an assembly of natural fibers embedded in a reinforced synthetic or bionatural polymer matrix. The use of these agro-materials has become a major issue and will be even more so in the near future and in the long term. The aim of our work is the development of a new HDPE / Linen composite material with different percentages of HDPE / 10% Linen, HDPE / 20% Linen filler. The composites obtained were subjected to several characterization techniques namely the structural characterizations by X-ray diffraction (XRD), thermal mechanical tests (traction) (differential scanning calorimetry (DSC) and thermogravimetric analysis (ATG)). ) to study their behavior.