



**HAL**  
open science

# Caractérisation de l'interface fibre/matrice : application aux composites polypropylène/chanvre

Duy Cuong Nguyen

## ► To cite this version:

Duy Cuong Nguyen. Caractérisation de l'interface fibre/matrice : application aux composites polypropylène/chanvre. Matériaux et structures en mécanique [physics.class-ph]. Université de Technologie de Troyes, 2016. Français. NNT : 2016TROY0009 . tel-03361756

**HAL Id: tel-03361756**

**<https://theses.hal.science/tel-03361756v1>**

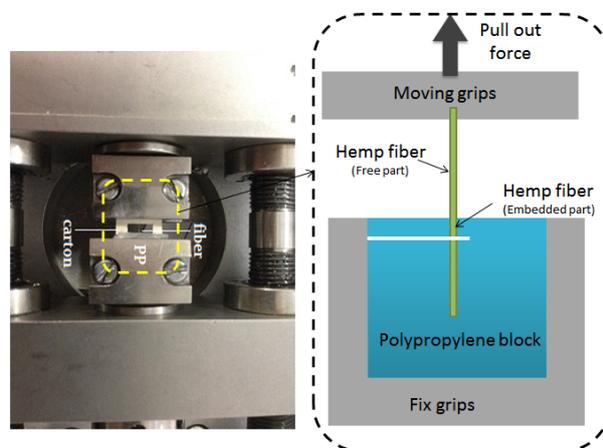
Submitted on 1 Oct 2021

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

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

**Duy Cuong NGUYEN**

**Caractérisation  
de l'interface fibre/matrice.  
Application aux composites  
polypropylène/chanvre**



**Spécialité :**

**Matériaux, Mécanique, Optique et Nanotechnologie**

2016TROY0009

Année 2016

---

---

# THESE

*pour l'obtention du grade de*

## DOCTEUR de l'UNIVERSITE DE TECHNOLOGIE DE TROYES

**Spécialité : MATERIAUX, MECANIQUE, OPTIQUE ET NANOTECHNOLOGIE**

*présentée et soutenue par*

**Duy Cuong NGUYEN**

*le 11 mai 2016*

---

---

**Caractérisation de l'interface fibre/matrice.  
Application aux composites polypropylène/chanvre**

---

---

### JURY

|                  |                                |                    |
|------------------|--------------------------------|--------------------|
| M. M. NARDIN     | DIRECTEUR DE RECHERCHE CNRS    | Président          |
| M. J. BEAUGRAND  | CHARGE DE RECHERCHE INRA - HDR | Rapporteur         |
| M. X.-L. GONG    | PROFESSEUR DES UNIVERSITES     | Examineur          |
| M. L. GUILLAUMAT | PROFESSEUR DES UNIVERSITES     | Rapporteur         |
| M. A. MAKKE      | ENSEIGNANT CHERCHEUR EPF       | Directeur de thèse |
| M. G. MONTAY     | MAITRE DE CONFERENCES - HDR    | Directeur de thèse |

### Personnalité invitée

|              |               |
|--------------|---------------|
| M. O. HORNER | DOCTEUR - HDR |
|--------------|---------------|

Mis en page avec la classe thesul.

## Remerciements

Je tiens tout d'abord à exprimer mes profonds remerciements à mes directeurs de thèse, Mr Ali MAKKE et Mr Guillaume MONTAY et pour leur soutien scientifique et moral ainsi que pour leur confiance. Les discussions scientifiques échangées tout au long de ces trois années de ma thèse m'ont aidé beaucoup. Je tiens à remercier le Conseil Général de l'Aube qui a financé mes travaux et le projet de recherche CIFiMa qui est en collaboration entre l'Université de Technologie de Troyes et l'Ecole Polytechnique Féminine.

Je tiens à remercier à Mr Johnny BEAUGRAND et Mr Laurent GUILLAUMAT de m'avoir fait l'honneur de juger ce travail en qualité de rapporteurs. Je remercie également l'ensemble des membres du jury, Mr Xiao-Lu GONG, Mr Michel NARDIN et Mr Olivier HORNER.

Je voudrais remercier l'ensemble des personnels du laboratoire LASMIS qui m'ont aidé tout au long de ce travail, pour leur support technique et pour les contacts humains que nous avons pu partager.

Je remercie aussi tous les thésards avec une mention très spéciale pour Florent ILCZYSZYN et Hong Chang HAN.

En fin, je souhaite dédier ce mémoire à tous les membres de ma famille. Je voudrais tout particulièrement exprimer ma reconnaissance à mes parents, Monsieur Duy Dung NGUYEN et Madame Thi Toi DANG, qui n'ont cessé de croire dans ce travail et m'ont été d'un grand support dans tous les moments difficiles. J'exprime toute ma gratitude à ma chère épouse Thi Thuy DANG pour son amour, sa patience et son réconfort dans l'accomplissement de ce travail.



# Sommaire

|   |           |
|---|-----------|
| <b>Introduction générale</b>  | <b>v</b>  |
| <b>Chapitre 1</b>   |           |
| <b>Revue de littérature</b>   | <b>1</b>  |
| 1.1 Introduction . . . . .  | 1         |
| 1.2 Présentation des matériaux . . . . .  | 3         |
| 1.3 L'interface fibre/matrice . . . . .   | 14        |
| 1.4 Méthodes de caractérisation mécanique de l'interface fibre/matrice . . . . .                      | 19        |
| 1.5 Vieillissement des agro-composites dans des conditions environnementales . . . . .                | 30        |
| 1.6 Conclusion . . . . .  | 38        |
| <b>Chapitre 2</b>   |           |
| <b>Caractérisation de l'interface fibre/matrice</b>   | <b>40</b> |
| 2.1 Introduction . . . . .  | 40        |
| 2.2 Méthodologie . . . . .  | 41        |
| 2.3 Détermination de la température effective du moulage . . . . .                                    | 65        |
| 2.4 Effet de la température de fabrication sur la résistance au cisaillement de l'interface . . . . . | 68        |
| 2.5 Conclusions du chapitre . . . . .   | 76        |
| <b>Chapitre 3</b>   |           |
| <b>Effet du vieillissement sur les propriétés mécaniques de l'interface fibre/matrice</b>             | <b>77</b> |
| 3.1 Introduction . . . . .  | 77        |
| 3.2 Matériaux et méthodes . . . . .   | 78        |
| 3.3 Résultats . . . . .   | 81        |
| 3.4 Effet du vieillissement à l'humidité relative . . . . .   | 84        |
| 3.5 Synthèse des résultats . . . . .  | 92        |
| 3.6 Conclusions . . . . .   | 95        |

|  |            |
|--|------------|
| <b>Conclusions générales et perspectives</b> | <b>96</b>  |
| 1 Conclusions . . . . .                      | 96         |
| 2 Perspectives . . . . .                     | 97         |
| <b>Table des figures</b>                     | <b>99</b>  |
| <b>Bibliographie</b>                         | <b>104</b> |

# Introduction générale

Un challenge essentiel pour l'avenir des matériaux composites est de rendre leur fabrication et leur utilisation compatibles avec les attentes environnementales de plus en plus exigeantes. Dans ce cadre, le remplacement des fibres d'origine minérale ou synthétique par des fibres d'origine végétale est d'un grand intérêt. Ces dernières doivent cependant respecter le même cahier des charges notamment en termes de propriétés mécaniques. Les fibres d'origine végétale sont de plus en plus étudiées afin d'être employées comme renfort dans les matériaux composites. Grâce à leur faible densité, leur biodégradabilité ainsi que leur abondance, l'utilisation de ces fibres est intéressante du point de vue économique et environnementale [1].

| <b>Avantages</b>                                | <b>Inconvénients</b>  |
|---|---|
| Faible coût                                     | Fort comportement hydrophile  |
| Propriétés mécaniques spécifiques importantes   | Faible stabilité dimensionnelle   |
| Biodégradabilité                                | Biodégradabilité  |
| Non abrasif                                     | Faible tenue thermique (< 230°C)  |
| Bilan CO2 faible                                | Comportement anisotropique  |
| Demande peu d'énergie pour être produite        | Variation de la qualité dépendant des conditions de croissance de la plante |
| Pas de résidu après incinération                | Demande un contrôle pour une application industrielle                       |
| Non irritant lors de la manipulation des fibres | Renfort discontinu  |
| Bonne isolation thermique et acoustique         |   |
| Ressource renouvelable                          |   |
| Faible densité                                  |   |

FIGURE 1 – Avantages et inconvénients des fibres végétales [1]

Malgré leurs avantages, les fibres végétales présentent quelques inconvénients (figure 1). En effet, compte tenu de leur caractère naturel, leurs performances et leurs propriétés mécaniques sont dispersées [2]. Ainsi, la composition chimique et la structure complexe de la fibre influencent les propriétés à l'interface fibre/matrice. Cette interface joue un rôle primordial dans la résistance mécanique des matériaux composites. En effet, un des modes d'endommagement des matériaux composites est la dé-cohésion entre le renfort et la matrice (figure 2). Ce mode de rupture est

très répandu dans le cas des composites agro-sourcés car l'adhésion entre la matrice hydrophobe et la fibre hydrophile est faible (figure 3).

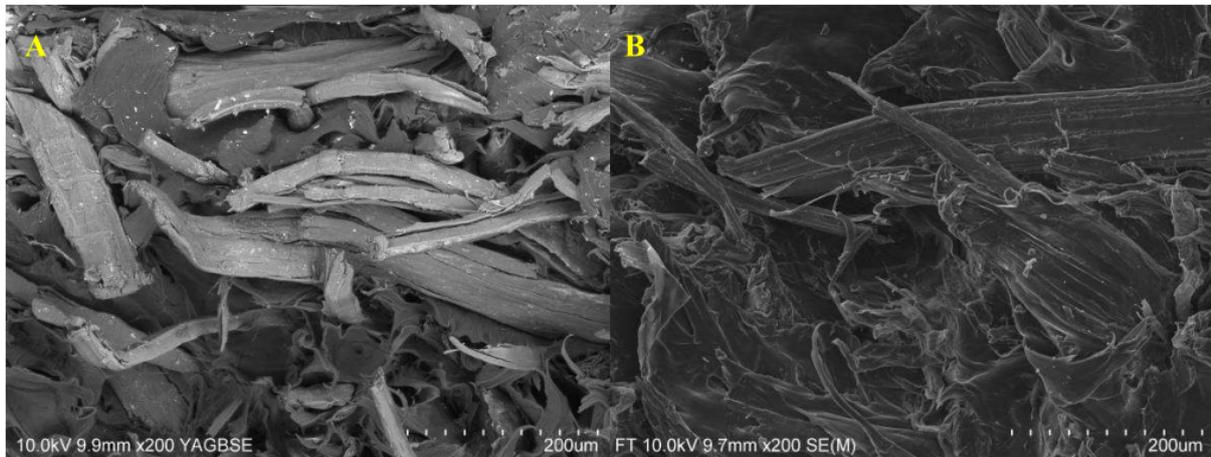


FIGURE 2 – Facies de rupture des composites à fibres de chanvre/PLA : (a) fibres de chanvre non traitées, (b) fibres de chanvre traitées [3]

Il est donc crucial de comprendre les phénomènes intrinsèques au niveau de l'interface ainsi que leurs influences sur les propriétés mécaniques du composite final. Pour aborder ce problème, il est important tout d'abord de savoir qu'est-ce que l'adhésion puis les mécanismes d'adhésion entre la fibre et la matrice.

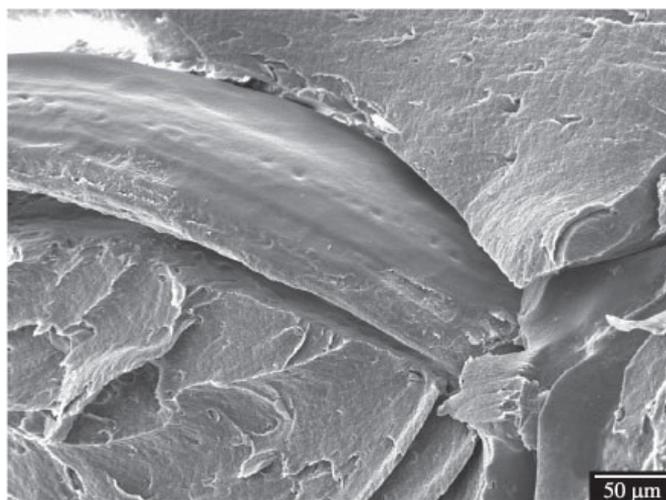


FIGURE 3 – Détail d'une faible adhésion de l'interface entre une fibre d'çaï et du polystyrène (HIPS) sous compression [4]

L'adhésion entre une fibre et une matrice est assurée par des interactions moléculaires de 3 types (i) liaison de Van der Waals [5, 6], (ii) acide-base [7, 8, 9, 10] et (iii) liaison chimique (covalente) [5, 6]. Ces trois interactions jouent un rôle fondamental sur l'adhésion.

Pour décrire l'interface de sa formation à sa rupture, il est judicieux de considérer minutieusement l'intégralité des mécanismes d'adhésion. Actuellement, il existe six modèles/théories

---

complémentaires [6, 11, 12, 13] :

1. Modèle d'ancrage
2. Théorie électrique
3. Théorie des couches de faible cohésion et concept d'inter-phase
4. Théorie thermodynamique de l'adhésion et modèle des facteurs multiplicatifs
5. Théorie de la diffusion et de l'inter-diffusion
6. Théorie de la liaison chimique.

L'utilisation de ces théories dépend des matériaux en contact et des conditions de formation de l'interface.

Une analyse bibliographique ciblée sur la caractérisation de l'interface fibre/matrice des matériaux composites permet d'avoir un aperçu sur les différentes méthodes existantes. En effet, il existe dans ce domaine des techniques telles : (i) le test de déchaussement d'une micro-goutte/micro-éprouvette, (ii) le test de fragmentation et (iii) la technique de (nano) micro-indentation, ... Parmi ces méthodes, le test de déchaussement et le test de fragmentation sont les plus applicables pour les matériaux composites à fibres végétales [6].

Le test de déchaussement d'une micro-goutte permet de mesurer précisément le déplacement de la fibre ainsi que la force de traction. La fabrication des échantillons et la mise en œuvre du test sont complexes, coûteuses et demandent un certain temps de préparation. Les résultats de ce test dépendent de plusieurs facteurs [14] :

- L'hypothèse d'une distribution uniforme ou non de la contrainte de cisaillement le long de l'interface
- L'effet du frottement
- La longueur immergée de la fibre dans la matrice et la longueur libre de la fibre
- L'effet du coefficient de Poisson
- L'effet de la contrainte normale transversale

Pour le test de fragmentation où le travail réel du matériau composite est mieux reproduit, il y a moins de paramètres gouvernant la caractérisation de l'interface. Il est ainsi facile d'observer la rupture de la fibre avec une matrice transparente. Cependant, le calcul de la contrainte à la rupture de la fibre est plus complexe.

Les techniques décrites brièvement ci-dessus sont souvent coûteuses et nécessitent un temps de préparation et de mise en œuvre important. On propose donc dans ce travail de thèse de développer une méthode plus simple à mettre en œuvre et moins coûteuse pour caractériser les propriétés mécaniques de l'interface fibre/matrice.

Aussi, la géométrie des fibres végétales est fortement variable. Il existe souvent des défauts de surface. Cependant la plupart des études sur l'interface fibre/matrice des agro-composites considère que la section du profil des fibres végétales est circulaire et constante le long la longueur de la fibre.

Le présent travail vise **premièrement** à développer un nouveau dispositif expérimental afin d'améliorer la caractérisation de l'interface fibre/matrice. La méthode développée doit être simple et fiable dans un but d'application (semi) industrielle. Une multi-fabrication des éprouvettes est proposée à l'aide d'un moule spécifique. De plus, la réalisation des essais de déchaussement est simple grâce à l'utilisation d'une micro-machine de traction in-situ. La vitesse de la traverse est choisie suffisamment petite pour mieux reproduire les différentes phases du déchaussement de la fibre. Un dispositif expérimental spécifique et complexe n'est plus nécessaire car les dimensions des éprouvettes choisies sont bien adaptées aux mors de la machine de traction. En outre, l'interface de nos éprouvettes est bien plus longue (facteur de 3 à 4) que celle utilisée

dans les études antérieures. Les fibres techniques utilisées comme renfort des agro-composites ont une longueur plus grande, l'interface étudiée dans notre cas se rapproche donc mieux la réalité. D'autre part, la géométrie réelle de la fibre est prise en compte dans le calcul des propriétés mécaniques de l'interface.

**Deuxièmement**, le protocole expérimental développé est ensuite appliqué dans une étude concernant l'influence de la température d'élaboration sur les propriétés de l'interface fibre/matrice. Parmi les paramètres de fabrication, la température influence largement la qualité de l'interface entre la fibre et la matrice. En effet, certains travaux [15, 16, 17, 18] ont montré l'importance de ce paramètre sur les propriétés mécaniques globales des matériaux composites. Dans le cas de ce travail, nous avons concentré notre étude sur la zone interfaciale. Plus précisément, la variation de ( $IFSS$ ,  $G$  et  $\varepsilon_{max}$ ) a été étudiée suite à des changements de température de fabrication. L'objectif est de mieux comprendre l'effet de ce paramètre sur la qualité de l'interface dans la mécanique des agro-composites.

**Enfin**, le vieillissement dans des conditions d'utilisation est un des inconvénients des agro-composites. Il est constaté dans la littérature que ce problème a un lien avec l'altération de l'interface fibre/matrice quand le composite est exposé à des conditions environnementales. Pourtant, peu de travaux mettent en lumière l'évolution des propriétés mécaniques d'interfaces vieilles. D'autre part, dans les travaux antérieurs [19, 20], la condition de vieillissement est souvent l'immersion dans l'eau, qui est une condition extrême. Une simulation des conditions climatiques naturelles par exemple dans une ville de France est particulièrement intéressante afin de prévenir la durée de vie des agro-composites dans des conditions usuelles.

En effet, Jin et al. [21] ont appliqué des cycles de vieillissement accélérés dans une étuve climatique simulant le climat de la ville de Paris à des fibres de chanvre et à des composites PP/chanvre. L'application de ces conditions de vieillissement à l'interface fibre/matrice du même composite permettra d'étudier directement l'altération de l'interface. De plus, nous pouvons retrouver le lien entre la perte des propriétés de l'interface et la diminution des propriétés globales du composite.

## Objectifs de la thèse

En répondant aux problématiques posées ci-dessus, cette thèse se compose de trois chapitres :

— **Chapitre 1 : Revue de littérature**

Dans ce chapitre, les matériaux utilisés sont constitués de fibres végétales de chanvre et d'une matrice thermoplastique (polypropylène - PP). Nous aborderons le procédé de fabrication des matériaux composites et l'influence des paramètres de fabrication sur les propriétés des composites. Parmi les paramètres de fabrication, nous avons choisi de regarder l'influence de la température d'élaboration. L'ensemble des connaissances sur l'interface fibre/matrice des matériaux composites ainsi que sur les méthodes de caractérisation de l'interface seront présentées. Parmi les méthodes disponibles, l'essai pull-out sera choisi dans ce travail. Enfin, la dernière sous-partie du chapitre présentera le problème de vieillissement en relation avec l'interface fibre/matrice.

— **Chapitre 2 : Caractérisation de l'interface fibre/matrice**

Le chapitre 2 présente la caractérisation de l'interface fibre/matrice réalisée dans ce travail. Après avoir décrit la méthodologie, nous présenterons les différentes étapes de fabrication ainsi que la mise en place des essais de déchaussement. Les différents résultats

---

obtenus : rupture en traction de la fibre, le déchaussement partiel de la fibre et le déchaussement total de la fibre seront présentés et analysés. Les propriétés mécaniques apparentes de la fibre (cas de rupture en traction) et de l'interface (cas de déchaussement partiel et de déchaussement total) seront décrites. Il est à remarquer que les défauts géométriques de la fibre sont pris en compte dans ces analyses. Les résultats observés seront comparés avec ceux de la littérature.

Les essais pull-out développés précédemment seront répétés sur des éprouvettes élaborées à d'autres températures afin d'analyser l'influence de ce paramètre sur les propriétés interfaciales.

— ***Chapitre 3 : Etude de vieillissement de l'interface fibre/matrice***

Le dernier chapitre du rapport sera consacré à l'étude du vieillissement de l'interface fibre de chanvre/matrice de polypropylène. Tout d'abord, le dispositif et la méthode seront présentés. Nous avons choisi de restreindre ce travail à l'étude de l'influence de l'humidité relative (HR) sur l'interface. Des essais de déchaussement sur les éprouvettes disposant d'une interface vieillie seront présentés. Les propriétés mécaniques ( $IFSS$ ,  $G$  et  $\varepsilon_{max}$ ) de l'interface à différentes semaines de vieillissement seront analysées. La diminution de  $IFSS$  et de  $G$  est constatée alors que  $\varepsilon_{max}$  augmente au cours du vieillissement en humidité relative. D'autre part, l'influence du vieillissement en HR sur des propriétés qualitatives de l'interface est constatée via des observations microscopiques.

Le chapitre se termine par des comparaisons de nos résultats avec ceux de la littérature.

# Chapitre 1

## Revue de littérature

### Sommaire

---

|            |  |           |
|------------|--|-----------|
| <b>1.1</b> | <b>Introduction</b>  | <b>1</b>  |
| <b>1.2</b> | <b>Présentation des matériaux</b>  | <b>3</b>  |
| 1.2.1      | Les fibres de chanvre  | 3         |
| 1.2.2      | Les polymères thermoplastiques renforcés par les fibres végétales                                      | 10        |
| 1.2.3      | Les agro-composites  | 12        |
| <b>1.3</b> | <b>L'interface fibre/matrice</b>   | <b>14</b> |
| 1.3.1      | Introduction   | 14        |
| 1.3.2      | Théories de l'adhésion   | 15        |
| <b>1.4</b> | <b>Méthodes de caractérisation mécanique de l'interface fibre/matrice</b>                              | <b>19</b> |
| 1.4.1      | Introduction   | 19        |
| 1.4.2      | Calculs théoriques   | 19        |
| 1.4.3      | Essais micromécaniques de caractérisation de l'interface fibre/matrice                                 | 20        |
| 1.4.4      | Comparaison et choix de la méthode   | 28        |
| 1.4.5      | Propriétés à l'interface fibre/matrice des agro-composites en fonction des méthodes de caractérisation | 29        |
| <b>1.5</b> | <b>Viellissement des agro-composites dans des conditions environnementales</b>                         | <b>30</b> |
| 1.5.1      | Introduction : Définition et classification  | 30        |
| 1.5.2      | Comportement des fibres végétales sous des sollicitations environnementales                            | 30        |
| 1.5.3      | Comportement des agro-composites sous des sollicitations environnementales                             | 33        |
| <b>1.6</b> | <b>Conclusion</b>  | <b>38</b> |

---

### 1.1 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 chanvre.

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 a 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.

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 [2]. Les fibres naturelles ont montré des propriétés mécaniques intéressantes et comparables à celles des fibres artificielles, notamment en terme 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.

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. 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 [2]. La composition chimique et la structure complexe de la fibre influencent les propriétés de l'interface fibre/matrice. 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.

Il existe différents chemins pour la caractérisation de l'interface dans la littérature : calculs théoriques, essais sur des éprouvettes composites réelles ou essais sur des éprouvettes à monofilament. Ils comprennent les essais pull-out, les essais de déchaussement d'une micro-goutte, les essais de fragmentation ou encore les essais de compression de diabolos. Cependant, ces méthodes de caractérisation de l'interface fibre/matrice ont des inconvénients. Elles sont soit complexes et prennent beaucoup de temps de préparation et de réalisation des essais, soit de principe complexe (demandent éventuellement des hypothèses supplémentaires,...) ou complexes en exploitations des données et coûteuses en temps. De ce fait, le procédé développé en basant sur l'essai de pull-out a été proposé dans ce travail.

Plusieurs auteurs ont montré l'importance de la température d'élaboration sur les propriétés mécaniques globales des matériaux composites. Une étude sur l'effet de ce paramètre à l'interface dans la mécanique des agro-composites paraît donc intéressante.

Plusieurs études montrent aussi l'impact des conditions de vieillissement telles que l'humidité relative (HR), la température (T) et les rayonnements ultraviolets (UVs) sur les propriétés générales des matériaux composites. Ces facteurs altèrent non seulement les propriétés de la matrice et du renfort mais également celles de l'interface. Malgré leurs influences connues sur les propriétés mécaniques de l'interface, les effets des 3 facteurs cités ci-dessus ne sont pas beaucoup étudiés d'une manière directe et précise.

## 1.2 Présentation des matériaux

### 1.2.1 Les fibres de chanvre

#### 1.2.1.1 Extraction

La fibre de chanvre est une fibre libérienne d'origine végétale. Elle est extraite de la tige

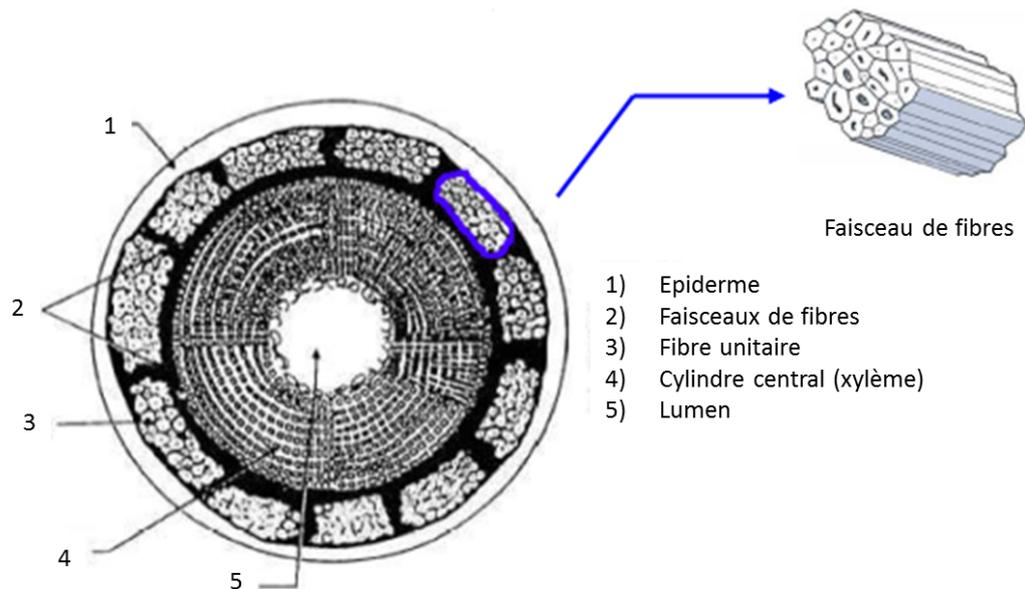


FIGURE 1.1 – Vue macroscopique de la section transversale d'une tige de lin [22]

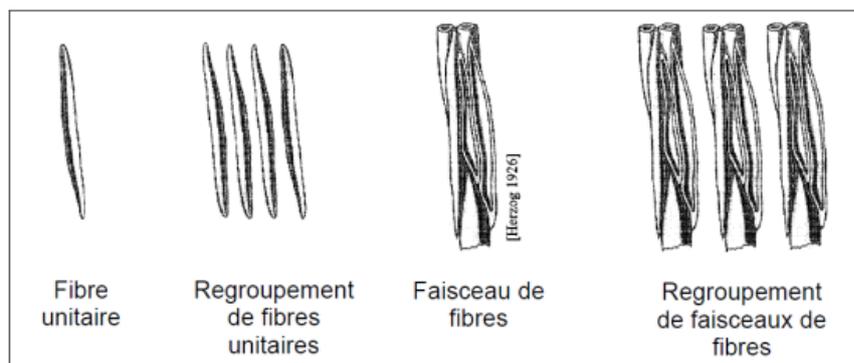


FIGURE 1.2 – Fibras unitaires et faisceaux de fibras [23]

(figure 1.1). Le processus d'extraction des fibres de chanvre se déroule en plusieurs étapes : la récolte, le rouissage sur champ et l'exploitation de la paille de chanvre. La première étape est effectuée lorsque la plante est en état de maturité. Puis le rouissage est fait sur champ après la séparation de la tige des feuilles et des graines. Il existe différentes méthode de rouissage : le rouissage à terre, à l'eau, chimique ou enzymatique [24]. Ensuite, à un taux d'humidité d'environ 11%, l'exploitation de la paille de chanvre est réalisée, comprenant différentes opérations : la

décortication, la séparation et l'affinage. Elle permet d'extraire les faisceaux de fibres de la tige qui sont situés en périphérie de cette dernière. Parallèlement, on obtient de la chènevotte, la graine et de la poussière de chanvre.

La figure 1.2 illustre le regroupement des fibres unitaires dans un faisceau de fibres et le regroupement des faisceaux. Ces faisceaux sont obtenus après le teillage. Puis, l'opération de peignage permet d'extraire des fibres techniques de diamètre d'environ  $50 - 100\mu m$ . Enfin, les fibres unitaires sont extraites de ces faisceaux, de diamètre de  $20 - 50\mu m$ . La présentation d'une fibre à des échelles différentes : méso et microscopique est montrée dans la figure 1.3.

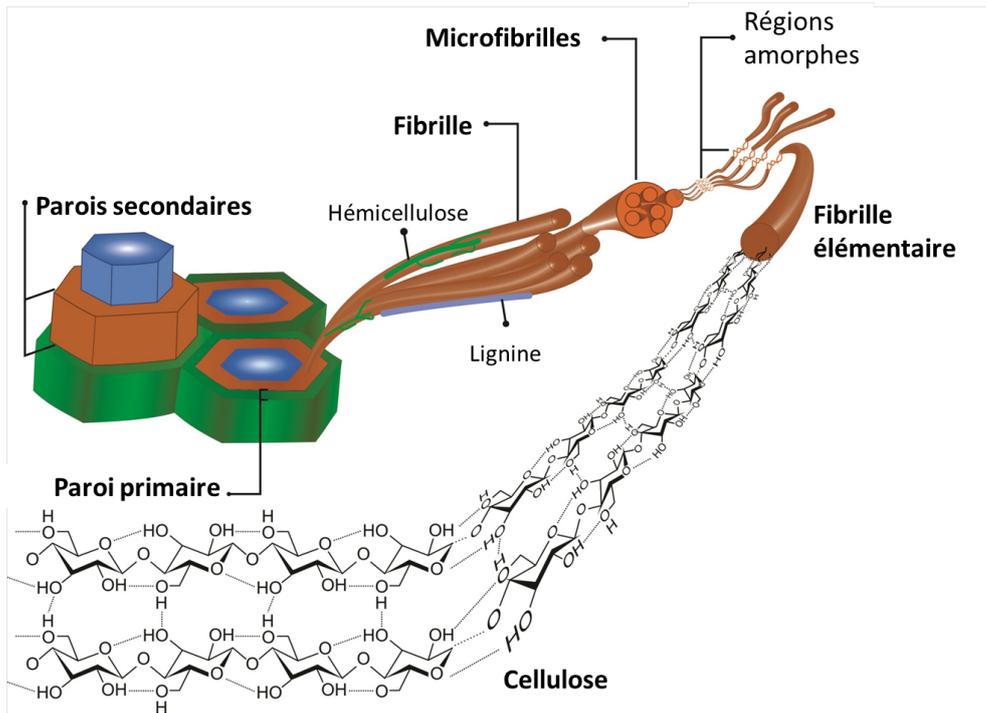


FIGURE 1.3 – Fibre végétale à différentes échelles (méso et microscopique). Figure transformée de [25]

### 1.2.1.2 Structure de la fibre

Une fibre unitaire peut être représentée de deux manières différentes tout à fait complémentaire. Tout d'abord la fibre peut être vue comme un matériau multicouche constitué d'une lamelle mitoyenne puis d'une paroi primaire et secondaire. La paroi secondaire se décompose en trois couches notées  $S_1$ ,  $S_2$  et  $S_3$  sur la figure 1.4. Les fibres utilisées dans les composites sont extraites essentiellement de la couche  $S_2$  qui est la plus épaisse. C'est aussi dans cette couche  $S_2$  que le taux de cellulose est le plus important.

Ensuite la fibre peut être représentée comme un arrangement de micro-fibrilles (figure 1.5) orientées d'un certain angle appelé angle micro-fibrillaire. Cette orientation en forme d'hélice est un des paramètres très importants sur la tenue mécanique des fibres [26].

Les micro-fibrilles de structure très cristalline et hautement orientées sont regroupées en paquets, formant les méso-fibrilles [28]. La figure 1.5 représente le modèle simplifié de la structure d'une fibre végétale.

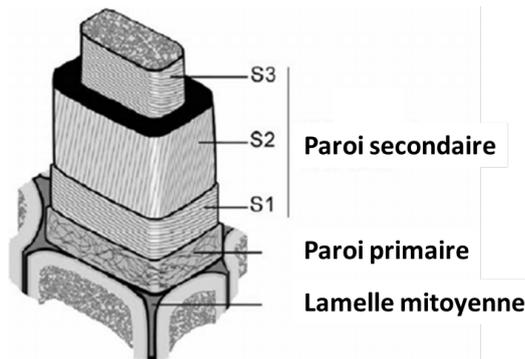


FIGURE 1.4 – Model simplifié d'une fibre naturelle en plusieurs couches [27]

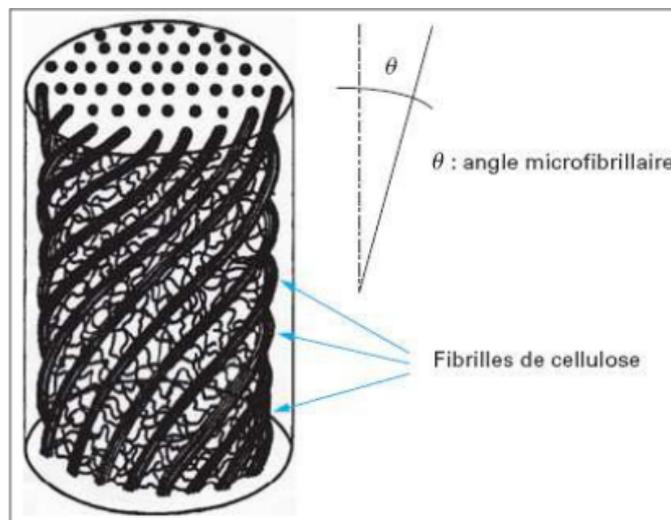


FIGURE 1.5 – Modélisation simplifiée d'une fibre végétale [29]

### 1.2.1.3 Composition chimique

Différents constituants composent une fibre naturelle de chanvre. En plus de l'eau et de certaines cires ou graisses, les constituants principaux sont la cellulose, l'hemicellulose, la pectine et la lignine en proportions différentes. Une comparaison des différents constituants pour quelques fibres courantes est donnée sur la figure 1.6.

**La cellulose** est constituée d'un polysaccharide qui est un homo-polymère linéaire  $(C_6H_{10}O_5)_n$ . Ce dernier est constitué d'une succession d'unités D-anhydroglucose reliées entre elles par des liaisons  $\beta$ -1,4-glycosidiques [31] (figure 1.7). La cellulose possède une microstructure semi-cristalline avec une succession des phases cristallines et amorphes. Le taux de cristallinité de la cellulose dans les fibres peut atteindre 80%. On peut distinguer deux types de cellulose : (i) naturelle et (ii) régénérée (après la dissolution dans différents solvants) [28].

La présence des groupes hydroxyles (-OH) dans la cellulose joue un rôle essentiel dans la formation des liaisons d'hydrogènes entre les chaînes de celluloses améliorant nettement la rigidité et la résistance des fibres. Dans les zones cristallines, la forte densité de liaisons hydrogènes empêche la pénétration des solvants. En revanche, les zones amorphes contenant moins de liaisons hydrogènes réagissent plus fortement à l'eau. En général, la cellulose résiste bien aux solutions basiques, aux agents oxydants mais moins bien aux solutions acides [28].

| Fibres naturelles | % Cellulose | % Hémicellulose | % Lignine | % Pectine | % Graisses | % Eau     | Angle de microfibrille (°) |
|-------------------|-------------|-----------------|-----------|-----------|------------|-----------|----------------------------|
| Chanvre           | 70 - 74     | 17,9-22,4       | 3,7-5,7   | 0,9       | 0,8        | 6,2-12    | 2-6,2                      |
| Lin               | 71          | 18,6-20,6       | 2,2       | 2,3       | 1,7        | 8-12      | 5-10                       |
| jute              | 61-71,5     | 13,6-20,4       | 12-13     | 0,2       | 0,5        | 12,5-13,7 | 8                          |
| Coton             | 85-90       | 5,7             | -         | 0-1       | 0,6        | 7,85-8,5  | -                          |
| Sisal             | 66-78       | 10-14           | 10-14     | 10        | 2          | 10-22     | 10-22                      |
| Ramie             | 68,6-76,2   | 13,1-16,7       | 0,6-0,7   | 1,9       | 7,5-17     | 0,3       | 7,5                        |
| Kénaif            | 45-57       | 21,5            | 8-13      | 3-5       | -          | -         | -                          |

FIGURE 1.6 – Composition chimique de quelques fibres naturelles [30]

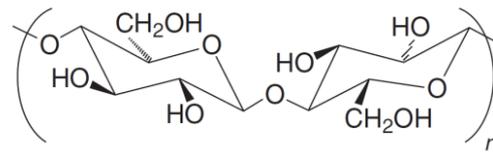


FIGURE 1.7 – Présentation de la structure chimique de la cellulose [28]

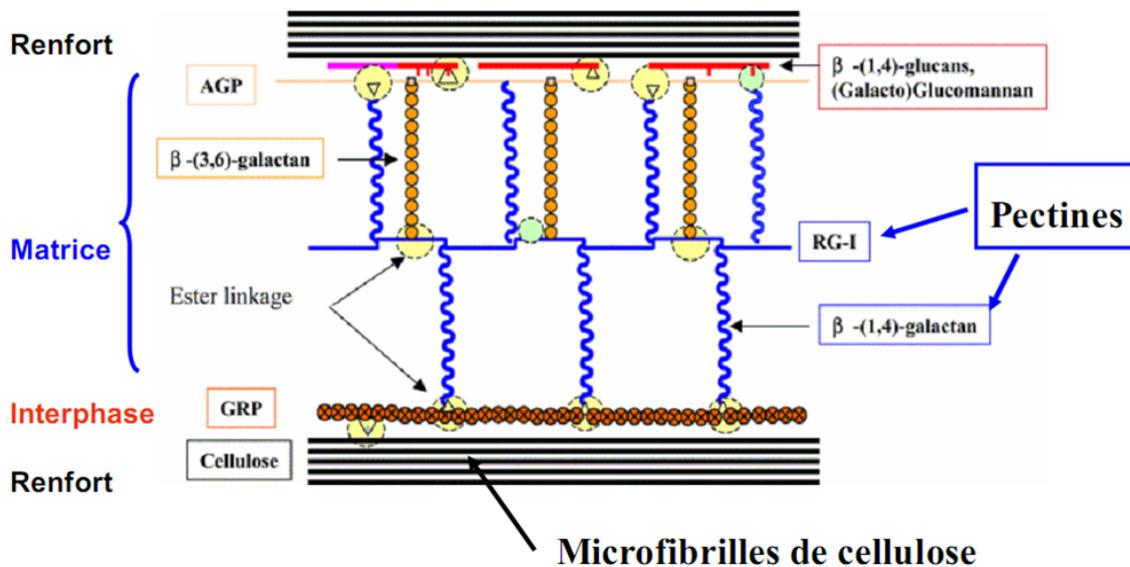


FIGURE 1.8 – Schéma représentatif des compositions chimiques des fibres végétales [32]

L'**hémicellulose** est constituée de chaînes de polysaccharides plus courtes et très ramifiées. Ces polysaccharides ont un degré de polymérisation beaucoup plus faible par rapport à la cellulose (de 20 à 300 fois moins). De plus, la présence des zones cristallines est assez rare. L'hémicellulose est très sensible non seulement à l'eau mais aussi aux agents extérieurs comme les bactéries, les acides, ...

|  | Cellulose | Lignine | Hémicellulose |
|--|-----------|---------|---------------|
| <b><math>E_l</math> (MPa)</b>            | 134000    | 2800    | 8000          |
|  | 138000    | 4000    | 2000          |
| <b><math>E_t</math> (MPa)</b>            | 27200     | 2000    | 3500          |
|  | 27200     | 1000    | 800           |
| <b><math>G</math> (MPa)</b>              | 4400      | 1500    | 1800          |
|  | 4400      | 600     | 1000          |
|  |           | 1500    | 2000          |
| <b><math>\nu</math></b>                  | 0,1       | 0,3     | 0,2           |
|  | 0,1       | 0,33    | 0,2           |
| <b><math>(l/\Phi)_{cellulose}</math></b> | 50000     | /       | /             |
|  | 50000     |         |               |

FIGURE 1.9 – Exemples de propriétés élastiques des constituants élémentaires des fibres végétales [33]. Ici,  $E_l$  : rigidité en traction longitudinale,  $E_t$  : rigidité en traction transversale,  $G$  : rigidité au cisaillement,  $\nu$  : coefficient de Poisson et  $(l/\Phi)_{cellulose}$  : rapport longueur/diamètre des celluloses.

**La lignine** est un des composants de la matrice reliant les mirco-fibrilles entre elles améliorant ainsi leur résistance en compression. Elle est constituée de composés aliphatiques et aromatiques. Dans un faisceau de fibres, ce composant a une structure complexe en trois dimensions répartie dans toutes les parois des fibres, notamment dans la lamelle mitoyenne. Elle contribue à la résistance de la fibre à l'eau. Pourtant, en raison de sa basse rigidité mécanique par rapport à la cellulose (4 GPa contre 135 GPa), l'élimination de ce composant est parfois bénéfique afin d'améliorer la qualité de la fibre. Cette opération peut être réalisée à l'aide des processus de traitement thermique (séchage) vue sa faible température de transition vitreuse (autour 90°C) et de fusion (environ 170°C). La lignine agit fortement aussi sous l'action des rayons UVs et des agents chimiques [28].

**Les pectines** se trouvent en général sur la couche extérieure de la fibre (paroi primaire). Elles sont formées à partir des hétéro-polysaccharides qui présentent des groupes d'acide carboxylique. Les pectines sont les plus hydrophiles par rapport aux autres composants de la fibre [28].

La figure 1.8 représente la structure chimique des fibres de chanvre et le lien entre des compositions [32]. Les propriétés mécaniques de ces différents constituants sont présentées sur la figure 1.9 [33].

### 1.2.1.4 Propriétés physico-mécaniques des fibres de chanvre

Les fibres de chanvre possèdent des propriétés mécaniques (densité, contrainte maximum en traction, module d'Young et la déformation maximum en traction) intéressantes par rapport aux

| Fibre                      | Densité (g/cm <sup>3</sup> ) | Contrainte maximum en traction (MPa) | Module d'Young (GPa) | Déformation maximum en traction (%) |
|----------------------------|------------------------------|--------------------------------------|----------------------|-------------------------------------|
| <b>Fibres végétales</b>    |                              |                                      |                      |                                     |
| Chanvre                    | 1,45 – 1,55                  | 300 – 900                            | 25 – 60              | 2 - 5                               |
| Bois                       | 0,3 – 1.1                    | 80 – 200                             | 8 – 15               | -                                   |
| Lin                        | 1,54                         | 600 – 2000                           | 12 – 85              | 1 – 4                               |
| Sisal                      | 1,45                         | 350 – 700                            | 9 – 21               | 3 – 7                               |
| Coton                      | 1,5 – 1,6                    | 287 – 597                            | 5,5 – 12,6           | 7 – 8                               |
| Jute                       | 1,44                         | 393 – 773                            | 26,5                 | 1,5 – 1,8                           |
| <b>Fibres synthétiques</b> |                              |                                      |                      |                                     |
| Verre                      | 2,54                         | 2000 – 2400                          | 72 – 73              | 3                                   |
| Carbone                    | 1,7 – 1,9                    | 3500                                 | 230                  | 1,5                                 |

FIGURE 1.10 – Exemple de caractéristiques mécaniques pour des fibres végétales et synthétiques [34]

autres fibres végétales comme le bois, le lin, le sisal, le coton ou le jute. Elles sont représentées sur la figure 1.10. Les propriétés mécaniques de ces renforts sont assez variables. En effet, ces fibres présentent souvent des défauts géométriques. Le diamètre de la fibre n'est pas constant, il change suivant la longueur.

Les propriétés géométriques, structurales et mécaniques des fibres de chanvre sont résumées dans le tableau 1.1. Il faut remarquer que ces propriétés sont largement dispersées et elles dépendent de plusieurs facteurs. Ceci est confirmé par des différents résultats des différents auteurs (tableau 1.2). Ilcyszyn F. et al. [1] a listé ces facteurs dans l'ordre suivant :

1. Paramètres liés à l'état naturel de la fibre :
  - Lieu et condition de culture
  - Taux d'humidité de la fibre
  - Défauts présents dans les fibres (coudes, zones amorphes)
  - Pourcentage de zones cristallines et amorphes
  - Composition chimique des fibres
  - Angle des micro-fibrilles
  - Diamètre des échantillons et variation du diamètre le long de fibre
  - Densité de la matière (présence de vide dans les fibres)
  - Position de la fibre dans la tige
  
2. Paramètres liés aux processus d'obtention de la fibre :
  - Processus d'extraction des fibres

Tableau 1.1 – Caractéristiques des fibres de chanvre

| Propriétés                               |  |
|--|--|
| Longueur ( <i>mm</i> )                   | 8,3 - 14 [30] ; 5 - 55 [33, 2]                   |
| Diamètre ( $\mu\text{m}$ )               | 17 - 23 [30] ; 10 - 51 [33, 2]                   |
| Rapport entre la longueur et le diamètre | 549 - 960 [30, 33, 2]                            |
| Densité ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )       | 1,4 - 1,55 [35, 30, 34]                          |
| Angle micro-fibrillaire (degré)          | 2 - 6,2 [30, 33, 2]                              |
| Taux d'humidité (%)                      | 6,2 - 12 [30] ; 10,8 [35]                        |
| Teneur en cellulose (%)                  | 67 - 74 [30] ; 64 - 68,1 [33] ; 74,4 [35]        |
| Teneur en hemicellulose (%)              | 17,9 - 22,4 [30, 35] ; 10 - 18,42 [33, 34]       |
| Teneur en pectine (%)                    | 3,7 - 5,7 [30] ; 6 - 6,17 [33]                   |
| Teneur en lignine (%)                    | 0,9 [30, 35] ; 4 - 10,6 [33]                     |
| Résistance en traction (MPa)             | 310 - 750 [30] ; 87 - 870 [36] ; 900 - 1080 [35] |
| Résistance en traction spécifique (MPa)  | 210 - 510 [30]                                   |
| Module d'Young (GPa)                     | 10 - 25 [35] ; 30 - 60 [30]                      |
| Module d'Young spécifique (GPa)          | 20 - 41 [30]                                     |
| Déformation à rupture (%)                | 1,6 [35] ; 2 - 4 [30]                            |

Tableau 1.2 – Exemple de résistance en traction et de module d'Young de fibres de chanvre pour différents auteurs [1]

| $\sigma_{max}$ (MPa) | E (GPa)         | Références                   |
|----------------------|-----------------|------------------------------|
| 514                  | 24,8            | Beckermann G.W et al. [37]   |
| 697                  | 28,3            | Dai D. et al. [38]           |
| 788                  | 45              | Duval A. et al. [39]         |
| 310 - 750            | 30 - 60         | Mohanty A.K. et al. [30]     |
| 450                  | 45              | Munawar S. et al. [40]       |
| 550                  | 26,0            | Moyeenuddin A.S. et al. [41] |
| 285                  | 14,4            | Placet V. et al. [42]        |
| 943                  | 57              | Romão, C. et al. [43]        |
| $365 \pm 122$        | $16,88 \pm 5,4$ | Ilczyszyn F. et al. [44]     |

— Conditionnement (température, taux d'humidité)

### 3. Paramètres liés à l'essai de traction :

- Température d'essai
- Longueur des fibres testées
- Vitesse de déformation - déplacement
- Type de machine d'essai (rigidité de la machine)

A côté des facteurs cités ci-dessus, pour une nuance de fibre donnée et en supposant que le processus d'obtention de la fibre ainsi que les conditions d'essai sont fixés, l'influence de la géométrie de la fibre est intéressante à regarder. La plupart des auteurs ont supposé que la fibre possède une section circulaire et la mesure de cette section s'effectue uniquement à quelques endroits de la fibre. Pour mieux prendre en compte la "vraie" géométrie de la fibre, Ilczyszyn et al. [36, 44] ont développé une nouvelle technique où la section de la fibre est mesurée selon 5

angles d'observation différents. Ils ont finalement montré que la géométrie influence largement les propriétés mécaniques de la fibre et la différence peut atteindre jusqu'à 100% (deux fois).

## 1.2.2 Les polymères thermoplastiques renforcés par les fibres végétales

### 1.2.2.1 Introduction des thermoplastiques

Les thermoplastiques, les thermodurcissables et les élastomères forment les trois familles de polymères de synthèse. Grâce à leur faible coût et à leur secteur d'application large, ils sont les matériaux les plus utilisés dans le monde. Parmi ces trois polymères de synthèse, les thermoplastiques sont les plus produits au monde [45].

En effet, l'emploi de polymères recyclables comme matrice dans les composites renforcés par des fibres végétales est de plus en plus demandé pour des raisons environnementales et économiques. L'utilisation des polymères thermoplastiques dans ce cas répond à ce besoin. Ces

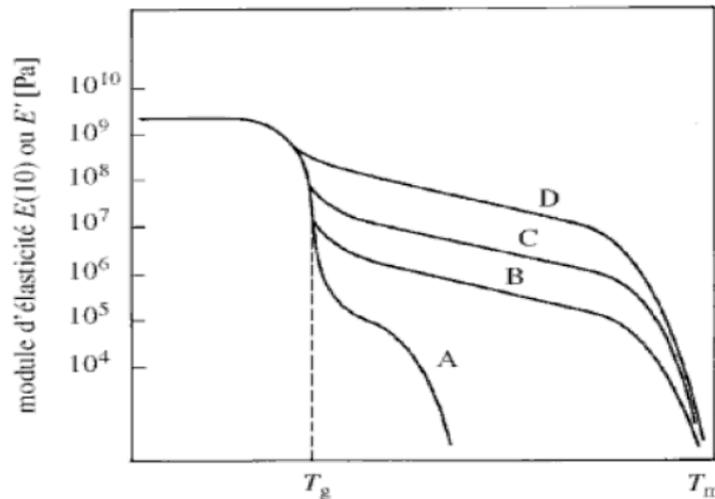


FIGURE 1.11 – Courbe des modules en fonction de la température d'un polymère linéaire thermoplastique amorphe (courbe A) et semi cristallin, à des taux de cristallinité croissants (courbes B, C et D).  $T_g$  : Température de transition vitreuse ;  $T_m$  : Température de fusion [28]

polymères sont formés à partir des chaînes de monomère enchevêtrées entre elles, ce sont des chaînes linéaires ou ramifiées donc recyclables. Le choix d'un thermoplastique dépend fortement de sa température de transition vitreuse et de son prix [28].

Dans un thermoplastique, il est possible d'avoir deux phases différentes. La phase amorphe avec une distribution aléatoire de molécules dans le volume, et la phase cristalline avec une répartition de molécules bien organisées. Pour classer les thermoplastiques, on se base sur la composition de ces deux phases. Donc, un thermoplastique ne contenant qu'une phase amorphe est dit amorphe. Et un thermoplastique contenant un mélange des deux phases amorphe et cristalline est dit semi-cristallin. La micro-structure d'un thermoplastique semi-cristallin résulte d'une succession de ces 2 phases qui prend souvent la forme d'une spherulite.

Les thermoplastiques sont caractérisés par leur température de transition vitreuse ( $T_g$ ). Parmi les deux phases citées ci-dessus, seule la phase amorphe est sensible à  $T_g$ . En effet, en

augmentant la température du thermoplastique, une chute importante du module d'élasticité est observée au voisinage de  $T_g$  pour les thermoplastiques amorphes. Cette diminution est beaucoup moins élevée pour les thermoplastiques semi-cristallins. Plus la partie cristalline est importante, plus cette chute est faible (figure 1.11).

| Polymère | $T_g$ (°C)      | $T_m$ (°C) | $T_p$ (°C) | $\rho$ (g/cm <sup>3</sup> ) | $W_{24h}$ (%) |
|----------|-----------------|------------|------------|-----------------------------|---------------|
| PP       | (-23) - (-10)   | 160 - 176  | 200 - 290  | 0.899 - 0.92                | 0.01 - 0.02   |
| PEHD     | (-133) - (-100) | 120 - 140  | 150 - 290  | 0.94 - 1.00                 | <0.01 - 0.2   |
| PELD     | -125            | 105 - 116  | 150 - 230  | 0.91 - 0.925                | <0.01         |
| PA-6     | 40-48           | 215 - 216  | 215 - 270  | 1.09 - 1.14                 | 1.3 - 1.8     |
| PVC      | 75-105          | 160 - 220  | -          | 1.39                        | -             |

FIGURE 1.12 – Propriétés thermiques et physiques de certains thermoplastiques [46, 47].  $T_g$  : Température de transition vitreuse;  $T_m$  : Température de fusion;  $T_p$  : Température de moulage;  $\rho$  : Densité;  $W_{24h}$  : Taux massique d'eau absorbée après 24h d'immersion

| Polymère | $\sigma_{max}$ (MPa) | $E$ (GPa)     | $\sigma_f$ (MPa) | $E_f$ (GPa) | $\varepsilon$ (%) |
|----------|----------------------|---------------|------------------|-------------|-------------------|
| PP       | 26 - 41.4            | 0.995 - 1.776 | 55.2             | 0.83 - 1.73 | 15 - 700          |
| PEHD     | 14.5 - 38            | 0.413 - 1.49  | -                | 0.41 - 1.07 | 12 - 1000         |
| PEBD     | 4 - 18.6             | 0.055 - 0.38  | -                | -           | 90 - 800          |
| PA-6     | 43 - 79              | 2.9           | 69 - 117.3       | 1.9 - 2.8   | 20 - 150          |
| PVC      | 31 - 60              | 3.78          | 72.4             | -           | -                 |

FIGURE 1.13 – Propriétés mécaniques de certains thermoplastiques [28]

Pour utiliser les thermoplastiques comme matrice dans les composites à base de fibres végétales, il faut assurer la compatibilité des propriétés hygro-thermiques entre la fibre et la matrice. En effet, les fibres végétales ont une faible stabilité thermique (<220°C, au delà de cette température une dégradation de la fibre est observée). Le choix d'un thermoplastique comme matrice dans ce cas se limite alors à quelques types de polymères tels les polyéthylènes haute et basse densité (PEHD et PELD), le polypropylène (PP), le polyamide (PA) et le polychlorure de vinyle (PVC). Les figures 1.12 et 1.13 résument les propriétés des thermoplastiques qui peuvent être utilisés dans les agro-composites.

La partie suivante présente brièvement trois des thermoplastiques utilisés pour dans les agro-composites.

### 1.2.2.2 le polyéthylène (PE)

Le polyéthylène (PE), de formule  $(-CH_2 - CH_2-)_n$ , est le polymère synthétique le plus répandu dans le monde avec un tiers de production mondiale des polymères. Il est extrêmement polyvalent, notamment grâce à sa structure chimique simple, de plus il est recyclable. Il est donc un matériau très économique et écologique.

Le polyéthylène est obtenu par la polymérisation en chaîne. Il est translucide, inerte, facile à manier et résistant au froid [48]. Parmi la famille des PE, les PELD sont souvent employés pour les récipients souples tandis que les PEHD sont utilisés pour des pièces plus rigides.

### 1.2.2.3 Le polychlorure de vinyle (PVC)

Le polychlorure de vinyle (PVC) est produit par la polymérisation des monomères de chlorure de vinyle  $CH_2 = CH - Cl$ , dont la formule est  $-(CH_2 = CH - Cl)_n-$ . Lors de la réaction de créations des monomères de chlorure de vinyle, dépendant de l'éthylène et de l'acide chlorhydrique, le PVC peut être souple ou rigide.

Le domaine d'application du PVC est très large (industrie de l'ameublement, bâtiment, génie civil,...). Il est deuxième plastique le plus utilisé au monde après le PE [48].

### 1.2.2.4 Le polypropylène (PP)

Le PP de formule  $(-CH_2 - CH(CH_3)-)_n$  est obtenu par polymérisation (Ziegler-Natta) [49] ou la catalyse métallocène des monomères propylène. Il est classé en trois types en fonction de la position du groupe méthyle ( $CH_3$ ), appelé tacticité du PP. (i) Le plus répandu est le PP iso-tactique (iPP) où le groupe méthyle est positionné spatialement du même côté de l'axe de la chaîne, (ii) le PP syndiotactique (sPP), le groupe méthyle est alternativement arrangé dans deux côtés de l'axe de la chaîne, et (iii) le PP atactique a une répartition aléatoire des groupes méthyles le long de la chaîne. [50].

Le PP isostatique et le PP syndiotactique sont semi-cristallines. Pour l'isostatique, le taux de cristallinité est de 40-60%. Le PP semi-cristalline a une température de transition vitreuse ( $T_g$ ) d'environ 10°C et de fusion ( $T_m$ ) de l'ordre de 165°C [50].

En comparant le PP et les thermoplastiques précédant, le PP possède la densité la plus faible, soit 0,899-0,92  $g/cm^3$  (figure 1.12). De plus, le PP a des bonnes propriétés hygroscopiques (faible taux massique d'eau absorbée après 24 heures d'immersion, voir la figure 1.12) et mécaniques (au plateau caoutchoutique à la température ambiante ( $T > T_g$  - la transition vitreuse). Les propriétés du PP répondent aux critères d'une matrice qui peut être utilisée dans les agro-composites.

## 1.2.3 Les agro-composites

### 1.2.3.1 Introduction sur 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 : (i) absence de toxicité du renfort grâce à sa source végétale, (ii) l'utilisation de cette source fait diminuer la consommation des ressources fossiles, (iii) en outre, les agro-composites peuvent être bio-dégradables 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. Aussi, la culture des plantes et la transformation des fibres nécessite 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 sur cette thématique

évoluent fortement.

### 1.2.3.2 Propriétés mécaniques des agro-composites

Les agro-composites disposent de propriétés mécaniques comparables aux composites traditionnels (renforcés par des fibres de verre ou carbone,...), notamment en terme des valeurs spécifiques (caractéristique/densité) comme présentée sur la figure 1.14. Les agro-composites

| Caractéristique   | Verre / époxy (1) | Lin / époxy (1) | Verre / époxy (2) | Lin / époxy (2) |
|---|-------------------|-----------------|-------------------|-----------------|
| Densité .....   | 1,87              | 1,35            | 1                 | 1               |
| Module d'Young longitudinal .....(GPa)                    | 35                | 24              | 19                | 17,7            |
| Résistance en traction longitudinale ..... (MPa)          | 900               | 325             | 481               | 240             |
| Résistance en traction transverse ..... (MPa)             | 25                | 15              | 13                | 11              |
| Résistance en compression longitudinale ..... (MPa)       | 650               | 92              | 348               | 68              |
| Résistance au cisaillement interlaminaire ILSS .... (MPa) | 80                | 15              | 43                | 11              |
| Choc Charpy ..... (kJ/m <sup>2</sup> )                    | 280               | 60              | 150               | 44              |

(1) caractéristiques mesurées  
(2) caractéristiques spécifiques, ramenées à la densité

FIGURE 1.14 – Exemple de propriétés mécaniques d'un agro-composite par rapport à un composite à fibres de verre. Eprouvettes à 50% en volume de fibre unidirectionnelles, réalisées par pultrusion [2]

| Caractéristique                        | Kenaf | Coir | Sisal | Chanvre | Jute |
|--|-------|------|-------|---------|------|
| Densité des fibres.....                |       | 1,25 | 1,3   | 1,48    | 1,46 |
| Module d'Young en traction .. (MPa)    | 6890  | 1250 | 5360  | 6850    | 3620 |
| Résistance en traction ..... (MPa)     | 27,5  | 10   | 33,3  | 52,1    | 26,4 |
| Module d'Young en flexion .... (MPa)   | 2210  | 640  | 1670  | 4950    | 2720 |
| Résistance en flexion ..... (MPa)      | 27,8  | 26,7 | 24,7  | 53,9    | 34,3 |
| Choc Charpy ..... (kJ/m <sup>2</sup> ) | 14,1  | 21,7 | 26,9  | 25,9    | 15,3 |

FIGURE 1.15 – Caractéristiques mécaniques des composites polypropylène/fibres végétales. Méthode de fabrication par compression à 180°C (5 bars), à 40% en masse de fibres aléatoirement dispersées [2]

présentent une faible résistance en compression en raison du micro-flambage des fibres [2]. En effet, les propriétés des agro-composites sont influencées par plusieurs facteurs tels que les propriétés des fibres, leur orientation et la qualité de l'interface fibre/matrice.

La figure 1.15 présente quelques propriétés mécaniques des composites à matrice polypropylène, renforcée par des fibres végétales. Il est à remarquer que parmi les fibres végétales de renfort utilisées, la chanvre donne un composite proposant de bonnes propriétés mécaniques.

### 1.2.3.3 Procédé de fabrication des matériaux composites

Les agro-composites sont souvent élaborés à partir de fibres courtes, discontinues et orientées aléatoirement. Ils peuvent être fabriqués par plusieurs techniques comme l'injection ou la thermo-compression. Les pièces en agro-composite sont souvent réalisées à partir des semi-produits. Le semi-produit est un mélange de fibres et de polymère, sous différentes formes : support fibreux, mélange de fibres (matrice) avec des mèches de renfort, granulés mis en œuvre par compoundage ("Bulk moulding compound"), granulés produits par extrusion [28].

L'injection consiste à mélanger et à faire avancer la matière fondue dans une extrudeuse jusqu'à la sortie (buse). La matière fondue est injectée dans un moule. Par cette technique, les paramètres du système précisent la vitesse et la température sont très importantes. Ce procédé de fabrication permet d'obtenir des pièces de très bonne qualité avec des cadences de production intéressantes.

## 1.3 L'interface fibre/matrice

### 1.3.1 Introduction

L'interface est une zone assez critique qui joue un rôle très important sur le comportement mécanique du composite. Elle assure la transmission des efforts entre la matrice et le renfort lors d'une sollicitation. La résistance au cisaillement de l'interface influence largement les propriétés finales du composite. En effet, un des modes d'endommagement dans les composites est la rupture à l'interface (figure 1.16). La résistance de l'interface dépend non seulement des propriétés des composants mais aussi de sa formation. Pour ces raisons, l'étude de l'interface est indispen-

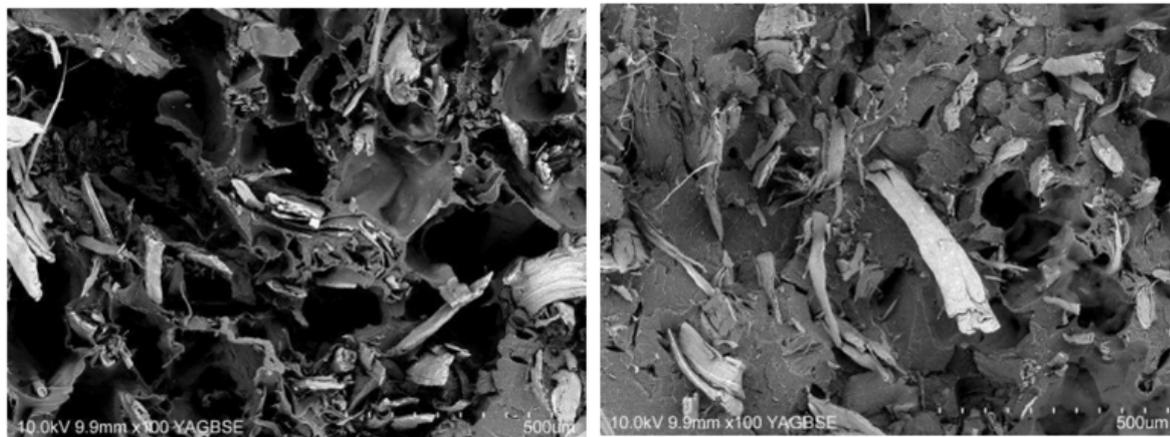


FIGURE 1.16 – Facies de rupture des composites 20% fibres non traitées/polypropylène [3]

sable. Pourtant, les méthodes de caractérisation de l'interface présentent des limites, soit dans la méthodologie (préparation des éprouvettes), soit dans la procédure expérimentale.

D'autre part, les interactions moléculaires entre deux solides (la fibre et la matrice de polymère) au niveau de l'interface sont importantes à prendre en compte [6] lors d'une étude sur l'interface. Premièrement ce sont les forces de liaison de type dipolaire (Van de Waals). Ensuite, il y a les liaisons type accepteur-donneur d'électron (acide-base) de quelques nanomètres de portée. Ces liaisons sont difficiles à quantifier mais jouent un rôle fondamentale dans l'adhésion fibre/matrice. Troisièmement, on considère des liaisons chimiques (liaisons covalentes) de très

courtes portées et très résistantes. Finalement, il y a les interactions structurales qui jouent un rôle un peu moins important dans l'adhésion.

En se basant sur les interactions fondamentales de l'interface, quelques théories sur l'adhésion ont été proposées. Ces théories permettent aussi d'expliquer les phénomènes qui se produisent à l'interface.

### 1.3.2 Théories de l'adhésion

#### 1.3.2.1 L'adhésion mécanique

Le modèle d'ancrage mécanique (figure 1.17) suppose que l'adhésion se forme grâce à l'ancrage de la matrice dans les cavités, les pores et les aspérités de la surface d'une fibre. Ces

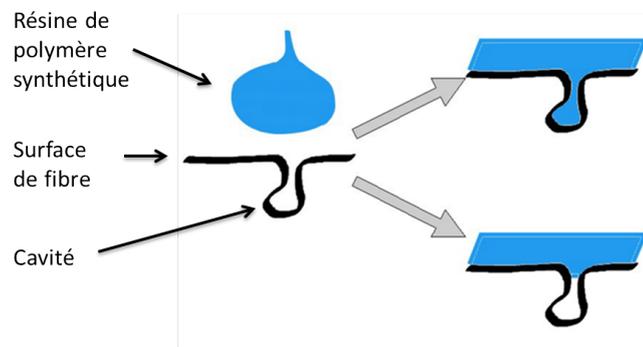


FIGURE 1.17 – Schéma représentatif de la formation d'un ancrage mécanique à l'interface

aspérités sont considérées comme les facteurs essentiels contrôlant la résistance de l'assemblage [6]. En effet, la surface des fibres naturelles n'est pas parfaite. Il existe toujours des défauts à ce niveau, notamment dans le cas des fibres végétales cellulosiques. Lors de l'élaboration du composite, la matrice est à l'état liquide visqueux et peut s'infiltrer dans les cavités de la surface de la fibre. Pour cette raison, la porosité de la surface des fibres augmente le taux d'encrages mécaniques. Selon cette théorie, la force d'ancrage provenant de la rugosité joue le rôle le plus important formant l'adhésion entre la fibre et la matrice [11, 12, 13].

#### 1.3.2.2 L'adhésion électrique

La théorie électrique considère que l'adhésion est principalement créée par les forces électrostatiques

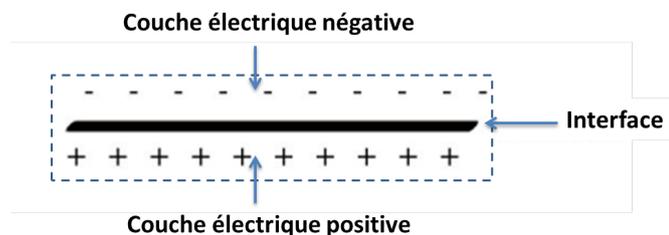


FIGURE 1.18 – Deux couches électriques opposées à l'interface dans la théorie électrique

entre deux couches chargées à l'interface (figure 1.18). Ces couches sont formées en supposant qu'il y a un mécanisme d'échange d'électrons entre les deux surfaces.

### 1.3.2.3 La théorie des couches de faible cohésion et le concept d'interphase

La présence d'une couche de faible adhésion a été constatée par Bikerman [51] en analysant des zones de rupture des joints collés polymère/métal. Selon l'auteur, les forces interfaciales sont

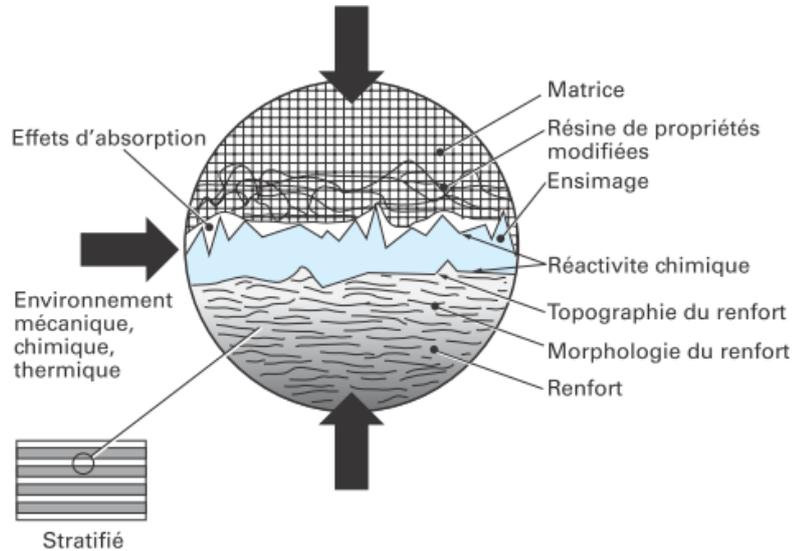


FIGURE 1.19 – Interphase renfort/matrice dans un composite [14]

plus fortes que la force de cohésion. La rupture se produira et se propagera toujours dans la couche ayant la force de cohésion la plus faible. Cette dernière est appelée la couche de faible cohésion, de composition variée en raison de nombreuses causes : (i) de l'air piégé à l'interface, (ii) des substances contenues dans l'adhésif/le substrat, (iii) des produits de réaction entre un ou plusieurs constituant(s) présent(s) à l'interface, etc [52].

Une morphologie cristalline se concentre au voisinage de l'interface autour de la fibre. L'apparition d'une structure cristalline particulière peut conduire à la réduction des propriétés mécaniques et thermiques de l'interphase [6]. La figure 1.19 représente schématiquement la complexité de l'interphase [14].

### 1.3.2.4 Théorie thermodynamique de l'adhésion et modèle des facteurs multiplicatifs

Le modèle thermodynamique de l'adhésion est très connu [8, 53, 54]. Selon ce modèle, des liquides ainsi que des solides disposent d'une énergie de surface libre  $\gamma$  créée par des interactions interatomiques et/ou intermoléculaires, soit de Van Der Waals, soit acido-basique.

La formation de l'interface est liée à l'énergie de surface libre  $\gamma$  de chaque composant. La figure 1.20 explique la formation de cette énergie. Selon Dupré [55], pour le cas d'un solide et d'un liquide en contact (figure 1.21), l'énergie réversible d'adhésion ( $W_{SL}$ ) est :

$$W_{SL} = -\Delta G_{SL} = \gamma_S + \gamma_L - \gamma_{SL} \quad (1.1)$$

où :  $\Delta G_{SL}$  est l'énergie de fracture interfaciale

$\gamma_S$  est énergie de surface libre du solide,

$\gamma_L$  est énergie de surface libre de la liquide,

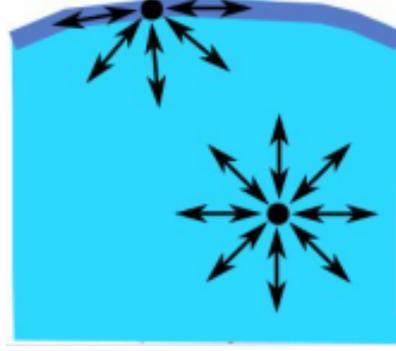


FIGURE 1.20 – Interaction interatomique/intermoléculaire, formation de l'énergie de surface libre

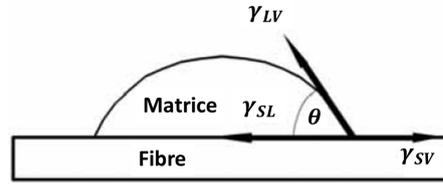


FIGURE 1.21 – Diagramme schématique de l'angle de contact et des composants de surface (tension) [56]

$\gamma_{SL}$  est énergie interfaciale solide - liquide

Des études proposées par Dirand et al. [57] ont déduit l'équation du système solide-liquide en contact :

$$\cos \theta = 2\sqrt{\gamma_S^D} \frac{\sqrt{\gamma_L^D}}{\gamma_{LV}} + 2\sqrt{\gamma_S^{nD}} \frac{\sqrt{\gamma_L^{nD}}}{\gamma_{LV}} - 1 \quad (1.2)$$

où :

-  $\theta$  est l'angle de contact entre une goutte de liquide et un solide. L'angle  $\theta$  peut être obtenu par l'équation d'Young :

$$\gamma_{LV} \cos \theta = \gamma_{SV} - \gamma_{SL} \quad (1.3)$$

-  $\gamma_{LV}$ ,  $\gamma_{SV}$  sont respectivement l'énergie de surface libre du liquide et du solide en présence de vapeur et  $\gamma_{SL}$  est l'énergie d'interaction entre le liquide et le solide.

-  $\gamma_S^D$ ,  $\gamma_S^{nD}$ ,  $\gamma_L^D$ ,  $\gamma_L^{nD}$  sont respectivement l'énergie de surface libre dispersive et non-dispersive du solide et du liquide.

La relation suivante permet de déterminer  $\gamma_S^D$ ,  $\gamma_S^{nD}$  du solide afin d'estimer le travail réversible d'adhésion établi à l'interface lors du contact de deux solides (cas des composites) [57] :

$$W_{12} = W_{12}^D + W_{12}^{nD} = 2\sqrt{\gamma_1^D \gamma_2^D} + 2\sqrt{\gamma_1^{nD} \gamma_2^{nD}} \quad (1.4)$$

Dans la formule 1.4, les indices 1 et 2 indiquent l'ordre des deux solides en contact.

L'énergie de rupture à l'interface fibre/matrice  $G$  est reliée directement à l'énergie réversible d'adhésion  $W^*$  par le modèle des facteurs multiplicatifs [58] :

$$G = W^* \phi_1 + \Phi_{v,T}, \dots \quad (1.5)$$

où :  $\phi$  et  $\Phi$  sont des facteurs d'amplification.

### 1.3.2.5 Théorie de la diffusion et de l'inter-diffusion

Cette théorie s'appuie sur la théorie de la dynamique moléculaire où on considère que l'adhésion est formée par la diffusion mutuelle (inter-diffusion) des macromolécules (figure 1.22). Ceci

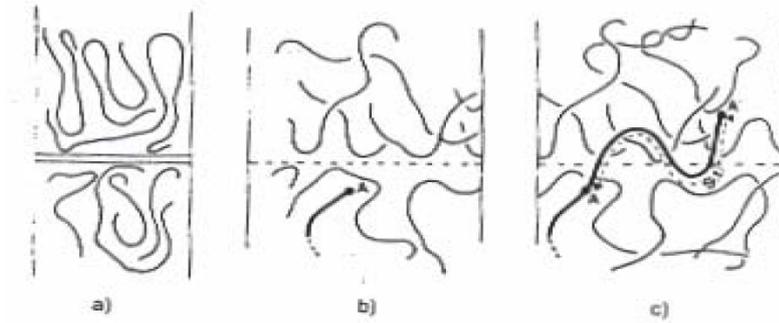


FIGURE 1.22 – Diffusion des couches à l'interface

forme une interphase à travers l'interface. La diffusion se produit lorsque la mobilité des chaînes cellulosiques de la fibre est suffisante pour s'entremêler aux chaînes du polymère ou lorsque des segments des chaînes sont solubles dans la matrice. On obtient cette mobilité en utilisant des agents de couplage ou d'ensimage par exemple [6].

### 1.3.2.6 Théorie des liaisons chimiques

L'adhésion est cette fois assurée par des liaisons ioniques et/ou covalentes (liaisons primaires). Ces liaisons sont obtenues généralement grâce à l'utilisation de promoteurs d'adhésion

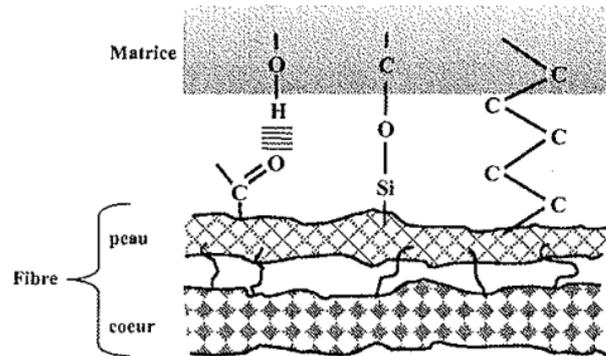


FIGURE 1.23 – Schéma de principe des interfaces fibre végétale-matrice [6]

ou d'agents de couplage [52]. Ces derniers permettent aussi d'augmenter la durabilité de l'interface, face à l'humidité par exemple. La figure 1.23 présente les liaisons chimiques formées entre une fibre végétale et une matrice avec la présence d'agent de couplage générant ainsi une structure coeur-peau au niveau de la fibre [6].

### 1.3.2.7 Conclusion

Les théories présentées précédemment permettent d'expliquer certains comportements de l'interface. Ces théories montrent aussi la complexité des phénomènes mis en jeu lorsque l'on étudie le comportement de l'interface. Ces théories sont complémentaires et proposent ainsi des visions et des approches différentes.

La partie suivante de ce mémoire va s'intéresser aux méthodes de caractérisation de l'interface. Plus précisément ces méthodes proposent d'estimer la contrainte mécanique  $\tau$  qui conditionne le comportement mécanique de l'interface.

## 1.4 Méthodes de caractérisation mécanique de l'interface fibre/matrice

### 1.4.1 Introduction

L'interface ou interphase a des propriétés différentes de celles des constituants (la fibre et la matrice), notamment en ce qui concerne les propriétés mécaniques. Or, elle joue un rôle très important dans le transfert des efforts entre la matrice et la fibre. La qualité de l'interface conditionne donc la performance finale des composites [59]. Pour cette raison, la caractérisation mécanique de cette zone stratégique est primordiale. La caractérisation de l'interface consiste à la détermination ses propriétés mécaniques en fonction des matériaux utilisés fibre/matrice et éventuellement, en fonction des modifications (traitement) qu'elles subissent (formulation chimique de matrice ou traitement de surface de fibres, vieillissement, ...).

Pour caractériser les propriétés mécaniques de l'interface, il est possible d'y appliquer des sollicitations indirectes ou directes. La première famille de test est effectuée sur des éprouvettes en composites unidirectionnels, alors que la deuxième est réalisée en utilisant des éprouvettes à mono-filament (où une fibre est enchâssée partiellement ou totalement dans un bloc de matrice). Sur les éprouvettes en composites il existe différents types d'essai, citons à titre d'exemple : l'essai de traction selon un angle donné par rapport à la direction des fibres, l'essai de cisaillement interlaminaire sur une poutre courte, l'essai de flexion trois ou quatre points, ... Parmi les essais sur les éprouvettes à mono-filament on peut citer : l'essai de déchaussement (pull-out ou micro-goutte), l'essai de fragmentation, l'essai d'indentation, ... De plus, il existe une évaluation de la résistance au cisaillement de l'interface (IFSS) en relation avec la théorie thermodynamique de l'adhésion qui sera présentée dans la partie suivante.

### 1.4.2 Calculs théoriques

La résistance au cisaillement de l'interface peut être estimée théoriquement [60, 61]. Selon la théorie thermodynamique, la résistance au cisaillement de l'interface est reliée à l'énergie réversible d'adhésion  $W$  :

$$\tau = \sqrt{\frac{E_m}{E_f}} \frac{W}{\lambda} (MPa) \quad (1.6)$$

où :  $E_m$  et  $E_f$  sont respectivement les modules d'élasticité de la matrice et de la fibre, et  $\lambda$  est une longueur intermoléculaire ou interatomique d'équilibre à l'interface (constante égale à environ 0,5nm) ;  $W$  est calculée par la relation 1.4 (théorie thermodynamique de l'adhésion) pour le cas du contact entre deux solides (la fibre et la matrice).

Ce modèle n'est valable que pour le cas où deux matériaux en contact ont un comportement élastique pure et où seulement les interactions interatomiques (Van de Waals, acide-base, etc.) sont prises en compte.

### 1.4.3 Essais micromécaniques de caractérisation de l'interface fibre/matrice

Réaliser des essais directement sur des éprouvettes réelles peut donner une évaluation directe de l'adhésion fibre/matrice et de son influence sur le transfert des contraintes à interface. Plusieurs types d'essais permettent non seulement d'identifier les contraintes interfaciales mais aussi de mettre en évidence certains phénomènes (e.g. la fragmentation de la fibre, le pelage de paroi de la fibre, etc.). Dans cette partie du mémoire, les essais les plus couramment utilisés sont présentés.

#### 1.4.3.1 Essai de déchaussement "pull-out"

Il s'agit de déchausser une fibre partiellement ou totalement immergée dans une micro-éprouvette par une force de traction. La figure 1.24 représente le schéma d'un essai pull-out.

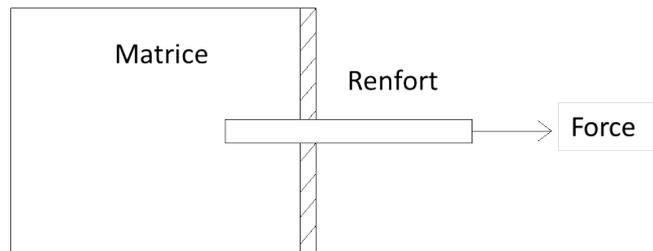


FIGURE 1.24 – Schéma représentatif d'un essai pull-out d'une fibre seule avec la fixation à droite

La figure 1.25 représente une courbe force - déplacement typique de l'essai pull-out. Cette courbe peut être considérée en trois parties ( $F < F_d$ ,  $F_d < F < F_{max}$  et  $F > F_{max}$ ) correspondant à trois phases d'évolution durant le déchaussement, où  $F$  est la force appliquée,  $F_d$  est la force correspondant à la première décollement et  $F_{max}$  est la force maximale. Durant la première phase ( $F < F_d$ ), la courbe présente un comportement linéaire. Pour le deuxième phase ( $F_d < F < F_{max}$ ), le décollement s'est produit suivant la direction de propagation de la fissure (le long la partie insérée de la fibre). La force appliquée continue à augmenter due à l'adhésion et à la présence de la force de friction entre la fibre et la matrice. Après avoir atteint la valeur maximale ( $F_{max}$ ), la force devient instable et la partie insérée de la fibre est totalement décollée. La troisième partie est la phase suivante du décollement de l'interface lors que la force maintenue est due aux interactions frictionnelles entre la fibre et la matrice ( $F_b$ ) [62].

La contrainte moyenne de cisaillement  $\tau_{app}$  à l'interface est déterminée alors par :

$$\tau_{app} = \frac{F_{max}}{2\pi r l_e} \quad (1.7)$$

où :

- $F_{max}$  est la force maximale mesurée,
- $r$  est le rayon moyen de la fibre,
- $l_e$  est la longueur insérée de la fibre dans la matrice (longueur de l'interface).

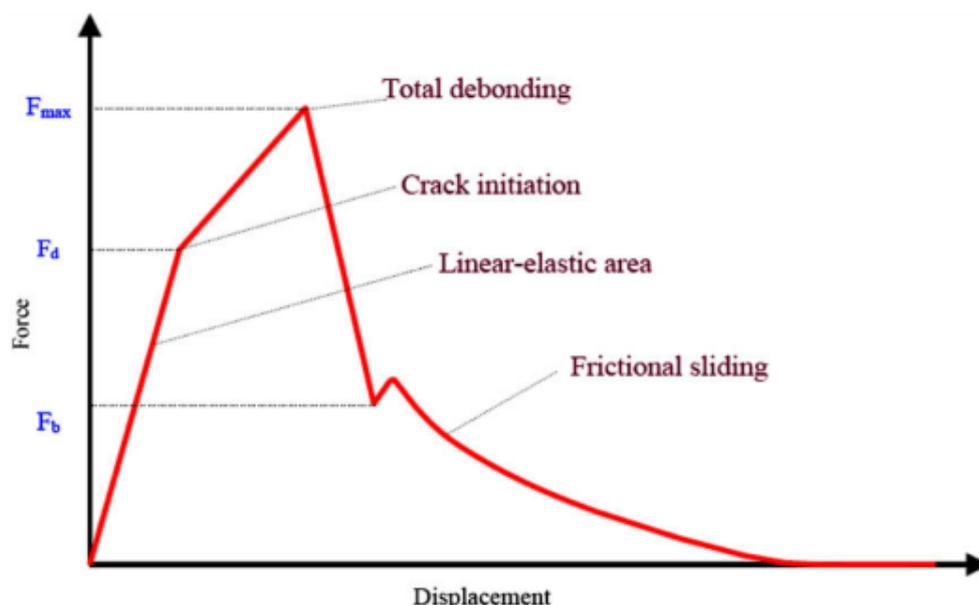


FIGURE 1.25 – Courbe force – déplacement typique de l’essai pull-out d’une fibre seule [62]

Afin d’obtenir le déchaussement il faudra que  $l_e$  soit inférieure à  $l_{ce}$ , la longueur insérée critique qui s’écrit :

$$l_{ce} = \frac{\sigma_{fr} r}{2\tau} \quad (1.8)$$

où :  $\sigma_{fr}$  est la résistance à la rupture en traction de la fibre,  $r$  est le rayon de la fibre et  $\tau$  est la résistance au cisaillement.

La longueur  $l_{ce}$  est proportionnelle à la résistance à la rupture en traction et au rayon de la fibre, elle est inversement proportionnelle à la résistance au cisaillement à l’interface fibre/matrice.

Les essais de déchaussement montrent une grande précision pour la mesure du déplacement de la fibre et de la force de traction. De plus, il est facile de suivre et d’acquérir les données résultantes du test. En revanche, la fabrication des échantillons ainsi que la mise en œuvre de l’essai sont compliquées puisqu’ils prennent un temps considérable et exigent une grande rigueur dans les étapes préparatoires.

#### 1.4.3.2 Essai de déchaussement d’une micro-goutte

L’essai de déchaussement d’une micro-goutte est un développement de l’essai pull-out précédant. Par cette méthode, une goutte de petites dimensions de résine de polymère est déposée sur la fibre seule et est fixée pendant que la fibre est déchaussée [63]. Le schéma représentatif de cet essai est présenté sur la figure 1.26 [64]. La forme d’une micro-goutte poly(acide L-lactique) PLLA/lin symétrique est présentée sur la figure 1.27 A et un exemple de la rupture de la micro-goutte est présentée sur la figure 1.27 B [65].

La figure 1.28 montre un résultat typique de cet essai [66]. La force augmente linéairement pour atteindre un maximum ( $F_{max}$ ) permettant d’identifier  $\tau_{app}$ . A la suite les petites oscillation

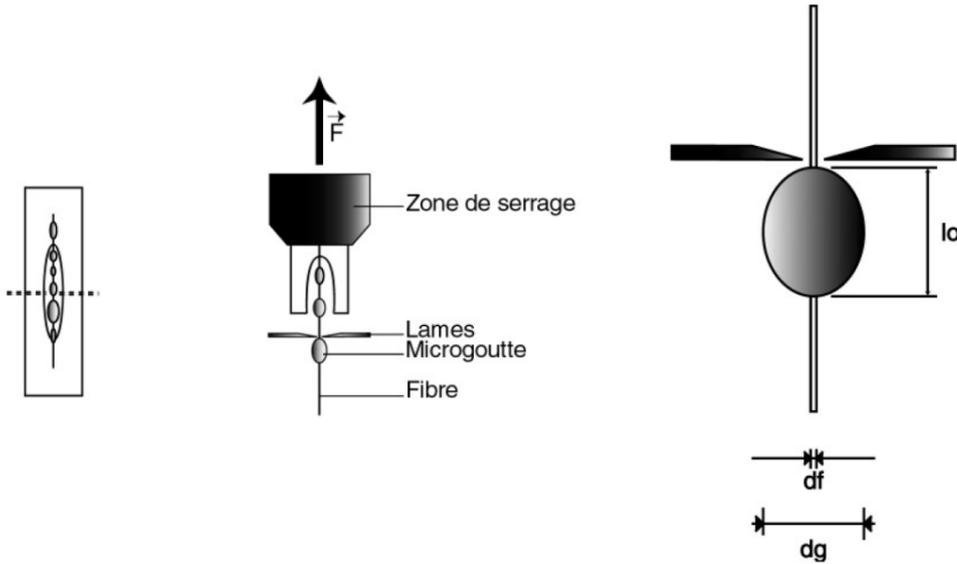


FIGURE 1.26 – Schéma représentatif d'un essai de déchaussement d'une micro-goutte [64]

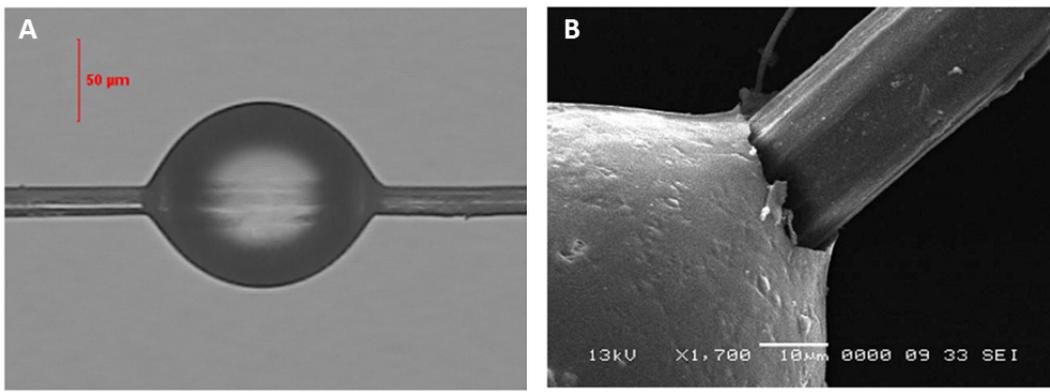


FIGURE 1.27 – A : Exemple de micro-goutte poly(acide L-lactique) PLLA/lin symétrique. B : Rupture d'une micro-goutte PLLA/lin [65]

de la force sont essentiellement dues au frottement. Ce frottement apparaît car la fibre n'est pas régulière sur toute sa longueur.

Il est possible d'identifier deux contraintes : la contrainte apparente et la contrainte ultime. Pour analyser la contrainte apparente, on utilise l'hypothèse d'une répartition uniforme des contraintes interfaciales. La contrainte apparente au cisaillement  $\tau_{app}$  est déterminée selon l'équation 1.9 :

$$\tau_{app} = \frac{F_{max}}{2\pi r l_e} \quad (1.9)$$

où :

-  $F_{max}$  est la force maximale enregistrée,

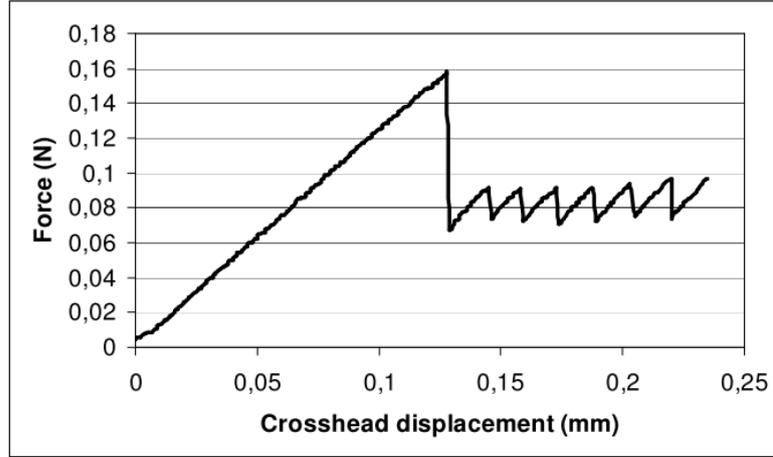


FIGURE 1.28 – Courbe force - déplacement typique de l'essai de déchaussement d'une micro-goutte [66]

- $r$  est le rayon de la fibre,
- $l_e$  est la longueur de la goutte (égale à la longueur de l'interface).

Pour analyser la contrainte ultime, on utilise un modèle qui prend en compte la non uniformité de la contrainte le long de l'interface provoquée par les conditions aux limites. En se basant sur le modèle « shear-lag » [65, 63], nous identifions la contrainte de cisaillement ultime  $\tau_{ult}$  selon la formule 1.10 [67, 68] :

$$\tau_{ult} = \frac{\tau_{app} l_e \beta}{\tanh(\beta l_e)} - \tau_t \tanh \frac{\beta l_e}{2} \quad (1.10)$$

où :

- $\tau_{app}$  est la contrainte de cisaillement apparente, déterminée selon l'équation 1.9,
- $\beta$  est le paramètre de la théorie de « shear-lag »,
- $\tau_t$  est la contrainte thermique résiduelle.

La contrainte  $\tau_t$  est calculée selon la formule suivante :

$$\tau_t = E_f \frac{r}{2} \beta (\alpha_f - \alpha_m) \Delta T \quad (1.11)$$

où :

- $E_f$  est le module en traction axiale de la fibre,
- $\alpha_f$  est le coefficient d'expansion thermique de la fibre,
- $\alpha_m$  est le coefficient d'expansion thermique de la matrice,
- $\Delta T$  est la différence entre la température de l'essai et celle à l'état libre de contrainte.

En résumé, le principe de l'essai de déchaussement d'une micro-goutte est simple et il permet d'obtenir de nombreuses données. Un autre avantage de cet essai est de permettre de contrôler la longueur de la goutte enchâssée et d'étudier le mouillage (angle de contact) [64]. Cependant, les petites dimensions des micro-gouttes rendent difficile la préparation des échantillons.

### 1.4.3.3 Essai de fragmentation

L'essai de fragmentation est couramment utilisé en caractérisation de l'interface. Il s'agit de

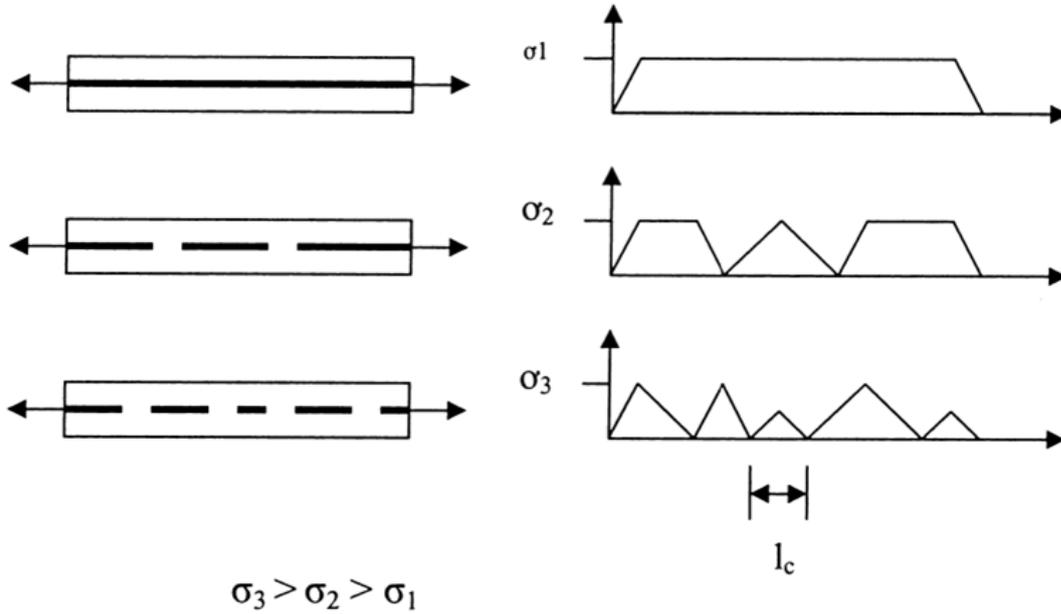


FIGURE 1.29 – Schéma d'un essai de fragmentation à une fibre seule. Plus la sollicitation  $\sigma$  augmente, plus la fibre se rompt jusqu'à une longueur critique des fragments  $l_c$  [69]

solliciter en traction une éprouvette de matrice polymère chargée d'une fibre totalement insérée dans la matrice. Sous l'effet de la sollicitation, la fibre se rompt et se divise en fragments plus courts (figure 1.29). Ce phénomène s'arrête lorsque la longueur des fragments atteint une valeur limite (la longueur critique)  $l_c$  [69].

La contrainte au cisaillement  $\tau$  à l'interface fibre/matrice est donnée par :

$$\tau = \frac{\sigma_{fr} d}{2l_c} \quad (1.12)$$

où :

- $d$  est le diamètre de la fibre,
- $\sigma_{fr}$  est la contrainte de traction à la rupture de la fibre,
- $l_c$  est déterminée par les trois techniques suivantes :

(i) par comptage en microscopie optique si la matrice est transparente,

(ii) par comptage après pyrolyse de la matrice si elle est opaque,

(iii) par observation grâce à la photoélasticimétrie (voir l'évolution du champ de contrainte et sa distribution autour les fragments comme montrée sur la figure 1.30) [70].

En supposant une distribution uniforme de la longueur des fragments, nous pouvons identifier la longueur critique  $l_c$  :

$$\frac{l_c}{d} = \frac{4}{3} \left( \frac{\bar{l}}{d} \right)_{sat} \quad (1.13)$$

où :

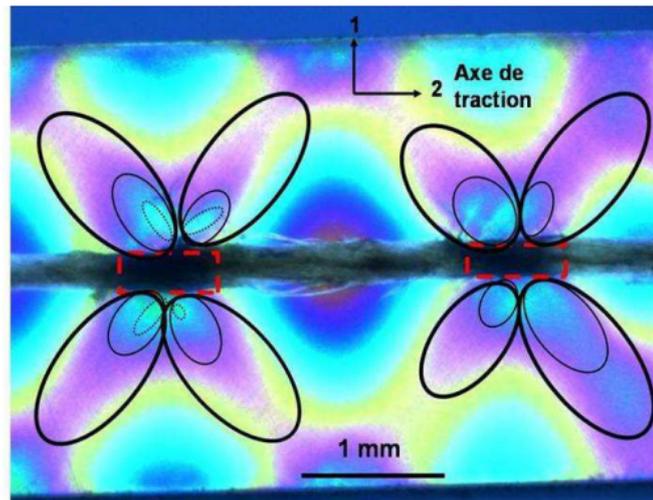


FIGURE 1.30 – Visualisation des isochrones proches d'une fragmentation dans une éprouvette monofilament chanvre/époxy [71]

- $d$  est le diamètre de la fibre,
- $\bar{l}$  est la longueur moyenne des fragments,
- $(\frac{\bar{l}}{d})_{sat}$  est le rapport saturé entre la longueur moyenne des fragments et le diamètre de la fibre.

Les avantages de cet essai [72] sont :

- (a) La fabrication des éprouvettes est plus facile.
- (b) La fibre est sollicitée axialement par le cisaillement à l'interface.
- (c) La différence de coefficient de Poisson est minimisée comme toute l'éprouvette est sollicitée en traction.
- (d) Les effets de la concentration des contraintes radiales initiales au point d'entrée de la fibre dans la microgoutte due aux lames de blockage (méthode de déchaussement d'une microgoutte, [73, 14]) sont absents.
- (e) Elle permet d'étudier de plus le phénomène de fragmentation de la fibre, le développement des fissures à l'interface et le développement du phénomène micromécanique qui relie à l'écoulement de la matrice.

Néanmoins, l'essai de fragmentation présente aussi des inconvénients :

- (a) l'analyse des résultats de l'essai est basée sur une approche statistique pour déterminer la longueur des fragments qui dépend fortement de l'histoire de la fragmentation de la fibre.
- (b) Alors que l'augmentation de la longueur de l'éprouvette va augmenter la précision des mesures, en pratique la longueur de l'éprouvette est limitée à quelques centimètres.
- (c) De plus, l'énergie de rupture du modèle de Zhou, Nairn et Wagner [74] n'est pas complètement définie. Il y a deux paramètres dans ce modèle (le facteur de friction  $\Psi$  et le ratio de  $r_m/r_f$ ) qui ne sont pas accessibles par des mesures expérimentales. Ici,  $r_m$  est le rayon effectif de la matrice et  $r_f$  est le rayon de la fibre.

#### 1.4.3.4 Essai de compression diablo

La méthode consiste à mettre en compression des éprouvettes parallélépipédiques ou haltères

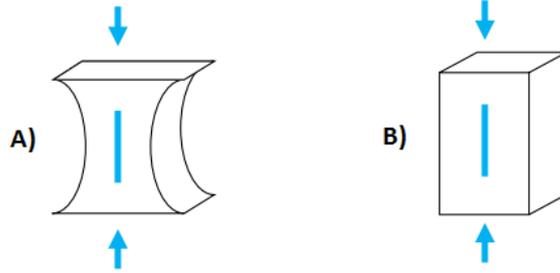


FIGURE 1.31 – Schéma représentatif de l'essai de compression diablo des éprouvettes (A) haltères ou (B) parallélépipédiques [75]

(figure 1.31). Ces éprouvettes contiennent une seule fibre totalement immergée au milieu d'un bloc de résine. Lors de la sollicitation, il y a des contraintes de cisaillement et de traction radiale à l'interface fibre/matrice en raison de la différence des coefficients de Poisson et en raison de la géométrie des éprouvettes. La contrainte de compression  $\sigma_c$  au début de la décohésion est mesurée à l'étranglement des éprouvettes haltères et aux extrémités de la fibre pour des éprouvettes parallélépipédiques. La méthode de détection de la décohésion est optique. Un capteur piézoélectrique est utilisé dans le cas d'une matrice opaque pour détecter la décohésion par émission acoustique. La résistance à l'interface en traction  $\sigma_i$  et en cisaillement  $\tau_i$  sont calculées selon les formules 1.14, 1.15 [76] :

$$\sigma_i = \frac{\sigma_c (\nu_m - \nu_f) E_f}{(1 + \nu_m) E_f + (1 - \nu_f - \nu_f^2) E_m} \quad (1.14)$$

$$\tau_i \approx 2,5\sigma_c \quad (1.15)$$

où :

- $E_f$  et  $E_m$  sont respectivement les modules d'Young de la fibre et de la matrice,
- $\nu_f$  et  $\nu_m$  sont respectivement les coefficients de Poisson de la fibre et de la matrice,
- $\sigma_c$  est la contrainte de compression appliquée à l'éprouvette au moment où la décohésion s'amorce.

Cette méthode est pratiquement abandonnée en raison des difficultés liées à la fabrication des éprouvettes et à l'application des critères d'endommagement [77].

#### 1.4.3.5 Essai de micro-indentation et push-out

L'essais de micro-indentation et sa variante, l'essai push-out permettent de prendre en compte la présence des autres fibres dans un composite réel. On peut donc identifier l'influence de la teneur en fibre au travers cet essai.

La méthode consiste à déchausser une fibre insérée dans une éprouvette sous une force de compression. La force est appliquée par un indenteur conique en diamant sur une extrémité de la fibre sur une surface plane perpendiculaire à la direction des fibres contenues dans l'éprouvette comme montré sur les figures 1.32, 1.33, 1.34. La force de compression et le déplacement de

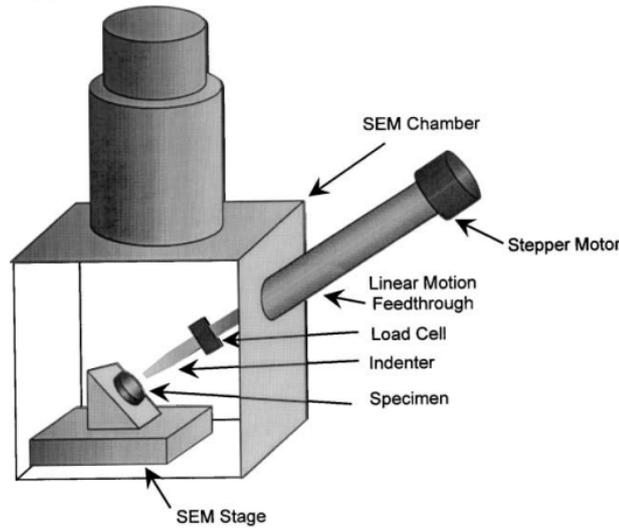


FIGURE 1.32 – Représentation schématique de l'installation microscopie électronique à balayage (MEB) d'un essai de micro-indentation [78]

l'indenteur sont enregistrés continûment. Après le décollement de la fibre, la force de compression n'est pas nulle, à cause du frottement. La figure 1.35 représente une courbe force - déplacement typique d'un essai de micro-indentation [78].

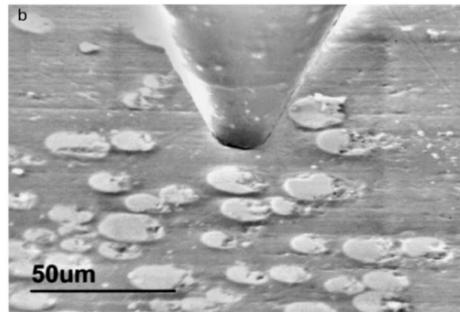


FIGURE 1.33 – Image MEB d'un essai de micro-indentation sur une éprouvette composite fibre de verre E ensimée/epoxy [78]

Par conséquent, la résistance au cisaillement interfacial  $\tau$  est déterminée par la relation 1.16 :

$$\tau = \frac{F}{\pi 2rH} \quad (1.16)$$

où : F est la force mesurée, r est le rayon de la fibre et H est l'épaisseur de l'éprouvette.

Cette technique permet de prendre en compte l'effet de la fraction volumique des fibres. La mesure de la résistance moyenne au cisaillement est simple. Pourtant la résistance mesurée n'est pas la vraie parce que le décollement de la fibre est progressif lorsque la fibre s'enfonce dans la matrice. De plus le calcul de l'IFSS est compliqué à cause des contraintes mécaniques exercées par les fibres voisines.

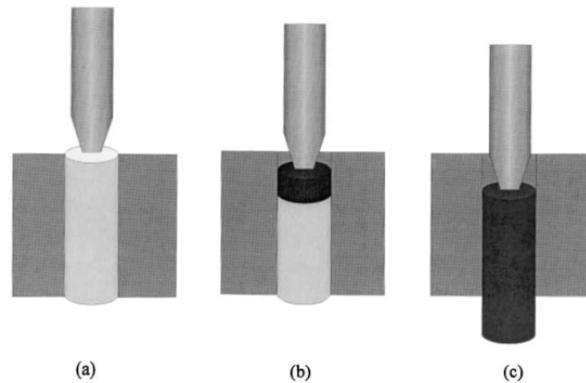


FIGURE 1.34 – Schéma de l'essai de micro-indentation avec trois phases : (a) pas de décollement (b) décollement progressif (c) décollement total [78]

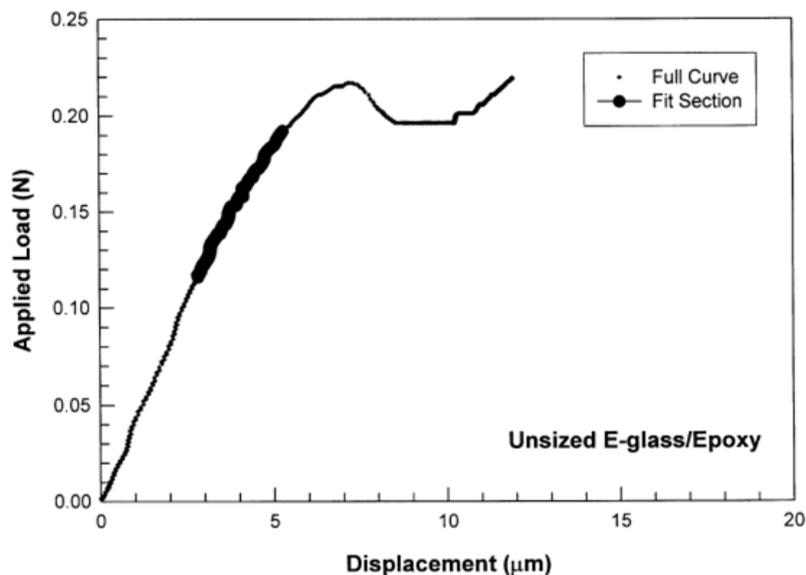


FIGURE 1.35 – Courbe force - déplacement typique d'un essai de micro-indentation [78]

Cette méthode est bien adaptée aux fibres métalliques. Par contre, la dureté de fibres naturelles ainsi que leur constitutions (assemblage de microfibrilles) rendent cette technique plus difficile d'utilisation.

Enfin, une des difficultés de cette méthode réside surtout dans l'application de la force sur la surface libre de la fibre.

#### 1.4.4 Comparaison et choix de la méthode

Pour la caractérisation de l'interface fibre/matrice dans le cas des composites à base de fibres végétales, les méthodes efficaces sont celles réalisées sur le modèle du mono-filament. Ceux sont l'essai de déchaussement d'une fibre d'une microgoutte de résine ou d'une micro-éprouvette et le test de fragmentation. Parmi ces méthodes, le test de déchaussement d'une microgoutte

demande une préparation complexe et précise en raison de la petite taille des microgouttes tandis que l'exploitation des résultats du test de fragmentation est plus complexe. Dans le cadre de notre travail de recherche, nous avons choisi de développer la méthode de déchaussement d'une fibre dans un bloc de matrice (l'essai pull-out). Cette méthode nous permet :

- d'adapter la taille des éprouvettes,
- de contrôler la longueur immergée de la fibre,
- de produire plusieurs éprouvettes en parallèle,
- d'assurer la facilité et la rapidité de la fabrication et de mise en œuvre de l'essai.

De plus, avant l'assemblage avec la matrice, la fibre subit une faible tension pour bien assurer qu'elle reste droite dans la matrice. Nous pouvons ainsi éliminer quelques défauts de ce test de déchaussement classique.

#### 1.4.5 Propriétés à l'interface fibre/matrice des agro-composites en fonction des méthodes de caractérisation

La mesure de l'IFSS dépend fortement de la méthode utilisée pour la caractérisation. Plusieurs

TABLE 1.3 – Exemples de l'IFSS dans des composites monofilamentaires à fibre de verre, de lin et de chanvre. L'IFSS est la résistance au cisaillement interfacial (Tableau modifié de Bonnafous C. et al. [33])

| Matrice       | Fibre de renfort                    | IFSS (MPa)     | Méthode                 | Référence |
|---------------|-------------------------------------|----------------|-------------------------|-----------|
| Epoxy         | Verre E                             | $43 \pm 15$    | Push-out                | [78]      |
| Epoxy         | Verre E                             | $30 \pm 7$     | Fragmentation           | [78]      |
| Epoxy         | Verre E, traitées de $\gamma_{APS}$ | $73 \pm 18$    | Push-out                | [78]      |
| Epoxy         | Verre E traitées de $\gamma_{APS}$  | $43 \pm 11$    | Fragmentation           | [78]      |
| Epoxy         | Verre non calibrées                 | $30 \pm 13$    | Fragmentation           | [79]      |
| Epoxy         | Verre calibrées                     | $43 \pm 17$    | Fragmentation           | [79]      |
| Vinylester    | Verre                               | 27             | Fragmentation           | [80]      |
| Vinylester    | Verre                               | $38 \pm 9$     | Mesure de mouillabilité | [57]      |
| Vinylester    | Verre                               | $30 \pm 7$     | Mesure de mouillabilité | [57]      |
| Polyester     | Lin                                 | $14,2 \pm 0,4$ | Micro-goutte            | [81]      |
| Polyester     | Lin                                 | $18 \pm 3$     | Fragmentation           | [82]      |
| Epoxy         | Lin Hermes                          | $22,5 \pm 1,5$ | Micro-goutte            | [83]      |
| Epoxy         | Lin Electra                         | $13,2 \pm 3,2$ | Micro-goutte            | [83]      |
| Polypropylène | Chanvre                             | $15,4 \pm 4$   | Fragmentation           | [84]      |
| Polypropylène | Chanvre                             | 3,26           | Pull-out                | [62]      |

raisons sont à l'origine de cette dépendance. On peut citer par exemple : la différence du protocole expérimental, la taille des éprouvettes, la nuance de fibres ou encore les différences pour estimer l'IFSS par chaque méthode. Le tableau 1.3 donne un aperçu de la contrainte interfaciale en fonction de la méthode. Ce tableau est pris de C. Bonnafous et al., [33] que nous avons un peu enrichi.

## 1.5 Vieillissement des agro-composites dans des conditions environnementales

### 1.5.1 Introduction : Définition et classification

Le vieillissement est une évolution du matériau en terme de structure et/ou de la composition sous l'effet de différentes actions : instabilité propre, interaction avec l'environnement, sollicitations mécaniques ou combinaison de ces actions. Cette évolution est lente et irréversible.

On peut distinguer le vieillissement physique et le vieillissement chimique. Le vieillissement physique ne modifie pas la structure chimique mais il change la configuration initiale du matériau. Deux phénomènes se produisent pour ce type de vieillissement :

(i) La plastification concerne la diminution de la température de transition vitreuse du composite [85],

(ii) Le gonflement souvent provoqué par l'absorption d'eau. Les molécules d'eau pénètrent dans les chaînes moléculaires du matériau et les éloignent provoquant une augmentation de volume [85, 86]. Dans le cas des composites à matrice semi-cristalline, la partie amorphe absorbe de l'eau et l'interface est sollicitée mécaniquement [21].

A l'inverse, le vieillissement chimique apporte des changements structuraux du matériau. Il y a trois types de vieillissement chimique en fonction de l'acteur associé :

(i) Le vieillissement thermo-chimique est du à la température. Il s'agit des ruptures des liaisons moléculaires directement par pyrolyse.

(ii) Le vieillissement photo-chimique peut être causé par les rayonnements ultraviolets (UVs) (et également la lumière visible) du spectre solaire. Les photons de longueurs d'ondes basses dans ces rayonnements disposent suffisamment d'énergie pour rompre les liaisons chimiques lorsqu'ils sont absorbés par le matériau.

(iii) Et le vieillissement photo-oxydation : sous l'action des photons absorbés au sein du matériau, dans ce cas, certains phénomènes d'oxydation peuvent se produire. Suite à la rupture des liaisons chimiques provoquée par le vieillissement thermo-chimique et photochimique, les composants chimiques sont combinés à l'oxygène pour créer des radicaux libres et actifs. Des peroxydes et des hydroperoxydes instables sont ainsi formés. Sous l'effet de la température ou des photons dans les rayonnements UVs, ces derniers peuvent être décomposés, conduisant à la destruction des chaînes macromoléculaires [21].

Tous les composants d'un matériau composite dont le renfort, la matrice et son interface peuvent être vieillis, soit physiquement, soit chimiquement, soit tous les deux. Pour étudier ce problème, il est nécessaire de simuler des conditions externes que le matériau subi par des processus de vieillissement soit naturels, soit accélérées. Ces processus doivent être corrélés aux conditions de travail réelles du matériau afin de prévoir son comportement à long terme.

Les conditions environnementales souvent utilisées pour ces études de vieillissement sont (i) l'humidité relative (HR), (ii) la température (T) et (iii) les rayonnements ultraviolets (UVs) ou la lumière du jour.

### 1.5.2 Comportement des fibres végétales sous des sollicitations environnementales

Les fibres végétales, dont la fibre de chanvre, sont en général dégradables dans l'environnement naturel, sous l'action de : la température (T), les rayonnements ultraviolets (UVs) et en particulier l'humidité relative (HR). Nous allons aborder en premier lieu l'influence de l'humidité relative.

En effet, l'existence de groupes hydroxydes ( $-OH$ ) dans les fibres cellulosiques provoquent l'absorption d'eau dans la fibre. Ce phénomène conduit à des changements importants au sein du matériau. Premièrement, le volume du matériau a augmenté après l'absorption d'eau. Cette augmentation peut causer des contraintes internes au sein de la fibre [87]. Ceci est en particulier important quand la fibre est noyée dans la matrice de polymère hydrophobe que nous allons aborder dans la partie 1.5.3 ci-après.

En séchant, le retrait de l'eau provoque la diminution des dimensions de la fibre (la fibre se dégonfle). Pour cette raison, le comportement cyclique gonflement/dégonflement causé par des cycles humide/secs peut provoquer des dommages en fatigue à long terme.

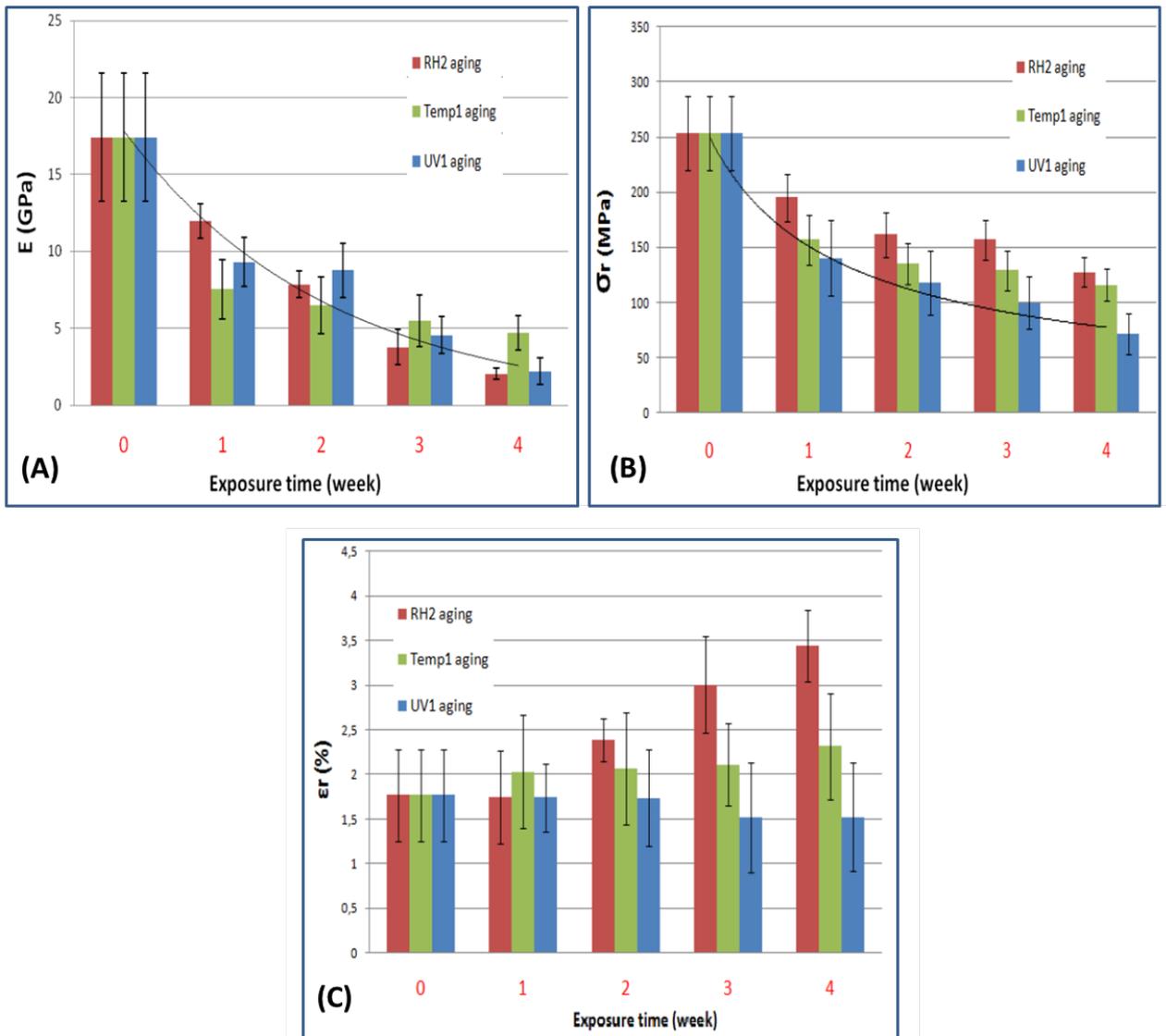


FIGURE 1.36 – Evolution (A) du module élastique  $E$ , (B) de la résistance en traction  $\sigma_r$  et (C) de la déformation maximale à la rupture  $\epsilon_r$  au cours du vieillissement à l'HR, à la T et aux UVs des fibres de chanvre [88]

D'autres phénomènes peuvent être observés suite à l'absorption d'eau. Nous pouvons constater essentiellement des variations de viscosité [89] dues à la suspension de molécules d'eau dans

le matériau.

Par conséquent, sous l'effet de l'humidité, la rigidité de la fibre ( $E$ ) et la résistance en traction ( $\sigma_r$ ) ont diminué alors que la déformation à la rupture ( $\varepsilon_r$ ) a augmenté. Ce fait est constaté pour des fibres de chanvre par Jin et al. [90]. V. Placet et al [91] ont montré que le retrait d'eau par le traitement thermique de la fibre amène une amélioration des propriétés mécaniques des fibres végétales. Les figures 1.36 A, B, C (les colonnes en rouge - RH2 aging) montrent les évolutions respectivement du module d'Young, de la contrainte à la rupture et de la déformation maximale à la rupture en fonction d'un vieillissement à l'humidité relative de fibres de chanvre. Des analyses par Microscopie Électronique à Balayage (MEB) ont montré l'évolution des altérations aux vieillissements de la fibre de chanvre à l'HR (figures 1.37 A). Nous pouvons observer une dispersion des microfibrilles en surface et le début d'une fissure longitudinale dus aux cycles de gonflement/dégonflements.

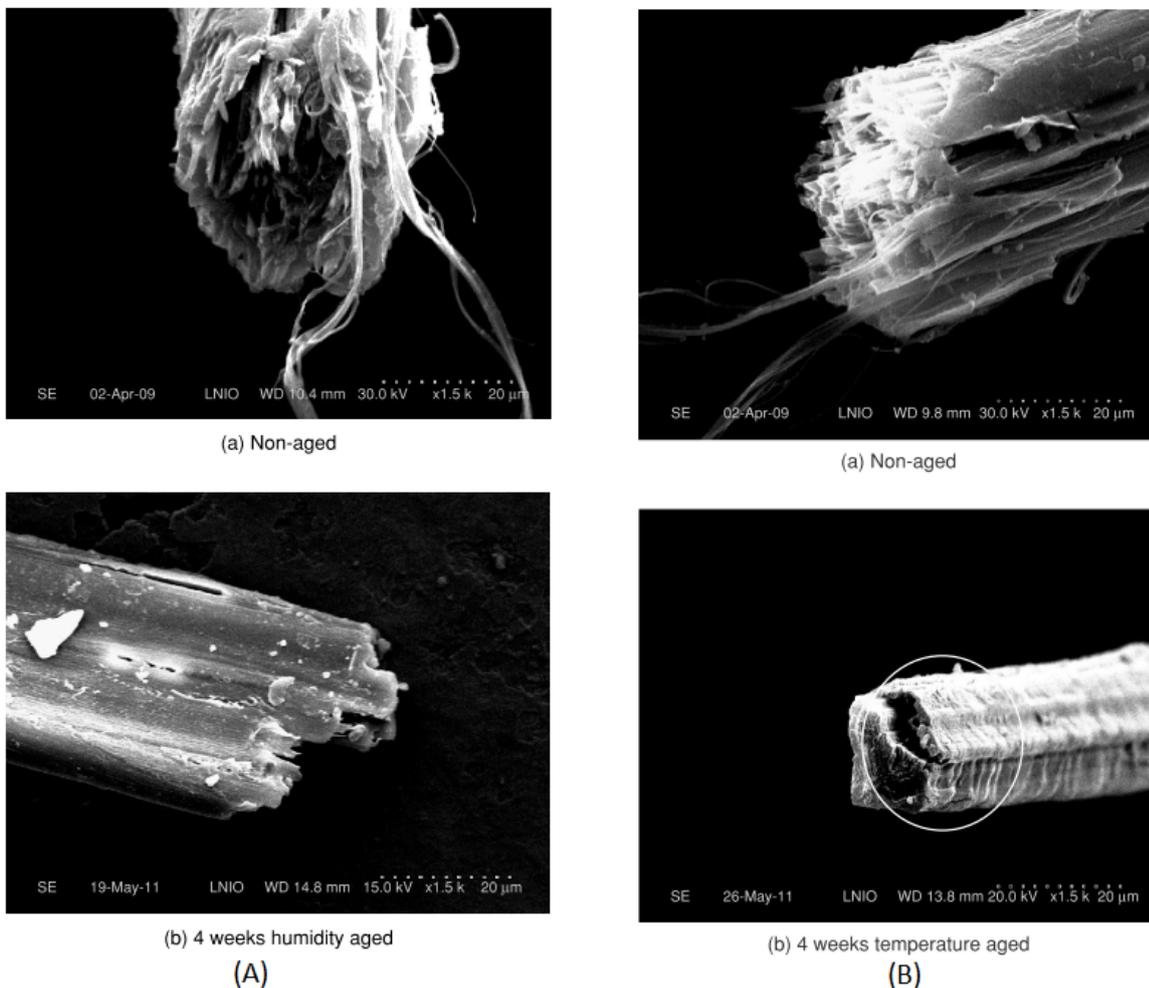


FIGURE 1.37 – Changement du faciès de fibre après 4 semaines de vieillissement (A) à l'HR et (B) à la  $T$  [92]

Concernant le vieillissement à la température ( $T$ ), certains auteurs [90, 93] ont constaté aussi que le module de Young ( $E$ ) et la contrainte maximale à la rupture ( $\sigma_r$ ) diminuent d'une manière remarquable tandis que la déformation à la rupture ( $\varepsilon_r$ ) augmente. Un exemple d'évolution pour

des fibres de chanvre est représenté dans la figure 1.36 (les colonnes en vert - Temps1 aging). Ils ont constaté que la température affaiblit les liaisons intermoléculaires (les forces de Val der Waals). Par conséquent, la mobilité des chaînes macromoléculaires de cellulose et la plasticité de la fibre sont additionnées conduisant à une baisse du module de Young ( $E$ ) et de la contrainte maximale à la rupture ( $\sigma_r$ ), contre une augmentation de la déformation à la rupture ( $\varepsilon_r$ ) [21].

De plus, Jin et al. [21] ont constaté une réduction de la zone cristalline et une augmentation de la zone amorphe de la fibre conduisant la disparition de la surface de fracture de la fibre due au vieillissement accéléré à la température (figure 1.37 B). Dans ce travail, la température choisie est de  $38 \pm 2^\circ C$  selon la norme ISO 4892-2. Au delà de cette température, à  $50^\circ C$  ou  $100^\circ C$ , l'humidité contenue dans la fibre sera évaporée. A  $200^\circ C$ , il se produira une dégradation de la lignine par pyrolyse. Quand à la cellulose, c'est vers  $300^\circ C$  qu'elle se dégradera [94].

Le dernier type de vieillissement que nous allons présenter concerne le vieillissement aux UVs. La photolyse provoque la rupture des liaisons chimiques qui se reconstituent en créant une réticulation entre les chaînes.

Aussi, sous le vieillissement aux UVs, les fibres sont blanchies et leurs propriétés mécaniques diminuent (figure 1.38). Son comportement devient plus fragile. Ce dernier est le résultat de la photo-dégradation et de la dégradation des macromolécules de cellulose. En effet, sous l'action de vieillissement aux UVs, la scission des chaînes macromoléculaires de cellulose se produit. Avec la présence d'eau, d'une part l'oxydation est accélérée et d'autre part la pénétration de la lumière dans les fibres de chanvre est facilitée à cause du gonflement des parois cellulaires. L'arrosage accélère la dégradation de la fibre en érodant les couches dégradées et en produisant des nouvelles couches exposées aux rayonnements UVs [21, 95].

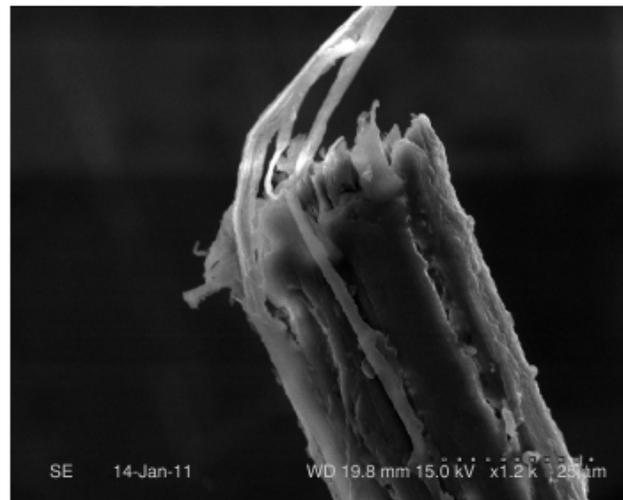
Dans cette partie, nous venons de voir que les fibres naturelles sont assez sensibles aux conditions environnementales. Dans la partie suivante, nous allons regarder si cette sensibilité se retrouve une fois que les fibres sont associées à une matrice.

### 1.5.3 Comportement des agro-composites sous des sollicitations environnementales

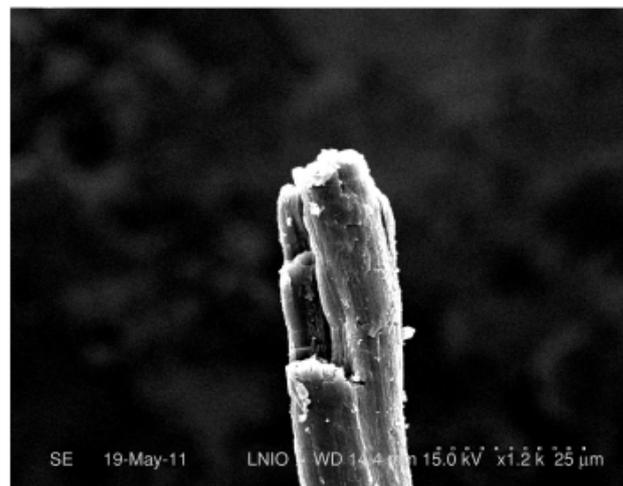
Les matériaux composites en général et les agro-composites en particulier sont sensibles aux conditions de vieillissements : HR, T et UVs. Tous ces paramètres environnementaux font évoluer leurs propriétés mécaniques. Dans cette partie, nous allons voir l'influence des 3 types de vieillissement (HR, T et UVs) sur le comportement mécanique de certains agro-composites. Dans un premier temps, nous allons nous intéresser à l'humidité.

Sous l'action de l'HR, les agro-composites absorbent de l'eau en raison de la présence des fibres hydrophiles et des défauts de l'interface fibre/matrice (vides, micro-fissures, etc.). L'absorption d'eau est gouvernée par plusieurs facteurs que nous pouvons citer : la température, l'humidité, la matrice utilisée, la nature de la fibre, la différence entre la circulation de l'eau dans le composite et l'interaction entre de l'eau absorbée avec la matrice. L'absorption d'eau provoque des effets de plastification, l'hydrolyse, la décohésion de l'interface fibre/matrice. En particulier, elle cause la formation de micro-fissures dans le composite par le gonflement de la fibre [96, 89].

De plus, après des cycles sec/humide de l'environnement, le matériau peut subir des endommagements par fatigue dûs à la propagation de micro-fissures. Parallèlement, l'eau absorbée évolue en se diffusant au sein du composite via ces micro-fissures (coule capillaire) ainsi que via la matrice. A long terme, le pelage de la fibre et la dissolution de surface (à l'interface fibre/matrice) du composite se produisent. Par conséquent, la perméabilité du matériau augmente permettant l'absorption de l'eau. L'altération du matériau à l'interface est donc accélérée



(a) Non-aged



(b) 4 weeks UV aged

FIGURE 1.38 – Changement du faciès de fibre après 4 semaines de vieillissement aux UVs [92]

et ce phénomène est irréversible comme illustré sur la figure 1.39 [94, 97]. Ce type d'endommagement des agro-composites est constaté par d'observation sous MEB comme montrée la figure 1.40.

Aussi, Le Duigou et al. [98] ont constaté dans leurs travaux des changements permanents du composite fibre de lin/Poly(1-Lactique acide)-PLLA au vieillissement à l'eau de mer par immersion :

- (i) hydrolyse de la matrice, relevée par la réduction de masse des molécules,
- (ii) change structurale, relevée par l'analyse thermique,
- (iii) dégradation de l'interface fibre/matrice (déchaussement, décohésion),
- (iv) gonflement de l'interface fibre/matrice,
- (v) dégradation de la fibre.

Ces auteurs ont suggéré que la dégradation de l'interface est le mécanisme de défaillance

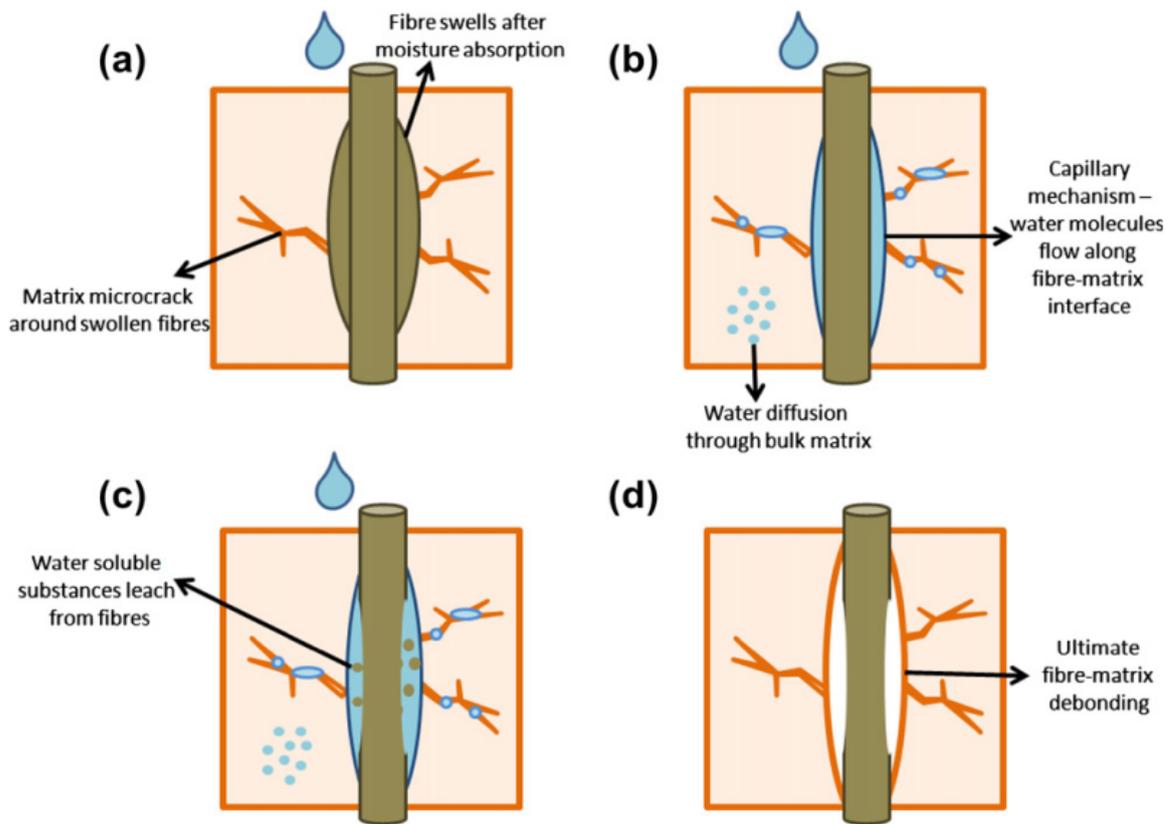


FIGURE 1.39 – Diffusion de l'eau absorbée et mécanisme de propagation de rupture à l'interface [94]

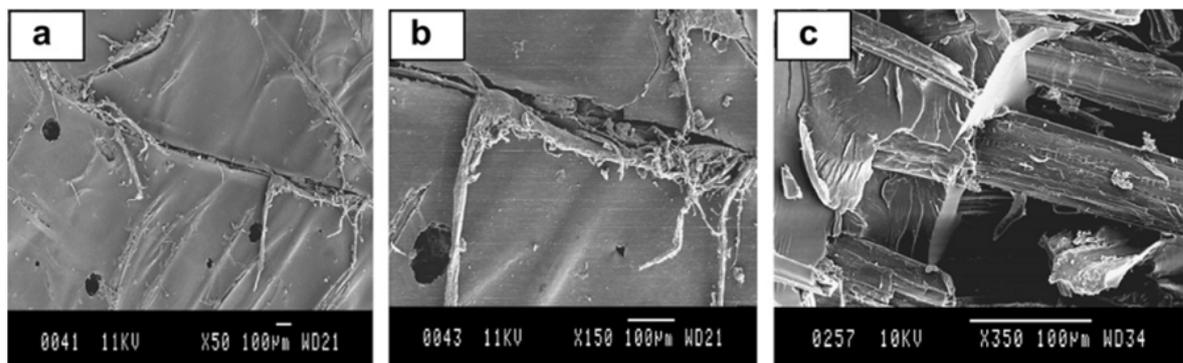


FIGURE 1.40 – Endommagement du composite montrant (a) la fissure de la matrice, (b) propagation de la fissuration le long de l'interface, (c) décohésion de l'interface fibre/matrice due à l'attaque des molécules d'eau [96]

principal du composite au vieillissement. Pourtant, ils confirment que les fissures sont parues à la fois dans la matrice et sur la fibre.

L'évolution des propriétés mécaniques des agro-composites a été relevée par les auteurs Jin et al. [99]. Ils ont constaté que la résistance en traction, le module d'Young et la stabilité thermique

des agro-composites sont dégradés suite aux vieillissements à l'HR dus à l'altération de la fibre et à la diminution de l'adhésion fibre/matrice. En revanche, la déformation à la rupture est augmentée due à la plastification sous l'effet de l'eau. Ces évolutions sont représentées sur les figures 1.41 a,b et c.

En résumé, dans les travaux cités ci-dessus, l'interface fibre/matrice joue un rôle important sur le comportement des agro-composites aux vieillissement à l'HR.

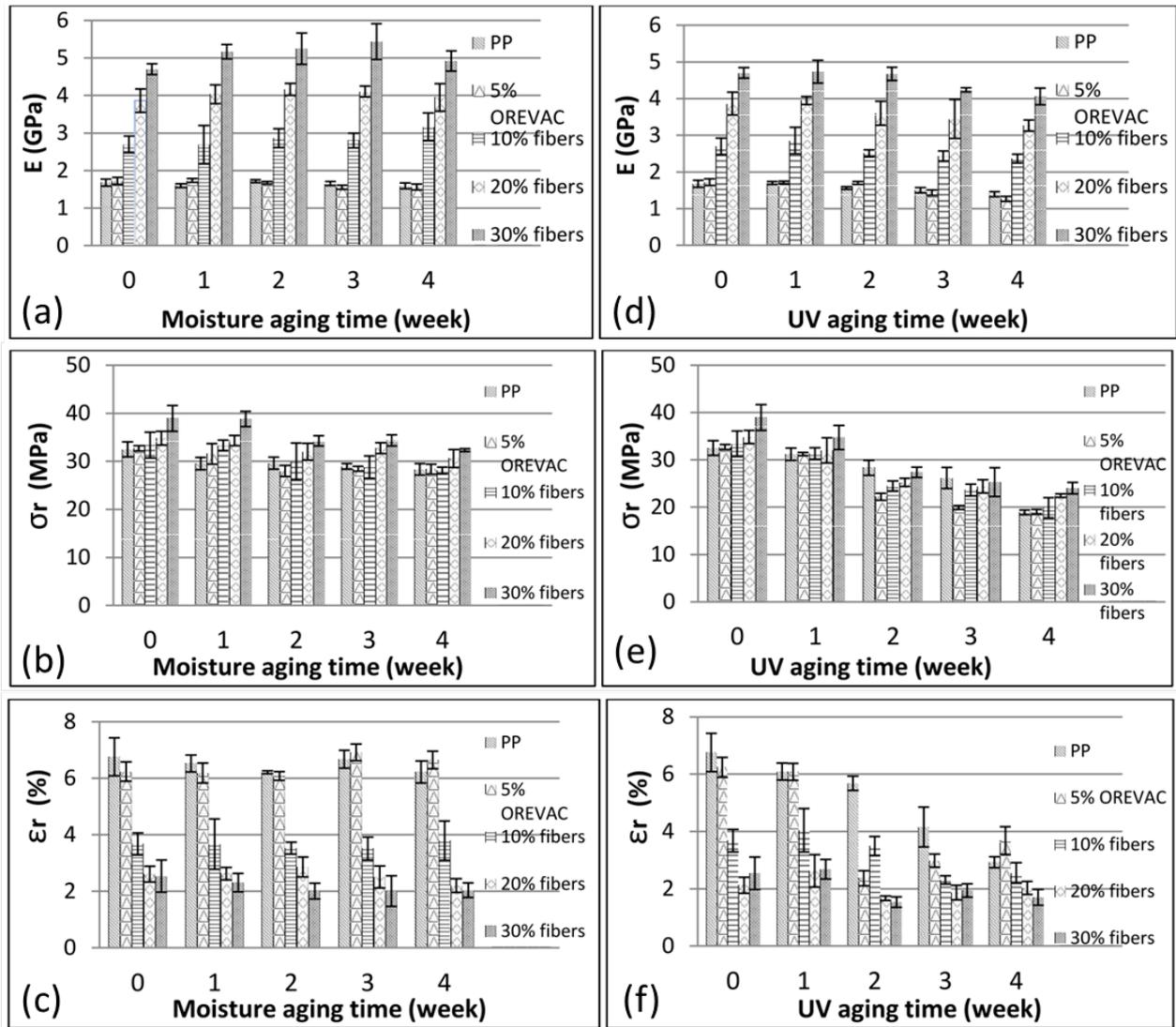


FIGURE 1.41 – Evolution du module d'élasticité  $E$ , de la contrainte maximale à la rupture en traction  $\sigma_r$  et de la déformation maximale à la rupture  $\epsilon_r$  du composite en fonction du temps de vieillissement à l'HR (a,b,c) et aux UVs (d,e,f) [99]

Le deuxième facteur de vieillissement important influençant les propriétés des agro-composites est la température  $T$ . En effet, une des limites d'application des matériaux agro-composites est la basse stabilité thermique. Pour des températures de 100 - 200°C, les matériaux agro-composites commencent à perdre leurs propriétés mécaniques [94]. Ceci vient de la faible stabilité thermique non seulement de la fibre mais aussi de la matrice. Pour les fibres végétales, l'évaporation de

1.5. Vieillessement des agro-composites dans des conditions environnementales

l'humidité cachée se produit à partir de  $50^{\circ}\text{C}$  à  $100^{\circ}\text{C}$  et à partir de  $160^{\circ}\text{C}$  on observe la pyrolyse de lignine. A plus haute température (environ  $200^{\circ}\text{C}$ ), la décomposition des hémicelluloses et puis des celluloses (à  $300^{\circ}\text{C}$ ) commence [94]. Pour la matrice, à  $300 - 500^{\circ}\text{C}$ , les polymères se décomposent.

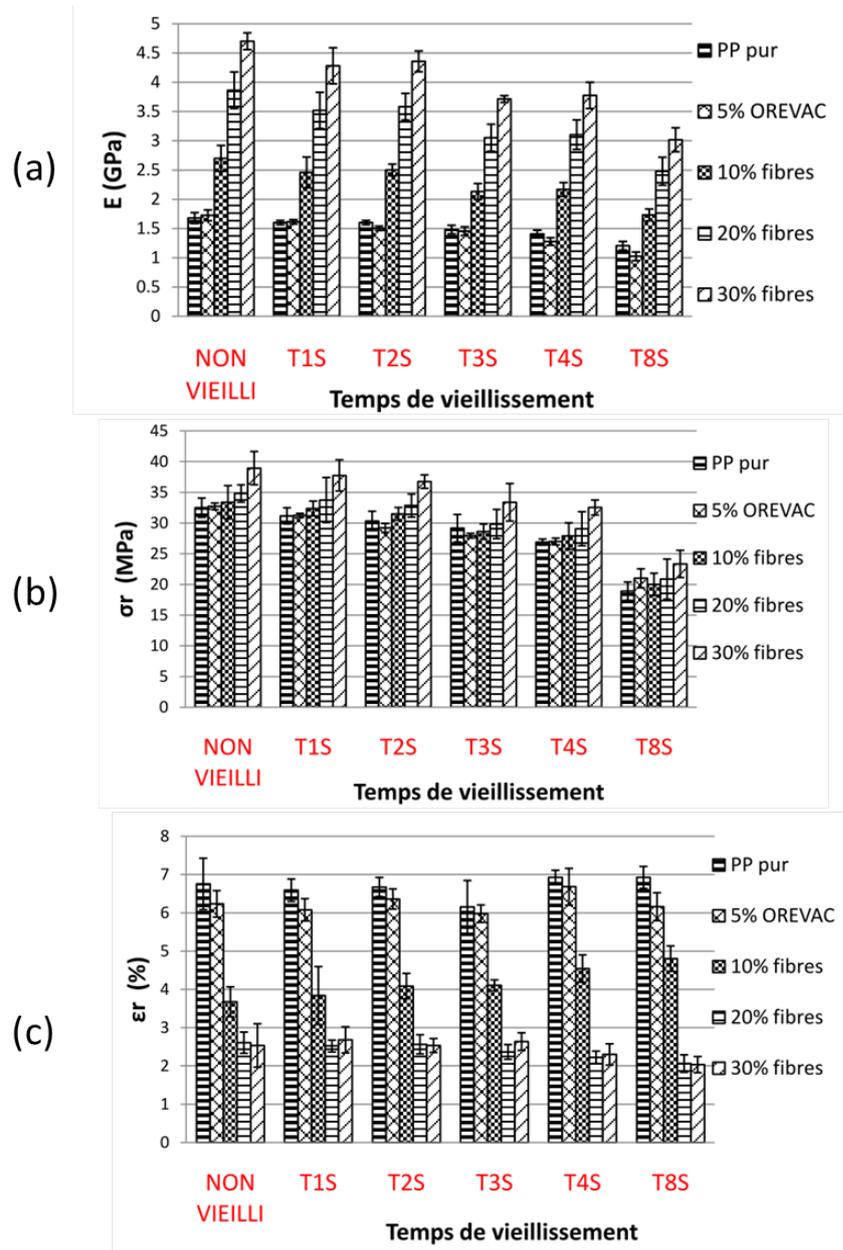


FIGURE 1.42 – Evolution du module d'élasticité  $E$ , de la contrainte maximale à la rupture en traction  $\sigma_r$  et de la déformation maximale à la rupture  $\epsilon_r$  du composite en fonction du temps de vieillissement à la température [21]

D'autre part, la température  $T$  joue un rôle significatif sur la stabilité dimensionnelle des composites. Elle peut causer l'expansion ou la contraction thermique [94] en changeant le taux d'humidité. De plus, l'énergie thermique apportée par la température a un effet de plastification

sur le composite. Elle provoque une relaxation des chaînes de polymère engendrant une diminution de la force moléculaire. Un exemple d'évolution des propriétés mécaniques en fonction du temps au vieillissement à la T est montré sur la figure 1.42.

Le rayonnement ultraviolet (UV) peut aussi affecter directement la matrice et la fibre et provoquer des multi-dégradations. Les radiations du rayonnement UV peuvent casser les liaisons covalentes dans la matrice. Ceci peut avoir comme conséquences : le jaunissement, des changements de couleur, la perte de masse, rendre la surface rugueuse, la dégradation des propriétés mécaniques [94, 100, 101]. La photo-dégradation peut changer le polymère à toute échelle : oxydation des monomères, scission des chaînes ou des liaisons transversales, dégradation des liaisons moléculaires et cristallines résultant de changements de morphologie et changement à l'échelle macroscopique. La radiation UV absorbée dans le polymère peut aussi modifier sa structure chimique. De plus, d'autres réactions peuvent se produire comme : la photolyse et l'hydrolyse avec la présence d'humidité relative [21]. Tous ces phénomènes provoquent des dégradations physiques, chimiques et mécaniques irréversibles des agro-composites. La réduction de toutes les propriétés mécaniques ( $\sigma_r$ ,  $E$  et  $\varepsilon_r$ ) est constatée dans l'étude de Jin et al. [21] pour des composites PP/chanvre. Elles sont représentées sur les figures 1.41 d,e,f.

Au travers certains articles de la littérature, nous constatons que l'interface joue un rôle important non seulement sur les propriétés mécaniques des matériaux composites mais aussi sur la durabilité du matériau en conditions de service. Les études citées ci-dessus se sont limitées souvent aux descriptions qualitatives des évolutions de l'interface au cours des sollicitations environnementales.

## 1.6 Conclusion

Dans cette partie, nous avons focalisé notre recherche bibliographique sur les points importants de ce mémoire de thèse.

Tout d'abord nous avons présenté les différents matériaux d'étude à commencer par la fibre de chanvre cultivée dans l'Aube et dont les utilisations ne cessent d'augmenter. Ces fibres sont aujourd'hui insérées dans une matrice comme renfort pour élaborer des agro-matériaux composites. Une rapide description de ces matériaux a été proposée et montre l'intérêt d'utiliser les fibres naturelles pour leurs propriétés mécaniques.

Nous avons ensuite discuté de l'importance du processus de fabrication sur les propriétés du composite. En effet, les paramètres de fabrication vont jouer un rôle important sur les propriétés finales du composant. Les paramètres que nous avons surtout regardés sont la température et la vitesse de fabrication.

Dans ces conditions, l'interface entre la fibre et la matrice est une zone très importante puisqu'elle permet de transmettre les efforts lors d'une sollicitation mécanique. Nous avons donc regardé les différentes théories liées à l'adhésion et avons conclu que même si cette interface est une zone complexe, les phénomènes mis en jeu à l'interface peuvent s'expliquer par la complémentarité de ces théories.

Par rapport à l'interface, la contrainte interfaciale nous paraît être un paramètre pertinent à étudier pour caractériser l'interface fibre/matrice. Nous avons fait un bilan des différentes méthodes les plus utilisées et avons proposé une comparaison pour justifier notre choix quant à l'utilisation de la méthode "pull-out". Cette méthode sera utilisée dans la suite de ce mémoire pour caractériser nos matériaux d'étude.

Enfin souhaitant regarder l'influence de certaines conditions de vieillissement sur la résistance de l'interface, une petite étude bibliographique a été proposée pour voir surtout l'influence de

l'humidité relative, de la température et des rayonnements ultraviolets sur la tenue des fibres naturelles et sur les agro-composites. Dans ce mémoire de thèse seule une étude sur l'influence de l'humidité relative sera proposée.

# Chapitre 2

## Caractérisation de l'interface fibre/matrice

### Sommaire

---

|            |  |           |
|------------|--|-----------|
| <b>2.1</b> | <b>Introduction</b>  | <b>40</b> |
| <b>2.2</b> | <b>Méthodologie</b>  | <b>41</b> |
| 2.2.1      | Principe   | 41        |
| 2.2.2      | Procédure  | 44        |
| 2.2.3      | Définition des paramètres d'essai  | 52        |
| 2.2.4      | Résultats 'type' - Description qualitative   | 52        |
| 2.2.5      | Résultats 'type' - Description quantitative  | 57        |
| 2.2.6      | Synthèse des résultats "types"   | 64        |
| <b>2.3</b> | <b>Détermination de la température effective du moulage</b>                                    | <b>65</b> |
| 2.3.1      | Introduction   | 65        |
| 2.3.2      | Méthode de vérification  | 66        |
| 2.3.3      | Résultats  | 67        |
| <b>2.4</b> | <b>Effet de la température de fabrication sur la résistance au cisaillement de l'interface</b> | <b>68</b> |
| 2.4.1      | Introduction   | 68        |
| 2.4.2      | Objectif   | 70        |
| 2.4.3      | Comparaisons qualitatives  | 71        |
| 2.4.4      | Résultats  | 72        |
| <b>2.5</b> | <b>Conclusions du chapitre</b>   | <b>76</b> |

---

### 2.1 Introduction

En mécanique des matériaux composites, la caractérisation de l'interface fibre/matrice est primordiale pour la compréhension du comportement de l'interface et de sa contribution aux propriétés globales du matériau. Il existe plusieurs méthodes pour étudier ce problème, soit théoriques (selon la théorie thermodynamique), soit empiriques telles que l'essai "pull-out", l'essai de déchaussement d'une micro-goutte, l'essai de fragmentation, la compression des diabolos et l'essai de micro-indentation (push-out). En comparant quelques méthodes existantes, nous avons choisi de développer l'essai "pull-out" afin de l'appliquer à la caractérisation de l'interface

fibre/matrice des composites polypropylène/chanvre. La méthode consiste à appliquer une force de traction sur une fibre de chanvre insérée dans un bloc de polypropylène (PP). La force maximale de déchaussement est mesurée afin de déduire la contrainte de cisaillement au niveau de l'interface. Pour ce dernier, la surface de contact entre la fibre et la matrice est déterminée en prenant la vraie géométrie de la fibre de chanvre.

Dans ce chapitre, après avoir présenté le processus d'élaboration des éprouvettes, nous décrivons la méthode de déchaussement que nous avons mis en place ainsi que les premiers résultats.

Nous discuterons de l'influence de la température d'élaboration sur la contrainte interfaciale.

## 2.2 Méthodologie

Dans cette partie, nous avons focalisé notre étude sur une description du protocole expérimentale et sur une analyse des résultats obtenus.

### 2.2.1 Principe

#### 2.2.1.1 Schéma

Nous souhaitons évaluer l'adhésion entre la fibre et la matrice du composite PP/chanvre. Pour cela, notre méthode consiste à déchausser une fibre unitaire de chanvre insérée dans un cube de matrice PP. Initialement, la longueur de la fibre dans la matrice  $l_{ie}$  est égale à celle du cube PP, soit de  $10\text{mm}$ . Cette longueur est ajustée ensuite pour créer la longueur d'interface  $l_e$  souhaitée. L'ajustement de  $l_e$  est fait en découpant une fente dans le cube de PP. La fente est éloignée d'une longueur de  $l_e$  par rapport à la surface où la fibre est immergée. La longueur libre de la fibre choisie est de  $2\text{mm}$ . Un schéma représentatif de notre méthode de caractérisation de l'interface est présentée dans la figure 2.1. L'outil de traction employé est une micro-machine de traction. Elle est équipée d'une cellule de force de  $100\text{N}$ . La vitesse de la traverse choisie est de  $1\mu\text{m/s}$ . Le système comprenant la machine de traction et l'éprouvette est positionné sous un microscope numérique afin de suivre de plus précisément le déchaussement de la fibre.

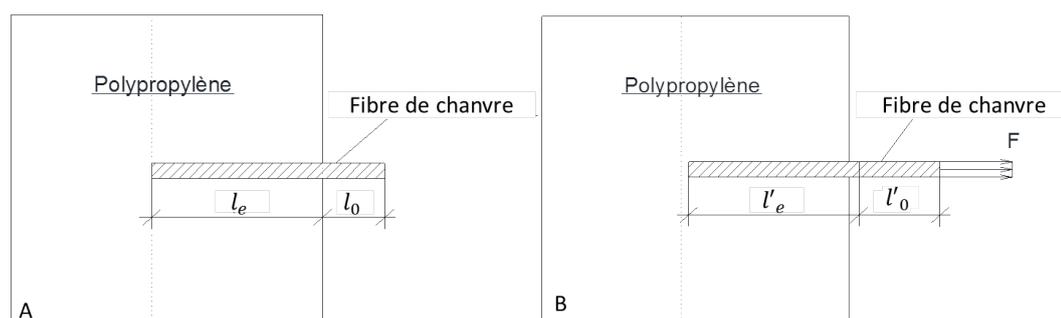


FIGURE 2.1 – Schéma représentatif de l'essai de déchaussement (A) à l'état initial et (B) en traction

#### 2.2.1.2 Formulation

Lors de la traction, la fibre et l'interface sont sollicitées en même temps (couplage en série). La force totale de déchaussement correspond donc à deux forces : la force de traction de la fibre et la force de cisaillement de l'interface. Il est très difficile de dissocier ces deux phénomènes

mécaniques car ils se déroulent en même temps. De ce fait, nous proposons les hypothèses ci-dessous afin d'analyser les résultats.

- Si la rupture de l'éprouvette s'est produite dans partie libre de la fibre. La mode de rupture est donc en traction de la fibre. Nous pouvons donc calculer la contrainte de rupture en traction apparente de la fibre  $\sigma_t$  par la formule 2.1 :

$$\sigma_t = \frac{4F_{max}}{\pi \bar{d}^2} \quad (2.1)$$

où :

- $F_{max}$  est la force maximale (force à la rupture),
- $\bar{r}$  est le diamètre moyen de la fibre.

Dans ce cas, la déformation de cette partie de fibre est calculée suivant la formule 2.2 ci-après :

$$\varepsilon_t = \frac{u}{l_0} \quad (2.2)$$

où :

- $u$  est le déplacement mesuré par le capteur de déplacement,
- $l_0$  est la longueur de la partie libre de la fibre (mesurée à l'état initial de l'essai).

La courbe de traction obtenue nous permet aussi d'évaluer la rigidité en traction de la fibre  $E$  selon la formule 2.3 :

$$E = \frac{\Delta\sigma_t}{\Delta\varepsilon_t} \quad (2.3)$$

où :

- $\Delta\sigma_t$  est l'incrément de la contrainte de traction de la fibre, calculé selon la formule 2.1 ci-dessus,
- $\Delta\varepsilon_t$  est l'incrément de la déformation de la fibre, calculé par la formule 2.2.

- Si la fibre est déchaussée, la sollicitation de l'interface atteint alors le seuil de rupture adhésive. Nous pouvons donc calculer la contrainte de cisaillement apparente  $\tau_{app}$  dans ce cas :

$$\tau_{app} = \frac{F_{max}}{\pi \bar{d} l_e} \quad (2.4)$$

où :

- $F_{max}$  est la force maximale de déchaussement,
- $\bar{d}$  est le diamètre moyen total,
- $l_e$  est la longueur de l'interface.

- Si la fibre est partiellement déchaussée, la longueur et la section de la partie sortie seront considérées afin de calculer la surface de glissement durant le déchaussement partiel. Ces valeurs permettent de calculer la surface de contact sollicitée au cisaillement puis la contrainte apparente de cisaillement à l'interface.

### 2.2.1.3 Différents résultats

Lors des essais de déchaussement, nous avons observé trois réponses différentes : déchaussement total de la fibre, rupture en traction de la fibre et déchaussement partiel de la fibre. Des exemples de résultats pour chaque cas sont présentés ci-dessous.

#### 2.2.1.3.a Déchaussement total

Le premier type de réponse observé dans nos essais est le déchaussement total de la fibre ce qui correspond au but recherché. La figure 2.2 présente la fibre totalement retirée de la matrice de l'éprouvette numéro 160. Au début, la longueur de la partie libre de la fibre  $l_0$  était de  $1693,12 \mu\text{m}$  (A). A la fin de l'essai, la longueur de toute la fibre  $l_1$  est mesurée de  $2428,14 \mu\text{m}$  (B). La longueur de l'interface correspond donc à la différence de ces deux valeurs, soit  $l_e = 735,02 \mu\text{m}$ .

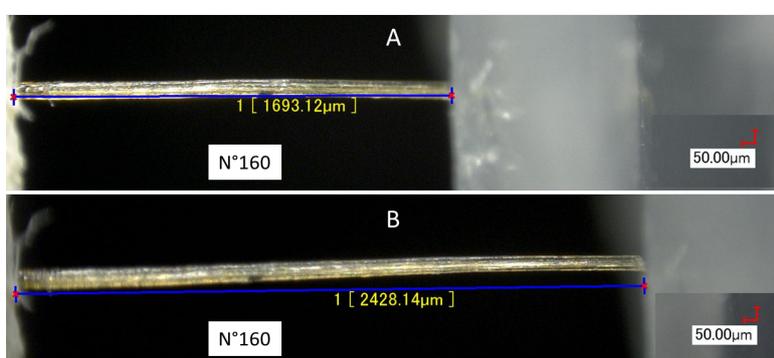


FIGURE 2.2 – Exemple d'un déchaussement total d'une fibre, à l'état initial (figure A) et après avoir déchaussée (figure B) (éprouvette  $n^{\circ}160$ )

#### 2.2.1.3.b Rupture en traction de la fibre

Pour ce type de réponse, la fibre n'est pas déchaussée de la matrice PP mais elle est rompue. La rupture est due à la contrainte de traction qui dépasse la contrainte maximale à la rupture de la fibre. La position de la rupture peut être située sur n'importe quel endroit dans la partie libre de la fibre. Cet endroit correspond à la section la plus faible<sup>1</sup>. La figure 2.3 présente une fibre rompue au milieu de la partie libre de l'éprouvette numéro 324.

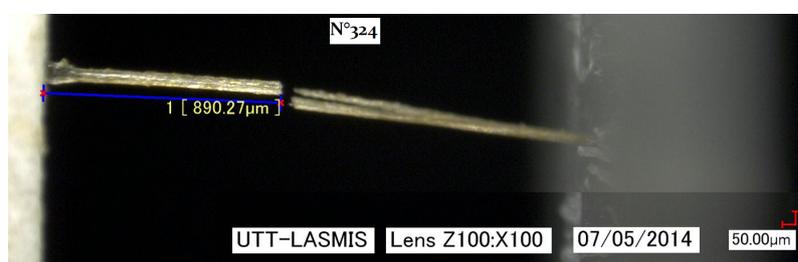


FIGURE 2.3 – Fibre rompue en traction de l'éprouvette  $n^{\circ}324$

1. La faiblesse locale de la fibre dépend de deux paramètres : la fluctuation de la section et la fluctuation des propriétés mécaniques locales le long de la fibre

### 2.2.1.3.c Déchaussement partiel de la fibre

Le dernier comportement observé lors de nos essais est le déchaussement partiel. On distingue trois possibilités : une partie de la section transversale de la fibre déchaussée et un morceau de la partie insérée déchaussée puis rompue en traction ou une mode de rupture mixte. Dans le premier cas, la fibre est souvent détachée puis une partie de la fibre est cassée lorsque la partie restante continue à être sollicitée jusqu'à son déchaussement total (figure 2.4). Le deuxième mode est

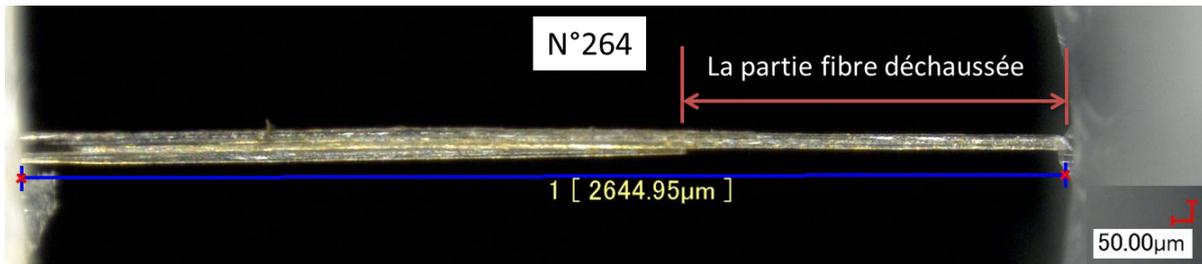


FIGURE 2.4 – Déchaussement partiel d'une fibre (éprouvette n°264) : une partie de la section transversale déchaussée

observé sous microscope numérique mais il est difficile de retrouver le phénomène en mesurant la différence de longueur. En effet, la rupture de la fibre est rapidement produite ensuite près de

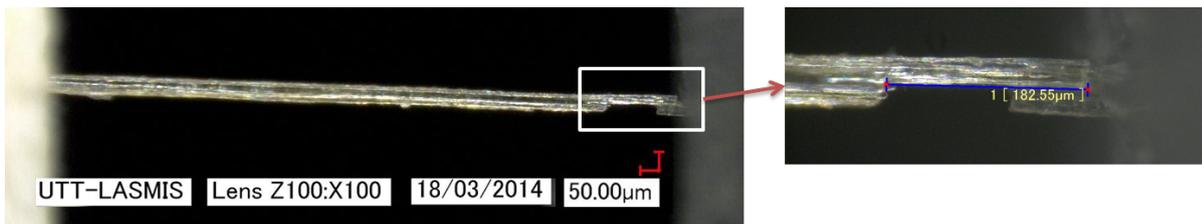


FIGURE 2.5 – Déchaussement partiel d'une fibre (éprouvette n°206) : mode de rupture mixte de déchaussement

la zone d'entrée de la fibre dans la matrice polymère. De plus, ce cas de comportement est rare et lors des essais, le mode de rupture mixte est souvent observé pour des cas de déchaussement partiel (figure 2.5).

La réponse de nos essais dépend fortement de la longueur de l'interface, de la présence d'une faible section le long de la fibre ainsi que de la vitesse de la traverse. Ces facteurs seront abordés ultérieurement (section 2.2.2.3).

## 2.2.2 Procédure

La caractérisation de l'interface fibre/matrice demande une préparation minutieuse des éprouvettes qui s'est déroulée en plusieurs étapes :

1. Défilage : qui permet d'avoir des faisceaux de fibres, puis des fibres unitaires.
2. Montage : les fibres sont ensuite montées et collées sur un support en carton.
3. Caractérisation géométrique : Le profil de la section transversale de la fibre est déterminé.
4. Moulage et cuisson : les cartons portant des fibres sont montés dans un moule métallique. les granules de PP sont alors ajoutés et enfin le moule est introduit dans un four pour faire fondre le PP.

5. Découpage et post-traitement : le découpage de l'éprouvette est effectué après son refroidissement afin de fixer la longueur de l'interface fibre/matrice à solliciter.

Enfin, les éprouvettes seront prêtes pour la caractérisation mécanique.

### 2.2.2.1 Défilage

La première étape consiste à extraire les fibres unitaires des tiges de chanvre non rouies, fournies par la Société Fibres Recherche Développement (FRD). Après le premier défilage on obtient des faisceaux de fibres de chanvre. On note qu'avant le défilage, la tige de chanvre est immergée dans l'eau froide, sans ajout de produits chimiques.

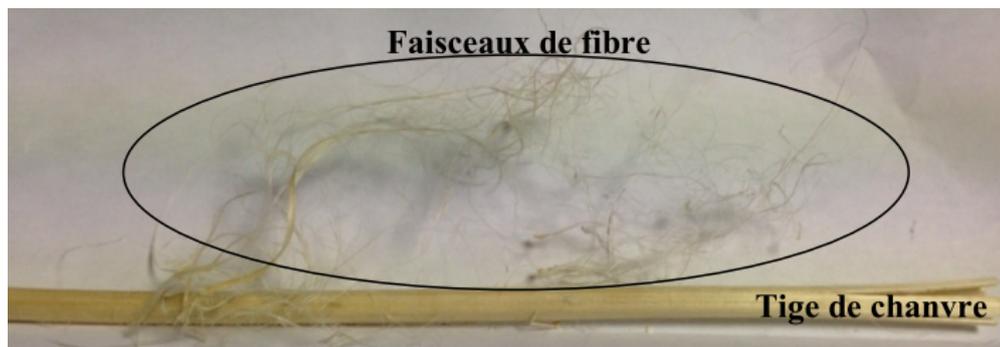


FIGURE 2.6 – Défilage d'une tige de chanvre [102]

Le temps d'immersion peut varier de 2 heures à 16 heures. Les résultats ont montré que le défilage n'était pas aisé avec moins de 2 heures d'immersion. Par contre, une immersion dans l'eau de plus de 4 heures peut provoquer des pertes de fibres. D'une manière empirique nous avons trouvé que le temps optimale d'immersion est entre 2 heures et 4 heures.

Le défilage est effectué manuellement, suivant l'ordre : peler la couche épidermique, défilage la couche de fibre en évitant de prendre la couche de cellulose à l'intérieur. On obtient alors des faisceaux de fibres comme montré par la figure 2.6. Des fibres unitaires sont extraites manuellement à partir de ces faisceaux afin de ne pas altérer les propriétés naturelles de la fibre.

### 2.2.2.2 Moulage et cuisson

Les fibres unitaires obtenues sont choisies pour la fabrication des micro-éprouvettes en monofilament. Le montage de la fibre est fait à l'aide d'un support de fibre en carton utilisant la colle "Loctite Super Glue" comme montrée la figure 2.7. Les cartons sont troués et la fibre passe à travers ces trous. Les dimensions du trou sont pour servir la fabrication des éprouvettes de 10mm de longueur et de 10mm de largeur ainsi que pour laisser 2mm de longueur pour la partie libre de la fibre. Chaque support servira à fabriquer 2 éprouvettes.

Pour gagner du temps de préparation d'échantillon, un moule métallique a été spécifiquement conçu. Pour chaque moulage on peut monter jusqu'à cinq supports de fibres ce qui correspondent au total à dix échantillons fabriquées en parallèle. Le moule est présenté dans la figure 2.8. Les dix cavités présentées seront remplies par des granulés de PP fournis par Dow Europe GmbH (indice de fluidité à chaud IFC : 3,00 (230°C, 2,16kg), température de fusion  $T_m$  : 162°C) pour former la matrice. Une fibre traverse chaque cavité dans le moule. A la fin du moulage ces fibres seront partiellement immergées dans la matrice. La cavité est de 10mm en largeur, 10mm en

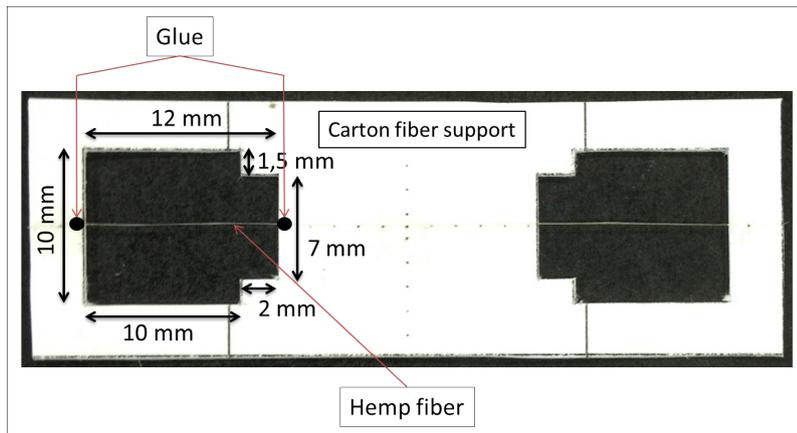


FIGURE 2.7 – Porte-échantillon trouée en carton pour mettre deux fibres de chanvre

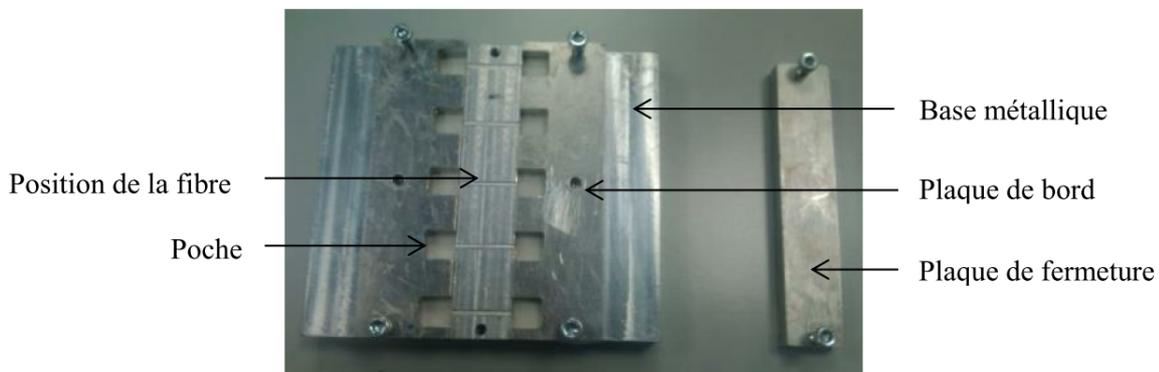


FIGURE 2.8 – Présentation du moule qui permet de fabriquer dix éprouvettes par chaque moulage

longueur et de 6mm de profondeur. Des plaques métalliques permettent de centrer la fibre au milieu de chaque cavité<sup>2</sup>.

Une fois que les fibres sont dans le moule, nous procédons au moulage des éprouvettes. Un four de traitement thermique est employé pour faire fondre les granulés de PP et achever le moulage. Cette méthode simplifie la fabrication des éprouvettes. L'effet de la température et du temps de moulage (cuisson) a été étudié afin de trouver les conditions optimales de moulage. En effet, la température de moulage doit être entre la température de fusion du PP (environ 160°C) et la température de la limite de stabilité thermique des fibres végétales (vers 220°C). Nous avons testé des moulages à différentes températures : 160°C, 170°C, 180°C, 185°C, 190°C, 200°C et 220°C.

Nous avons trouvé la première bonne condition de moulage à 190°C, durant 60 minutes dont 15 minutes de chauffage (régime transitoire de  $20^{\circ}\text{C} < T < 190^{\circ}\text{C}$ ) et 45 minutes de régime permanent ( $T = cte = 190^{\circ}\text{C}$ ). Quand le moulage est terminé, le moule est extrait immédiatement du four et est laissé à refroidir aux conditions de chambre (à 20-25°C, à la pression atmosphérique). Finalement, les éprouvettes sont démoulées après environ de 10 à 15 minutes de refroidissement. Le cycle complet est présenté sur la figure 2.9.

2. A la fin du moulage, la fibre sera bien centrée dans le bloc de PP

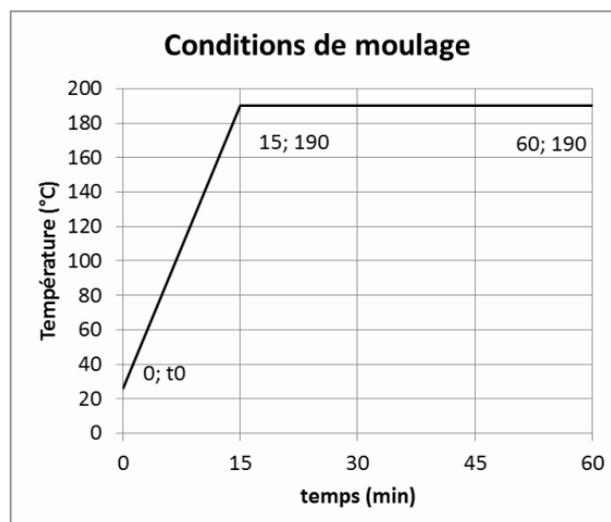


FIGURE 2.9 – Schéma représentatif des conditions de moulage optimales

### 2.2.2.3 Découpage

L'expérience a montré que la réponse mécanique des éprouvettes de déchaussement dépend fortement de la longueur de l'interface. En effet, si cette longueur est grande, le déchaussement de la fibre dans matrice devient difficile et la rupture de fibre en traction devient prédominante. Il est judicieux donc de diminuer cette longueur afin de réduire l'effort nécessaire pour déchausser la fibre. Après le moulage, la longueur de la partie de fibre noyée dans la matrice est égale à la longueur du bloc de polymère, soit de 10mm. On peut diminuer la longueur sollicitée de l'interface  $l_e$  en découpant partiellement le bloc de PP à l'aide d'une scie mécanique. La coupe est effectuée à une distance prédéfinie de  $l_e$  et parallèlement à la surface du bloc de PP où la fibre est immergée dans la matrice. Le découpage partiel permet ainsi de retenir la forme de l'éprouvette pour qu'elle puisse être montée facilement entre les mors de la machine de traction. Le schéma de l'éprouvette moulée et coupée est représenté sur la figure 2.10. La figure 2.11

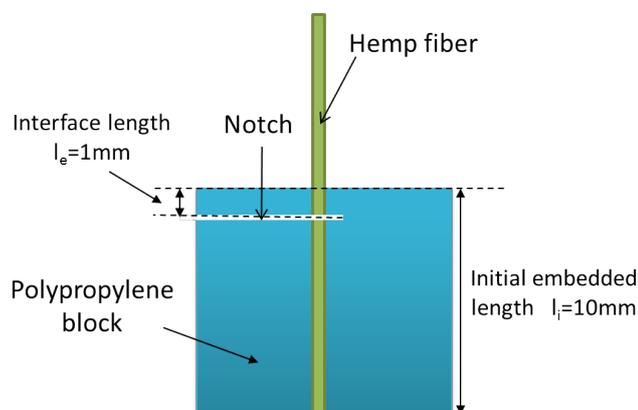


FIGURE 2.10 – Schéma représentatif d'une éprouvette moulée et découpée

présente la scie utilisée pour découper l'éprouvette.



FIGURE 2.11 – Scie utilisée pour le découpage des éprouvettes

#### 2.2.2.4 Essai de traction

Les éprouvettes sont ensuite sollicitées en traction. Initialement, nous avons employé une machine de traction/compression standard (ISTRON) équipée d'une cellule de force de 100N. La vitesse de la traverse est de 0,5 mm/min. La mise en œuvre de ces tests n'était pas aisée.

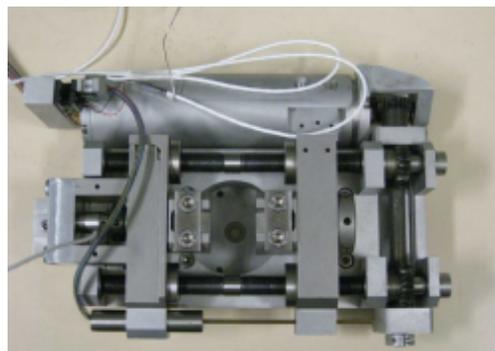


FIGURE 2.12 – Présentation de la machine de micro-traction Kammarath & Weiss

Sur 35 échantillons testés seuls 9 ont été testés correctement. Cette machine n'était pas adaptée pour ce type d'essai.

En adoptant pour une machine de micro-traction Kammarath & Weiss (figure 2.12), la mise en place des éprouvettes devenait plus facile. En effet, les dimensions de l'éprouvette s'adaptent correctement aux mors de cette machine. Le montage de l'éprouvette dans les mors est représenté dans la figure 2.13. La cellule de force est capable d'appliquer une force maximale de 100N. La vitesse de la traverse choisie est de  $1,0\mu\text{m/s}$  permettant de suivre très précisément l'évolution des

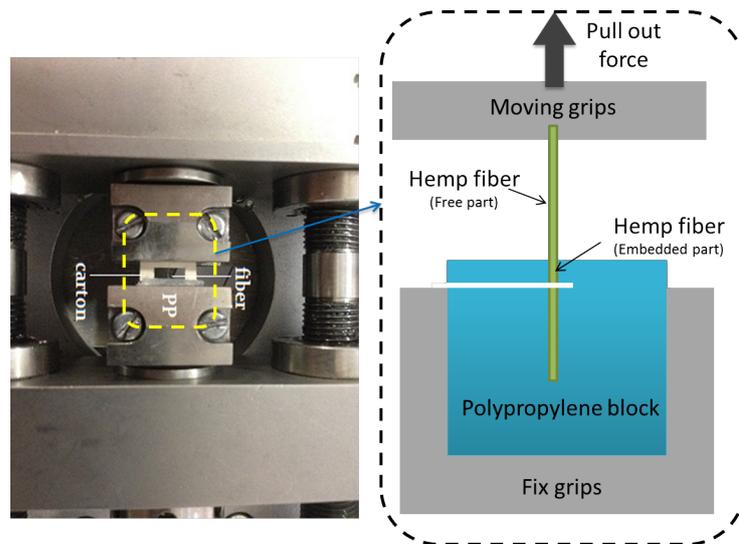


FIGURE 2.13 – Montage d'une éprouvette aux mors

efforts durant la traction/le déchaussement de la fibre de chanvre. Les essais de déchaussement effectués en utilisant cette machine sont suivis sous un microscope numérique comme montré dans la figure 2.14.

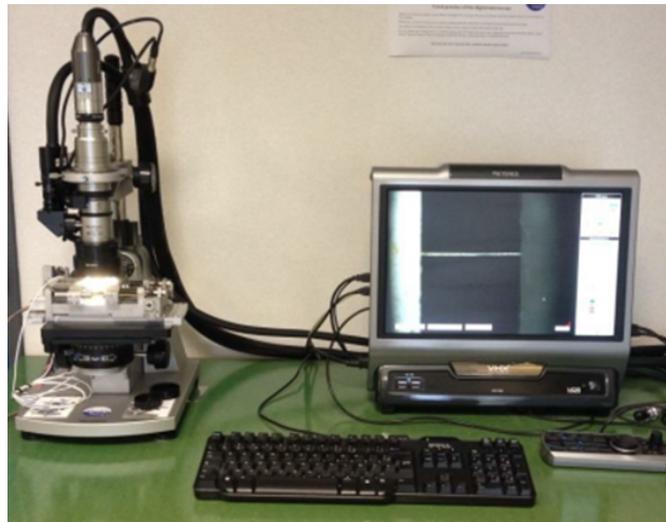


FIGURE 2.14 – Réalisation des essais de déchaussement et suivi avec un microscope numérique

Aussi, à l'aide du microscope numérique, nous vérifions la longueur libre  $l_0$  de la fibre et déterminons la longueur à la fin de déchaussement  $l_1$ . La vraie longueur d'interface  $l_e$  est donc égale à la différence de ces deux longueurs par la formule 2.5 ci-après :

$$l_e = l_1 - l_0 \quad (2.5)$$

Une valeur exacte de  $l_e$  nous permet de mieux calculer la surface de contact fibre/matrice, puis l'IFSS.

### 2.2.2.5 Mesure du diamètre

La section transversale des fibres végétales est en réalité non uniforme le long de la fibre. De plus, sa section n'est pas forcément circulaire (figure 2.15). Pour être précis dans la caractérisation de l'interface, il faudra prendre en considération cette fluctuation géométrique<sup>3</sup> dans le calcul de la résistance au cisaillement de l'interface. Dans ce but, les supports de fibres (les cartons portant les fibres) sont mis sur un dispositif métallique permettant d'orienter des fibres selon cinq angles différents :  $0^\circ$ ,  $36^\circ$ ,  $72^\circ$ ,  $108^\circ$ ,  $144^\circ$  comme montré dans la figure 2.16. Ce dispositif est monté sous un microscope numérique. Des photos numériques de la fibre ont été prises à l'état initial et après l'avoir déchaussée. Un outil de calcul basé sur l'analyse d'image a été récemment développé dans notre laboratoire. Cet outil nous a permis de déduire numériquement les informations géométriques de la fibre.

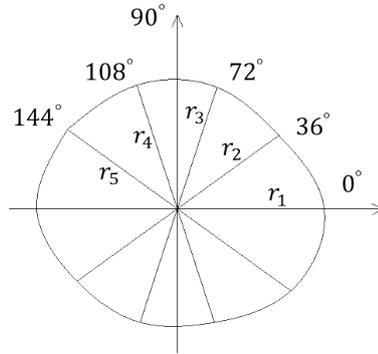


FIGURE 2.15 – Profil réel d'une fibre naturelle avec cinq rayons moyens  $r_i, i = \overline{1-5}$  selon cinq orientations  $0^\circ, 36^\circ, 72^\circ, 108^\circ, 144^\circ$  respectivement

térisation de l'interface, il faudra prendre en considération cette fluctuation géométrique<sup>3</sup> dans le calcul de la résistance au cisaillement de l'interface. Dans ce but, les supports de fibres (les cartons portant les fibres) sont mis sur un dispositif métallique permettant d'orienter des fibres selon cinq angles différents :  $0^\circ$ ,  $36^\circ$ ,  $72^\circ$ ,  $108^\circ$ ,  $144^\circ$  comme montré dans la figure 2.16. Ce dispositif est monté sous un microscope numérique. Des photos numériques de la fibre ont été prises à l'état initial et après l'avoir déchaussée. Un outil de calcul basé sur l'analyse d'image a été récemment développé dans notre laboratoire. Cet outil nous a permis de déduire numériquement les informations géométriques de la fibre.

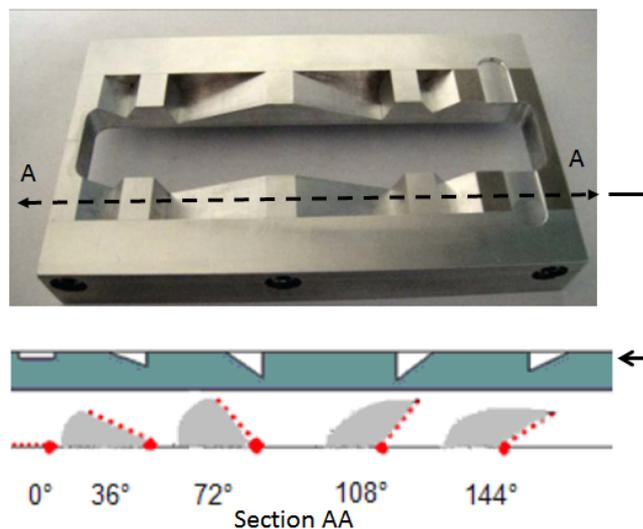


FIGURE 2.16 – Dispositif métallique pour mesurer le diamètre de la fibre selon 5 angles

Le principe de la méthode de mesure du diamètre de fibre consiste à :

3. Il s'agit donc d'une fluctuation de la forme et du diamètre de la section

- Détecter la ligne moyenne de la fibre par analyse d'image numérique
- Segmenter la ligne moyenne à des intervalles de longueur  $dl$
- Pour chaque segment  $dl$ , on détecte la largeur de la section qui doit être égale à  $2 * r(l)$ . La détection de la largeur s'appuie sur le niveau de gris des pixels inclus dans le segment.
- Après nous évaluons la moyenne de toutes les largeurs pour obtenir le diamètre moyen  $\overline{2 * r}$  par un angle d'exposition

Un exemple de calcul est montré dans la figure 2.17. Dans cette image, la figure A est la photo de la partie fibre insérée prise par le microscope numérique et la figure B est l'ensemble des pixels qui décrivent la partie fibre sur la figure A.

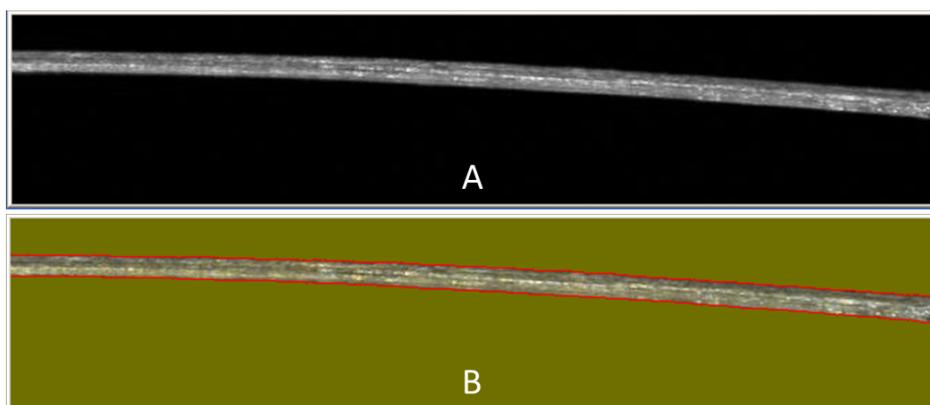


FIGURE 2.17 – Exemple de calcul du diamètre de la fibre à l'aide d'un outil Open CV

Le profil de la section transversale de la fibre peut être supposé circulaire ou polygonal.

1. Le périmètre de la section circulaire est calculé selon la formule :

$$P = 2\pi \cdot \langle \bar{r} \rangle \quad (2.6)$$

où :  $\langle \bar{r} \rangle$  est le rayon moyen de la fibre. Le rayon est moyenné selon deux paramètres : Premièrement, le rayon est moyenné le long la longueur de la fibre ' $l$ '.

$$\bar{r}_i = \frac{1}{l} \int_0^l r_i(l) dl \quad (2.7)$$

l'indice 'i' indique le numéro de l'angle d'exposition de la fibre.  $1 \leq i \leq 5$ .

Deuxièmement, le rayon est moyenné selon les cinq angles d'observation.

$$\langle \bar{r} \rangle = \frac{1}{5} \sum_{i=1}^5 \bar{r}_i \quad (2.8)$$

2. Dans la deuxième méthode, le profil de la section transversale est décrit par un décagone. Le périmètre est déduit par la somme des côtés du décagone comme suit :

$$P = \sum_{i=1}^5 \left( \bar{r}_i^2 + \bar{r}_{i+1}^2 - 2 \cdot \bar{r}_i \cdot \bar{r}_{i+1} \cdot \cos(\bar{r}_i, \bar{r}_{i+1}) \right) \quad (2.9)$$

Les résultats des ces deux méthodes seront comparés ultérieurement. Il faut noter que pour les deux méthodes, la géométrie de la fibre est supposée comme l'extrusion homogène du contour

moyen de la section transversale. Ensuite, l'aire de contact entre la fibre et la matrice peut être calculée comme suit :

$$S_{int} = P \times l_e \quad (2.10)$$

où :  $l_e$  est la longueur immergée de la fibre dans la matrice.

L'avantage de cette méthode de caractérisation géométrique du profil réside dans le fait que plusieurs mesures sont effectuées à des points différents et à différents angles d'observation sur la longueur de la fibre. Cette technique est beaucoup plus précise que les mesures ponctuelles effectuées sur la fibre.

D'autre part, en raison des phénomènes physico-chimiques et mécaniques, le profil de la fibre immergée peut être différent après les processus de moulage/déchaussement.

### 2.2.3 Définition des paramètres d'essai

Les résultats des essais mécaniques dépendent de plusieurs facteurs dont les propriétés du matériau composite (la résistance en traction et le module de Young par exemple) et le protocole expérimental. Pour les essais de caractérisation de l'interface fibre/matrice, la surface en contact fibre/matrice est un paramètre important. Cette surface dépend directement de la longueur de l'interface  $l_e$  et du diamètre de la fibre. Plus elle est grande, plus la force nécessaire pour déchausser la fibre est élevée. Quand la force dépasse la limite de traction de la fibre, celle-ci sera rompue. En effet, il existe une longueur de l'interface critique pour avoir le déchaussement de la fibre.

Des séries d'essai de déchaussement ont été réalisées en variant la longueur de l'interface  $l_e$ . Initialement elle est de 10mm, soit égale à la longueur du bloc de PP. Elle est ensuite réduite à 3mm, puis à 1,5mm. Enfin nous avons trouvé que pour  $l_e = 1\text{mm}$ , les fibres sont bien déchaussées.

Les diamètres des fibres sont déterminés avant le moulage et après le déchaussement de la partie immergée. On a constaté que d'une manière générale le diamètre moyen des fibres après le déchaussement est inférieur à celui mesuré avant le moulage. A titre d'exemple, le diamètre moyen de 13 fibres avant le moulage est de  $58,73 \pm 19,11\mu\text{m}$ . Il devient  $54,89 \pm 16,65\mu\text{m}$  après le déchaussement.

D'autre part, les diamètres moyennés sur la longueur totale (libre + insérée) et celui sur la longueur immergée uniquement sont aussi différents. En conclusion, pour mieux prendre en compte la surface de contact fibre/matrice, le diamètre de la fibre n'est calculé que sur la longueur déchaussée.

### 2.2.4 Résultats 'type' - Description qualitative

Dans cette partie, on considère les trois types de comportements mécaniques de l'éprouvette à fibre unique : (i) rupture de la fibre en traction, (ii) déchaussement total de la fibre et (iii) déchaussement partiel de la fibre. Ces comportements seront expliqués d'une manière qualitative dans un premier temps. L'exploitation quantitative des résultats sera présentée dans la section 2.2.5.

#### 2.2.4.1 Traction de la fibre

Dans ce cas, la partie libre de la fibre est rompue en traction, comme montré dans la figure 2.18. La rupture se produit dans la section la plus faible de la fibre. Il est possible d'avoir des déchirements durant la rupture comme montré dans la figure 2.19. Nous constatons aussi qu'il

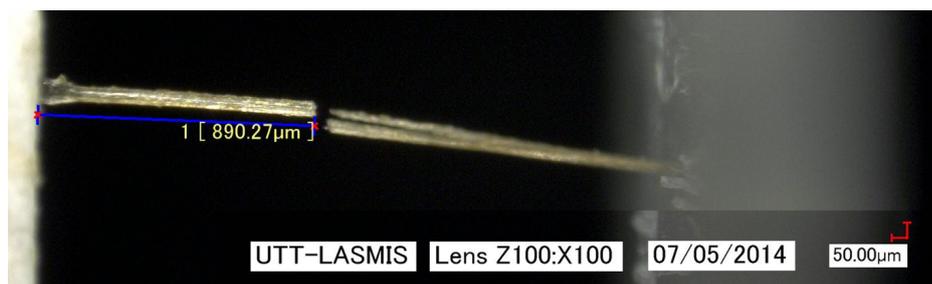


FIGURE 2.18 – Rupture en traction de la fibre d’une éprouvette ( $n^{\circ}324$ ). Le côté polymère dans lequel on insère la fibre est à droite, le carton collé à la fibre est à gauche

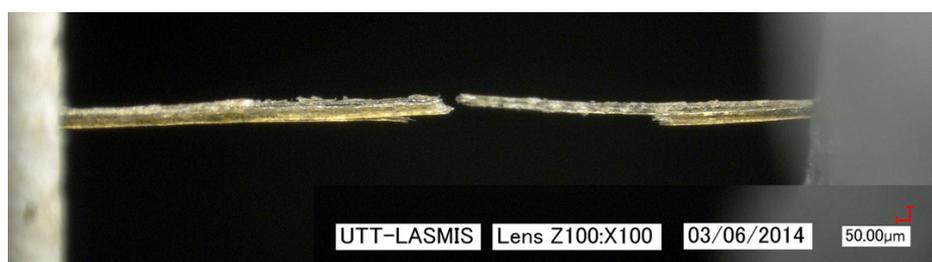


FIGURE 2.19 – Rupture en traction d’un faisceau de fibres avec déchirement d’une éprouvette ( $n^{\circ}327$ )

Il y a différentes ruptures de chaque fibre unitaire dans un faisceau de fibres comme montré dans la figure 2.20.

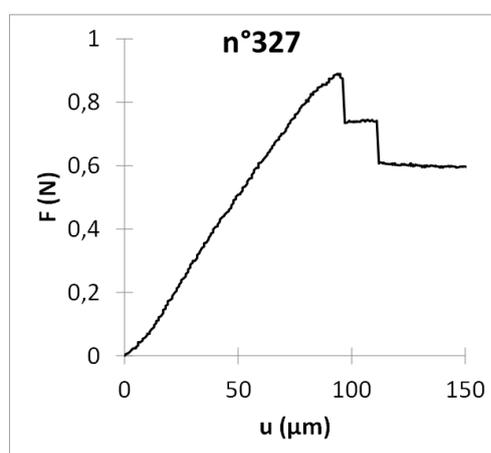


FIGURE 2.20 – Courbe force - déplacement typique du cas de rupture en traction d’un faisceau de fibres. Chaque chute de force correspond à la rupture d’une fibre unitaire

Dans un premier temps, la plupart des essais ont mené à la rupture de la fibre quand la longueur d’interface est de 10mm. Dans ces essais, nous avons constaté qu’il y a deux types de comportement des éprouvettes comprenant le système fibre de chanvre et son interface formée avec la matrice polypropylène : linéaire et non linéaire. Le premier correspond à une sollicitation de la fibre seule et le deuxième nous a suggéré que la fibre et l’interface sont à la fois sollicitées. En effet, le comportement de la fibre sous des sollicitations de traction est linéaire [36]. Deux

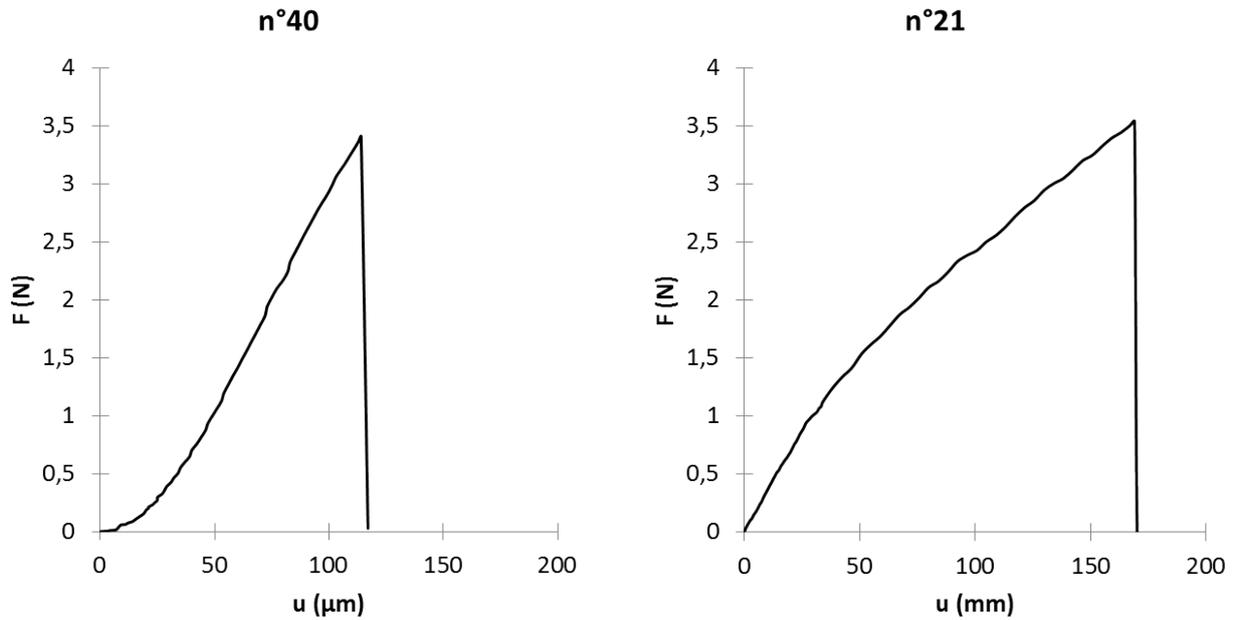


FIGURE 2.21 – Deux courbes force - déplacement typiques du cas de rupture en traction de fibre ( $l_e = 10\text{mm}$ , vitesse de la traverse  $v = 0,5\text{mm/min}$ ) : linéaire ou sollicitation de la fibre seule (éprouvettes  $n^{\circ}40$ ) et non linéaire ou l'interface est également sollicitée (éprouvettes  $n^{\circ}21$ )

exemples typiques (éprouvettes numéro 21 et 40,  $l_e = 10\text{mm}$ ) de deux types de comportement sont représentés dans la figure 2.21.

La vitesse de la traverse peut influencer à la réponse de l'éprouvette. Sur la figure 2.21, l'éprouvette numéro 21 est sollicitée en traction avec une vitesse de traverse de  $0,5\text{mm/min}$ , la fibre et l'interface sont mises en tension directement. En sollicitant à  $1\mu\text{ m/s}$ , une phase correspondant à la mise en traction des fibrilles<sup>4</sup> dans la paroi de la fibre, comme montré sur la figure 2.22. Sur cette figure, nous constatons donc trois phases d'évolution. Au début, la force augmente lentement en fonction du déplacement (phase 1). Ce comportement correspond à la mise en traction des fibrilles. La deuxième phase (phase 2) correspond à la sollicitation de la fibre en traction et l'interface en cisaillement. La force dans cette phase évolue donc rapidement jusqu'à la rupture de la fibre. Après ce seuil, la force revient à zéro (fin d'essai). Le comportement de l'éprouvette est donc de type fragile.

On note que lorsque la longueur de l'interface ( $l_e$ ) est suffisamment grande, l'interface est sollicitée parallèlement à la fibre dans la plupart cas (deuxième comportement). Cette sollicitation se manifeste par la non-linéarité de la courbe de force/déplacement. Cette non-linéarité est causée par le comportement visco-élastique de l'inter-phase (la dissipation visqueuse à l'inter-phase est à l'origine de l'adoucissement du régime élastique de la courbe). Quand  $l_e$  est réduite à  $1\text{mm}$ , la non-linéarité des courbes de traction n'est plus évidente (figure 2.23).

4. Les fibrilles de cellulose possèdent initialement un trajectoire hélicoïdal vont s'orienter dans la direction de traction

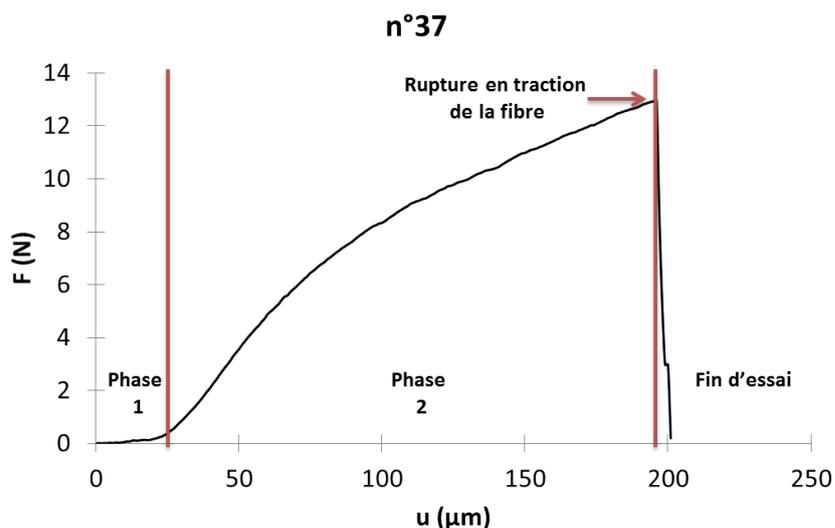


FIGURE 2.22 – Trois phases de chargement sur la courbe force - déplacement d'un cas de rupture en traction (éprouvettes  $n^{\circ}37$ ,  $l_e = 10\text{mm}$ , vitesse de la traverse  $v = 1\mu\text{m}/\text{s}$ ) : phase 1 - mise en traction des fibrilles ; phase 2 - sollicitation en traction de la fibre et au cisaillement de l'interface jusqu'à la rupture de la fibre ; phase 3 - fin d'essai, la force revient à zéro.

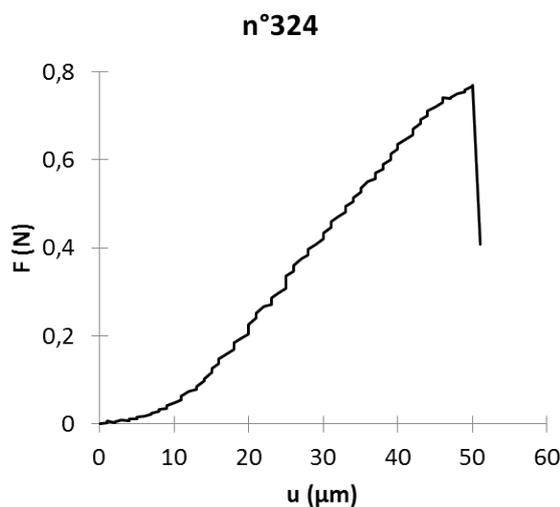


FIGURE 2.23 – Courbe force-déplacement typique du cas de rupture en traction de la fibre quand la longueur de l'interface  $l_e$  est réduite à  $1000\mu\text{m}$  (éprouvettes  $n^{\circ}324$ )

#### 2.2.4.2 Déchaussement partiel de la fibre

Parmi les trois "type" de résultats, le déchaussement partiel est beaucoup moins fréquent. Des ruptures partielles ont été décrites dans la sous-section 2.2.1.3 précédente. La figure 2.24 représente une courbe force - déplacement d'un déchaussement partiel d'une fibre avec la rupture en traction de la fibre (éprouvette  $n^{\circ}206$ ,  $l_e = 1\text{mm}$ , mode mixte). Dans ce cas, la fibre et l'interface fibre/matrice sont à la fois sollicitées par la force de traction imposée.

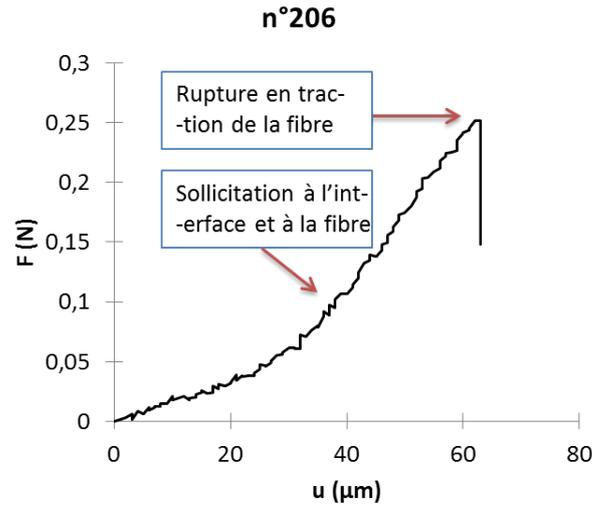


FIGURE 2.24 – Courbe force - déplacement d'un déchaussement partiel et rupture en traction d'une fibre (échantillon n°206,  $l_e = 1\text{mm}$ ,  $v = 1\mu\text{m/s}$ )

En effet, la fibre est mise en traction et l'interface en cisaillement. La force croît progressivement causant un premier décollement de la fibre à l'interface. La rupture à l'interface se développe lorsque la force appliquée augmente. Puisque la contrainte de traction dans la fibre va aussi augmenter, cette contrainte peut dépasser le seuil à la rupture dans une des sections critiques de la fibre (section à faible diamètre en dehors ou dans le bloc de PP). Dans ce cas, la fibre va se rompre avant qu'elle se soit totalement déchaussée de la matrice. Ce mode de déchaussement partiel s'est produit principalement quand la longueur de l'interface est grande ou lorsqu'il existe de défauts géométriques sur la partie libre ou déchaussée de la fibre. La courbe de force - déplacement a une même allure que dans le cas "traction de la fibre" (partie 2.2.4.1).

Le deuxième mode de rupture du cas de déchaussement partiel concerne une rupture en traction d'une partie de la fibre (ou fibre unitaire dans un faisceau de fibres) et un déchaussement total de la partie restante. On peut observer ces résultats quand la longueur de l'interface  $l_e$  est réduite à 1mm. La rupture en traction peut se produire avant ou après le décollement total de l'interface (rupture totale de l'interface fibre/matrice).

### 2.2.4.3 Déchaussement de la fibre

Dans nos essais, le déchaussement (total) de la fibre ne peut pas se produire quand la longueur de l'interface  $l_e$  est grande. Quand  $l_e$  est réduite à 1mm, l'objectif de faire sortir la fibre est atteint. Dans ce cas, le décollement à l'interface fibre/matrice est total. Par conséquent, la fibre est totalement déchaussée. En effet, la contrainte de traction dans la section critique de la fibre reste inférieure à la contrainte seuil de la rupture en traction de la fibre. La figure 2.25 représente une courbe typique force - déplacement qui correspond à un cas de déchaussement total de la fibre. On peut distinguer cinq régimes sur cette courbe :

1. Comportement non linéaire au début de la traction : ce comportement correspond à la mise en traction de la fibre. Comme indiqué précédemment ce comportement est causé par l'orientation hélicoïdale des fibrilles dans la partie libre de la fibre suivant la direction de traction.

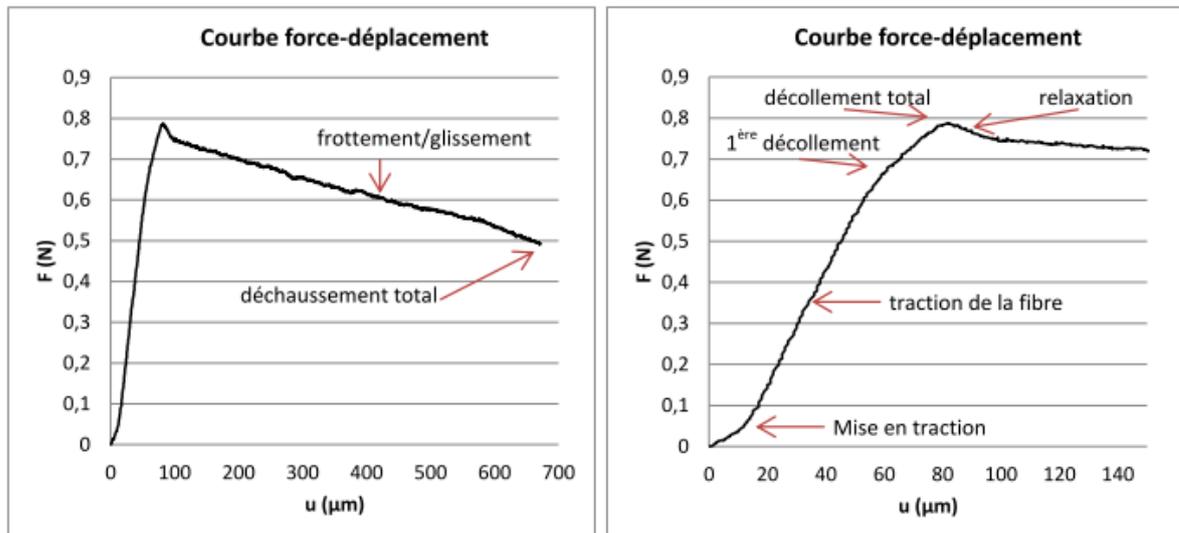


FIGURE 2.25 – Courbe force - déplacement typique de déchaussement

2. Comportement quasi-linéaire : liée d'une manière générale au comportement élastique de la fibre en traction et de l'interface en cisaillement. La fin de ce régime marque le début du décollement de la fibre dans la matrice.
3. Comportement non linéaire avec décroissance de la pente, cette phase décrit le début et la propagation du décollement entre la fibre et la matrice.
4. La relaxation de la force est liée à l'achèvement du décollement.
5. La diminution de la force après le décollement. Cette diminution correspond au frottement généré par le mouvement d'extraction de fibre de la matrice.

### 2.2.5 Résultats 'type' - Description quantitative

Suite à la description des comportements mécaniques des éprouvettes ci-dessus, nous présenterons dans cette partie une exploitation quantitative des résultats en fonction de la réponse obtenue lors des essais. Dans le but de caractériser le comportement mécanique des fibres et de l'interface, différents paramètres seront étudiés tels que le diamètre moyen de la fibre, la force maximale, la résistance en traction, la rigidité en traction de la fibre, la résistance au cisaillement (IFSS), la rigidité au cisaillement de l'interface fibre/matrice, la déformation et la surface de contact.

#### 2.2.5.1 Rupture en traction de la fibre

Les premiers résultats traités regroupent les essais où la fibre a subi une rupture. La caractérisation géométrique des éprouvettes montre que les fibres possèdent un diamètre moyen de  $57,09 \pm 13,79 \mu\text{m}$ <sup>5</sup>. La mesure du diamètre moyen a été effectuée avant le moulage de l'éprouvette. Initialement, la section transversale des fibres de chanvre est supposée circulaire pour les calculs de ses propriétés mécaniques. La force maximale moyenne à la rupture est de  $0,46 \text{ N} \pm 0,31 \text{ N}$ .

5. valeur moyennée sur 11 fibres rompues

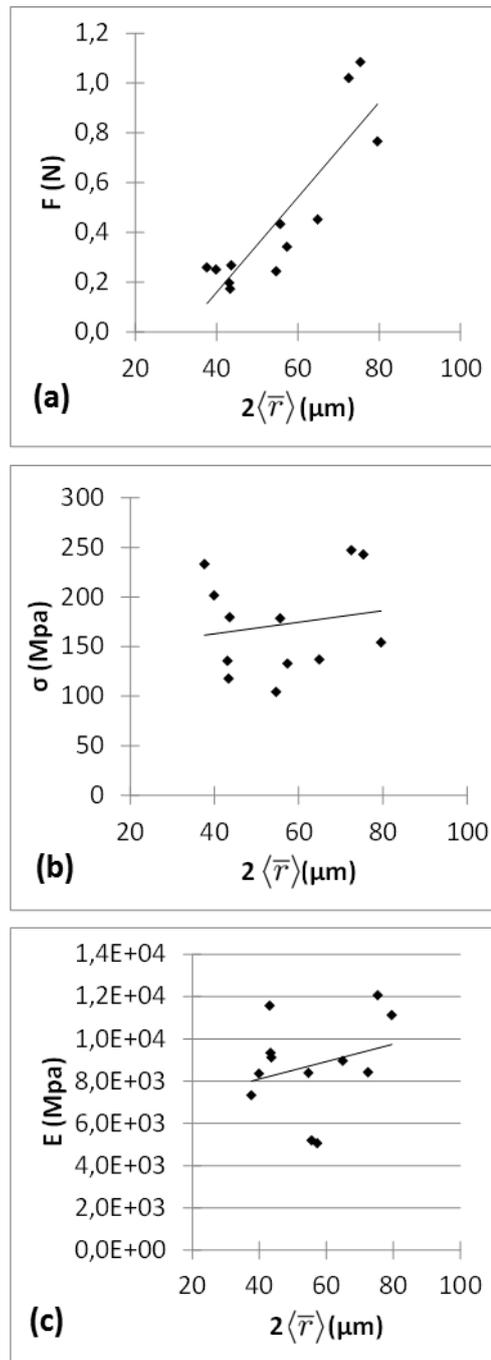


FIGURE 2.26 – Distribution de (a) la force de traction maximale, (b) la contrainte de traction apparente à la rupture et (c) la rigidité en traction en fonction du diamètre moyen total de la fibre de chanvre

La contrainte de traction apparente de la fibre est déduite selon la formule 2.1 et la déformation à la rupture est calculée selon la formule 2.2. Enfin la pente de la partie linéaire de la courbe contrainte - déformation correspond à la rigidité en traction de la fibre (module de Young apparent de la fibre). L'évolution de ces valeurs en fonction du diamètre moyen est montrée dans la figure 2.26 a,b,c. Nous constatons que la force maximale à la rupture des fibres de chanvre

dépend fortement de son diamètre moyen total (figure 2.26 a).

La moyenne de la contrainte de traction apparente à la rupture est de  $169,24MPa \pm 48,99MPa$ . Cette valeur est inférieure à celle des fibres de chanvre à l'état initial caractérisées dans les travaux de Ilcyszyn et al.[36] qui vaut  $655 \pm 215MPa$  (fibres de diamètre environ  $50\mu m$ ) ou  $231 \pm 108MPa$  (fibres de diamètre supérieur à  $50\mu m$ ). Le même changement est constaté pour la rigidité en traction qui est de  $8778 \pm 2206Mpa$  par rapport  $22727 \pm 5446Mpa$  (fibres de diamètre environ  $50\mu m$ ) ou  $11020 \pm 7067Mpa$  (fibres de diamètre supérieur à  $50\mu m$ ). D'autres auteurs ont montré que d'une façon générale, plus le diamètre de la fibre diminue, plus sa résistance en traction est grande [103]. Cette conclusion est partiellement valide dans certains cas présentés dans la figure 2.26 b.

Dans notre cas, le processus de fabrication affecte les propriétés mécaniques des fibres. En effet, la partie libre (nue) de la fibre est exposée directement à un flux de chaleur lors de la phase de cuisson des éprouvettes. Cette chaleur va endommager la structure moléculaire de la cellulose (rupture des liaisons covalentes) et les fibres sont fragilisées. L'effet de la température de fabrication sur le comportement mécanique des éprouvettes a été étudié et les résultats seront présentés dans la section 2.4.

D'un autre côté, la déformation maximale à la rupture en traction des fibres sur nos éprouvettes est de l'ordre  $2,7 \pm 1,01\%$ , soit légèrement supérieure que celle de la fibre de chanvre seule dans la littérature ( $2,3 \pm 1,3\%$  et  $2,6 \pm 1,3\%$  respectivement aux fibres d'environ  $50\mu m$  de diamètre et plus de  $50\mu m$  [36]). Ceci est relié à la déformation de l'interface qui est aussi sollicitée lors de l'essai de déchaussement. En effet, la capacité de déformation de l'interface fibre/matrice est plus importante que la fibre et sa contribution peut mener à une déformation supérieure à celle de la fibre seule.

### 2.2.5.2 Déchaussement partiel

Quand la longueur de l'interface  $l_e$  est grande (plus de 1mm), nous avons observé un déchaussement partiel avec une rupture de la fibre (mode mixte).

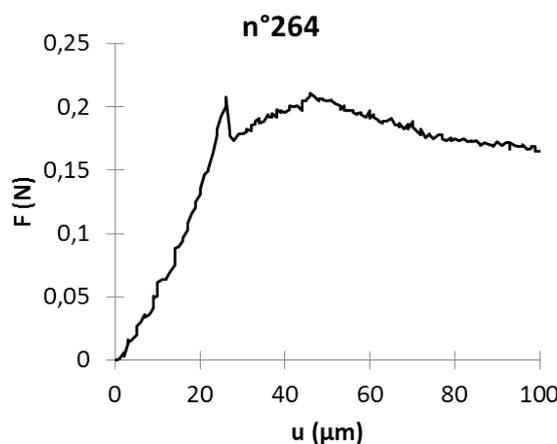


FIGURE 2.27 – Courbe force - déplacement d'un déchaussement partiel avec une rupture en traction d'une partie fibre et un déchaussement total de la partie restante. Cas la rupture en traction produite avant le décollement total de l'interface fibre/matrice (éprouvette n°264,  $l_e = 1mm$ ,  $v = 1\mu m/s$ )

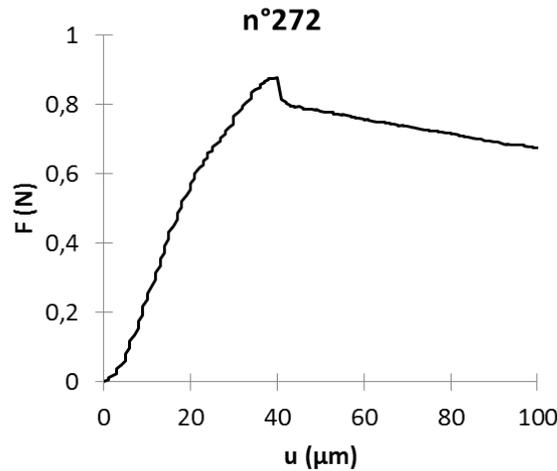


FIGURE 2.28 – Courbe force - déplacement d'un déchaussement partiel avec une rupture en traction d'une partie fibre et un déchaussement total de la partie restante. Cas la rupture en traction produite après le décollement total de l'interface fibre/matrice (éprouvette  $n^{\circ}272$ ,  $l_e = 1\text{mm}$ ,  $v = 1\mu\text{m/s}$ )

Pourtant, l'identification de ce phénomène en mesurant la différence de longueur avant et après la rupture est difficile car le déplacement mesuré est petit par rapport à la longueur totale de la fibre. Une éprouvette ( $n^{\circ}206$ , figure 2.5 identifiée pour ce cas dispose d'une longueur d'interface de 1mm. La courbe force - déplacement est présentée dans la figure 2.24 ci-dessus mais la détermination de la contrainte interfaciale ( $\tau$ ) ou des propriétés mécaniques en traction ( $\sigma_{app}$ ) restent incertaines.

Dans ce cas, deux phénomènes se produisent, un déchaussement partiel et une rupture de la fibre dans la matrice. La rupture en traction peut se produire avant (éprouvette  $n^{\circ}264$ , figure 2.27) ou après (éprouvette  $n^{\circ}272$ , figure 2.28) le décollement total de l'interface fibre/matrice. La différence de ces deux comportements se retrouve également sur les courbes force - déplacement correspondant à la chute de la force imposée. La force maximale à la rupture qui correspond au décollement total de l'interface fibre/matrice de la partie déchaussée peut aussi être déterminée. La longueur de l'interface est mesurée précisément après le déchaussement. Ainsi, le diamètre de la partie fibre sortie est calculé à l'aide de l'outil numérique présenté antérieurement (voir la section 2.2.2.5). Nous pouvons donc estimer la surface réelle sollicitée au cisaillement. La contrainte au cisaillement apparente  $\tau_{app}$  est déduite suivant la formule 2.4 qui est de  $1,65\text{Mpa}$  (éprouvettes  $n^{\circ}264$ ) et  $3,46\text{Mpa}$  (éprouvettes  $n^{\circ}272$ ). Ces résultats s'approchent des résultats lorsque le déchaussement est total qui seront présentés dans le paragraphe suivant. Simplement, ces résultats ne sont pas tout à fait conformes à cause de la rupture de la fibre dans la matrice.

### 2.2.5.3 Déchaussement total

Quand la longueur de l'interface est inférieure à un certain seuil, le déchaussement total de la fibre devient très probable. Les résultats ci-après ont été trouvés pour des éprouvettes dont la longueur de l'interface est de 1mm. La longueur de l'interface est mesurée après le déchaussement pour avoir une évaluation précise de l'IFSS (InterFace Shear Strength). Par conséquent, le diamètre moyen de 19 fibres déchaussées est de  $58,26 \pm 13,5\mu\text{m}$ . La longueur

de l'interface moyenne est de  $1002,50 \pm 159,50 \mu m$ . La moyenne de la surface de contact est de  $18,33 * 10^{-02} \pm 5,72 * 10^{-02} mm^2$ . Ces valeurs statistiques sont calculées en supposant que le profil de la section transversale de la fibre est circulaire. Avec la force maximale de déchaussement qui

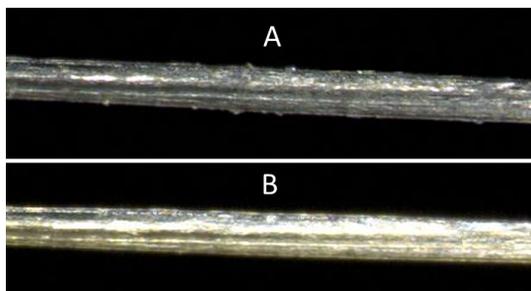


FIGURE 2.29 – Comparaison d'une fibre à l'état initial (A) et après avoir déchaussé de la matrice polymer (B)

vaut en moyenne  $0,62 \pm 0,35 N$ , nous pouvons calculer la contrainte de cisaillement à la rupture de l'interface pour chaque déchaussement. L'IFSS est la moyenne statistique des 20 éprouvettes ayant eu ce type de comportement, elle vaut  $3,26 \pm 1,15 MPa$ .

Dans un second temps, nous prenons en compte la section transversale de la fibre. La surface de contact, la contrainte de cisaillement à la rupture  $\tau_{app}$  et l'IFSS sont à nouveau identifiées. La moyenne de la surface de contact en deuxième approche est de  $19,48 * 10^{-02} \pm 6,27 * 10^{-02} mm^2$ , soit plus élevée que celle au premier cas. Par conséquent, l'IFSS vaut  $3,09 \pm 1,11 MPa$ , soit 5,21% de réduction (tableau 2.3).

La déformation totale<sup>6</sup> est calculée en normalisant le déplacement des mors sur toute la longueur libre et immergée de la fibre afin de calculer la pente  $G$  de la courbe de contrainte-déformation. L'état de surface de la partie immergée de la fibre dans la matrice après le déchaussement a été observé au microscope. Nous avons constaté que la surface de la fibre devient plus lisse par rapport à son état initial (figure 2.29). Ce changement est dû à un mécanisme de "pelage" de la surface activée par le glissement de la fibre dans la matrice. Cette interprétation est une hypothèse plausible qui reste à confirmer par des observations microscopiques de la fibre sous MEB. La force maximale  $F_{max}$  ainsi que l'IFSS sont étudiées en fonction des caractéristiques géométriques de la partie immergée la fibre. Les figures 2.30 a,b,c montrent que la force maximale dépend du diamètre moyen de la fibre, de la longueur insérée et en conséquence de l'aire de contact  $S_{int}$  entre la fibre et la matrice.

La distribution de la contrainte de cisaillement apparente  $\tau_{app}$  en fonction du diamètre moyen de la fibre est ensuite représentée dans la figure 2.30 d. Nous constatons que  $\tau_{app}$  dépend du diamètre moyen de la fibre. Au contraire, il paraît qu'elle est indépendante de la longueur de l'interface  $l_e$  (figure 2.30 e).

La pente  $G$  de la courbe contrainte de cisaillement - déformation ( $\tau_{app} - \varepsilon$ ) est ainsi déduite grâce au calcul de la déformation totale. Elle désigne, en effet, la rigidité au cisaillement de l'interface. L'évolution en fonction du diamètre moyen de la fibre est montrée sur la figure 2.30 f. Nous constatons que plus le diamètre est grand, plus la rigidité  $G$  diminue.

Les résultats du cas de "déchaussement total" présentés ci-dessus sont résumés dans le tableau 2.3 dans la sous-section suivante.

6. Cette déformation comporte à la fois la déformation en traction de la fibre et la déformation en cisaillement de l'interface. Il est très difficile de découpler les deux déformations.

TABLE 2.1 – Synthèse des résultats : cas de rupture en traction

| $N^{\circ}$ | $\bar{d}(\mu m)$ | $L_{libre}(\mu m)$ | $F_{max}(N)$ | $\sigma_{app}(Mpa)$ | $\varepsilon_{max}(\%)$ | $E(Mpa)$ |
|-------------|------------------|--------------------|--------------|---------------------|-------------------------|----------|
| 148         | 55,66            | 168378             | 0,43         | 178,35              | 4,16                    | 5199,20  |
| 173         | 43,66            | 1985,74            | 0,27         | 179,59              | 2,77                    | 9119,45  |
| 185         | 37,64            | 1820,60            | 0,26         | 233,07              | 4,09                    | 7325,80  |
| 252         | 43,13            | 1863,56            | 0,20         | 135,49              | 1,50                    | 11561,50 |
| 268         | 72,52            | 1481,70            | 1,02         | 247,05              | 4,05                    | 8414,30  |
| 270         | 43,36            | 1880,04            | 0,17         | 117,57              | 1,76                    | 9341,10  |
| 276         | 64,93            | 1892,03            | 0,45         | 136,83              | 2,06                    | 8961,10  |
| 277         | 54,67            | 1817,73            | 0,24         | 104,17              | 1,49                    | 8385,50  |
| 281         | 79,60            | 1800,54            | 0,77         | 154,00              | 1,78                    | 11125,00 |
| 282         | 75,42            | 1713,22            | 1,09         | 242,87              | 3,09                    | 12066,00 |
| 310         | 57,36            | 1742,31            | 0,34         | 132,72              | 2,93                    | 5061,80  |
| Moyenne     | 57,09            | 1789,20            | 0,48         | 169,24              | 2,70                    | 8778,20  |
| Écart-type  | 13,79            | 127,41             | 0,31         | 48,99               | 1,01                    | 2206,29  |

TABLE 2.2 – Synthèse des résultats : cas du déchaussement partiel. Notes :  $\bar{d}_{ini}$  est le diamètre moyen total initial de la fibre ;  $\bar{d}_{sortie}$  est le diamètre moyen total de la partie déchaussée de la fibre. (L'éprouvette numéro 206 présente un déchaussement partiel avec la mode de rupture en traction de la fibre. Nous n'avons pas calculé la contrainte de cisaillement apparente  $\tau_{app}$  pour ce cas)

| $N^{\circ}$ | Mode de rupture   | $\bar{d}_{ini}(\mu m)$ | $\bar{d}_{sortie}(\mu m)$ | $l_e(\mu m)$ | $F_{max}(N)$ | $\tau_{app}(Mpa)$ |
|-------------|-------------------|------------------------|---------------------------|--------------|--------------|-------------------|
| 206         | Traction de fibre | 39,91                  | -                         | -            | -            | -                 |
| 264         | Mode mixte        | 70,20                  | 41,85                     | 970,53       | 0,21         | 1,65              |
| 272         | Mode mixte        | 90,55                  | 64,34                     | 1254,25      | 0,88         | 3,46              |

TABLE 2.3 – Synthèse des résultats : cas de déchaussement total. Notes :  $\bar{d}$  le diamètre moyen total de la fibre calculé pour la fibre déchaussée (après l'essai) ;  $A_{cir}$ ,  $A_{diag}$  sont respectivement l'aire de contact fibre/matrice utilisant l'approche circulaire et diagonale du profil de la section transversale de la fibre ;  $\tau_{app1}$  et  $\tau_{app2}$  sont respectivement la contrainte de cisaillement apparente à l'interface fibre/matrice calculée utilisant l'approche circulaire et diagonale du profil de la section transversale de la fibre

| $N^o$      | $\bar{d}(\mu m)$ | $l_e(\mu m)$ | $A_{cir}(mm^2)$ | $A_{diag}(mm^2)$ | $F_{max}(N)$ | $\tau_{app1}(Mpa)$ | $\tau_{app2}(Mpa)$ |
|------------|------------------|--------------|-----------------|------------------|--------------|--------------------|--------------------|
| 150        | 6739             | 877,57       | 0,18            | 0,21             | 0,79         | 4,24               | 3,82               |
| 153        | 44,50            | 1010,66      | 0,14            | 0,15             | 0,40         | 2,86               | 2,76               |
| 213        | 64,40            | 1016,00      | 0,2055          | 0,2285           | 0,58         | 2,84               | 2,55               |
| 240        | 62,77            | 1039,68      | 0,2050          | 0,2170           | 0,42         | 2,07               | 1,95               |
| 244        | 40,67            | 638,02       | 0,0815          | 0,0838           | 0,23         | 2,87               | 2,79               |
| 259        | 57,28            | 1061,45      | 0,1910          | 0,1898           | 0,65         | 3,4                | 3,42               |
| 269        | 35,92            | 924,42       | 0,1044          | 0,1070           | 0,25         | 2,38               | 2,32               |
| 271        | 70,07            | 1149,36      | 0,2530          | 0,2780           | 0,95         | 3,76               | 3,42               |
| 274        | 63,88            | 979,96       | 0,1967          | 0,2098           | 0,61         | 3,09               | 2,90               |
| 280        | 49,70            | 966,88       | 0,1509          | 0,1620           | 0,28         | 1,83               | 1,70               |
| 286        | 49,93            | 1304,81      | 0,2005          | 0,2124           | 0,53         | 2,64               | 2,50               |
| 299        | 35,89            | 880,02       | 0,0993          | 0,1035           | 0,23         | 2,27               | 2,18               |
| 314        | 92,51            | 1162,44      | 0,3378          | 0,3607           | 1,37         | 4,07               | 3,81               |
| 319        | 57,73            | 1075,58      | 0,1849          | 0,1969           | 0,55         | 2,98               | 2,79               |
| 329        | 71,84            | 977,73       | 0,2207          | 0,2421           | 0,51         | 2,33               | 2,13               |
| 330        | 66,27            | 1074,22      | 0,2236          | 0,2310           | 1,56         | 6,99               | 6,77               |
| 331        | 65,77            | 697,56       | 0,1441          | 0,1582           | 0,43         | 2,98               | 2,72               |
| 332        | 55,26            | 906,62       | 0,1574          | 0,1621           | 0,62         | 3,93               | 3,82               |
| 335        | 56,10            | 1130,19      | 0,1992          | 0,2067           | 0,90         | 4,50               | 4,34               |
| Moyenne    | 58,26            | 1007,35      | 0,1833          | 0,1948           | 0,62         | 3,26               | 3,09               |
| Ecart-type | 13,50            | 152,69       | 0,0572          | 0,0627           | 0,35         | 1,15               | 1,11               |

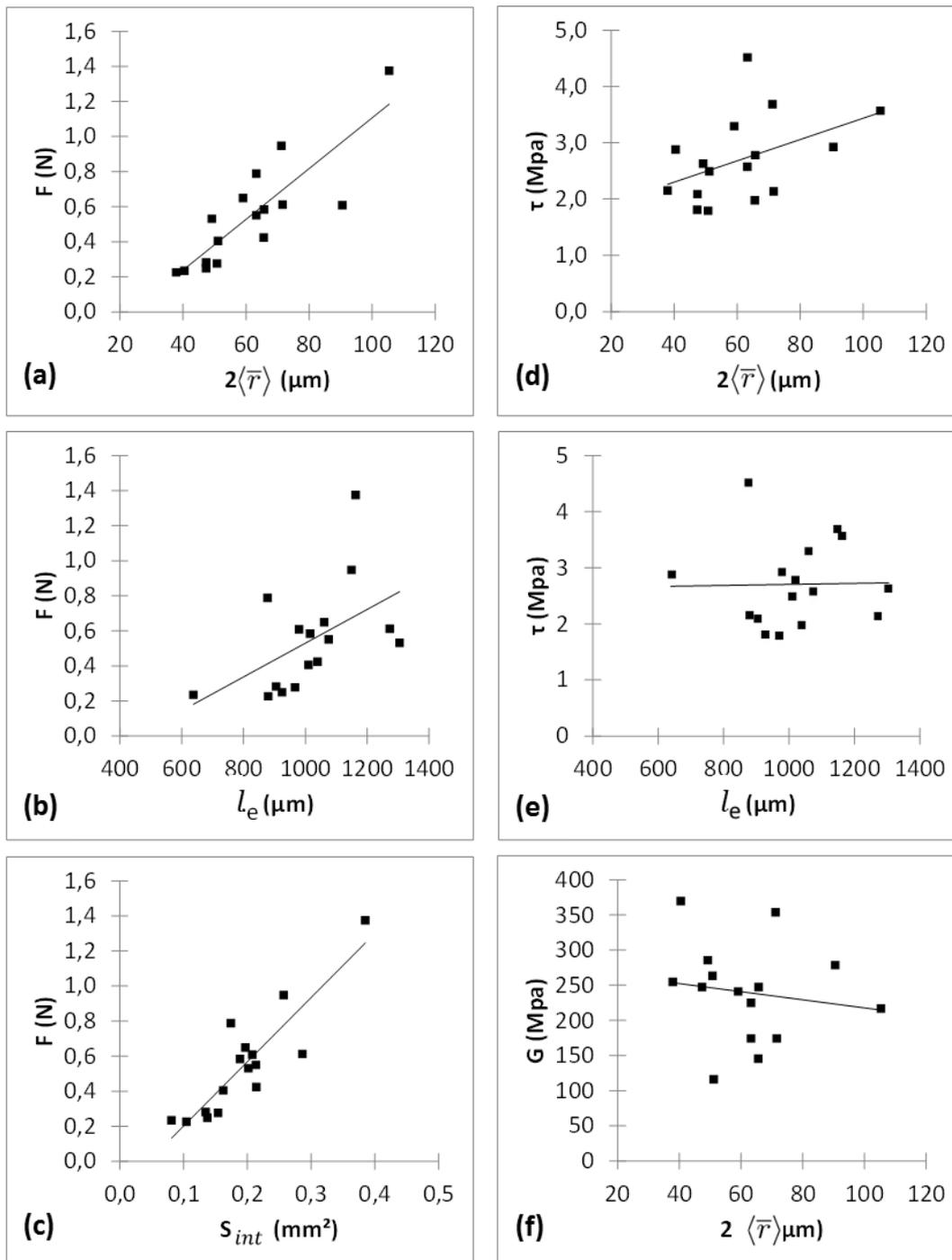


FIGURE 2.30 – Distribution de la force maximale de déchaussement en fonction de : (a) diamètre moyen total, (b) longueur de l'interface, (c) aire de contact ; Evolution de la contrainte apparente de cisaillement de l'interface fibre/matrice  $\tau_{app}$  en fonction du (de la) (d) diamètre moyen total (e) longueur d'interface ; (f) Evolution de la rigidité au cisaillement de l'interface  $G$  en fonction du diamètre moyen total

### 2.2.6 Synthèse des résultats "types"

Différents résultats des essais de déchaussement sont présentés : rupture de la fibre, déchaussement partiel et déchaussement total. Dans le cas d'une rupture en traction, nous constatons

premièrement que différentes ruptures peuvent se produire. Nous avons distingué deux types d'évolution de la force de traction en fonction du déplacement. Quand la longueur de l'interface  $l_e$  est grande, ce comportement est non linéaire. En réduisant  $l_e$ , il devient quasi-linéaire. Nous avons constaté que la résistance et la rigidité de la fibre obtenues sont moins grandes que celles obtenues via les essais sur les fibres seules. Cette diminution est causée par la dégradation thermique de la fibre durant le moulage. A l'inverse, la déformation à la rupture de la fibre est plus grande que celle obtenue des essais sur la fibre seule en raison de la contribution de la déformation de l'interface.

Le déchaussement partiel de la fibre est moins fréquent par rapport à deux autres cas. Si la rupture est en traction de la partie partiellement déchaussée de la fibre (mode mixte), le calcul des propriétés mécaniques n'est pas effectué. C'est le cas où la longueur de l'interface est grande. Lorsque la longueur de l'interface diminue, nous avons observé le deuxième mode de rupture : la fibre est partiellement rompue et la partie restante continue à être déchaussée. La rupture partielle en traction de la fibre peut se produire avant ou après le décollement total de l'interface fibre/matrice. La détermination de la surface de contact entre la partie déchaussée de la fibre et la matrice est possible ce qui permet d'estimer la contrainte interfaciale dans ces cas.

En diminuant la longueur de l'interface  $l_e$ , le déchaussement total devient très probable. L'IFSS a pu être calculée en moyennant des contraintes apparentes de cisaillement à la rupture de l'interface fibre/matrice. D'autres propriétés mécaniques de l'interface (la déformation à la rupture, la rigidité au cisaillement) sont également déterminées. Ses évolutions et ses dépendances permettent d'avoir un aperçu sur le comportement mécanique de l'interface fibre/matrice. Aussi, l'effet de la prise en compte la vraie géométrie de la fibre sur la caractérisation de l'interface a été étudiée. L'approche circulaire de la section transversale de la fibre peut conduire une surestimation de l'IFSS.

En conclusion, différents résultats de l'essai de déchaussement sont identifiés et analysés. Notamment, le déchaussement total de la fibre que nous avons observé nous a permis de caractériser de l'interface fibre/matrice ce qui est l'objectif de ce travail. Les valeurs interfaciales correspondantes à deux approches (circulaire et polygonale) de la section de la fibre ont été déduites et comparées afin de faire un choix entre deux géométries. Les résultats obtenus nous ont permis ensuite d'étudier l'influence de la température d'élaboration sur les propriétés de l'interface. Avant cette étude, une vérification de la température effective de moulage est nécessaire afin de déterminer précisément ses effets sur l'interface.

## 2.3 Détermination de la température effective du moulage

### 2.3.1 Introduction

Dans les parties précédentes, des éprouvettes ont été fabriquées par moulage à 190°C durant 60 minutes comprenant 15 minutes de chauffage et 45 minutes où la température est maintenue constante, comme indiqué sur la figure 2.9. Ces conditions sont obtenues suite à un processus d'optimisation en augmentant la température maximale de 160°C à 190°C. Notre but est de minimiser la température afin de limiter la dégradation thermique des fibres de chanvre. La température de moulage de 190°C est donc choisie pour la fabrication de nos éprouvettes à tester. Pour évaluer l'influence de la température de moulage sur les propriétés mécaniques à l'interface, deux autres températures plus élevées sont prises en considération 200°C puis 220°C. Les trois températures choisies (190°C, 200°C et 220°C) sont nettement supérieures à la température de fusion du PP qui varie entre 165°C et 176°C.

Pour bien assurer la fusion du PP, il est crucial de vérifier la température réelle de la poche

où le PP est moulé. Par cela, nous avons placé un thermocouple à l'endroit où le PP est fondu. Cela nous permettra d'identifier la température réelle de consigne du four.

### 2.3.2 Méthode de vérification

La mesure de la température est réalisée en utilisant un thermocouple avec un multimètre digitale. Le thermocouple est positionné directement dans le moule, comme montré sur la figure

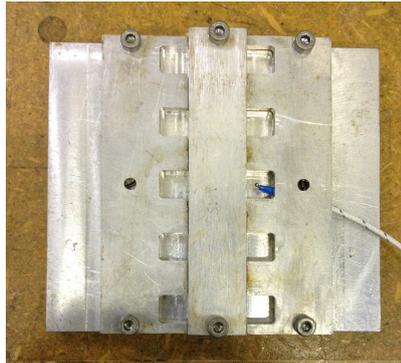


FIGURE 2.31 – Insertion du thermocouple dans le moule

2.31. Ensuite, le moule avec le thermocouple sont placés dans le four qui va être contrôlé avec



FIGURE 2.32 – Mesure de la température au sein du four

les mêmes configurations que précédemment, soit 15 minutes pour la montée en température jusqu'à 190°C, puis maintien constant pendant 45 minutes (figure 2.32).

La température affichée sur le contrôleur du four et celle mesurée par le thermocouple sont enregistrées toutes les 2 minutes. Nous pouvons ensuite identifier l'écart entre ces deux températures  $\Delta T$ . Cette opération sera répétée pour les températures programmées de 200°C et de 220°C.

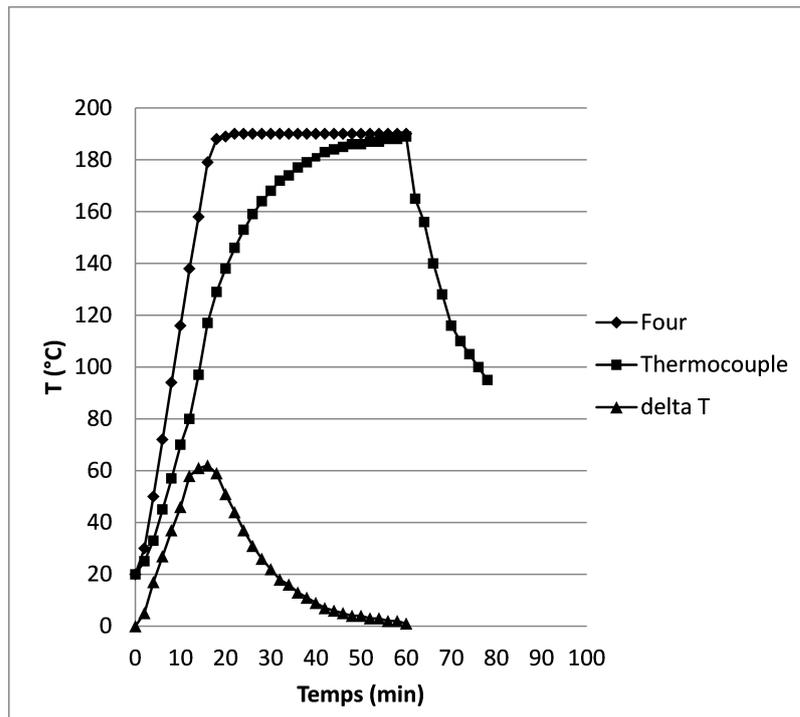


FIGURE 2.33 – Température du four et température mesurée par thermocouple, cas de fabrication à la température programmée de 190°C. Ici,  $\Delta T$  est la différence entre la température programmée du four et celle mesurée par le thermocouple

### 2.3.3 Résultats

La température initiale dans le four mesurée par le thermocouple est de 20°C. Pendant la première phase, la température du four évolue quasi-linéairement. Cette température va suivre la température de consigne pré-programmée. Après 15 min, la température maximale est bien maintenue à la valeur voulue et le régime permanent est atteint. Ces évolutions sont représentées sur les figures 2.33, 2.34 et 2.35, respectivement pour trois températures étudiées. D'un autre côté, la température mesurée par le thermocouple augmente lentement pendant quelques minutes au début. Ensuite, elle évolue presque linéairement jusqu'à environ 18 minutes. A partir de ce moment, la vitesse d'incrément diminue. C'est la période où la température du four est maintenue à sa valeur maximale. On peut voir clairement que la valeur mesurée dans le moule augmente moins vite que celle du four. En particulier, elle est effectivement inférieure à la température programmée du four au même moment. Ceci est exprimé par la courbe  $\Delta T$ , représentée sur les trois figures 2.33, 2.34 et 2.35. Cette différence augmente rapidement et atteint la maximale de 62°C à 16 minutes puis diminue progressivement quand la température du four est maintenue constante. Pendant les dix dernières minutes, la vraie température au four devient l'asymptote du palier température du four.

En suivant la température de la poche de PP du moule après avoir sorti du four, on voit une chute brutale de température et ensuite une diminution très rapide. Ces évolutions décrites ci-dessus sont représentées dans la figure 2.33 pour le cas de fabrication à 190°C. L'évolution de la température en fonction du temps est similaire pour les deux autres cas : 200°C et 220°C.

La différence entre la vraie température mesurée sur le moule et celle programmée impose une correction pour mieux tenir en compte l'effet de la température. En réalité, nous n'avons

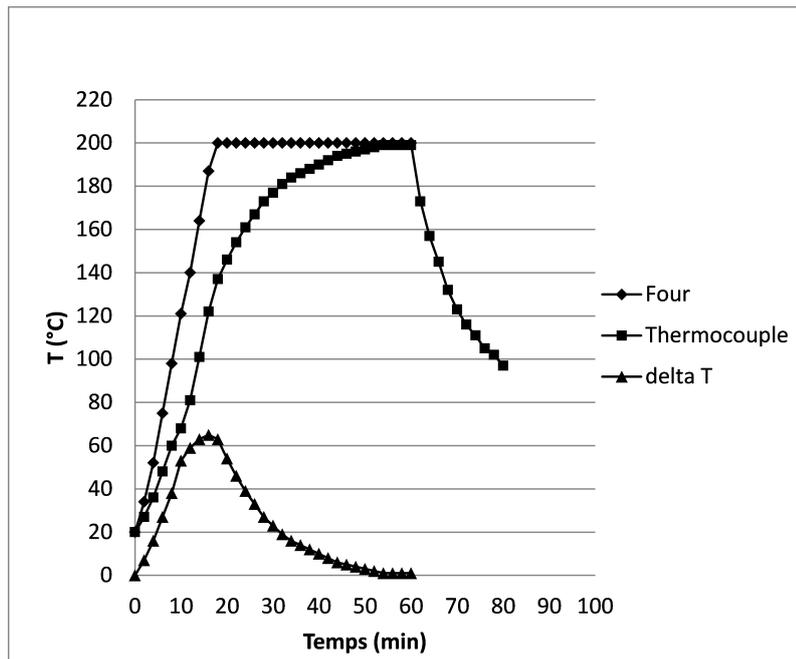


FIGURE 2.34 – Température du four et température mesurée par thermocouple, cas de fabrication à 200°C. Ici,  $\Delta T$  est la différence entre la température programmée du four et celle mesurée par le thermocouple

pas atteint la température programmée pour le plupart du temps de cuisson, à l'exception des dix dernières minutes. L'énergie effective pour faire fondre du polymère est réellement inférieure à celle calculée selon le trajet de la température de cuisson du four. Pour cela on définit une température moyenne équivalente à partir de la courbe d'évolution de la température mesurée.

L'idée est de moyenner la température en approchant l'aire de cette courbe par un rectangle ayant le même longueur - un interval de temps  $\Delta_t(\text{min})$ . Cet interval est choisi à partir de 18<sup>ème</sup> minutes. Par conséquent, la moyenne est de 173°C, pour un palier de 42 minutes. Cette température correspond à la température de fusion du PP.

## 2.4 Effet de la température de fabrication sur la résistance au cisaillement de l'interface

### 2.4.1 Introduction

La performance d'un matériau composite peut être influencée par plusieurs facteurs dont les paramètres de fabrication. Ces paramètres sont la pression et la température. Dans nos essais, les éprouvettes sont fabriquées par moulage au four sous la pression atmosphérique. Dans cette partie, l'influence de la température d'élaboration des éprouvettes composites sera étudiée. Quand la température est comprise entre 160°C et 185°C, le PP n'est pas complètement fondu après 60 minutes. La figure 2.36 représente le résultat de moulage à 160°C. Sur cette figure, les grains de PP restent encore sous leur forme initiale. Enfin, à 190°C, les échantillons deviennent corrects et utilisables pour nos essais. Ces valeurs correspondent à la température pré-programmée du four. Dans la suite du document, la température effective du moulage déterminée dans la section précédente 2.3 sera de 173°C (au lieu de 190°C programmée au four).

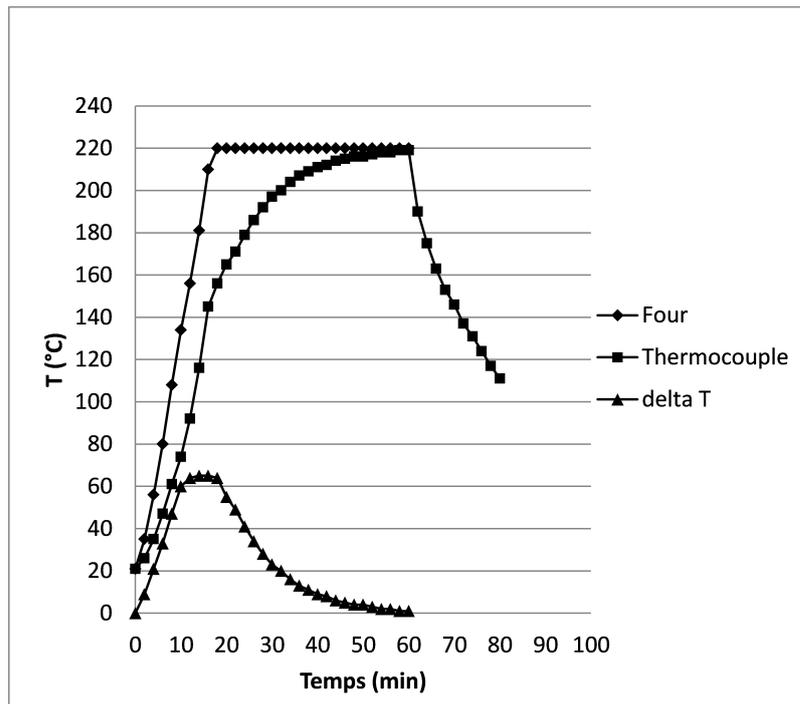


FIGURE 2.35 – Température du four et température mesurée par le thermocouple, cas de fabrication à 220°C. Ici,  $\Delta T$  est la différence entre la température programmée du four et celle mesurée par le thermocouple

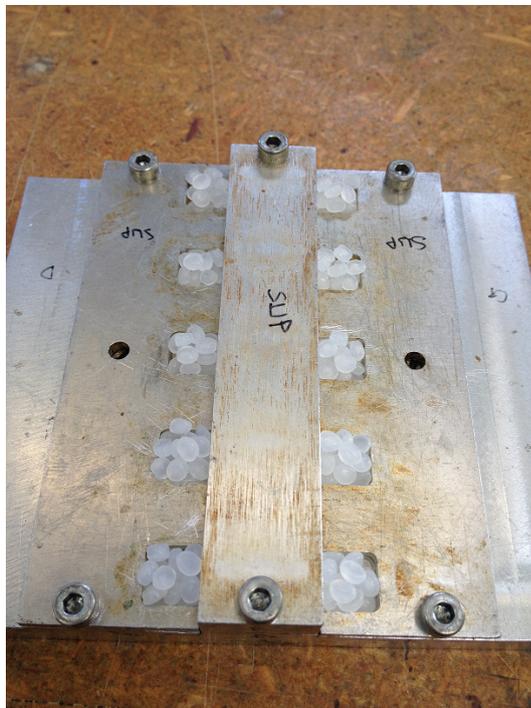


FIGURE 2.36 – Mauvais moulage à 160°C pendant 60 minutes

## 2.4.2 Objectif

Dans la littérature, l'influence de la température de la fabrication sur les propriétés des matériaux composites a été étudiée dans différents travaux, notamment dans des composites à base de fibres naturelles dont la stabilité thermique est limitée. Selon les travaux de Siaotong et al. [18], de X. Li et al. [104] et de Joseph P.-V. et al. [16], une basse température n'assure pas une bonne fusion du polymère. Par conséquent, la viscosité du mélange de fibres et du polymère fondu est trop importante provoquant une dispersion non uniforme des fibres dans le composite. Finalement, le matériau est moins résistant en traction. Aussi, la grande viscosité du mélange cause une contrainte de cisaillement importante au sein du mélange provoquant la rupture des fibres. Cette rupture des fibres contribue encore une fois à la diminution de la résistance en traction du matériau composite [16].

Inversement, une haute température peut produire une dégradation des fibres. En effet, les premières décompositions thermiques des matériaux ligno-cellulosiques peuvent être observables à 140°C [105]. Généralement, les fibres naturelles peuvent se dégrader à partir de 200°C et montrer une baisse de la résistance en traction du matériau [104].

Aussi, au moulage par compression, Khondker et al. [17] ont montré qu'à 175°C pendant 15 minutes, les fibres ligno-cellulosiques se dégradent fortement. Dans un autre travail, les auteurs S. K. Garkhail et al. [106] ont montré que les fibres de lin ont une faible stabilité thermique et peuvent être utilisées au maximum à 200-220°C.

A partir de ces deux effets contraires de la température, il existe une température optimale pour la fabrication d'un composite polymer/fibre naturelle. Ainsi Khondker et al. [17] ont étudié trois températures de fabrication d'un composite PP/jute : 140°C, 150°C et 160°C pour trouver l'optimale à 160°C (conditions de moulage : 2 MPa de pression durant 15 minutes puis refroidies à condition ambiante) à l'aide des observations micrographiques.

Dans le travail de Joseph P.-V. et al. [16], les auteurs ont étudié l'effet des paramètres de fabrication sur les propriétés mécaniques du composite fibres de sisal renforcées de polypropylène. La méthode de fabrication était par extrusion (melt-mixing technique). Ils ont fait varier la température du mélange de 165°C à 170°C et puis à 175°C pour évaluer l'influence de ce paramètre sur les propriétés mécaniques du composite. La résistance en traction du composite a augmenté de 27,18% (de 28,7 MPa à 36,5 MPa), puis diminue 7,34%, dans l'ordre des trois températures étudiées (figure 2.37, 2.38). La température optimale constatée est à 170°C. Les auteurs ont expliqué que lorsque le mélange dépasse la température optimale, la dégradation thermique de la fibre peut se produire causant une diminution de la résistance du composite. L'évolution des propriétés mécaniques du composite PP/sisal en fonction de la température d'élaboration est intéressante à mettre en relation avec la qualité de l'interface formée.

D'autres auteurs, S. K. Garkhail et al. [106], ont étudié la relation entre la température de cristallisation et la résistance au cisaillement de l'interface. Ils ont constaté que à haute température de cristallisation, l'épaisseur de la couche d'interphase "trans-cristallinité" (ce qui est formée autour de l'interface fibre/matrice) augmente conduisant une diminution de l'IFSS.

Enfin, M C Paiva et al. [107] ont montré, que plus la vitesse de refroidissement augmente, plus la résistance au cisaillement de l'interface augmente, à cause de la contrainte radiale thermique résiduelle de compression dans le polymère sur l'interface. Suite à ce phénomène, la longueur critique des fragments a également diminué de manière considérable (méthode de fragmentation).

En général, les études citées ci-dessus n'ont pas étudié de manière direct l'influence de la température de fabrication sur le comportement de l'interface fibre/matrice. Ainsi, il y a peu de valeurs interfaciales exprimées en fonction de la température d'élaboration. La présente section vise à mettre au clair l'évolution des propriétés mécaniques de l'interface en fonction de ce

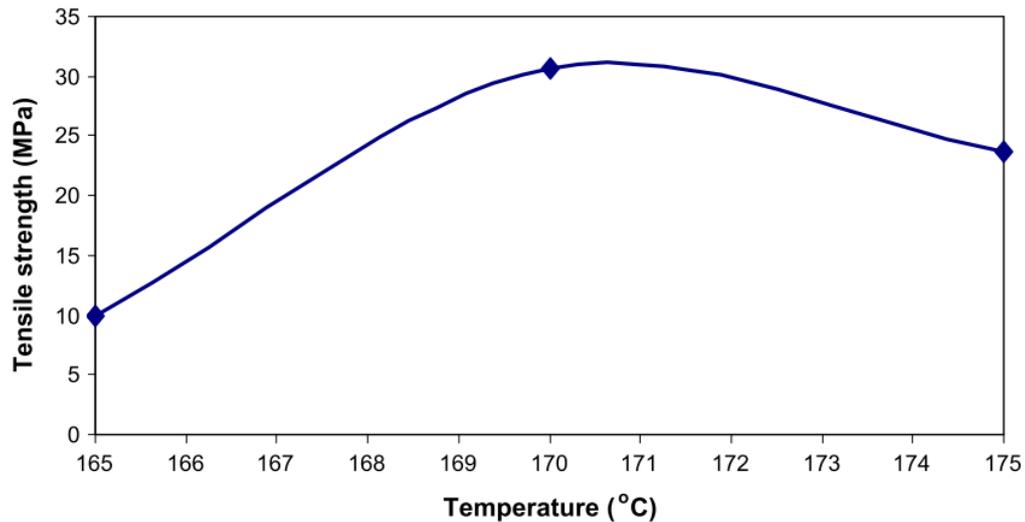


FIGURE 2.37 – Evolution de la résistance en traction du composite PP/sisal en fonction de la température (longueur des fibres : 10 mm, composition en fibres : 20%) [16].

| Temperature (°C) | Tensile strength (MPa) | Young's modulus (MPa) | Elongation at break (%) |
|------------------|------------------------|-----------------------|-------------------------|
| 165              | 28.7                   | 787.02                | 8                       |
| 170              | 36.5                   | 779.5                 | 8.33                    |
| 175              | 33.82                  | 1070                  | 6.77                    |

FIGURE 2.38 – Influence de la température d'élaboration sur les propriétés du matériau composite PP/sisal (méthode de moulage par extrusion, fibre de sisal de 10 mm de longueur, 20% composition de fibre) [16]

paramètre de fabrication grâce à trois études à 173°C, 183°C et à 202°C. Les résultats et les interprétations de l'influence de la température sur les propriétés mécaniques de l'interface seront présentés dans la partie suivante.

### 2.4.3 Comparaisons qualitatives

La partie libre de la fibre présente une couleur assez claire pour une éprouvette élaborée à 173°C (figure 2.39). A plus haute température, des évolutions de couleur sont visibles.

En effet, la partie libre de la fibre devient plus jaune/noir sous l'effet thermique lors du moulage. Ce phénomène est constaté à 183°C. La figure 2.40 représente un exemple (éprouvette numéro 635) où la fibre est devenue grise. Pourtant, la surface de la fibre reste encore assez claire à cette température. Plus la température augmente, plus l'éprouvette est brûlée par le chaleur du four. La figure 2.41 montre la partie libre d'une fibre (de l'éprouvette numéro 722 moulée à 202°C) qui a changé de couleur sous l'effet de la chaleur après le moulage. La fibre était de couleur mixte (très sombre et jaune à la fois) à la sortie du four. Ce phénomène est observé sur

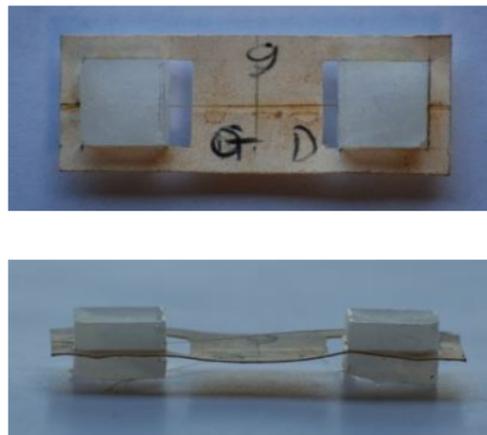


FIGURE 2.39 – Un exemple d'éprouvette fabriquée à 173°C

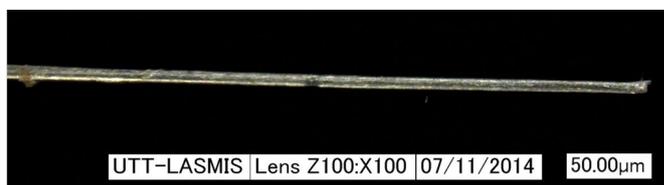


FIGURE 2.40 – Photo de la partie libre de la fibre de l'éprouvette numéro 635 fabriquée à 183°C. La surface de la fibre est grise mais encore claire après le processus de moulage

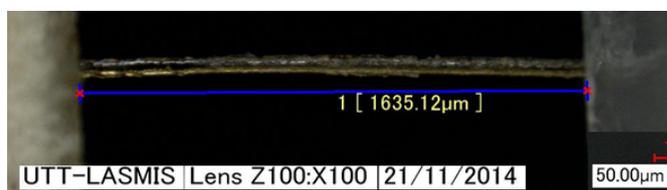


FIGURE 2.41 – Photo de la partie libre de la fibre de l'éprouvette numéro 722 fabriquée à 202°C. Elle a changé de couleur devenant plus sombre et plus jaune

plusieurs autres éprouvettes élaborées à cette température.

#### 2.4.4 Résultats

Dans cette partie, nous nous sommes particulièrement intéressés à la caractérisation mécanique des échantillons présentés précédemment. Les résultats ont été obtenus pour les trois températures d'élaboration 173, 183 et 202°C.

Nous pouvons voir l'influence de la température d'élaboration sur la rigidité et sur la déformation à la rupture et en particulier sur l'IFSS.

Les conditions expérimentales détaillées précédemment restent les mêmes pour l'ensemble des échantillons traités. Tous les résultats sont obtenus après un déchaussement total de la fibre.

## 2.4. Effet de la température de fabrication sur la résistance au cisaillement de l'interface

TABLE 2.4 – Tableau de nomenclature des données moyennes des fibres déchaussées ( $2\langle\bar{r}\rangle$  : diamètre moyen,  $S_{int}$  : surface de contact fibre/matrice à l'interface) et résultats de la résistance au cisaillement - IFSS, la rigidité au cisaillement  $G$  et la déformation à la rupture  $\varepsilon_r$  de l'interface à trois températures d'élaboration  $173^\circ C$ ,  $183^\circ C$  et  $202^\circ C$

| Temperature                          | $173^\circ C$                       | $183^\circ C$                       | $202^\circ C$                       |
|--------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|
| $2\langle\bar{r}\rangle$ ( $\mu m$ ) | $58,26 \pm 13,50$                   | $61,23 \pm 24,05$                   | $50,39 \pm 9,28$                    |
| $S_{int}$ ( $mm^2$ )                 | $1,93 * 10^{-1} \pm 6,99 * 10^{-2}$ | $1,54 * 10^{-1} \pm 7,13 * 10^{-2}$ | $1,27 * 10^{-1} \pm 3,13 * 10^{-2}$ |
| IFSS (Mpa)                           | $3,1 \pm 1,1$                       | $4,0 \pm 1,7$                       | $3,9 \pm 1,0$                       |
| $G$ (Mpa)                            | $283,51 \pm 101,42$                 | $389,98 \pm 171,19$                 | $364,79 \pm 65,97$                  |
| $\varepsilon_r$ (%)                  | $1,88 \pm 0,47$                     | $1,74 \pm 0,47$                     | $1,68 \pm 0,53$                     |

### 2.4.4.1 Sur les propriétés mécaniques

Les éprouvettes élaborées à  $183^\circ C$  ont un diamètre moyen de  $61,23 \pm 24,05 \mu m$ , soit légèrement plus grand que celui de  $58,26 \pm 13,50 \mu m$  des éprouvettes fabriquées à  $173^\circ C$  et vraiment plus important que la valeur de  $50,39 \pm 9,28 \mu m$  de celles qui sont fabriquées à  $202^\circ C$ . Le calcul du diamètre est effectué sur la longueur insérée de la fibre qui est déchaussée après l'essai (approche circulaire). Les surfaces en contact sont calculées en utilisant l'approche polygonale de la section transversale de la fibre. Elles sont de  $1,93 * 10^{-1} \pm 6,99 * 10^{-2} mm^2$ ,  $1,54 * 10^{-1} \pm 7,13 * 10^{-2} mm^2$  et  $1,27 * 10^{-1} \pm 3,13 * 10^{-2} mm^2$  respectivement pour des éprouvettes élaborées à  $173^\circ C$ , à  $183^\circ C$  et à  $202^\circ C$ .

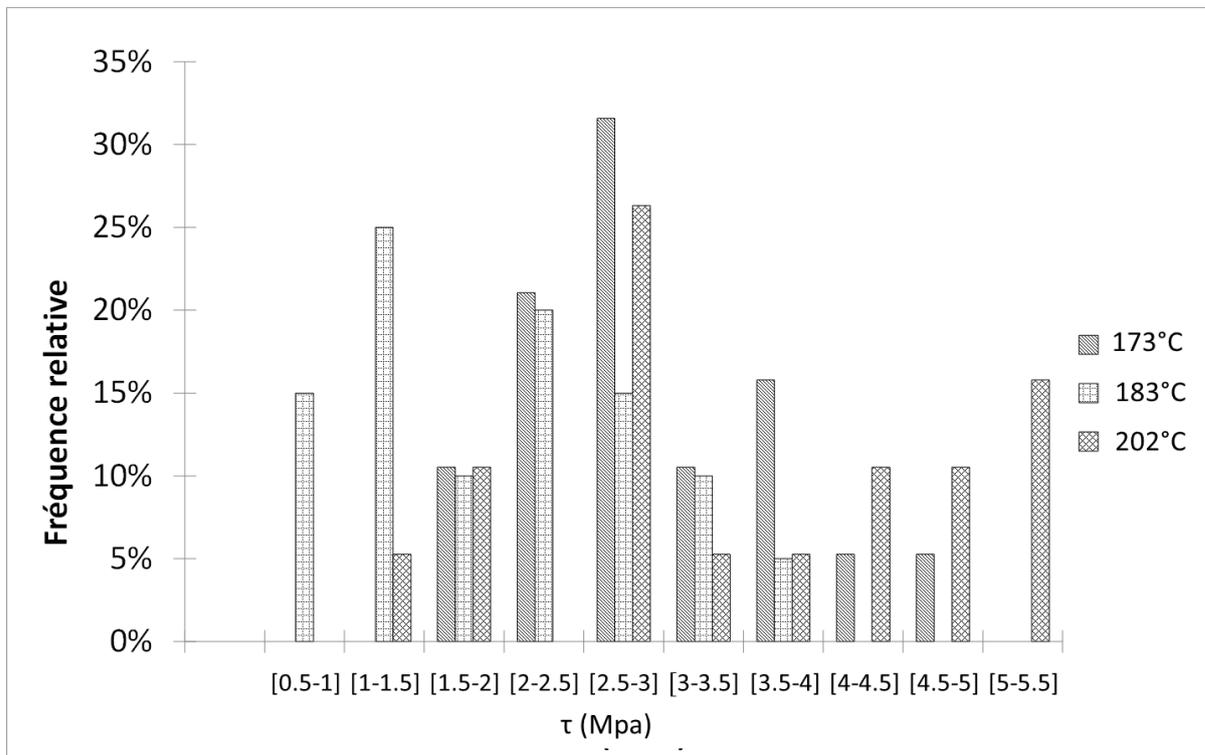


FIGURE 2.42 – Distribution statistique de la résistance au cisaillement de l'interface fibre/matrice à trois températures d'élaboration

Nous avons remarqué une diminution du diamètre moyen pour des fibres déchaussées quand la température augmente. De plus, la longueur de l'interface a aussi baissé. Par conséquent, on voit une diminution considérable de  $S_{int}$  quand T évoluait de 173°C à 202°C. Ces données sont présentées dans le tableau 2.4.

Le calcul de la contrainte de cisaillement de l'interface se fait utilisant la formule 2.4. L'IFSS est respectivement de  $4,0 \pm 1,7 MPa$  et de  $3,90 \pm 1,03 MPa$  correspondant à deux températures d'élaboration effectives de 183°C et de 202°C. La distribution statistique de la contrainte de cisaillement à trois températures de fabrication est présentée sur la figure 2.42. Nous pouvons constater la distribution des contraintes de cisaillement sont asymétriques à gauche.

La moyenne de la déformation maximale à la rupture  $\epsilon_r$  a diminué de  $1,88 \pm 0,47\%$  en 173°C à  $1,74 \pm 0,47\%$  puis à  $1,68 \pm 0,53\%$  respectivement à 183°C et 202°C. Les taux de diminution sont de 7,5% et puis de 10,8%. Ces résultats peuvent être reliés à la dégradation thermique de la fibre lors du moulage.

A l'inverse, la rigidité au cisaillement  $G$  de l'interface évolue de la même façon que l'IFSS. La rigidité  $G$  évolue de  $283,51 \pm 101,42 MPa$  à 173°C et de  $389,98 \pm 171,19 MPa$  à 183°C (+38,56%) et puis diminue légèrement à  $364,79 \pm 65,97 MPa$  à 220°C (-6,46%).

La dépendance des propriétés mécaniques de l'interface en fonction de trois températures d'élaboration est aussi représentée sur la figure 2.43.

#### 2.4.4.2 Interprétations

Dans notre travail, la résistance au cisaillement de l'interface PP/chanvre à 173°C est de  $3,1 \pm 1,1 MPa$ . Sa valeur maximale est de  $4,0 \pm 1,7 MPa$  à 183°C (augmente 29,45%) et puis elle diminue légèrement (2,5%) à  $3,9 \pm 1,03 MPa$  à 202°C. Ce résultat, est à mettre en relation avec le travail de Joseph PV et al. [16]. Cependant, ces auteurs n'ont pas parlé dans ce travail du rôle de l'interface aux changements des propriétés mécaniques globales du matériau composite.

A 183°C, le PP plus adhésif permet de générer une interface de meilleure qualité. La mobilité des chaînes moléculaires dans les deux composants du composite (la fibre et la matrice) augmente, conduisant une plus forte inter-diffusion de chacun dans l'autre matériau (selon la théorie de l'inter-diffusion [108]).

Aussi, à 183°C, le PP est plus fluide. De ce fait, il crée des zones d'encrage avec la fibre de meilleure qualité et la résistance interfaciale est ainsi augmentée. L'IFSS est aussi améliorée par le refroidissement plus important. Plus précisément, la contrainte résiduelle radiale qui se génère pendant le refroidissement augmente en passant de 173°C à 183°C. Par conséquent, l'énergie résiduelle de la liaison de l'interface fibre/matrice a augmenté conduisant à une IFSS plus élevée.

Pourtant, un autre phénomène est aussi à prendre en considération. L'eau contenue dans la fibre s'évapore un peu plus à 183°C. Cette évaporation confinée à l'interface peut diminuer l'IFSS. En effet, dans les conditions habituelles de stockage, les fibres de chanvre contiennent environ 10,8% (en masse) d'eau absorbée qui joue un rôle de plastifiant des parois végétales. Un étuvage prolongé des fibres à plus de 100°C va conduire à une perte irréversible des propriétés des parois [109]. La dégradation des parois peut conduire à la diminution de propriété de l'interface (faible liaison chimique ou rupture de l'interface fibre/matrice en raison de la décohésion des parois cellulosiques). Enfin, selon plusieurs études, à 202°C, il semble que la limite de stabilité thermique des fibres de chanvre soit atteinte.

D'autre part, dans les matériaux composites renforcés par des fibres cellulosiques, il paraît une morphologie cristalline particulière d'une matrice semi-cristalline près de la surface fibreuse. Ici, il y a une concentration de chaînes polymères plus courtes et de mobilité réduite au voi-

2.4. Effet de la température de fabrication sur la résistance au cisaillement de l'interface

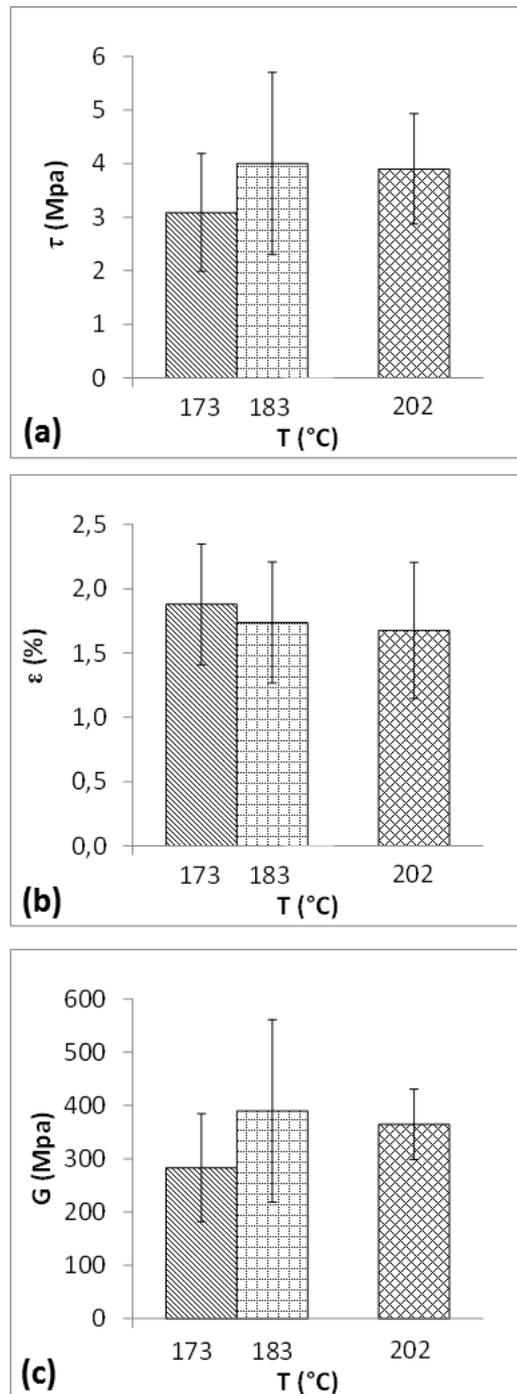


FIGURE 2.43 – Evolution de : (a) l'IFSS, (b) la déformation à la rupture et (c) la rigidité au cisaillement de l'interface en fonction de la température d'élaboration  $T$

sinage de l'interface ce qui forme une couche de trans-cristallinité (couche d'interphase). La présence de cette couche entraîne une réduction des propriétés mécaniques et thermiques de l'interface/interphase fibre/matrice. Quand la température d'élaboration augmente, l'épaisseur de la couche de trans-cristallinité augmente, la résistance au cisaillement de l'interface peut donc

être diminuée [106].

Cette morphologie cristalline de l'interface a ainsi un lien avec la diminution du diamètre des fibres après le moulage observée dans ce travail. En effet il existe une couche d'interphase de faibles propriétés mécaniques autour de la fibre. Lors de la sollicitation, les efforts sont transmis à travers cette interphase. Ceci conduit à des pertes de matière de la fibre et fait diminuer leur diamètre.

A partir des interprétations ci-dessus, nous constatons différents facteurs influençant les propriétés mécaniques de l'interface fibre/matrice dans l'étude de l'influence de la température d'élaboration. Quand la température augmente, le rôle de chaque facteur est différent mais devient complémentaire. A 183°C, on ne dépasse pas encore la limite de stabilité thermique des fibres de chanvre. Ensuite, l'effet de la couche de la trans-cristallinité devient important en dépassant 183°C, température à laquelle la meilleure résistance au cisaillement de l'interface est obtenue.

## 2.5 Conclusions du chapitre

Ce chapitre est consacré au développement et à l'utilisation de la méthode du "pull out" pour caractériser finement l'interface fibre/matrice.

Nous avons défini la méthodologie mise en place dans notre laboratoire pour développer la méthode du pull-out et avons utilisé cette méthode sur plusieurs cas d'étude. Après avoir défini les principes de la méthode, nous avons défini la procédure idéale et les paramètres d'essai associés. Les premiers résultats types nous ont permis de définir différentes configurations liées à la sollicitation. Ces résultats sont :

- (i) Un déchaussement total de la fibre (résultat idéal)
- (ii) Un déchaussement partiel (résultat non conforme)
- (iii) Une rupture de la fibre en dehors de la matrice (résultat inapproprié)

Nous avons ensuite fait une étude sur la température d'élaboration des échantillons. En effet, la température est un paramètre très important sur la qualité de l'interface. Notre étude s'est focalisée sur trois températures d'élaboration effectives (173°C, 183°C et 202°C). Ces trois températures ont été choisies en utilisant un thermocouple comme moyen de contrôle dans la cavité occupée par la matrice. D'autres températures (inférieure à 173°C et supérieure à 202°C) ont été testées mais ne présentent aucun intérêt pour ce travail. Notre conclusion est qu'à 183°C, l'interface est la plus intéressante.

En effet, à 173°C les granulés PP ne sont pas correctement fondus et ces échantillons n'ont pas permis de faire des mesures représentatives pour notre étude.

A 202°C, la qualité des fibres est souvent dégradée. Nous avons constaté beaucoup de rupture de fibres en dehors du PP. A 202°C les fibres ont surtout été dégradées et leurs propriétés mécaniques ont considérablement diminué.

En conclusion, cette étude nous a permis de mettre au point la méthode du pull-out et de tester environ 600 échantillons pour pouvoir qualifier trois modes de sollicitation de l'interface décrit ci-dessus. Suite à cette première étude, nous allons regarder l'influence du vieillissement à l'humidité relative (HR) sur les propriétés de l'interface.

## Chapitre 3

# Effet du vieillissement sur les propriétés mécaniques de l'interface fibre/matrice

### Sommaire

---

|            |  |           |
|------------|--|-----------|
| <b>3.1</b> | <b>Introduction</b>                                  | <b>77</b> |
| <b>3.2</b> | <b>Matériaux et méthodes</b>                         | <b>78</b> |
| 3.2.1      | Matériaux  | 78        |
| 3.2.2      | Méthodes   | 79        |
| <b>3.3</b> | <b>Résultats</b>                                     | <b>81</b> |
| <b>3.4</b> | <b>Effet du vieillissement à l'humidité relative</b> | <b>84</b> |
| 3.4.1      | Sur des propriétés qualitatives                      | 84        |
| 3.4.2      | Sur des propriétés mécaniques                        | 86        |
| <b>3.5</b> | <b>Synthèse des résultats</b>                        | <b>92</b> |
| 3.5.1      | Synthèse des résultats                               | 92        |
| <b>3.6</b> | <b>Conclusions</b>                                   | <b>95</b> |
| <b>1</b>   | <b>Conclusions</b>                                   | <b>96</b> |
| <b>2</b>   | <b>Perspectives</b>                                  | <b>97</b> |

---

### 3.1 Introduction

Le vieillissement et la durabilité des agro-composites sont des défis critiques qui limitent leur utilisation dans différentes applications (construction, naval, ...). En effet, plusieurs travaux ont été consacrés à l'étude de l'évolution des propriétés mécaniques des agro-composites lorsqu'ils sont soumis à des différents facteurs de vieillissement [98, 110, 99, 111, 112]. Pourtant, dans ces travaux, l'altération des propriétés mécaniques de l'interface fibre/matrice de ces agro-composites n'est abordée qu'à travers des études qualitatives en suivant l'état de la fibre (fissuration de surface de fibre, détachement des composants d'une fibre ou d'un faisceau de fibres,...). Une étude qui se concentre directement à l'évolution des propriétés mécaniques de l'interface durant le vieillissement est donc indispensable pour :

- (i) estimer la durée de vie du composite,

(ii) prendre en compte le problème du vieillissement dans la phase de conception et anticiper ces conséquences,

(iii) compléter et interpréter les observations qualitatives dans les travaux mentionnés ci-dessus.

En effet, quelques travaux dans la littérature ont étudié directement le problème de vieillissement de l'interface. Le Duigou et al. [19] ont caractérisé la dégradation de l'interface fibre de lin/epoxy à l'eau de mer. D'autres auteurs, Seki et al. [20], ont suivi l'évolution de la contrainte interlaminaire des composites jute/polyester en progression du vieillissement à l'eau de mer et à l'eau déminéralisée. Dans ces deux travaux, les auteurs ont utilisé l'essai de déchaussement d'une micro-goutte (microbond test) dans la première étude alors que l'essai de flexion trois points est utilisé pour la deuxième étude. Toutes les deux études ont montré que les propriétés mécaniques de l'interface ont diminué fortement dans des conditions de vieillissement à l'eau.

Cependant, l'essai de déchaussement d'une micro-goutte utilisé dans le travail de Le Duigou et al. [19] est difficile à manipuler en raison des petites dimensions des micro-gouttes. En effet, la longueur des micro-gouttes est limitée à environ  $250\mu m$ . La longueur de l'interface fibre/matrice des éprouvettes micro-gouttes est aussi petite pour cette raison. Cette longueur n'est pas suffisamment grande pour représenter la vraie interface fibre/matrice des agro-composites.

Pour améliorer ces inconvénients de l'interface fibre/matrice, un protocole expérimental de caractérisation de l'interface fibre de chanvre/polypropylène a été développé et présenté dans le chapitre précédant. Dans ce protocole expérimental, la longueur de l'interface est d'environ  $1000\mu m$ , soit plus longue et plus représentative de la vraie interface dans le composite par rapport aux éprouvettes de micro-gouttes. Par conséquent, les valeurs mesurées à l'interface sont cohérentes aux valeurs trouvées dans la littérature permettant d'étudier le comportement mécanique de l'interface. Ces résultats nous encouragent à appliquer la méthode développée à une étude sur les éprouvettes micro-composites vieilles afin d'évaluer l'impact du vieillissement sur les propriétés mécaniques à l'interface chanvre/PP et sur la durabilité du composite en générale.

En outre, les études de vieillissement à l'HR ci-dessus [20, 19] visent à regarder l'effet du vieillissement sur des interfaces vieilles par immersion dans l'eau, une condition de vieillissement extrême. Nous proposons dans ce travail de simuler des conditions de vieillissement plus réalistes dans une étuve de vieillissement accéléré afin d'examiner ses effets sur les propriétés mécaniques des interfaces fibre de chanvre/polypropylène.

Dans ce chapitre, nous allons présenter premièrement les matériaux utilisés pour l'étude de l'influence du vieillissement à l'HR sur l'interface fibre de chanvre/polypropylène. Nos résultats seront comparés à quelques études de la littérature afin de mettre en évidence la contribution de cette étude sur la compréhension du comportement de l'interface fibre/matrice.

## 3.2 Matériaux et méthodes

### 3.2.1 Matériaux

Pour les essais de vieillissement, des micro-éprouvettes composites ont été fabriquées par la même méthode expliquée dans le chapitre précédent et en utilisant la même nuance des fibres de chanvre et la même matrice de polypropylène. La fabrication des éprouvettes est réalisée à une température de  $173^{\circ}C$  durant une heure, à l'aide d'un four de traitement thermique. La longueur de l'interface choisie est de  $1000\mu m$ .

Deux cents éprouvettes ont été fabriquées pour les exposer au vieillissement à l'HR dans une enceinte climatique. Cinquante échantillons sont retirés et testés chaque semaine, durant quatre



FIGURE 3.1 – Présentation de l'étuve de vieillissement ATLAS SUNTEST XXL/XXL+

semaines. L'étuve est équipée d'un système de ventilation pour que la température et l'humidité relative soient homogènes dans toute l'espace de vieillissement [21]. La figure 3.1 présente de l'enceinte ATLAS SUNTEST XXL/XXL+ que nous avons utilisé. La figure 3.2 montre des éprouvettes positionnées dans l'enceinte de vieillissement.

### 3.2.2 Méthodes

Pour étudier l'influence du vieillissement à l'HR sur l'interface fibre de chanvre/PP, les micro-échantillons composites sont exposés dans une étuve climatique où des cycles de vieillissement accélérés à l'HR sont effectués. Nous avons choisi de reproduire la condition climatique à Paris en France pour notre essais de vieillissement. Il s'agit d'une moyenne annuelle de l'humidité relative de 78%. La moyenne de la température d'été est de 20°C. Le temps d'ensoleillement moyen quotidien est de 3 à 8 heures. Nous avons simulé ensuite la pluie dans la nature par des arrosages qui lavent la surface des éprouvettes. Ces conditions climatiques sont représentées par des courbes climatiques, présentées dans la figure 3.3 [21].

Les paramètres du test de vieillissement à l'HR sont choisis selon les conditions de la norme HR3 parmi trois tests de vieillissement à l'HR (figure 3.4) [21]. Il s'agit les conditions ci-après :

- L'humidité relative de 80%, à 20°C sans éclairement,
- Le cycle de vieillissement est de 2 heures comprenant 102 min d'exposition puis 18 min d'arrosage (Norme ISO 4892-2),
- La durée de vieillissement est de 4 semaines (672 heures) et 50 éprouvettes à retirer et à tester chaque semaine (200 éprouvettes au total)

Après avoir été vieillis dans l'enceinte climatique, les éprouvettes sont retirées et laissées pendant environ 24 heures dans la chambre (humidité relative HR d'environ 50%, température T d'environ 20-25°C) pour le séchage. Cette étape permet aux éprouvettes de reprendre l'état



FIGURE 3.2 – Éprouvettes positionnées dans l'enceinte de vieillissement

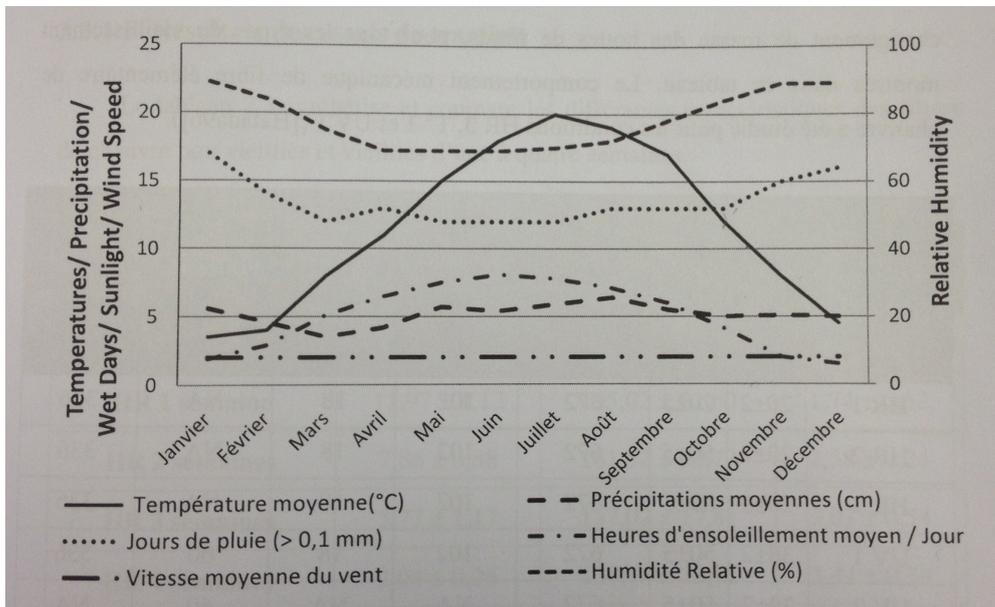


FIGURE 3.3 – Courbes climatiques en France, mesurées à Paris [21].

de l'HR naturelle comme avant le vieillissement et mais aussi d'éviter l'évaporation de l'eau absorbée par les fibres et par l'interface lors du vieillissement.

Les éprouvettes ont subi ensuite des essais de déchaussement. La procédure expérimentale de l'essai de déchaussement est identique à celle décrite dans la chapitre 2. On utilise la micro machine de traction équipée d'une cellule de force de 100N. La vitesse de la traverse est de

| Condition du vieillissement | CHT (°C) | HR (%) | Temps d'exposition (h) | Exposition phase1 (min) | Exposition phase2 (min) | Éclairement (W/m²) | Cycles d'arrosage |
|-----------------------------|----------|--------|------------------------|-------------------------|-------------------------|--------------------|-------------------|
| HR 1                        | 20±2     | 20±5   | 672                    | 102                     | 18                      | NA                 | 336               |
| HR 2                        | 20±2     | 50±5   | 672                    | 102                     | 18                      | NA                 | 336               |
| HR 3                        | 20±2     | 80±5   | 672                    | 102                     | 18                      | NA                 | 336               |
| UV 1                        | 38±2     | 50±5   | 672                    | 102                     | 18                      | 60                 | 336               |
| UV 2                        | 38±2     | 50±5   | 672                    | NA                      | NA                      | 60                 | NA                |
| T° 1                        | 38±2     | 50±5   | 672                    | NA                      | NA                      | NA                 | NA                |
| T° 2                        | 65±2     | 50±5   | 672                    | NA                      | NA                      | NA                 | NA                |

FIGURE 3.4 – Conditions de vieillissement et cycle d'exposition [21].

$1\mu m/s$ . Les essais sont suivis par un microscope numérique.

La contrainte de cisaillement  $\tau_{app}$  à l'interface fibre/matrice est calculée selon la relation 2.4. On note que l'aire de contact interfaciale fibre/matrice est calculée en considérant que le profil de la section transversale de la fibre est polygonal. De plus, la déformation maximale à la rupture  $\varepsilon_{max}$  de l'interface est estimée en supposant que toute la longueur de la fibre (libre et insérée) est déformée. Ensuite, grâce à la contrainte de cisaillement de l'interface et la déformation, nous avons établi la courbe contrainte de cisaillement - déformation maximale à la rupture ( $\tau_{app}$  -  $\varepsilon_{max}$ ) et avons déduit, de cette courbe, la rigidité de l'interface  $G$  (la pente de la partie linéaire).

### 3.3 Résultats

Après leur exposition aux cycles de vieillissement à l'HR dans l'enceinte climatique, cinquante éprouvettes sont enlevées chaque semaine pour effectuer la caractérisation de l'interface.

Les courbes force - déplacement des essais de déchaussement sont enregistrées. Des exemples de courbes force-déplacement typiques des essais de déchaussement sur des éprouvettes non vieilles et vieilles à 4 semaines à l'HR sont représentées sur la figure 3.5. Nous avons constaté que la pente de la courbe force - déplacement (sur la partie linéaire) a tendance à diminuer.

De plus, le comportement des éprouvettes après le seuil maximal de la force sollicitée a changé en fonction du vieillissement à l'HR. Notamment, le seuil maximum de la force dans certains cas n'est plus clair et nous avons obtenu alors un palier de force avant qu'elle se diminue.

Le diamètre moyen, la surface de contact interfaciale fibre/matrice et la force maximale sont calculés et moyennés. Le synthèse des résultats pour chaque semaine de vieillissement est présentée comme suit :

- Après une semaine de vieillissement à l'HR, il y a 31 sur un total de 50 éprouvettes testées qui seront déchaussées correctement. La moyenne des diamètres moyens  $d = 2\langle\bar{r}\rangle$  des fibres déchaussées est de  $56,63 \pm 15,91\mu m$ . La surface de contact moyenne  $S_{int}$  est de  $1,9 * 10^{-1} \pm 5,58 * 10^{-2}mm^2$ . Et la moyenne de la force maximale de déchaussement  $F_{max}$  est de  $0,35 \pm 0,35N$ .

L'évolution de la force maximale de déchaussement en fonction du diamètre moyen de la fibre  $d$ , de la longueur de l'interface fibre/matrice  $l_e$  et de la surface de contact fibre/matrice  $S_{int}$  des éprouvettes exposées à une semaine de vieillissement à l'HR est

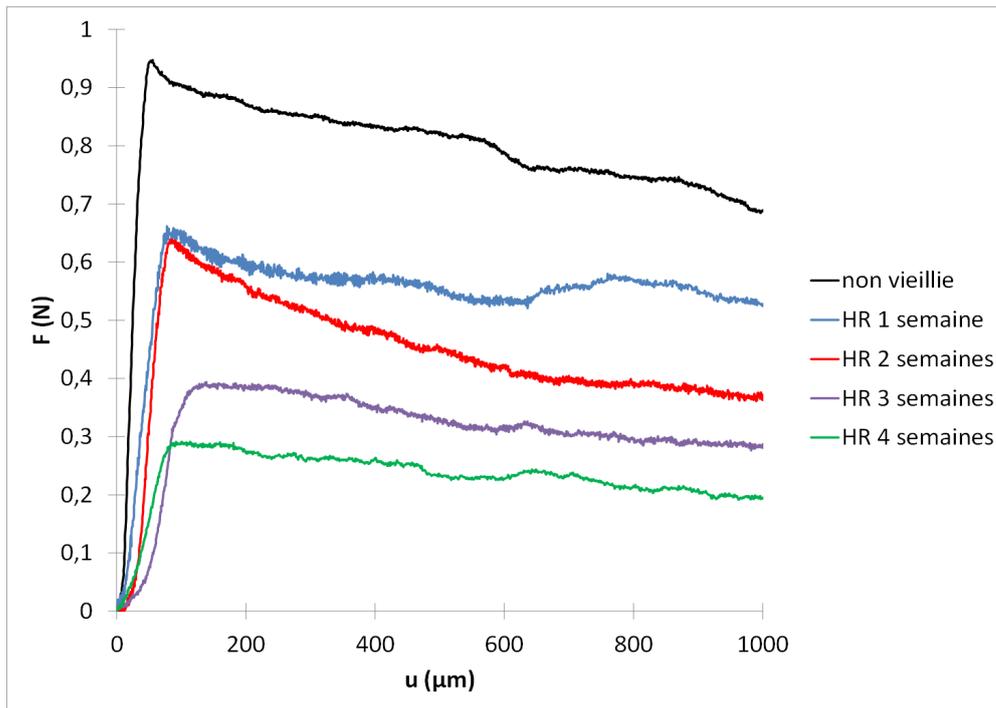


FIGURE 3.5 – Exemples de courbes force-déplacement typiques pour les éprouvettes non vieilles et vieilles

présentée dans la figure 3.6a.

- Après deux semaines de vieillissement, parmi les 50 éprouvettes testées, 25 éprouvettes seulement ont subi un déchaussement total. La moyenne des diamètres moyens  $d$  des fibres déchaussées est de  $48,27 \pm 11,93 \mu m$ , la surface de contact moyenne  $S_{int}$  est de  $1,58 * 10^{-1} \pm 3,87 * 10^{-2} mm^2$  et la force maximale moyenne de déchaussement  $F_{max}$  est de  $0,38 \pm 0,25 N$ .

L'évolution de la force maximale de déchaussement  $F_{max}$  en fonction du diamètre moyen de la fibre  $d$ , de la longueur de l'interface fibre/matrice  $l_e$  et de la surface de contact fibre/matrice  $S_{int}$  des éprouvettes à deux semaines de vieillissement à l'HR sont représentées dans la figure 3.6b.

- Après trois semaines de vieillissement, 27 éprouvettes parmi 50 ont subi un déchaussement total. La moyenne du diamètre moyen  $d$  des fibres déchaussées est de  $65,48 \pm 15,37 \mu m$ , de la surface de contact  $S_{int}$  :  $2,43 * 10^{-1} \pm 7,02 * 10^{-2} mm^2$  et de la force maximale de déchaussement  $F_{max}$  :  $0,53 \pm 0,34 N$ .

L'évolution de la force maximale de déchaussement  $F_{max}$  en fonction du diamètre moyen de la fibre  $d$ , de la longueur de l'interface fibre/matrice  $l_e$  et de la surface de contact fibre/matrice  $S_{int}$  des éprouvettes testées après trois semaines de vieillissement à l'HR est représentée dans la figure 3.6c

- Après quatre semaines de vieillissement, 32 éprouvettes parmi 50 ont subi un déchaussement total. Le diamètre moyen  $d$  des fibres déchaussées a une moyenne de  $52,78 \pm 11,45 \mu m$ . Cette valeur de la surface de contact à l'interface  $S_{int}$  est de  $1,71 * 10^{-1} \pm 6,16 * 10^{-2} mm^2$  lorsque celle de la force maximale de déchaussement  $F_{max}$  vaut  $0,22 \pm 0,22 N$ . L'évolution de la force maximale de déchaussement  $F_{max}$  en fonction du diamètre moyen de la fibre  $d$ , de la longueur de l'interface fibre/matrice  $l_e$  et de la surface de contact

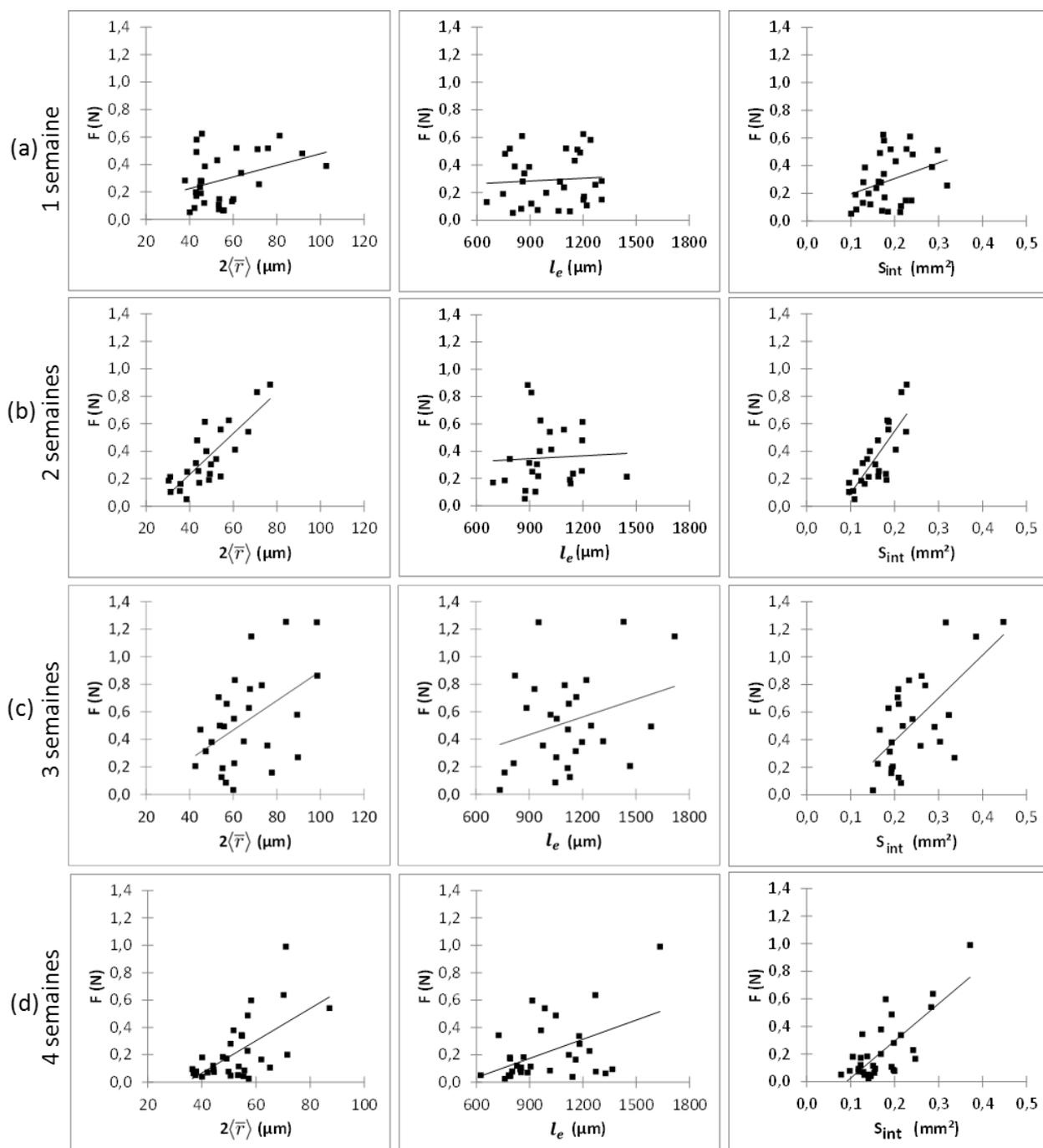


FIGURE 3.6 – Evolution de la force maximale de déchaussement  $F_{max}$  en fonction du diamètre moyen de la fibre  $d = 2\langle\bar{r}\rangle$ , de la longueur de l'interface fibre/matrice  $l_e$  et de la surface de contact à l'interface  $S_{int}$  des éprouvettes après (a) 1 semaine, (b) 2 semaines, (c) 3 semaines et (d) 4 semaines de vieillissement à l'HR.

fibres/matrice  $S_{int}$  des éprouvettes testées après quatre semaines de vieillissement à l'HR est représentée dans la figure 3.6d. La nomenclature des résultats décrits ci-dessus est représentée dans le tableau 3.1.

TABLE 3.1 – Nomenclature de la moyenne des diamètres moyens  $d$  des fibres déchaussées, de la surface de contact  $S_{int}$ , et de la force maximale de déchaussement  $F_{max}$  en quatre semaines de vieillissement à l'HR.

| Temps de vieillissement | $d$ ( $\mu m$ )   | $S_{int}$ ( $mm^2$ )                | $F_{max}$ (N)   |
|-------------------------|-------------------|-------------------------------------|-----------------|
| 0 semaine               | $58,26 \pm 13.5$  | $1,93 * 10^{-1} \pm 6,99 * 10^{-2}$ | $0,62 \pm 0,35$ |
| 1 semaine               | $56,63 \pm 15.91$ | $1,90 * 10^{-1} \pm 5,58 * 10^{-2}$ | $0,35 \pm 0,35$ |
| 2 semaines              | $48,27 \pm 11.93$ | $1,58 * 10^{-1} \pm 3,87 * 10^{-2}$ | $0,38 \pm 0,25$ |
| 3 semaines              | $65,48 \pm 15.37$ | $2,43 * 10^{-1} \pm 7,02 * 10^{-2}$ | $0,53 \pm 0,34$ |
| 4 semaines              | $52,78 \pm 11.45$ | $1,71 * 10^{-1} \pm 6,16 * 10^{-2}$ | $0,22 \pm 0,22$ |

La partie suivante présentera l'analyse de l'influence du vieillissement à l'HR sur les propriétés de l'interface fibre/matrice.

### 3.4 Effet du vieillissement à l'humidité relative

#### 3.4.1 Sur des propriétés qualitatives

Après avoir été exposée au vieillissement à l'HR, le déchaussement est beaucoup plus aisé. Ceci est constaté par le rapport du nombre de déchaussement sur le nombre total d'éprouvettes testées. La raison de ce comportement est liée à la diminution de l'adhésion fibre/matrice et

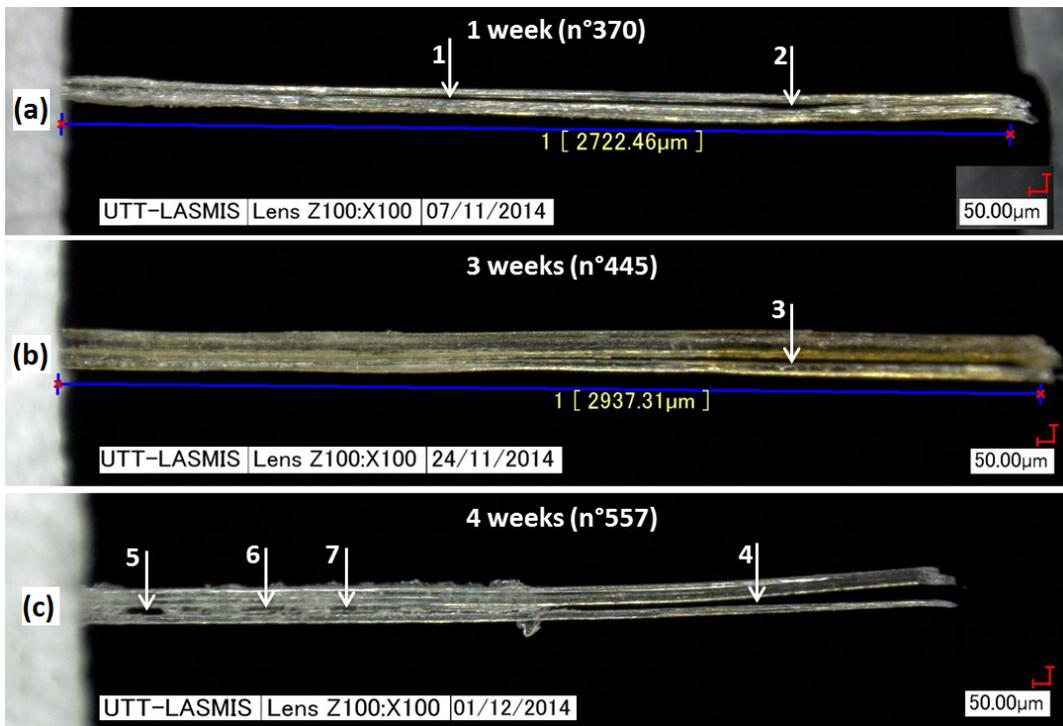


FIGURE 3.7 – Détériorations physiques des fibres de chanvre déchaussées après : (a) 1 semaine, (b) 3 semaines et (c) 4 semaines d'exposition au vieillissement à l'HR. Les flèches 1, 2, 3, 4 indiquent le détachement des fibres et celles numérotées 5, 6 et 7 indiquent la perte de matière de la fibre libre.

donc à l'affaiblissement de l'interface. En effet, il y a quelques éprouvettes vieilles dont la fibre s'est détachée de la matrice même avant la sollicitation de la fibre.

De plus, des dégradations physiques ont été observées grâce aux observations du microscope numérique, sur la partie libre puis sur la partie initialement immergée dans la matrice. En effet, l'altération des fibres engendre un détachement de la fibre même après une semaine de vieillissement à l'HR (figure 3.7 a).

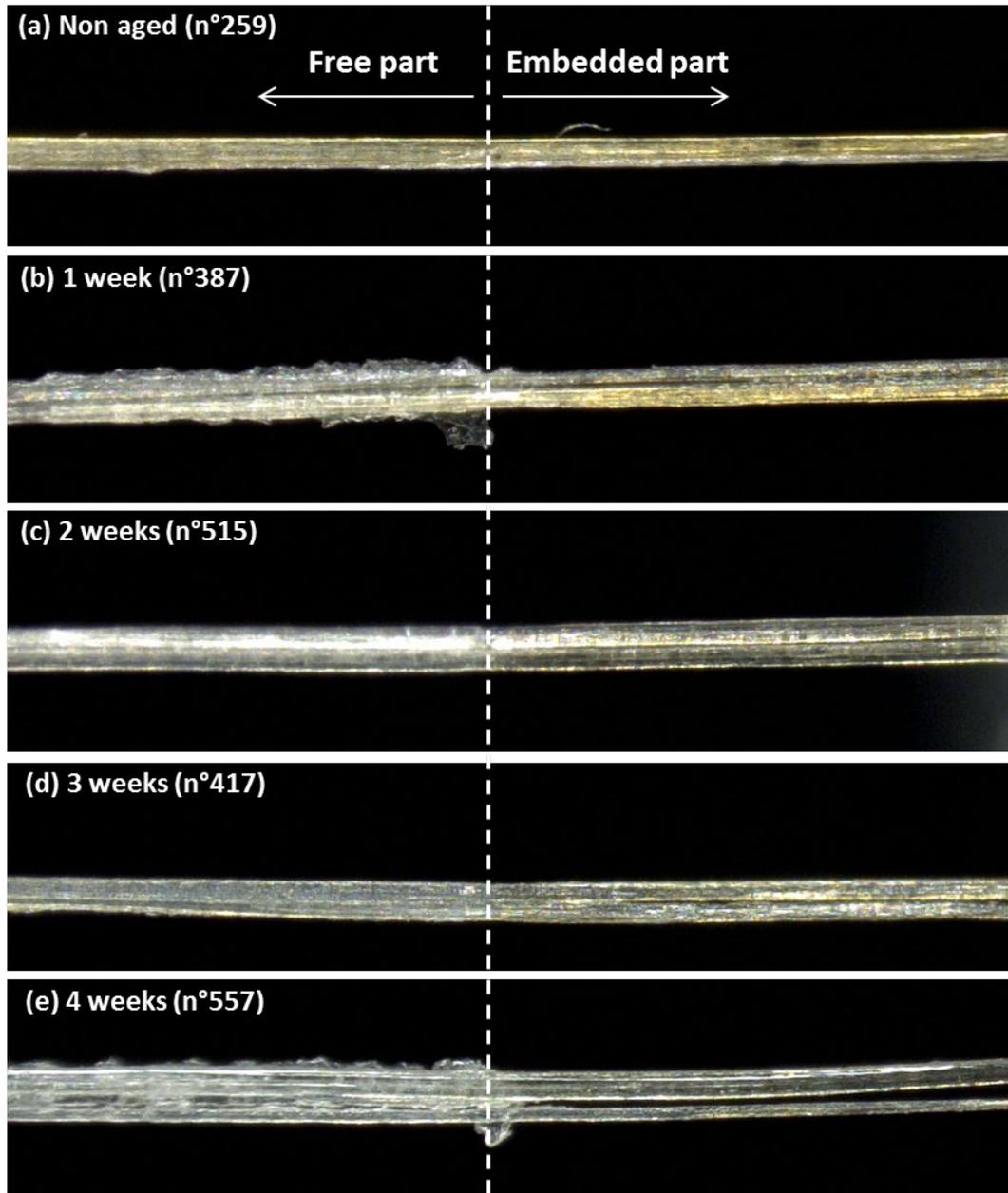


FIGURE 3.8 – Détériorations chimiques des fibres de chanvre déchaussées (a) non vieilles et vieilles après (b) 1 semaine, (c) 2 semaines, (d) 3 semaines, (e) 4 semaines d'exposition au vieillissement à l'HR

Les détériorations physiques de la fibre et de l'interface deviennent plus remarquables en

troisième semaine (figure 3.7 b). Elles se développent de plus en plus en quatrième semaine (figure 3.7 c). Ceci se manifeste par :

- (i) le détachement des fibres unitaires de la matrice,
- (ii) la perte de matière dans la partie libre de la fibre
- (iii) la dé-cohésion des fibres unitaires même dans les deux parties libre et immergée.

Nous avons ensuite constaté des détériorations chimiques de la fibre et de l'interface. En effet, des changements de couleur de la fibre (libre et insérée) sont observés. Initialement, nous avons noté que la différence de couleur entre la partie libre et la partie insérée de la fibre dans la matrice est indistinguable sur des échantillons composites non-vieillis (figure 3.8 a).

Après une semaine, la surface des fibres déchaussées (initialement immergée dans la matrice) est devenue plus jaune par rapport à la partie libre. Nous pouvons facilement distinguer la partie immergée avec la partie libre comme montré sur la figure 3.8b. Pourtant, après trois semaines, la couleur des deux parties est devenue plus sombre (figure 3.8c) voire noire (figure 3.8 d,e).

Les observations décrites ci-dessus sont en accord avec les analyses morphologiques sur des fibres de chanvre exposées aux mêmes conditions de vieillissement à l'HR trouvé dans la littérature. Selon Jin. S. et al. [21], une légère séparation des composants de la fibre commence dès la première semaine de vieillissement à l'HR, et l'effet du vieillissement s'amplifie au cours du temps.

Également, Jin. et al. [21] ont constaté une augmentation de la perte de masse au cours du temps de vieillissement par l'HR. La cause est liée à la perte de la matière due aux arrosages périodiques. Le même phénomène est observé dans notre cas comme illustré par la figure 3.7). En effet, l'arrosage durant les cycles de vieillissement à l'HR est une cause essentielle de perte de matière sur les couches superficielles de la fibre, notamment la lignine et la pectine.

Des altérations en état de surface de la partie libre ainsi que de la partie insérée de la fibre sont causés par des phénomènes physico-chimiques suite aux actions des cycles de vieillissement : humidité, sec et arrosage.

Dans la partie suivante, les propriétés mécaniques des interfaces vieilles seront représentées.

### 3.4.2 Sur des propriétés mécaniques

#### 3.4.2.1 Résistance au cisaillement

Des essais de déchaussement ont été ré-effectués sur cinquante éprouvettes vieilles chaque semaine dans l'enceinte de climatique. Les résultats des essais sont présentés ci-dessus. La force maximale de déchaussement  $F_{max}$  est tracée en fonction de l'aire de contact  $S_{int}$ . La tendance de ces points est approximée par une ligne droite. En premier temps, nous remarquons un changement de la pente entre les éprouvettes vieilles et non-vieilles, ainsi qu'entre différents temps de vieillissement comme montré sur la figure 3.9. Généralement, la pente diminue au cours du vieillissement, et ceci est lié à l'affaiblissement de l'interface. La force maximale de déchaussement d'une fibre devient alors moins sensible à la surface d'accrochage fibre-matrice.

A partir de la force maximale de déchaussement  $F_{max}$  mesurée par l'essai, la contrainte de cisaillement  $\tau_{app}$  à l'interface fibre/matrice de chaque éprouvette est calculée selon la formule 2.4. L'évolution de  $\tau_{app}$  en fonction du diamètre moyen de la fibre déchaussée  $d = 2\langle\bar{r}\rangle$  est présentée dans la figure 3.10. Cette figure montre les résultats pour les éprouvettes non-vieilles et les éprouvettes au cours de quarts semaines de vieillissement. L'IFSS est la moyenne de toutes les valeurs de  $\tau_{app}$ .

Les résultats montrent qu'après une semaine d'exposition à l'HR, il y a une chute pertinente

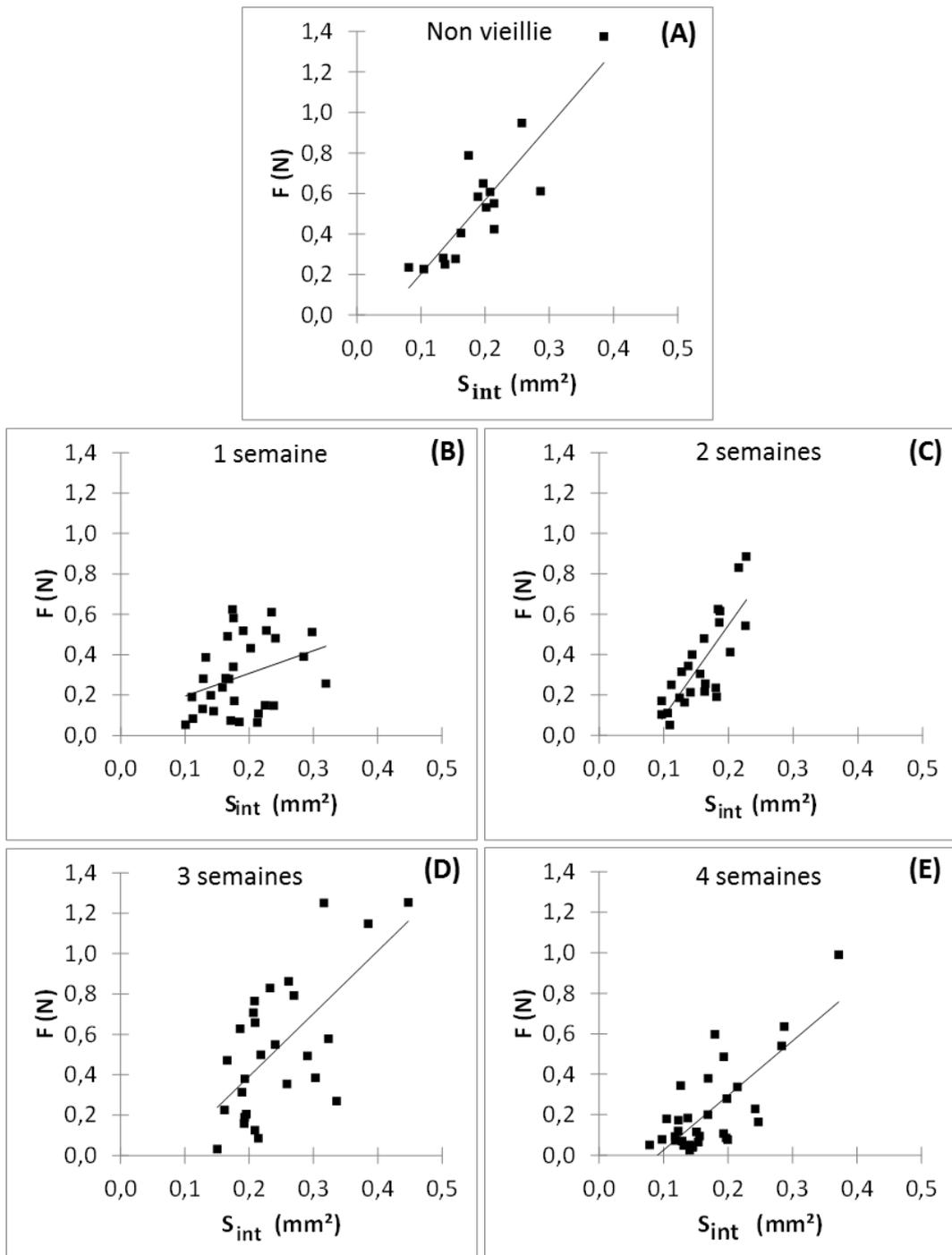


FIGURE 3.9 – Comparaison des courbe force maximale de déchaussement-aire de contact des éprouvettes (A) non vieilles et des interfaces vieilles en quatre semaines au vieillissement à l'HR (B) 1 semaine, (C) 2 semaines, (D) 3 semaines, (E) 4 semaines.

de l'IFSS (figure 3.14) avec un taux de diminution qui atteint le 42,97%. Il est à remarquer que cette diminution est plus importante que celle après deux semaines qui n'est que de 27,58%. L'IFSS diminue à 32,24% après 3 semaines, puis ensuite à 62,86% en quatrième semaine.

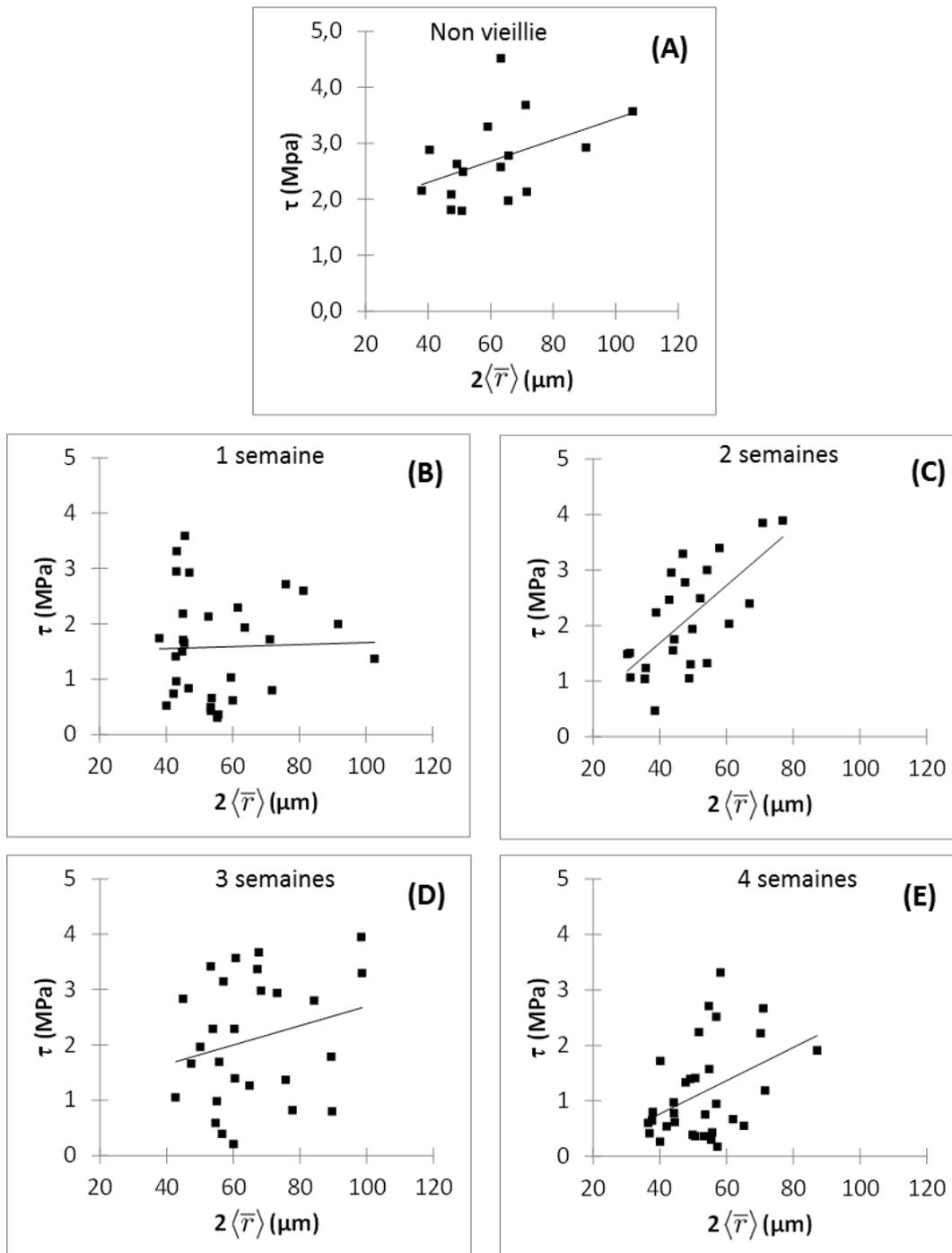


FIGURE 3.10 – Distribution de la contrainte de cisaillement de l'interface en fonction du diamètre moyen de la fibre pour des éprouvettes (A) non vieilles et des éprouvettes vieilles en quatre semaines au vieillissement à l'HR (B) 1 semaine, (C) 2 semaines, (D) 3 semaines, (E) 4 semaines.

L'évolution de l'IFSS au cours du temps de vieillissement à l'HR est illustrée dans la figure 3.14. Sauf le résultat après une semaine, l'IFSS diminue progressivement au cours du temps d'exposition au vieillissement à l'HR. La distribution statistique de la contrainte de cisaillement

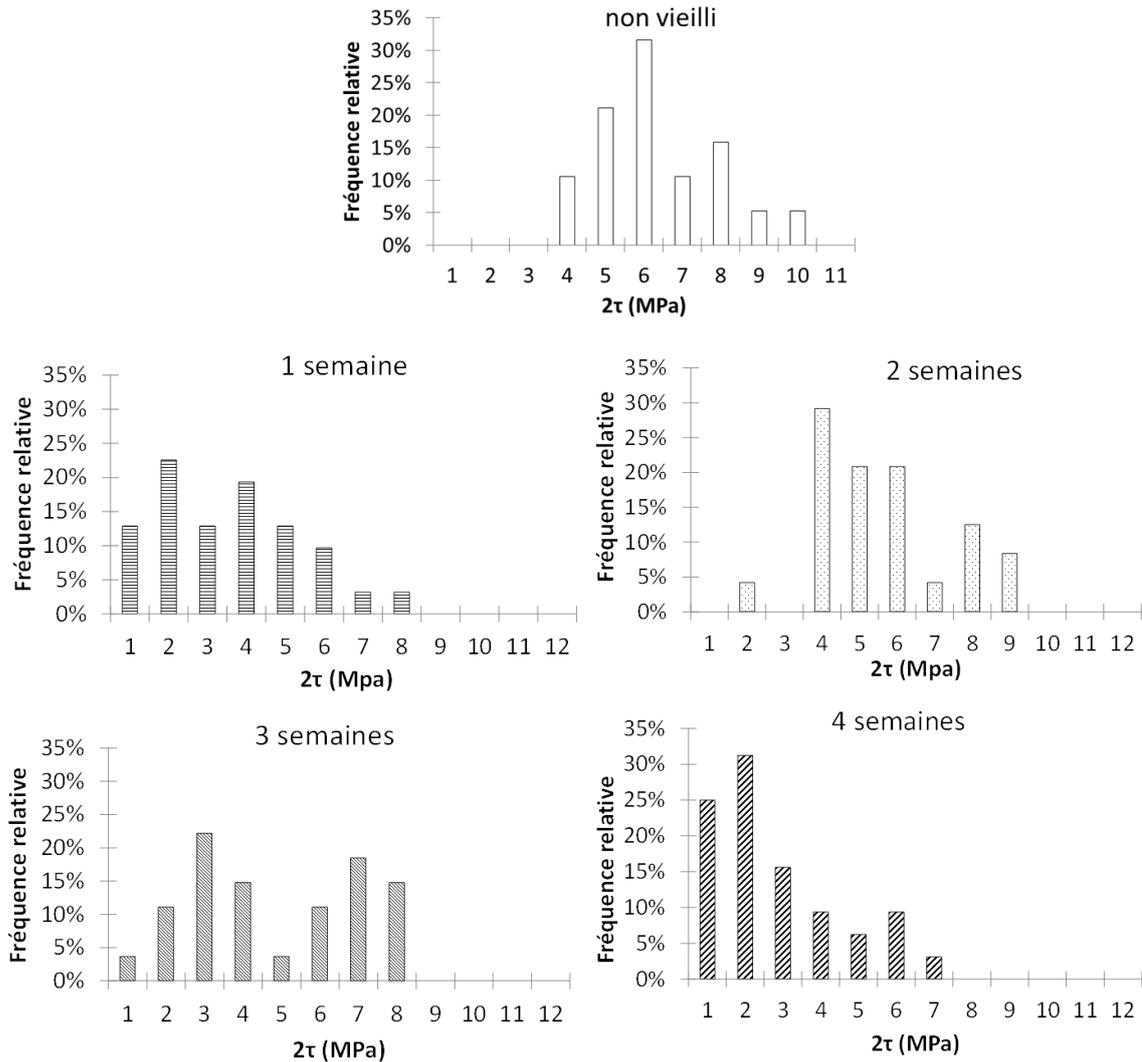


FIGURE 3.11 – Distribution statistique de la contrainte de cisaillement  $\tau_{app}$  à la rupture des interfaces non vieilles et des interfaces vieilles pour quatre semaines de vieillissement à l'HR.

$\tau$  pour les quatre semaines de vieillissement à l'HR est indiquée dans la figure 3.11. Nous avons noté que la contraintes  $\tau$  a une distribution souvent asymétrique à gauche sauf pour la troisième semaine.

Enfin, nous constatons une diminution de plus de 2,6 fois de l'IFSS après quatre semaines d'exposition au vieillissement à l'HR. On note que des fibres de chanvre vieilles par les mêmes conditions, montrent une diminution de la résistance en traction d'environ 1,5 fois [99, 92].

Ces résultats montrent que l'interface fibre de chanvre/PP est très sensible aux conditions de vieillissement à l'HR. Cependant l'effet du vieillissement sur une éprouvette massive en composite chanvre/PP reste très limité. La raison est qu'il n'y a qu'une couche en surface de l'éprouvette composite exposée au vieillissement à l'HR. En effet, la matrice de polymère limite considérablement la pénétration de l'eau à l'intérieur de l'éprouvette en composite alors que nos échantillons ne disposent que de 1mm de longueur de l'interface. Ceci permet la pénétration plus facile de l'eau et ainsi la détérioration des propriétés de l'interface ainsi que de la fibre.

La diminution de l'IFSS en progression de vieillissement à l'HR est à relier à la propriété hydrophile de la fibre. En effet, durant les cycles de vieillissement à l'HR, la partie libre de la fibre absorbe l'eau et se gonfle. Par capillarité, l'eau se diffuse dans la partie immergée de la fibre dans la matrice et attaque l'interface, provoquant le décollement de l'interface entre la fibre et la matrice.

En outre, la fibre de chanvre hydrophile se gonfle en absorbant de l'eau lors que la matrice PP hydrophobe n'absorbe pas de l'eau et ne gonfle pas. Pour cette raison, le gonflement différent en deux phases d'exposition : à l'HR 80% et en arrosage (HR =100%) provoque des expansions différentes de la fibre durant ces des cycles de vieillissement. Ceci cause un endommagement interne en fatigue de la fibre ainsi que des détachements entre la paroi extérieure de la fibre et la matrice où l'adhésion interfaciale est formée.

### 3.4.2.2 Déformation maximale à la rupture de l'interface

La déformation maximale à la rupture de l'interface  $\varepsilon_{max}$  est estimée en supposant que la longueur totale de la fibre comprenant la partie libre et la partie insérée est déformée lors de la traction. L'évolution de  $\varepsilon_{max}$  en fonction du diamètre moyen de la fibre déchaussée  $d$  des éprouvettes non-vieillies et vieilles sont comparées et représentées sur la figure 3.12.

Nous constatons que la déformation augmente avec l'humidité. Plus l'interface subit ce vieillissement, plus la déformation augmente. Inversement, la contrainte à l'interface diminue. La moyenne de la déformation a augmenté de 1,88% en état non vieilli à 2,40% après une semaine de vieillissement. Le taux d'augmentation est de 28,0%. Après deux semaines, la déformation a augmenté 45,45%, vaut 2,73%. Ensuite, elle atteint à 3,32% (76,61% d'augmentation) quand les éprouvettes sont vieilles pendant 3 semaines. Cette déformation vaut 3,42% après 4 semaines correspondant à une croissance de 81,90%. La synthèse de la déformation à la rupture au cisaillement de l'interface à chaque semaine de vieillissement à l'HR est représentée dans le tableau 3.2.

Ces résultats montrent que la déformation maximale à la rupture est plus grande que la déformation initiale de 1,82 fois. Cette augmentation de la déformation est la contribution de deux facteurs principaux :

- (i) l'augmentation de la déformation maximale à la rupture des fibres de chanvre vieilles,
- (ii) et l'augmentation de celle de l'interface vieillie.

Parmi ces deux contributions, l'augmentation de la déformation de la fibre est liée à l'altération de la fibre (la partie libre et la partie insérée). En effet, l'eau affaiblit les liaisons internes des fibres (les liaisons moléculaires et la force de Van der Waals) ce qui provoque [21] :

- (\*) une diminution du taux de cristallinité de la fibre
- (\*\*) une augmentation de la mobilité des chaînes macromoléculaires des fibres.

L'augmentation de la déformation à l'interface est causée par l'affaiblissement des liaisons moléculaires formées entre la fibre et la matrice par l'eau (notamment les liaisons Van der Waals à l'interface).

L'évolution de la déformation des fibres de chanvre exposées au vieillissement à l'HR a été étudiée dans la littérature. En effet, pour les mêmes conditions de vieillissement, la déformation des fibres de chanvre a été augmentée deux fois [21]. On peut aussi dire que les fibres de chanvre seules sont légèrement plus déformables au vieillissement à l'HR que les éprouvettes composites de notre étude où  $\varepsilon_r$  augmente 1,82 fois après 4 semaines. La différence est issue du comportement plus fragile de l'interface fibre/matrice par rapport à la fibre de chanvre. Sous la sollicitation en traction, la fibre s'est déformée d'abord, puis l'interface est mise en cisaillement. En raison de la faible résistance au cisaillement, l'interface est détruite avant que la fibre atteigne la résistance

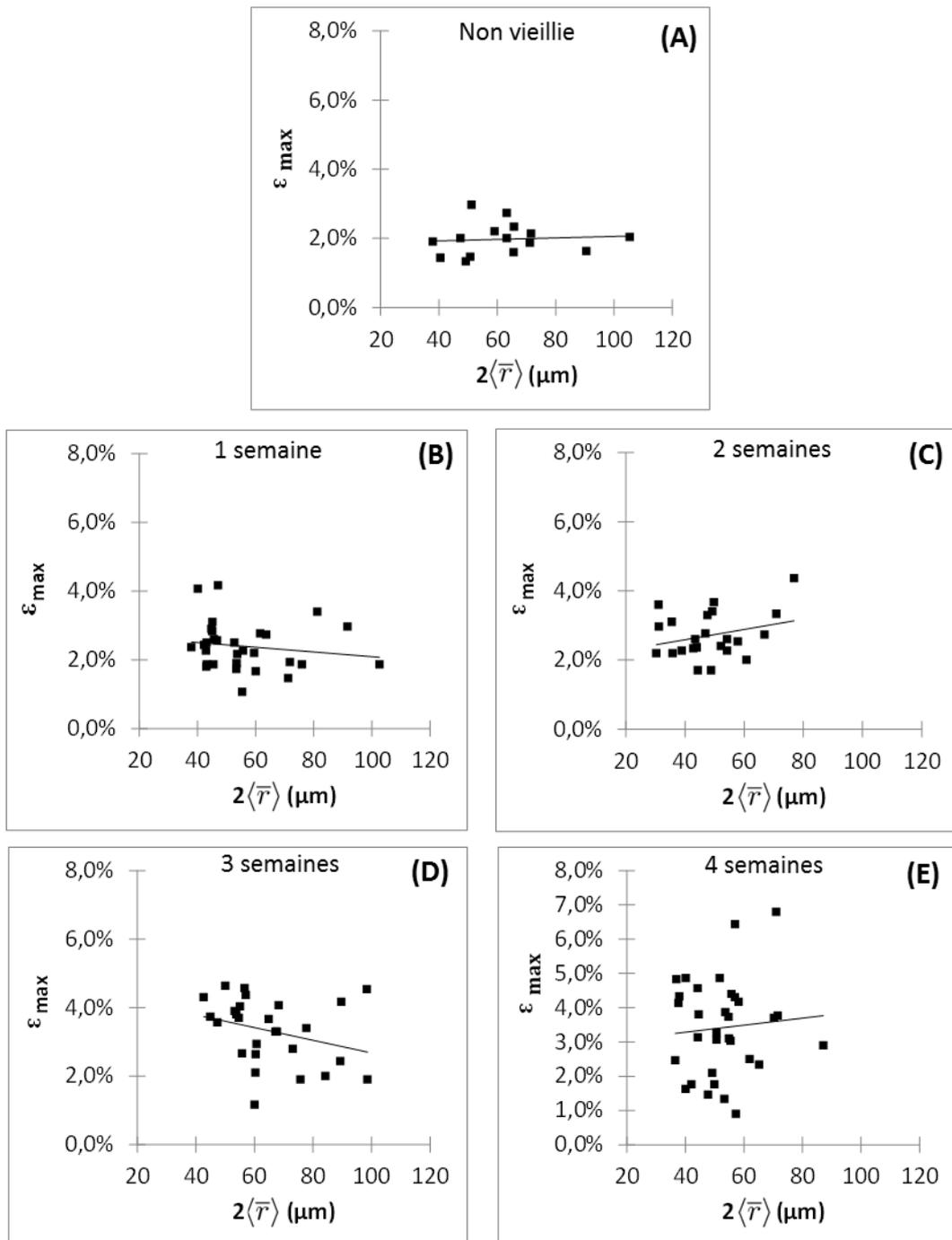


FIGURE 3.12 – Distribution de la déformation maximale à la rupture de l'interface en fonction du diamètre moyen de la fibre pour des éprouvettes (A) non vieilles et des éprouvettes vieilles en quatre semaines au vieillissement à l'HR (B) 1 semaine, (C) 2 semaines, (D) 3 semaines, (E) 4 semaines.

en traction. Ceci provoque la faible capacité à se déformer des éprouvettes composites dans notre étude par rapport celle de la fibre seule.

Nous allons aborder par la suite l'influence du vieillissement à l'HR sur la rigidité de l'inter-

TABLE 3.2 – IFSS,  $G$ ,  $\varepsilon_{max}$  en fonction du temps de vieillissement à l'HR

| Temps de vieillissement | IFSS (Mpa)      | $G$ (Mpa)           | $\varepsilon_{max}$ (%) |
|-------------------------|-----------------|---------------------|-------------------------|
| 0 semaine               | $3,09 \pm 1,11$ | $283,51 \pm 101,42$ | $1,88 \pm 0,47$         |
| 1 semaine               | $1,76 \pm 1,34$ | $151,79 \pm 95,03$  | $2,40 \pm 0,68$         |
| 2 semaines              | $2,24 \pm 1,13$ | $146,76 \pm 62,16$  | $2,73 \pm 0,64$         |
| 3 semaines              | $2,09 \pm 1,11$ | $132,36 \pm 77,72$  | $3,32 \pm 0,94$         |
| 4 semaines              | $1,15 \pm 0,84$ | $70,42 \pm 56,67$   | $3,42 \pm 1,38$         |

face fibre/matrice.

### 3.4.2.3 Pente de la courbe contrainte de cisaillement ( $\tau_{app}$ ) - déformation à la rupture au cisaillement de l'interface ( $\varepsilon_{max}$ )

Les calculs de la contrainte de cisaillement et de la déformation à la rupture de l'interface nous ont permis de calculer la pente de la courbe contrainte-déformation ( $\tau_{app} - \varepsilon_{max}$ ) qui traduit la rigidité au cisaillement de l'interface fibre/matrice  $G$ . La distribution de la rigidité au cisaillement en fonction du diamètre moyen des fibres déchaussées en quatre semaines en comparaison avec les éprouvettes non vieilles sont présentées sur la figure 3.13.

Les résultats montrent que :

(i) d'une façon générale, la rigidité de l'interface fibre/matrice diminue en fonction du temps de vieillissement,

(ii) durant le vieillissement, la rigidité en cisaillement devient moins sensible à la géométrie de l'interface. Ceci est lié directement à la détérioration des liaisons et des mécanismes qui assurent l'adhésion et l'accrochage de la fibre sur la matrice.

En effet, après une semaine, l'interface a perdu 46,46% de sa rigidité au cisaillement initiale. Ce taux a légèrement augmenté à 48,23% après deux semaines et à 53,31% après trois semaines. La diminution vaut 75,16% après quatre semaines.

Les évolutions mettent en évidence le fait que la rigidité au cisaillement de l'interface est fortement influencée par le vieillissement à l'HR avec une chute de la moitié de la rigidité après la première semaine. Cette perte de rigidité évolue de manière drastique et atteint les trois quart de la valeur initiale de la rigidité après quatre semaines.

La diminution de la rigidité au cisaillement est reliée à l'affaiblissement de l'interface au cisaillement et à l'effet de plastification de l'interface par l'eau absorbée. Pour ces raisons, la résistance au cisaillement a été diminuée lorsque la déformation maximale à la rupture de l'interface a été augmentée. Ces changements ont provoqué la diminution de la rigidité de l'interface au cisaillement. Nous avons noté que le taux de diminution de la rigidité  $G$  après 4 semaines correspond à la diminution de deux fois de l'IFSS et à l'augmentation de 1,82 fois de la déformation de l'interface.

## 3.5 Synthèse des résultats

### 3.5.1 Synthèse des résultats

Dans cette étude, 200 micro-éprouvettes composites ont été préparées. Après avoir été exposées au vieillissement à l'HR accéléré avec des cycles : humide, arrosage dans l'enceinte climatique, les éprouvettes ont subi les essais de déchaussement.

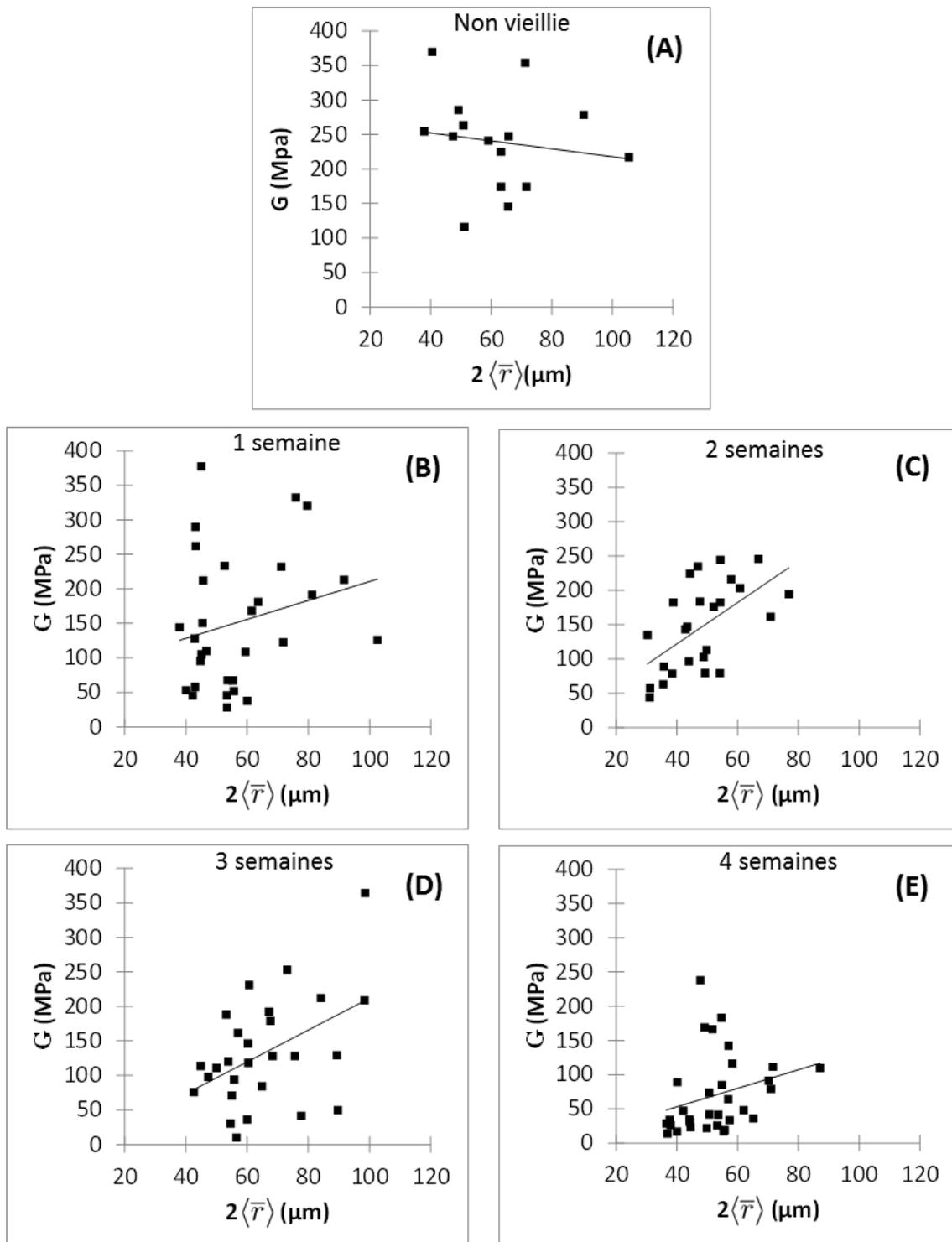


FIGURE 3.13 – Distribution de la rigidité au cisaillement de l'interface en fonction du diamètre moyen de la fibre pour les éprouvettes non vieilles (A) et des éprouvettes vieilles au cours des quatre semaines de vieillissement à l'HR (B) 1 semaine, (C) 2 semaines, (D) 3 semaines, (E) 4 semaines.

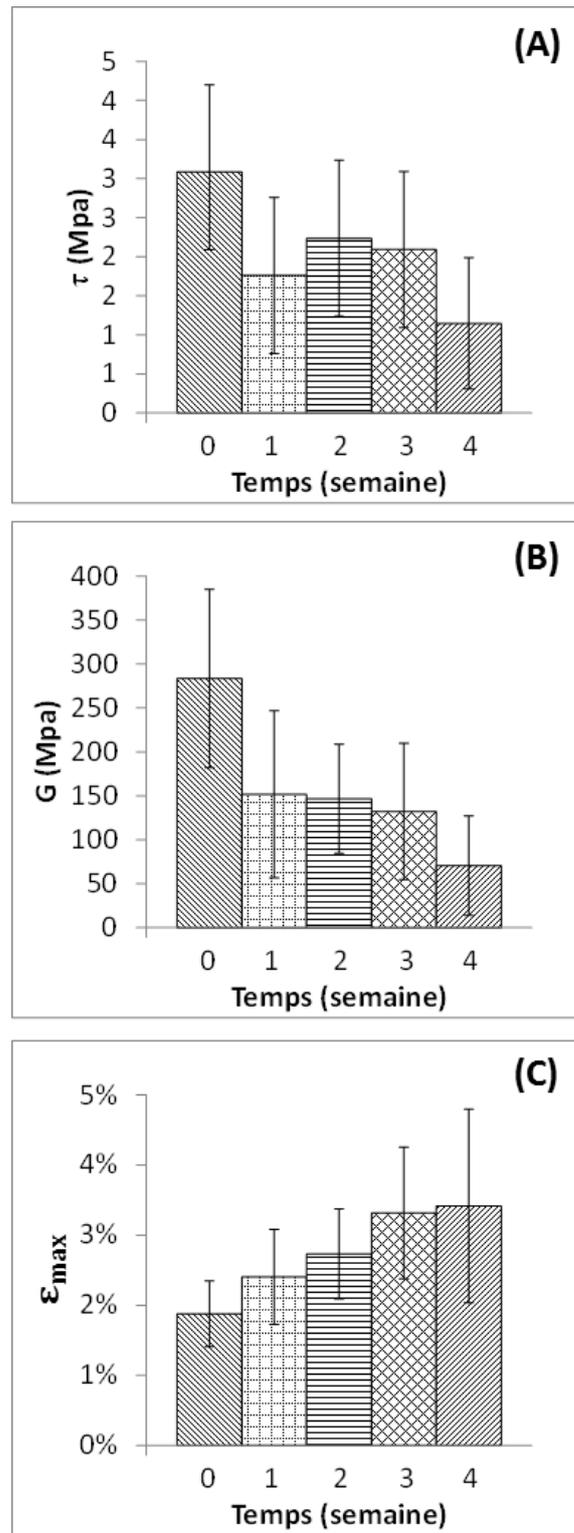


FIGURE 3.14 – Evolution en fonction du temps de vieillissement à l'HR de (A) IFSS (B) rigidité de l'interface ( $G$ ) et (C) déformation à la rupture de l'interface

L'effet de vieillissement à l'HR est observé dès la première semaine. Les fibres sont devenues plus facile à déchausser de la matrice. De plus, des dégradations qualitatives constatées, sont de nature physique et chimique. Les dégradations physiques sont surtout la décohésion de l'interface fibre/matrice, le détachement de la fibre et la perte de matière en surface de la fibre. D'un autre côté, les dégradations chimiques concernent premièrement le changement de couleur en surface de la fibre et de l'interface.

La résistance au cisaillement de l'interface (IFSS) et la rigidité au cisaillement de l'interface ( $G$ ) ont fortement diminué à cause du vieillissement à l'HR alors que la déformation maximale à la rupture de l'interface a augmenté de manière très remarquable.

La diminution de l'IFSS s'explique par des effets physiques et chimiques de l'eau absorbée qui se diffuse dans l'interface fibre/matrice durant l'exposition à l'HR et à l'arrosage. D'un autre côté, l'augmentation de la déformation est reliée à l'effet de "plastification" de l'eau absorbée sur la fibre de chanvre ainsi que sur l'interface entre elle et le PP. L'eau a affaiblit les liaisons moléculaires augmentant ainsi la mobilité des chaînes moléculaires de la fibre et de l'interface fibre/matrice. L'évolution de la rigidité au cisaillement de l'interface résulte de ces deux causes ci-dessus.

Les résultats dans ce présent travail contribuent à la compréhension du comportement de l'interfaces d'une part. D'autre part, ils sont cohérents avec les résultats trouvés dans la littérature. En effet, dans la littérature, l'influence du vieillissement à l'HR sur les composites a été étudiée par quelques auteurs. Le Duigou et al. [19] ont étudié l'évolution de l'IFSS par des essais de microgoutte lin/epoxy totalement immergée dans l'eau déminéralisée durant des périodes variantes : 15 min, 840 min, 5160 min et 8100 min. L'IFSS diminue de 22,5 MPa à 11 MPa (-50%) seulement après 1000 minutes (0,69 jour). Ensuite, de 1000 min à 8100 min (5,63 jours) de vieillissement, l'IFSS est plus stable en diminuant de 11 MPa à 9,3 MPa (-58,67%). Pourtant, les conditions de vieillissement dans cette étude sont différentes par rapport à nos essais. Il s'agit une immersion dans l'eau au lieu à des cycles de vieillissement accélérés (humidité et arrosage).

### 3.6 Conclusions

Dans ce chapitre, l'interface fibre de chanvre/polypropylène a été exposée aux conditions de vieillissement à l'HR accélérées qui simulent les conditions climatiques d'une ville française. Après plusieurs temps de vieillissement, une caractérisation mécanique de l'interface est effectuée. Des altérations qualitatives dans la fibre et de l'interface ont tout d'abord été identifiées. Suite aux essais de déchaussement, l'évolution des propriétés mécaniques de l'interface au cours du temps de vieillissement à l'HR a été révélé. En effet, l'IFSS et la rigidité au cisaillement de l'interface  $G$  ont fortement diminué alors que la déformation maximale à la rupture a une augmentation importante.

Cette étude contribue avec ces nouveaux résultats à comprendre la dégradation de l'interface fibre/matrice face aux conditions de vieillissement à l'HR. Ce comportement est corrélé avec l'altération des propriétés mécaniques et structurales de la fibre de chanvre. Pour le composite chanvre/ PP, l'interface fibre/matrice représente le maillon le plus faible dans cet assemblage car ces propriétés sont très sensibles et très vulnérables aux conditions de vieillissement.

Enfin, les résultats obtenus ouvrent la perspective d'effectuer des essais similaires pour le vieillissement aux UVs et à la température (T).

# Conclusions générales et perspectives

## 1 Conclusions

L'interface fibre/matrice est une zone stratégique dans la science des matériaux composites. L'étude de l'interface est primordiale pour comprendre le comportement ainsi que la durabilité des matériaux. Cette demande est d'autant plus importante dans le cas des agro-composites utilisant les renforts végétaux. En effet, les fibres végétales sont "hydrophiles" alors que les matrices polymères sont "hydrophobes". Ceci cause une imparfaite cohésion voire une incompatibilité entre les deux composants qui constituent le composite. Pourtant, les méthodes existantes de caractérisation de l'interface fibre/matrice présentent des limitations. Elles n'ont pas le potentiel pour être appliquées largement dans l'industrie des agro-composites.

Ce travail était consacré au développement d'une technique expérimentale pour étudier le problème de l'interface en se basant sur l'essai pull-out et en l'appliquant aux composites polypropylène/chanvre. De plus, nous souhaitions prendre en compte la vraie géométrie des fibres naturelles pour caractériser la surface de contact entre la fibre et la matrice. L'influence de la température d'élaboration sur les propriétés mécaniques de l'interface a ensuite été étudiée. Enfin, la méthode a été appliquée aux éprouvettes vieillies en humidité relative (HR) afin d'évaluer la dégradation qualitative ainsi que mécanique en HR de l'interface.

Pour réaliser des essais de déchaussement, des micro-éprouvettes composites à une fibre unitaire ont été élaborées. La matrice a été mise en forme dans un moule spécifique métallique où la fibre est pré-fixée. Le moulage a été effectué à l'aide d'un four de traitement thermique. La fibre est ainsi totalement insérée dans la matrice. Une micro-machine de traction a été employée pour solliciter en traction la fibre afin de la retirer de la matrice. La force maximale de déchaussement a été déterminée afin de déduire la contrainte de cisaillement à l'interface fibre/matrice. La vraie géométrie de la fibre déchaussée a été prise en compte dans les calculs des valeurs interfaciales à l'aide d'une méthode inspirée de la tomographie développée dans le laboratoire.

Nous pouvons retirer les conclusions suivantes de ce travail :

Une procédure d'élaboration des éprouvettes à mono-filament a été proposée et optimisée. La méthode est simple et rapide grâce aux multiples moulages. La fibre est retenue rectiligne dans la matrice grâce aux supports de fibre préfixés au moule. Le moulage est effectué par une méthode simple : au four de traitement thermique. Pour nos études, les meilleures conditions de fabrication sont une température de 183°C pendant 60 minutes comprenant 18 minutes de montée en température. En ayant optimisé les géométries du moule ainsi que les paramètres de fabrication, nous avons pu améliorer grandement la qualité de nos éprouvettes. Ainsi ce travail a demandé la fabrication de 1000 éprouvettes environ avec un taux de rebut presque nul.

La géométrie de la fibre a été prise en compte dans les calculs de la contrainte de cisaillement de l'interface fibre/matrice. Le profil de la section a été considéré par deux approches : circulaire et polygonale. La section circulaire cause une surestimation de la contrainte de cisaillement. La

section polygonale a donc été considérée pour les estimation de la contrainte de cisaillement  $\tau_{app}$ , la déformation maximale à la rupture  $\varepsilon_r$ , la rigidité au cisaillement  $E$ .

Nous avons étudié dans la partie suivante l'influence de la température d'élaboration sur les propriétés mécaniques de l'interface. Pour cette études, nous avons choisi de déterminer la contrainte de cisaillement  $\tau_{app}$ , la déformation maximale à la rupture  $\varepsilon_r$  et la rigidité au cisaillement  $E$  de l'interface à trois température : 173°C, 183°C et 202°C. Les meilleurs résultats ( $IFSS$  et  $E$ ) sont obtenue à 183°C. Une plus haute ou plus base température provoque une baisse de l' $IFSS$  et de la rigidité  $E$ .

La dernière partie de ce travail a consisté à voir l'influence de l'humidité relative sur le comportement mécanique de l'interface. Les 200 éprouvettes, placées dans une enceinte climatique ont subi un vieillissement comparable à une prise d'humidité dans une ville comme Paris. Cette étude nous a permis de non seulement tester notre protocole expérimental mais aussi de voir que la prise d'humidité à l'interface diminue les modules et augmenter la déformation.

## 2 Perspectives

Ce travail ouvre plusieurs perspectives pour notre laboratoire. Tout d'abord il sera intéressant de voir l'influence d'autres types de vieillissement sur le comportement de l'interface. Bien sûr les vieillissements à des variations de températures et aux UV pourront être analysés mais aussi des vieillissements combinés (température, UV et humidité).

Ensuite l'ensemble du protocole développé ne se limite pas qu'aux fibres de chanvre inséré dans une matrice de PP, d'autres fibres et d'autres matrices peuvent être envisagées. Aussi les conditions d'élaboration, avec des traitements sur la fibre ou l'ajout d'agent de couplage sont aussi des ouvertures intéressantes pour ce type de mesure.

Enfin, le protocole en lui-même peut être amélioré, plusieurs voies d'amélioration ont été mise à jour :

- Protéger la partie libre de la fibre pendant le vieillissement

- Améliorer la géométrie du moule ou est placé la fibre, afin d'éviter certaine rupture pendant le cycle de fabrication

- Prendre en compte la géométrie réelle de la fibre pour mieux estimer la surface de contact et donc la contrainte interfaciale.

- Prendre en compte les effets liés à la déformation de la fibre elle-même

- Prendre en compte les effets liés au frottement pendant le déchaussement

- Etc.

Nous voyons donc que l'interface reste une zone compliquée à analyser et que notre approche a permis de mettre en évidence une petite partie des réponses attendues.

# Liste des tableaux

|     |  |    |
|-----|--|----|
| 1.1 | Caractéristiques des fibres de chanvre . . . . .   | 9  |
| 1.2 | Exemple de résistance en traction et de module d'Young de fibres de chanvre pour différents auteurs [1] . . . . .  | 9  |
| 1.3 | Exemples de l'IFSS dans des composites monofilamentaires à fibre de verre, de lin et de chanvre. L'IFSS est la résistance au cisaillement interfacial (Tableau modifié de Bonnafous C. et al. [33]) . . . . .  | 29 |
| 2.1 | Synthèse des résultats : cas de rupture en traction . . . . .  | 62 |
| 2.2 | Synthèse des résultats : cas du déchaussement partiel. Notes : $\bar{d}_{ini}$ est le diamètre moyen total initial de la fibre; $\bar{d}_{sortie}$ est le diamètre moyen total de la partie déchaussée de la fibre. (L'éprouvette numéro 206 présente un déchaussement partiel avec la mode de rupture en traction de la fibre. Nous n'avons pas calculé la contrainte de cisaillement apparente $\tau_{app}$ pour ce cas) . . . . .   | 62 |
| 2.3 | Synthèse des résultats : cas de déchaussement total. Notes : $\bar{d}$ le diamètre moyen total de la fibre calculé pour la fibre déchaussée (après l'essai); $A_{cir}$ , $A_{diag}$ sont respectivement l'aire de contact fibre/matrice utilisant l'approche circulaire et diagonale du profil de la section transversale de la fibre; $\tau_{app1}$ et $\tau_{app2}$ sont respectivement la contrainte de cisaillement apparente à l'interface fibre/matrice calculée utilisant l'approche circulaire et diagonale du profil de la section transversale de la fibre . . . . . | 63 |
| 2.4 | Tableau de nomenclature des données moyennes des fibres déchaussées ( $2\langle\bar{r}\rangle$ : diamètre moyen, $S_{int}$ : surface de contact fibre/matrice à l'interface) et résultats de la résistance au cisaillement - IFSS, la rigidité au cisaillement $G$ et la déformation à la rupture $\varepsilon_r$ de l'interface à trois températures d'élaboration $173^\circ C$ , $183^\circ C$ et $202^\circ C$ . . . . .   | 73 |
| 3.1 | Nomenclature de la moyenne des diamètres moyens $d$ des fibres déchaussées, de la surface de contact $S_{int}$ , et de la force maximale de déchaussement $F_{max}$ en quatre semaines de vieillissement à l'HR. . . . .   | 84 |
| 3.2 | IFSS, $G$ , $\varepsilon_{max}$ en fonction du temps de vieillissement à l'HR . . . . .  | 92 |

# Table des figures

|      |   |    |
|------|---|----|
| 1    | Avantages et inconvénients des fibres végétales [1] . . . . .   | v  |
| 2    | Facies de rupture des composites à fibres de chanvre/PLA : (a) fibres de chanvre non traitées, (b) fibres de chanvre traitées [3] . . . . .   | vi |
| 3    | Détail d'une faible adhésion de l'interface entre une fibre d'çaçaï et du polystyrène (HIPS) sous compression [4] . . . . .   | vi |
| 1.1  | Vue macroscopique de la section transversale d'une tige de lin [22] . . . . .   | 3  |
| 1.2  | Fibres unitaires et faisceaux de fibres [23] . . . . .  | 3  |
| 1.3  | Fibre végétale à différentes échelles (méso et microscopique). Figure transformée de [25] . . . . .   | 4  |
| 1.4  | Model simplifié d'une fibre naturelle en plusieurs couches [27] . . . . .   | 5  |
| 1.5  | Modélisation simplifiée d'une fibre végétale [29] . . . . .   | 5  |
| 1.6  | Composition chimique de quelques fibres naturelles [30] . . . . .   | 6  |
| 1.7  | Présentation de la structure chimique de la cellulose [28] . . . . .  | 6  |
| 1.8  | Schéma représentatif des compositions chimiques des fibres végétales [32] . . . . .   | 6  |
| 1.9  | Exemples de propriétés élastiques des constituants élémentaires des fibres végétales [33]. Ici, $E_l$ : rigidité en traction longitudinale, $E_t$ : rigidité en traction transversale, $G$ : rigidité au cisaillement, $\nu$ : coefficient de Poisson et $(l/\Phi)_{cellulose}$ : rapport longueur/diamètre des celluloses. . . . . | 7  |
| 1.10 | Exemple de caractéristiques mécaniques pour des fibres végétales et synthétiques [34] . . . . .   | 8  |
| 1.11 | Courbe des modules en fonction de la température d'un polymère linéaire thermoplastique amorphe (courbe A) et semi cristallin, à des taux de cristallinité croissants (courbes B, C et D). $T_g$ : Température de transition vitreuse; $T_m$ : Température de fusion [28] . . . . .   | 10 |
| 1.12 | Propriétés thermiques et physiques de certains thermoplastiques [46, 47]. $T_g$ : Température de transition vitreuse; $T_m$ : Température de fusion; $T_p$ : Température de moulage; $\rho$ : Densité; $W_{24h}$ : Taux massique d'eau absorbée après 24h d'immersion . . . . .   | 11 |
| 1.13 | Propriétés mécaniques de certains thermoplastiques [28] . . . . .   | 11 |
| 1.14 | Exemple de propriétés mécaniques d'un agro-composite par rapport à un composite à fibres de verre. Eprouvettes à 50% en volume de fibre unidirectionnelles, réalisées par pultrusion [2] . . . . .  | 13 |
| 1.15 | Caractéristiques mécaniques des composites polypropylène/fibres végétales. Méthode de fabrication par compression à 180°C (5 bars), à 40% en masse de fibres aléatoirement dispersées [2] . . . . .   | 13 |
| 1.16 | Facies de rupture des composites 20% fibres non traitées/polypropylène [3] . . . . .  | 14 |

|      |  |    |
|------|--|----|
| 1.17 | Schéma représentatif de la formation d'un ancrage mécanique à l'interface . . . . .  | 15 |
| 1.18 | Deux couches électriques opposées à l'interface dans la théorie électrique . . . . .   | 15 |
| 1.19 | Interphase renfort/matrice dans un composite [14] . . . . .  | 16 |
| 1.20 | Interaction interatomique/intermoléculaire, formation de l'énergie de surface libre  | 17 |
| 1.21 | Diagramme schématique de l'angle de contact et des composants de surface (tension) [56] . . . . .  | 17 |
| 1.22 | Diffusion des couches à l'interface . . . . .  | 18 |
| 1.23 | Schéma de principe des interfaces fibre végétale-matrice [6] . . . . .   | 18 |
| 1.24 | Schéma représentatif d'un essai pull-out d'une fibre seule avec la fixation à droite   | 20 |
| 1.25 | Courbe force - déplacement typique de l'essai pull-out d'une fibre seule [62] . . . . .  | 21 |
| 1.26 | Schéma représentatif d'un essai de déchaussement d'une micro-goutte [64] . . . . .   | 22 |
| 1.27 | A : Exemple de micro-goutte poly(acide L-lactique) PLLA/lin symétrique. B : Rupture d'une micro-goutte PLLA/lin [65] . . . . .   | 22 |
| 1.28 | Courbe force - déplacement typique de l'essai de déchaussement d'une micro-goutte [66] . . . . .   | 23 |
| 1.29 | Schéma d'un essai de fragmentation à une fibre seule. Plus la sollicitation $\sigma$ augmente, plus la fibre se rompt jusqu'à une longueur critique des fragments $l_c$ [69] . . . . .   | 24 |
| 1.30 | Visualisation des isochrones proches d'une fragmentation dans une éprouvette monofilament chanvre/époxy [71] . . . . .   | 25 |
| 1.31 | Schéma représentatif de l'essai de compression diablo des éprouvettes (A) haltères ou (B) parallélépipédiques [75] . . . . .   | 26 |
| 1.32 | Représentation schématique de l'installation microscopie électronique à balayage (MEB) d'un essai de micro-indentation [78] . . . . .  | 27 |
| 1.33 | Image MEB d'un essai de micro-indentation sur une éprouvette composite fibre de verre E ensimée/epoxy [78] . . . . .   | 27 |
| 1.34 | Schéma de l'essai de micro-indentation avec trois phases : (a) pas de décollement (b) décollement progressif (c) décollement total [78] . . . . .  | 28 |
| 1.35 | Courbe force - déplacement typique d'un essai de micro-indentation [78] . . . . .  | 28 |
| 1.36 | Evolution (A) du module élastique $E$ , (B) de la résistance en traction $\sigma_r$ et (C) de la déformation maximale à la rupture $\varepsilon_r$ au cours du vieillissement à l'HR, à la T et aux UVs des fibres de chanvre [88] . . . . .                         | 31 |
| 1.37 | Changement du faciès de fibre après 4 semaines de vieillissement (A) à l'HR et (B) à la T [92] . . . . .   | 32 |
| 1.38 | Changement du faciès de fibre après 4 semaines de vieillissement aux UVs [92] . . . . .  | 34 |
| 1.39 | Diffusion de l'eau absorbée et mécanisme de propagation de rupture à l'interface [94] . . . . .  | 35 |
| 1.40 | Endommagement du composite montrant (a) la fissure de la matrice, (b) propagation de la fissuration le long de l'interface, (c) décohésion de l'interface fibre/matrice due à l'attaque des molécules d'eau [96] . . . . .   | 35 |
| 1.41 | Evolution du module d'élasticité $E$ , de la contrainte maximale à la rupture en traction $\sigma_r$ et de la déformation maximale à la rupture $\varepsilon_r$ du composite en fonction du temps de vieillissement à l'HR (a,b,c) et aux UVs (d,e,f) [99] . . . . . | 36 |
| 1.42 | Evolution du module d'élasticité $E$ , de la contrainte maximale à la rupture en traction $\sigma_r$ et de la déformation maximale à la rupture $\varepsilon_r$ du composite en fonction du temps de vieillissement à la température [21] . . . . .                  | 37 |
| 2.1  | Schéma représentatif de l'essai de déchaussement (A) à l'état initial et (B) en traction . . . . .   | 41 |

---

|      |  |    |
|------|--|----|
| 2.2  | Exemple d'un déchaussement total d'une fibre, à l'état initial (figure A) et après avoir déchaussée (figure B) (éprouvette $n^{\circ}160$ ) . . . . .  | 43 |
| 2.3  | Fibre rompue en traction de l'éprouvette $n^{\circ}324$ . . . . .  | 43 |
| 2.4  | Déchaussement partiel d'une fibre (éprouvette $n^{\circ}264$ ) : une partie de la section transversale déchaussée . . . . .  | 44 |
| 2.5  | Déchaussement partiel d'une fibre (éprouvette $n^{\circ}206$ ) : mode de rupture mixte de déchaussement . . . . .  | 44 |
| 2.6  | Défilage d'un tige de chanvre [102] . . . . .  | 45 |
| 2.7  | Porte-échantillon trouée en carton pour mettre deux fibres de chanvre . . . . .  | 46 |
| 2.8  | Présentation du moule qui permet de fabriquer dix éprouvettes par chaque moulage   | 46 |
| 2.9  | Schéma représentatif des conditions de moulage optimales . . . . .   | 47 |
| 2.10 | Schéma représentatif d'une éprouvette moulée et découpée . . . . .   | 47 |
| 2.11 | Scie utilisée pour le découpage des éprouvettes . . . . .  | 48 |
| 2.12 | Présentation de la machine de micro-traction Kammarath & Weiss . . . . .   | 48 |
| 2.13 | Montage d'une éprouvette aux mors . . . . .  | 49 |
| 2.14 | Réalisation des essais de déchaussement et suivi avec un microscope numérique .  | 49 |
| 2.15 | Profil réel d'une fibre naturelle avec cinq rayons moyens $r_i, i = \overline{1-5}$ selon cinq orientations $0^{\circ}, 36^{\circ}, 72^{\circ}, 108^{\circ}, 144^{\circ}$ respectivement . . . . .   | 50 |
| 2.16 | Dispositif métallique pour mesurer le diamètre de la fibre selon 5 angles . . . . .  | 50 |
| 2.17 | Exemple de calcul du diamètre de la fibre à l'aide d'un outil Open CV . . . . .  | 51 |
| 2.18 | Rupture en traction de la fibre d'une éprouvette ( $n^{\circ}324$ ). Le côté polymère dans lequel on insère la fibre est à droite, le carton collé à la fibre est à gauche . . . . .   | 53 |
| 2.19 | Rupture en traction d'un faisceau de fibres avec déchirement d'une éprouvette ( $n^{\circ}327$ ) . . . . .   | 53 |
| 2.20 | Courbe force - déplacement typique du cas de rupture en traction d'un faisceau de fibres. Chaque chute de force correspond à la rupture d'une fibre unitaire . . . . .   | 53 |
| 2.21 | Deux courbes force - déplacement typiques du cas de rupture en traction de fibre ( $l_e = 10\text{mm}$ , vitesse de la traverse $v = 0,5\text{mm}/\text{min}$ ) : linéaire ou sollicitation de la fibre seule (éprouvettes $n^{\circ}40$ ) et non linéaire ou l'interface est également sollicitée (éprouvettes $n^{\circ}21$ ) . . . . .  | 54 |
| 2.22 | Trois phases de chargement sur la courbe force - déplacement d'un cas de rupture en traction (éprouvettes $n^{\circ}37$ , $l_e = 10\text{mm}$ , vitesse de la traverse $v = 1\mu\text{m}/\text{s}$ ) : phase 1 - mise en traction des fibrilles ; phase 2 - sollicitation en traction de la fibre et au cisaillement de l'interface jusqu'à la rupture de la fibre ; phase 3 - fin d'essai, la force revient à zéro. . . . . | 55 |
| 2.23 | Courbe force-déplacement typique du cas de rupture en traction de la fibre quand la longueur de l'interface $l_e$ est réduite à $1000\mu\text{m}$ (éprouvettes $n^{\circ}324$ ) . . . . .  | 55 |
| 2.24 | Courbe force - déplacement d'un déchaussement partiel et rupture en traction d'une fibre (éprouvette $n^{\circ}206$ , $l_e = 1\text{mm}$ , $v = 1\mu\text{m}/\text{s}$ ) . . . . .   | 56 |
| 2.25 | Courbe force - déplacement typique de déchaussement . . . . .  | 57 |
| 2.26 | Distribution de (a) la force de traction maximale, (b) la contrainte de traction apparente à la rupture et (c) la rigidité en traction en fonction du diamètre moyen total de la fibre de chanvre . . . . .  | 58 |
| 2.27 | Courbe force - déplacement d'un déchaussement partiel avec une rupture en traction d'une partie fibre et un déchaussement total de la partie restante. Cas la rupture en traction produite avant le décollement total de l'interface fibre/matrice (éprouvette $n^{\circ}264$ , $l_e = 1\text{mm}$ , $v = 1\mu\text{m}/\text{s}$ ) . . . . .   | 59 |

|      |  |    |
|------|--|----|
| 2.28 | Courbe force - déplacement d'un déchaussement partiel avec une rupture en traction d'une partie fibre et un déchaussement total de la partie restante. Cas la rupture en traction produite après le décollement total de l'interface fibre/matrice (éprouvette n°272, $l_e = 1mm$ , $v = 1\mu m/s$ ) . . . . .   | 60 |
| 2.29 | Comparaison d'une fibre à l'état initial (A) et après avoir déchaussé de la matrice polymer (B) . . . . .  | 61 |
| 2.30 | Distribution de la force maximale de déchaussement en fonction de : (a) diamètre moyen total, (b) longueur de l'interface, (c) aire de contact; Evolution de la contrainte apparente de cisaillement de l'interface fibre/matrice $\tau_{app}$ en fonction du (de la) (d) diamètre moyen total (e) longueur d'interface; (f) Evolution de la rigidité au cisaillement de l'interface $G$ en fonction du diamètre moyen total . . . | 64 |
| 2.31 | Insertion du thermocouple dans le moule . . . . .  | 66 |
| 2.32 | Mesure de la température au sein du four . . . . .   | 66 |
| 2.33 | Température du four et température mesurée par thermocouple, cas de fabrication à la température programmée de 190°C. Ici, $\Delta T$ est la différence entre la température programmée du four et celle mesurée par le thermocouple . . . . .   | 67 |
| 2.34 | Température du four et température mesurée par thermocouple, cas de fabrication à 200°C. Ici, $\Delta T$ est la différence entre la température programmée du four et celle mesurée par le thermocouple . . . . .  | 68 |
| 2.35 | Température du four et température mesurée par le thermocouple, cas de fabrication à 220°C. Ici, $\Delta T$ est la différence entre la température programmée du four et celle mesurée par le thermocouple . . . . .   | 69 |
| 2.36 | Mauvais moulage à 160°C pendant 60 minutes . . . . .   | 69 |
| 2.37 | Evolution de la résistance en traction du composite PP/sisal en fonction de la température (longueur des fibres : 10 mm, composition en fibres : 20%) [16]. . . . .  | 71 |
| 2.38 | Influence de la température d'élaboration sur les propriétés du matériau composite PP/sisal (méthode de moulage par extrusion, fibre de sisal de 10 mm de longueur, 20% composition de fibre) [16] . . . . .   | 71 |
| 2.39 | Un exemple d'éprouvette fabriquée à 173°C . . . . .  | 72 |
| 2.40 | Photo de la partie libre de la fibre de l'éprouvette numéro 635 fabriquée à 183°C. La surface de la fibre est grise mais encore claire après le processus de moulage . . . . .   | 72 |
| 2.41 | Photo de la partie libre de la fibre de l'éprouvette numéro 722 fabriquée à 202°C. Elle a changé de couleur devenant plus sombre et plus jaune . . . . .   | 72 |
| 2.42 | Distribution statistique de la résistance au cisaillement de l'interface fibre/matrice à trois températures d'élaboration . . . . .  | 73 |
| 2.43 | Evolution de : (a) l'IFSS, (b) la déformation à la rupture et (c) la rigidité au cisaillement de l'interface en fonction de la temperature d'élaboration T . . . . .   | 75 |
| 3.1  | Présentation de l'étuve de vieillissement ATLAS SUNTEST XXL/XXL+ . . . . .   | 79 |
| 3.2  | Éprouvettes positionnées dans l'enceinte de vieillissement . . . . .   | 80 |
| 3.3  | Courbes climatiques en France, mesurées à Paris [21]. . . . .  | 80 |
| 3.4  | Conditions de vieillissement et cycle d'exposition [21]. . . . .   | 81 |
| 3.5  | Exemples de courbes force-déplacement typiques pour les éprouvettes non vieilles et vieilles . . . . .   | 82 |
| 3.6  | Evolution de la force maximale de déchaussement $F_{max}$ en fonction du diamètre moyen de la fibre $d = 2\langle\bar{r}\rangle$ , de la longueur de l'interface fibre/matrice $l_e$ et de la surface de contact à l'interface $S_{int}$ des éprouvettes après (a) 1 semaine, (b) 2 semaines, (c) 3 semaines et (d) 4 semaines de vieillissement à l'HR. . . . .   | 83 |

---

|      |  |    |
|------|--|----|
| 3.7  | Détériorations physiques des fibres de chanvre déchaussées après : (a) 1 semaine, (b) 3 semaines et (c) 4 semaines d'exposition au vieillissement à l'HR. Les flèches 1, 2, 3, 4 indiquent le détachement des fibres et celles numérotées 5, 6 et 7 indiquent la perte de matière de la fibre libre. . . . . | 84 |
| 3.8  | Détériorations chimiques des fibres de chanvre déchaussées (a) non vieilles et vieilles après (b) 1 semaine, (c) 2 semaines, (d) 3 semaines, (e) 4 semaines d'exposition au vieillissement à l'HR . . . . .  | 85 |
| 3.9  | Comparaison des courbe force maximale de déchaussement-aire de contact des éprouvettes (A) non vieilles et des interfaces vieilles en quatre semaines au vieillissement à l'HR (B) 1 semaine, (C) 2 semaines, (D) 3 semaines, (E) 4 semaines. . . . .  | 87 |
| 3.10 | Distribution de la contrainte de cisaillement de l'interface en fonction du diamètre moyen de la fibre pour des éprouvettes (A) non vieilles et des éprouvettes vieilles en quatre semaines au vieillissement à l'HR (B) 1 semaine, (C) 2 semaines, (D) 3 semaines, (E) 4 semaines. . . . .                  | 88 |
| 3.11 | Distribution statistique de la contrainte de cisaillement $\tau_{app}$ à la rupture des interfaces non vieilles et des interfaces vieilles pour quatre semaines de vieillissement à l'HR. . . . .  | 89 |
| 3.12 | Distribution de la déformation maximale à la rupture de l'interface en fonction du diamètre moyen de la fibre pour des éprouvettes (A) non vieilles et des éprouvettes vieilles en quatre semaines au vieillissement à l'HR (B) 1 semaine, (C) 2 semaines, (D) 3 semaines, (E) 4 semaines. . . . .           | 91 |
| 3.13 | Distribution de la rigidité au cisaillement de l'interface en fonction du diamètre moyen de la fibre pour les éprouvettes non vieilles (A) et des éprouvettes vieilles au cours des quatres semaines de vieillissement à l'HR (B) 1 semaine, (C) 2 semaines, (D) 3 semaines, (E) 4 semaines. . . . .         | 93 |
| 3.14 | Evolution en fonction du temps de vieillissement à l'HR de (A) IFSS (B) rigidité de l'interface (G) et (C) déformation à la rupture de l'interface . . . . .   | 94 |

# Bibliographie

- [1] F. Ilczyszyn, *Caractérisation expérimentale et numérique du comportement mécanique des agro-composites renforcés par des fibres de chanvre*. Thèse de doctorat, Université de technologie de Troyes, 2013.
- [2] C. Baley, “Fibres naturelles de renfort pour matériaux composites,” *Techniques de l'ingénieur*, vol. AM 5 130v2, pp. 1–17, 2013.
- [3] M. Ragoubi, *Contribution à l'amélioration de la compatibilité interfaciale fibres naturelles/matrice thermoplastique via un traitement sous décharge couronne*. Thèse de doctorat, Université Henri Poincaré Nancy 1, 2010.
- [4] C. Danúbia, C. Castro, C. Gilda, and B. Tavares, “Production and Evaluation of Recycled Polymers from Açai Fibers,” *Materials Research*, vol. 13, no. 2, pp. 159–163, 2010.
- [5] J. N. Israelachvili, *Intermolecular and surface forces : revised third edition*. London, UK : Academic Press, 2011.
- [6] M. Nardin, “Interface fibre-matrice dans les matériaux composites,” *Revue des Composites et des Matériaux Avancés*, vol. 16/1, pp. 49–62, 2006.
- [7] V. Staemmler, “The donor-acceptor approach to molecular interactions. von v. gutmann. plenum press, new york 1978. xvi, 279 s., geb. £ 33.00,” *Angewandte Chemie*, vol. 91, no. 7, pp. 1–595, 1979.
- [8] E. Pisanova and E. Mäder, “Acid-base interactions and covalent bonding at a fibermatrix interface : contribution to the work of adhesion and measured adhesion strength,” *Journal of Adhesion Science and Technology*, vol. 14, no. 3, pp. 415–436, 2000.
- [9] D. L. Leussing, “The lewis acid-base concepts : an overview,” *Journal of Chemical Education*, vol. 59, p. 179, 1982.
- [10] S. R. Cain, “Quantum-mechanical approach to understanding acid-base interactions at metal-polymer interfaces,” *Journal of adhesion science and technology*, vol. 4, no. 1, pp. 333–351, 1990.
- [11] A. J. Kinloch, *Adhesion and Adhesives : Science and Technology*. London, UK : Chapman & Hall, 1st ed., 1987.
- [12] P. Ho, R. Haight, R. White, B. Silverman, and F. Faupel, *Fundamentals of Adhesion*. Plenum, New York, 1991.
- [13] J. Schultz and M. Nardin, *Theories and mechanisms of adhesion, in adhesion promotion techniques (edited by Mittal KL, etal)*. CRC Press, 1999.
- [14] P. Herrera-Franco and L. Drzal, “Comparison of methods for the measurement of fibre/matrix adhesion in composites,” *Composites*, vol. 23, pp. 2–27, Jan. 1992.

- 
- [15] Z. Yan, J. Zhang, G. Lin, H. Zhang, Y. Ding, and H. Wang, "Fabrication process optimization of hemp fibre-reinforced polypropylene composites," *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, vol. 32, pp. 1504–1512, 2013.
- [16] P. Joseph, K. Joseph, and S. Thomas, "Effect of processing variables on the mechanical properties of sisal-fiber-reinforced polypropylene composites," *Composites Science and Technology*, vol. 59, no. 11, pp. 1625–1640, 1999.
- [17] O. A. Khondker, U. S. Ishiaku, A. Nakai, and H. Hamada, "Fabrication and Mechanical Properties of Unidirectional Jute/PP Composites Using Jute Yarns by Film Stacking Method," *Journal of Polymers and the Environment*, vol. 13, pp. 115–126, Apr. 2005.
- [18] B. A. C. Siao tong, L. G. Tabil, S. A. Panigrahi, and W. J. Crerar, "Extrusion Compounding of Flax-Fiber-Reinforced Polyethylene Composites : Effects of Fiber Content and Extrusion Parameters," *Journal of Natural Fibers*, vol. 7, pp. 289–306, Nov. 2010.
- [19] A. Le Duigou, P. Davies, and C. Baley, "Exploring durability of interfaces in flax fibre/epoxy micro-composites," *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, vol. 48, pp. 121–128, May 2013.
- [20] Y. Seki, K. Sever, M. Sarikanat, I. Şen, and A. Aral, "Jute / Polyester Composites : The Effect of Water Aging on The Interlaminar Shear Strength," in *6th International Advanced Technologies Symposium*, (Elazığ, Turkey), pp. 368 – 371.
- [21] S. Jin, "Etude de vieillissement du comportement mé canique des agro- maté riaux à base de fibres de Chanvre," *Thèse de doctorat*, pp. 1 – 174, 2013.
- [22] J. Li, "Etude bibliographique de la caractérisation mécanique des fibres biodégradables et végétales," 2008.
- [23] J. Müssig and H. Harig, "Caractérisation des fibres de chanvre," *La journée scientifique du chanvre de Montjean sur Loire*, pp. 1–10, 1999.
- [24] C. Meirhaeghe and B. Hilaire, "Evaluation de la disponibilité et de l'accessibilité de fibres végétales à usages matériaux en France," *Etude de l'ADEME*, 2011.
- [25] J. Rojas, M. Bedoya, and Y. Ciro, "Current Trends in the Production of Cellulose Nanoparticles and Nanocomposites for Biomedical Applications," in *Cellulose - Fundamental Aspects and Current Trends* (M. Poletto and H. L. O. Junior, eds.), 2015.
- [26] E. C. McLaughlin and R. a. Tait, "Fracture mechanism of plant fibres," *Journal of Materials Science*, vol. 15, pp. 89–95, 1980.
- [27] J. H. Meshram and P. Palit, "Biology of Industrial Bast Fibers with Reference to Quality," *Journal of Natural Fibers*, vol. 10, no. 2, pp. 176–196, 2013.
- [28] S. Bouzouita, *Optimisation des interfaces fibre/matrice de composites à renfort naturel*. Thèse de doctorat, École Centrale de Lyon, 2011.
- [29] J. W. S. Hearle, "The fine structure of fibers and crystalline polymers. III. Interpretation of the mechanical properties of fibers," *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 7, pp. 1207–1223, 1963.
- [30] A. K. Mohanty, M. Misra, and L. T. Drzal, *Natural fibers, biopolymers, and biocomposites*. CRC Press, 2005.
- [31] C. Baillie, *Green composites : polymer composites and the environment*. Elsevier, 2004.
- [32] 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.

- [33] C. Bonnafous, *Analyse multi échelle des mécanismes d'endommagement de composites chanvre/époxy à renforts tissés. Caractérisation de l'interface fibre/matrice*. Thèse de doctorat, École nationale supérieure de mécanique et d'aérotechnique, 2010.
- [34] N. Silva, "Etat de la connaissance scientifique sur les fibres végétales," tech. rep., FRD (Fibres Recherche Développement), Troyes, 2008.
- [35] H. T. T. Nga, *Etude de l'influence de la température et de l'humidité sur les propriétés mécaniques en traction des fibre de chanvre et de coco*. Thèse de doctorat, Ecole de technologie supérieure, Université du Québec, 2008.
- [36] F. Ilczyszyn, a. Cherouat, and G. Montay, "Caractérisation des propriétés mécaniques de fibres de chanvre," *Matériaux & Techniques*, vol. 100, pp. 451–457, Aug. 2012.
- [37] G. W. Beckermann and K. L. Pickering, "Engineering and evaluation of hemp fibre reinforced polypropylene composites : Fibre treatment and matrix modification," *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, vol. 39, pp. 979–988, 2008.
- [38] D. Dai, M. Fan, and P. Collins, "Fabrication of nanocelluloses from hemp fibers and their application for the reinforcement of hemp fibers," *Industrial Crops and Products*, vol. 44, pp. 192–199, 2013.
- [39] A. Duval, A. Bourmaud, L. Augier, and C. Baley, "Influence of the sampling area of the stem on the mechanical properties of hemp fibers," *Materials Letters*, vol. 65, no. 4, pp. 797–800, 2011.
- [40] S. S. Munawar, K. Umemura, and S. Kawai, "Characterization of the morphological, physical, and mechanical properties of seven nonwood plant fiber bundles," *Journal of Wood Science*, vol. 53, pp. 108–113, 2007.
- [41] M. A. Sawpan, K. L. Pickering, and A. Fernyhough, "Effect of various chemical treatments on the fibre structure and tensile properties of industrial hemp fibres," *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, vol. 42, no. 8, pp. 888–895, 2011.
- [42] V. Placet, "Characterization of the thermo-mechanical behaviour of Hemp fibres intended for the manufacturing of high performance composites," *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, vol. 40, pp. 1111–1118, Aug. 2009.
- [43] C. Romão, P. Vieira, F. Peito, A. T. Marques, and J. L. Esteves, "Single filament mechanical characterisation of hemp fibres for reinforcing composite materials," *Molecular Crystals and Liquid Crystals*, vol. 418, pp. 87/[815]–99/[827], 2004.
- [44] F. Ilczyszyn, A. Cherouat, and G. Montay, "Effect of Hemp Fibre Morphology on the Mechanical Properties of Vegetal Fibre Composite Material," *Advanced Materials Research*, vol. 875-877, pp. 485–489, 2014.
- [45] L. Augier, *Etude de l'élaboration de matériaux composites PVC/bois à partir de déchets de menuiserie : formulation, caractérisation, durabilité et recyclabilité*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse, 2007.
- [46] K. Van De Velde and P. Kiekens, "Biopolymers : Overview of several properties and consequences on their applications," *Polymer Testing*, vol. 21, no. 4, pp. 433–442, 2002.
- [47] W. V. Titow, *PVC technology*. Springer Science & Business Media, 1984.
- [48] Cap Sciences, "Dossier enseignant. "Voyage En Industrie". Différents types de matière plastique.," 2006.
- [49] P. Cossee, "Ziegler-Natta catalysis I. Mechanism of polymerization of  $\alpha$ -olefins with Ziegler-Natta catalysts," *Journal of Catalysis*, vol. 3, no. 1, pp. 80 – 88, 1964.

- 
- [50] C. T. Maier, C. William Andrew Publishing/Plastics Design Library, 1998.
- [51] J. J. Bikerman, "Causes of poor adhesion : Weak boundary layers," *Industrial & Engineering Chemistry*, vol. 59, no. 9, pp. 40–44, 1967.
- [52] M. Aufray, *Caractérisation physico-chimique des interfaces époxyde-amine / oxyde ou hydroxyde métallique, et de leurs constituants*. Thèse de doctorat, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, 2005.
- [53] L. T. Drzal, "Interfaces and interphases," *Materials Park, OH : ASM International, 2001.*, pp. 169–179, 2001.
- [54] J.-K. Kim and Y.-W. Mai, *Engineered interfaces in fiber reinforced composites*. Elsevier, 1998.
- [55] A. Dupré and P. Dupré, *Théorie mécanique de la chaleur*. Gauthier-Villars, 1869.
- [56] L. T. Drzal, "Interfaces and Interphases," *ASM International*, vol. 21, pp. 169–179, 2001.
- [57] X. Dirand, B. Hilaire, J. P. Soulief, and M. Nardin, "Interfacial Shear Strength in glass - composites," *Composites Science and Technology*, vol. 56, no. 96, pp. 533–539, 1996.
- [58] M. Aufray, "Adhésion et Adhérence des Matériaux, Cours," 2009.
- [59] J.-P. Favre, "Interface dans les composites fibreux," *Techniques de l'ingénieur. Plastiques et composites*, vol. AM6, no. A7765, pp. A7765.1–A7765.21.
- [60] L. Greszczuk, "Theoretical studies of the mechanics of the fiber-matrix interface in composites," *Interfaces in composites*, vol. 452, p. 42, 1969.
- [61] D.-A. Mendels, Y. Leterrier, and J.-A. Manson, "The influence of internal stresses on the microbond test-i : theoretical analysis," *Journal of composite materials*, vol. 36, no. 3, pp. 347–363, 2002.
- [62] Y. Li, K. Pickering, and R. Farrell, "Determination of interfacial shear strength of white rot fungi treated hemp fibre reinforced polypropylene," *Composites Science and Technology*, vol. 69, pp. 1165–1171, June 2009.
- [63] J. a. Nairn, C.-h. Liu, D. Mendels, and S. Zhandarov, "Fracture Mechanics Analysis of the Single-Fiber Pull-Out Test and the Microbond Test Including The Effects of Friction and Thermal Stresses," *Proc. 16th Ann. Tech. Conf. of the Amer. Soc. Composites*, pp. 9–12, 2001.
- [64] C. Pomel, C. Baley, and B. Lamy, "Influence de prétraitements et traitements chimiques sur l'adhérence fibre de lin / résine thermodurcissable polyester," *15e Congrès Français de Mécanique*, pp. 3–7, 2001.
- [65] A. Le Duigou, P. Davies, and C. Baley, "Interfacial bonding of Flax fibre/Poly(L-lactide) bio-composites," *Composites Science and Technology*, vol. 70, pp. 231–239, Feb. 2010.
- [66] A. L. Duigou and P. Davies, "Etude de la liaison interfaciale fibre de lin / acide poly ( L-lactique ) Study of interfacial bonding of Flax fibre / Poly ( L-lactide )," *JNC*, vol. 16, 2009.
- [67] S. F. Zhandarov and E. V. Pisanova, "The local bond strength and its determination by fragmentation and pull-out tests," *Composites Science and Technology*, vol. 57, no. 8, pp. 957–964, 1997.
- [68] S. Zhandarov, E. Pisanova, E. Mäder, and J. A. Nairn, "Investigation of load transfert between the fiber and the matrix in pull-out tests with fibers having different diameters," *Journal of adhesion science and technology*, vol. 15, no. 2, pp. 205–222, 2001.

- [69] T. Huber and J. Müssig, “Fibre matrix adhesion of natural fibres cotton, flax and hemp in polymeric matrices analyzed with the single fibre fragmentation test,” *Composite Interfaces*, vol. 15, pp. 335–349, jan 2008.
- [70] C. Guillebaud-Bonafous, D. Vasconcellos, F. Touchard, and L. Chocinski-Arnault, “Experimental and numerical investigation of the interface between epoxy matrix and hemp yarn,” *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, vol. 43, pp. 2046–2058, nov 2012.
- [71] C. Bonafous, F. Touchard, L. Chocinski-arnault, and C. Dever, “Caractérisation expérimentale de l’ interface fil / matrice dans les composites chanvre / époxy Experimental characterisation of yarn / matrix interface in hemp / epoxy composites,” *JNC*, vol. 17, pp. 1–10, 2011.
- [72] N. Melanitis, P. C. Galiotis, . L. Tetlow, and C. K. L. Davies, “Interfacial shear stress distribution in model composites. Parte 2 : Fragmentation studies on carbon fibre/epoxy systems,” *Journal of Composite Materials*, vol. 26, pp. 574–610, 1992.
- [73] R. J. Scheer and J. a. Nairn, “A Comparison of Several Fracture Mechanics Methods for Measuring Interfacial Toughness with Microbond Tests,” *The Journal of Adhesion*, vol. 53, pp. 45–68, Sept. 1995.
- [74] X.-F. Zhou, J. Nairn, and H. Wagner, “Fiber–matrix adhesion from the single-fiber composite test : nucleation of interfacial debonding,” *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, vol. 30, no. 12, pp. 1387–1400, 1999.
- [75] P. Krawczak, “Essais des plastiques renforcés,” *Techniques de l’ingénieur. Plastiques et composites*, vol. AM5, no. AM 5 405, pp. 1–36.
- [76] L. Broutman, “Measurement of the fiber-polymer matrix interfacial strength,” in *Interfaces in composites*, ASTM International, 1969.
- [77] A. Bergeret and P. Krawczak, “Liaison renfort/matrice. Définition et caractérisation,” *Techniques de l’ingénieur. Plastiques et composites*, no. AM 5 305, pp. 1–24, 2006.
- [78] X.-F. Zhou, H. Wagner, and S. Nutt, “Interfacial properties of polymer composites measured by push-out and fragmentation tests,” *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, vol. 32, pp. 1543–1551, Nov. 2001.
- [79] X. Zhou and H. D. Wagner, “Fragmentation of two-fiber hybrid microcomposites : stress concentration factors and interfacial adhesion,” *Composites Science and Technology*, vol. 60, pp. 367–377, 2000.
- [80] J. Andersons, R. Joffe, M. Hojo, and S. Ochiai, “Fibre fragment distribution in a single-fibre composite tension test,” *Composites Part B : Engineering*, vol. 32, pp. 323–332, 2001.
- [81] C. Baley, F. Busnel, Y. Grohens, and O. Sire, “Influence of chemical treatments on surface properties and adhesion of flax fibre–polyester resin,” *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, vol. 37, pp. 1626–1637, oct 2006.
- [82] R. Joffe, J. Andersons, and L. Wallström, “Strength and adhesion characteristics of elementary flax fibres with different surface treatments,” *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, vol. 34, pp. 603–612, jul 2003.
- [83] A. Le Duigou, A. Kervoelen, A. Le Grand, M. Nardin, and C. Baley, “Interfacial properties of flax fibre-epoxy resin systems : Existence of a complex interphase,” *Composites Science and Technology*, vol. 100, pp. 152–157, 2014.

- 
- [84] G. Beckermann and K. Pickering, "Engineering and evaluation of hemp fibre reinforced polypropylene composites : Micro-mechanics and strength prediction modelling," *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, vol. 40, pp. 210–217, Feb. 2009.
- [85] B. Fayolle and J. Verdu, "Vieillessement physique des matériaux polymères et appareillage Partie : Vieillessement physique des matériaux polymères," *Techniques de l'Ingénieur*, no. AM 3 150, pp. 1–19, 2005.
- [86] H. G. Carter and K. G. Kibler, "Langmuir-type model for anomalous moisture diffusion in composite resins," *Journal of Composite Materials*, vol. 12, no. 2, pp. 118–131, 1978.
- [87] A. Célineo, S. Fréour, F. Jacquemin, and P. Casari, "The hygroscopic behavior of plant fibers : a review," *Frontiers in Chemistry*, vol. 1, no. 43, pp. 1–12, 2014.
- [88] A. Cherouat, X. L. Gong, F. Ilczyszyn, S. Jin, and G. Montay, "Effect of the Fibre Morphology and Aging Conditions on the Mechanical Properties of Hemp Fibers," *Advanced Materials Research*, vol. 418-420, pp. 270–273, Dec. 2011.
- [89] T. H. Mokhothu and M. J. John, "Review on hygroscopic aging of cellulose fibres and their biocomposites," *Carbohydrate Polymers*, vol. 131, pp. 337–354, 2015.
- [90] S. Jin and X.L.Gong, "Influence du vieillissement en humidité relative sur les propriétés mécaniques des fibres de chanvre," *20ème Congrès Français de Mécanique*, pp. 1–6, 2011.
- [91] V. Placet, "Characterization of the thermo-mechanical behaviour of Hemp fibres intended for the manufacturing of high performance composites," *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, vol. 40, no. 8, pp. 1111–1118, 2009.
- [92] S. Jin and X. Gong, "Study of mechanical properties and performance of aging hemp fibers," *World Journal of Engineering*, vol. 8, pp. 325–330, Dec. 2011.
- [93] B. Prasad and M. Sain, "Mechanical properties of thermally treated hemp fibers in inert atmosphere for potential composite reinforcement," *Materials Research Innovations*, vol. 7, no. 4, pp. 231–238, 2003.
- [94] Z. N. Azwa, B. F. Yousif, a. C. Manalo, and W. Karunasena, "A review on the degradability of polymeric composites based on natural fibres," *Materials and Design*, vol. 47, pp. 424–442, 2013.
- [95] S. V. Rangaraj and L. V. Smith, "Effects of moisture on the durability of a wood/thermoplastic composite," *Journal of Thermoplastic Composite Materials*, vol. 13, no. 2, pp. 140–161, 2000.
- [96] H. Dhakal, Z. Zhang, and M. Richardson, "Effect of water absorption on the mechanical properties of hemp fibre reinforced unsaturated polyester composites," *Composites Science and Technology*, vol. 67, no. 7–8, pp. 1674 – 1683, 2007.
- [97] P. V. Joseph, M. S. Rabello, L. H. C. Mattoso, K. Joseph, and S. Thomas, "Environmental effects on the degradation behaviour of sisal fibre reinforced polypropylene composites," *Composites Science and Technology*, vol. 62, no. 10-11, pp. 1357–1372, 2002.
- [98] a. Le Duigou, P. Davies, and C. Baley, "Seawater ageing of flax/poly(lactic acid) biocomposites," *Polymer Degradation and Stability*, vol. 94, no. 7, pp. 1151–1162, 2009.
- [99] S. Jin and X. L. Gong, "Effect of Ultraviolet and Moisture Aging on the Mechanical Properties of Hemp Fibers Composites," *Applied Mechanics and Materials*, vol. 226-228, pp. 1739–1742, Nov. 2012.
- [100] L. Hollaway, "A review of the present and future utilisation of frp composites in the civil infrastructure with reference to their important in-service properties," *Construction and Building Materials*, vol. 24, no. 12, pp. 2419–2445, 2010.

- [101] D. B. Dittenber and H. V. GangaRao, “Critical review of recent publications on use of natural composites in infrastructure,” *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, vol. 43, no. 8, pp. 1419–1429, 2012.
- [102] B. Serre, *Contribution à l'étude de l'interface fibre de chanvre*. Rapport de stage, LASMIS, ICD, Université de Technologie de Troyes, 2013.
- [103] B. M. Prasad and M. M. Sain, “Mechanical properties of thermally treated hemp fibers in inert atmosphere for potential composite reinforcement,” *Materials Research Innovations*, vol. 7, no. 4, pp. 231–238, 2003.
- [104] X. Li, L. G. Tabil, S. Panigrahi, and W. J. Crerar, “A Study on Processing Flax Fiber-reinforced Polyethylene Biocomposites by Injection Molding,” vol. 0300, no. 06, 2006.
- [105] D. Paukszta and S. Borysiak, “The Influence of Processing and the Polymorphism of Lignocellulosic Fillers on the Structure and Properties of Composite Materials—A Review,” *Materials*, vol. 6, pp. 2747–2767, July 2013.
- [106] S. K. Garkhail, *Composites based on natural fibres and thermoplastic matrices*. Phd thesis, Queen Mary College, University of London, 2001.
- [107] M. C. Paiva, M. Nardin, C. A. Bernardo, and J. Schultzb, “Influence of thermal history on the results of fragmentation tests on high-modulus carbon-fibre/polycarbonate model composites,” *Composites Science and Technology*, vol. 57, pp. 839–843, 1997.
- [108] F. L. Matthews and R. D. Rawlings, *Composite materials : engineering and science*. Elsevier, 1999.
- [109] C. Baley, C. Morvan, and Y. Grohens, “Influence of the absorbed water on the tensile strength of flax fibers,” *Macromolecular Symposia*, vol. 222, no. 1, pp. 195–202, 2005.
- [110] D. Scida, M. Assarar, and R. Ayad, “Effet de l'humidité sur le comportement mécanique des composites à fibres de lin Effect of Humidity on mechanical properties of flax fibres reinforced composites,” in *JNC 17, Poitiers, France*, (Poitiers, France), pp. 1–9, 2011.
- [111] B. C. Ray, “Impact of Environmental and Experimental Parameters on FRP Composites,” *Eighteenth International Symposium on Processing and Fabrication of Advance Materials [PFAM XVIII]*, 2009.
- [112] B. Burks and M. Kumosa, “The effects of atmospheric aging on a hybrid polymer matrix composite,” *Composites Science and Technology*, vol. 72, pp. 1803–1811, Oct. 2012.

## Résumé

Les agro-composites font l'objet de nombreuses études et applications industrielles en raison des multiples propriétés mécaniques qu'ils présentent. Ces propriétés présentent de grandes perspectives comparées à celles des composites traditionnels. Cependant les connaissances sur le comportement mécanique de l'interface fibre/matrice restent limitées. De plus, la différence de propriété entre la fibre hydrophile et la matrice hydrophobe peut causer des défauts au niveau de l'interface. Il est donc important de caractériser finement la décohésion à l'interface au cours d'une sollicitation. Plusieurs méthodes ont été proposées dans la littérature, elles sont généralement très complexes à mettre en œuvre et sont coûteuses. Dans cette étude, nous avons développé une méthode de caractérisation en se basant sur l'essai de "pull-out". La géométrie de la fibre a été prise en compte dans le calcul des propriétés mécaniques de l'interface par la mise à profit d'une approche inspirée de la tomographie. L'influence de la température d'élaboration sur les propriétés mécaniques de l'interface a été étudiée de manière à définir la température optimale. L'évolution des propriétés interfaciales a été suivie au cours d'un vieillissement en humidité relative. Après quatre semaines, la résistance au cisaillement et la rigidité au cisaillement de l'interface sont diminuées fortement alors que la déformation à la rupture est augmentée.

**Mots-clés:** Composites, fibres végétales, thermoplastiques, interfaces (sciences physiques), matériaux - - effets de la température, matériaux - - détérioration

## Abstract

Agro-composites are increasingly studied and applied to various industries over recent years due to good mechanical properties compared to conventional composites especially in terms of specific values. However, since low adhesion between the hydrophilic fiber and hydrophobic matrix, which occurs one of the main breaks modes in this kind of material, the characterization of the interface becomes a key problem. For investigation of this issue, existing methods show limitation for reasons of complexity (in preparation, in principle) and of cost. In this study, we developed a « pull-out ». In particular, the real fiber geometry of the plant fiber was taken into the calculation of mechanical properties of interface using a tomography inspired method. By checking the effective temperature of the molding then varying it, we studied the effect of this processing parameter to mechanical properties of fibre/matrix interface and determined the optimal conditions. The developed experimental protocol is applied to aged interfaces in order to clarifying the evolution of interfacial properties during the aging time to relative humidity. After four weeks, the interfacial shear strength and the shear modulus of the interface were greatly reduced while the shear deformation at the rupture was greatly increased.

**Keywords:** Composite materials, plant fibers, thermoplastics, interfaces (physical sciences), materials - - effect of temperature on, materials - - deterioration



# Duy Cuong NGUYEN

## Doctorat : Matériaux, Mécanique, Optique et Nanotechnologie

### Année 2016

#### Caractérisation de l'interface fibre /matrice. Application aux composites polypropylène/chanvre

Les agro-composites font l'objet de nombreuses études et applications industrielles en raison des multiples propriétés mécaniques qu'ils présentent. Ces propriétés présentent de grandes perspectives comparées à celles des composites traditionnels. Cependant les connaissances sur le comportement mécanique de l'interface fibre/matrice restent limitées. De plus, la différence de propriété entre la fibre hydrophile et la matrice hydrophobe peut causer des défauts au niveau de l'interface. Il est donc important de caractériser finement la décohésion à l'interface au cours d'une sollicitation. Plusieurs méthodes ont été proposées dans la littérature, elles sont généralement très complexes à mettre en œuvre et sont coûteuses. Dans cette étude, nous avons développé une méthode de caractérisation en se basant sur l'essai de « pull-out ». La géométrie de la fibre a été prise en compte dans le calcul des propriétés mécaniques de l'interface par la mise à profit d'une approche inspirée de la tomographie. L'influence de la température d'élaboration sur les propriétés mécaniques de l'interface a été étudiée de manière à définir la température optimale. L'évolution des propriétés interfaciales a été suivie au cours d'un vieillissement en humidité relative. Après quatre semaines, la résistance au cisaillement et la rigidité au cisaillement de l'interface sont diminuées fortement alors que la déformation à la rupture est augmentée.

**Mots clés :** composites - fibres végétales – thermoplastiques - interfaces (sciences physiques) – matériaux, effets de la température - matériaux, détérioration.

#### Fibre/Matrix Interface Characterization. Application to Hemp Fiber/Polypropylene Composites

Agro-composites are increasingly studied and applied to various industries over recent years due to good mechanical properties compared to conventional composites especially in terms of specific values. However, since low adhesion between the hydrophilic fiber and hydrophobic matrix, which occurs one of the main breaks modes in this kind of material, the characterization of the interface becomes a key problem. For investigation of this issue, existing methods show limitation for reasons of complexity (in preparation, in principle) and of cost. In this study, we developed a « pull-out ». In particular, the real fiber geometry of the plant fiber was taken into the calculation of mechanical properties of interface using a tomography inspired method. By checking the effective temperature of the molding then varying it, we studied the effect of this processing parameter to mechanical properties of fibre/matrix interface and determined the optimal conditions. The developed experimental protocol is applied to aged interfaces in order to clarifying the evolution of interfacial properties during the aging time to relative humidity. After four weeks, the interfacial shear strength and the shear modulus of the interface were greatly reduced while the shear deformation at the rupture was greatly increased.

**Keywords:** composite materials - plant fibers - thermoplastics - interface (physical sciences) - materials, effect of temperature on - materials, deterioration.

Thèse réalisée en partenariat entre :

