Verres, Céramiques & Composites, Vol.2, N°1 (2012), 34-40

ELABORATION ET ETUDE DES PROPRIETES DES COMPOSITES POLYESTER/ ALFA TRAITEE ET NON TRAITEE

S. Mouhoubi, H. Osmani, T. Bali, S. Abdeslam

Laboratoire des Matériaux Non Métalliques, Institut d'Optique et Mécanique de Précision, Université Sétif 1, 19000 Algérie.

E-mail: mouhoubis@yahoo.fr

Résumé:

Ce travail porte sur l'étude de l'effet de traitement chimique des fibres Alfa sur les propriétés mécaniques et physiques du matériau composites Alfa/Ployester. Les matériaux sont élaborés au sein du laboratoire des matériaux non métalliques (LMNM-UFA- Sétif). Il s'agit de préparer tout d'abord les mats à base de fibres végétales Alfa brutes et traitées chimiquement. En suite les composites sont élaborés sous forme de sandwich par le procédé du moulage au contact. La matrice utilisée est la résine polyester insaturée. Les fibres ont subi un traitement alcalin d'une concentration de 5% de NaOH pendant 6 heures. Les résultats obtenus ont montré que le traitement chimique a un effet très notable sur les propriétés physiques et mécaniques des composites et sur la nature de l'interface fibre matrice.

Mots clés : Adhésion, Alfa, Composite, Polyester, traitement alcalin.

Abstract:

In the present work we have study the chemical treatment effect on the composites proprieties. Our composites have prepared in the No metallic materials laboratory (LMNM- Sétif). Those are building with the contact molded method under a sandwich form. We have introduced untreated and treated Alfa fiber mat in the resin polyester matrix. The chemical treatment that we have used is alkali treatment with 5% of NaOH during 6 hours. This results show that the chemical treatment have an important effect on the composites mechanical and physical behavior and also on the interface between vegetable fiber and polymeric matrix.

Key words: Adhesion, Alfa, Composite, Polyester, alkali treatment.

I. Introduction:

Au cours des deux dernières décennies, de nouveaux matériaux composites ont émergé dans le paysage industriel. Les contraintes environnementales ont poussé les industriels à développer de nouveaux matériaux issus de ressources renouvelables. L'introduction de fibres naturelles dans des matrices polymères (biodégradables ou non) peut apporter des avantages notoires par rapport aux fibres traditionnellement utilisées dans les composites (ex les fibres de verre) : faibles densités, bonnes propriétés mécaniques, faibles coûts [1][2].

En effet les fibres végétales Alfa sont en abondance dans le territoire algérien, et présentent de bonnes résistantes dans son environnement naturel. Cela nous a permis d'envisager leur utilisation comme renfort dans les matériaux composites. En effet, la présence des groupements hydroxyles à la surface des fibres leur confère un caractère hydrophile. Ce dernier les rend incompatibles avec les matrices organiques à caractère fortement hydrophobe [1] [3]. L'adhérence fibre-matrice peut être améliorée par la modification de la topologie de la surface de la fibre [3][4][5].

Dans cette étude, on propose un traitement chimique des fibres Alfa pour améliorer la compatibilité fibre/matrice d'où de bonnes performances mécaniques sont attendues.

I. 1. Les fibres végétales:

Les fibres végétales sont des structures biologiques principalement composées de d'holocellulose (cellulose, hémicelluloses) et de lignine [3] (Fig. 1). Dans une proportion beaucoup plus faible elles contiennent aussi

des extractibles, des protéines et certains composés inorganiques [6].

Les proportions d'holocellulose et de lignine varient selon la nature des fibres naturelles (jute, bois, sisal, kenaf, chanvre, bagasse … etc.). Chaque fibre se présente sous forme d'un composite multicouches dans lequel la lignine joue le rôle d'une matrice enrobant une structure rigide (la cellulose) [**7**].

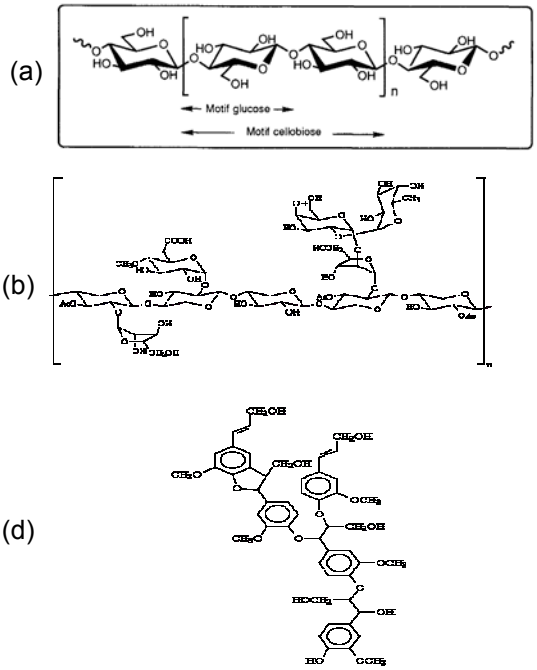


Fig. 1 : Représentation schématique de

(a) Molécule de cellulose [6]
(b) Molécule de l'hémicellulose [8][9]
(c) Molécule de lignine comporte les différentes unités [9][10]

I. 2. Le traitement chimique alcalin :

Les modifications chimiques des fibres végétales visent à améliorer l'adhésion avec les matrices polymériques. Les traitements chimiques des fibres végétales les plus adaptés sont généralement : l'acétylation, traitement alcalin, de silane, de benzoïlation, de peroxyde et aux agents d'accouplement maléatés . Dans notre cas on a effectué un traitement alcalin.

C'est l'un des traitements chimiques les plus employés sur les fibres naturelles destinées pour le renforcement des plastiques. Les modifications les importantes causées par ce traitement sont [11]:

- La rupture de la liaison hydrogène dans la structure de réseau des fibres;
- L'augmentation de la rugosité extérieure;
- L'élimination d'une certaine quantité de lignine, de cire et des huiles couvrants la paroi cellulaire de la fibre;
- Dépolymérisation de la cellulose;

L'addition de l'hydroxyde de sodium (NaOH) à la fibre naturelle favorise l'ionisation du groupe d'hydroxyle selon la formule suivante [12] :

$$Fibre - OH + NaOH \rightarrow Fibre - O - Na + H_2O$$

Ainsi, le traitement alcalin influence directement sur les fibrilles cellulosiques, le degré de polymérisation, l'extraction de la lignine et des composés hémicellulosiques. Dans ce traitement, les fibres sont immergées dans une solution de NaOH pendant une période bien déterminée.

Ray et al [13] et Mishra et al [14] ont étudié l'effet de traitement des fibres de jute et de sisal avec une solution de 5% de NaOH de 2 à 72 H à la température. En outre Morrison et al [15]. Garcia et al [16] ont effectués un traitement alcalin avec 2% de NaOH pendant 90 s à 200°C sous une pression de 1,5 MPa. Cela conduit à la dissociation de la fibre de lin en fibrilles. Tous ces travaux ont montrés que l'alcalinisation conduit à l'augmentation du taux de cellulose amorphe au détriment de la cellulose cristalline.

Valadez et al [17] Ont conclu que le traitement alcalin a deux effets principaux sur la fibre végétale :

- Il augmente la rugosité extérieure pour l'amélioration de l'ancrage mécanique.
- Il augmente la quantité de cellulose à la surface de la fibre.

En conséquence, le traitement alcalin a un effet durable sur le comportement mécanique des fibres de lin, particulièrement sur la résistance et la rigidité de la fibre. Van de Weyenberg et al [18] montrent que le traitement alcalin conduit à une amélioration des propriétés en traction (force et module) allant jusqu'à 30% des composites lin/époxyde. Des études sont menées sur l'effet de la concentration en NaOH (0.5, 1, 2, 4 et 10%) pour le traitement des fibres végétales [19]. Jacob et al ont conclu que la résistance à la traction des fibres de sisal est maximale, pour une concentration de 4% de NaOH à la température ambiante [20].

Mishra et al [21] ont traité la fibre de sisal par différentes concentrations de soude (5 et 10%). A partir d'une comparaison entre les deux composites (polyester/sisal) montrent que la résistance à la traction du composite traité par 5% de NaOH est meilleure que celle

des composites traités par la concentration de 10%. Car la délignification excessive de la fibre végétale, rend cette dernière plus faible ou endommagée. De nombreux chercheurs confirment que la résistance à la traction des composites à renfort végétal diminue au-delà d'une certaine concentration optimale de NaOH.

II. Procédure expérimentale :

II. 1. Présentation des fibres :

L'Alfa, se trouve abondante en Algérie. Elle est intéressante du point de vue économique. Cela permet d'envisager son utilisation (autre que la production du papier) pour l'élaboration des matériaux composites à renfort végétal. Les fibres Alfa utilisées dans ce travail, proviennent de la région de Merouana (W. Batna). Le Climat de Batna est semi-aride. La température moyenne est de 4°C en janvier et de 35°C en juillet. Durant l'été la température peut atteindre les 45°C à l'ombre. La pluviométrie moyenne est de 210 mm par an [**22**]. La fibre d'alfa se présente sous forme d'une feuille enroulée. D'après Hattali et al [**23**] l'Alfa de l'Algérie est constitué de 14,9% de lignine, 38,5% d'hémicellulose et de 45,5% de cellulose

II. 2. Elaboration des composites:

II. 2. 1. Traitement des fibres:

Les fibres sont immergées dans une solution de 5% de NaOH est maintenus à la température constante (30°C) pendant 4h. Ensuite les fibres sont rincées avec de l'eau douce et puis avec de l'acide acétique dilué afin de neutraliser le PH. Enfin une dernière fois avec de l'eau distillée. Après 24 h de séchage à l'air libre les fibres sont étuvées à 100°C pendant 6h [13][24].

II. 2. 2. Préparation des mats :

Dans cette tache nous avons préparé deux types de mats (avec l'alfa brut et avec de l'alfa traité) en suivant les étapes suivantes :

a. Découpage des fibres : le découpage des fibres avant broyage a pour but de maîtriser la longueur maximale (L =10mm)

b. Traitement alcalin des fibres

c. Broyage : il est effectué à l'aide d'un broyeur électrique.

d. Tamisage : cette opération a pour but d'obtenir des longueurs de fibres comprise entre 2 et 10mm.

e. Saupoudrage du renfort : à l'aide d'un tamis de maillon 2,5×2,5 mm on saupoudre 40g de renfort de façon à obtenir une répartition relativement homogène (e ≈ cte). Cette opération se fait sur papier non adhésif.

f. Pulvérisation du liant : nous avons utilisé le polyuréthane (Permuthane U-10011) dilué à 200%. Le polyuréthane permet un certain pontage entre les fibres du mat. Cette opération confère au mat une certaine la consistance pour des manipulations ultérieures.

g. Séchage du mat : dans une étuve à 100 °C on introduit l'ensemble (tôle + papier + renfort), pendant 20 min pour accélérer le séchage de polyuréthane.

h. Séparation du mat du papier non adhésif : un soin particulier est nécessaire pour la séparation de la nappe du renfort du papier non adhésif.

La compression des mats entre deux plateaux d'une presse manuelle réduit l'épaisseur du renfort, confère une certaine isotropie planaire et augmente le taux du renfort dans le composite (Fig. 2).

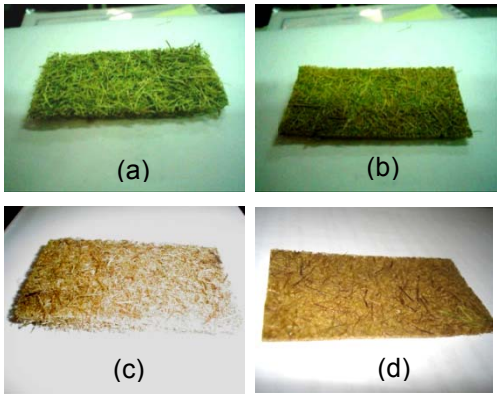


Fig. 2 : Mat de fibres (a) brut avant compression, (b) brut comprimé, (c) traités avant compression, (d) traités comprimé.

II. 2. 3. Mise au point par moulage au contact:

On dépose une couche de vaseline sur toutes les faces intérieures d'un moule à empreinte rectangulaire (20 x 100 x 180 mm3). Le composite est obtenu par l'empilement successif des mats de fibres et des couches de résine polyester catalysée et durcie, jusqu'à l'obtention de l'épaisseur désirée de 12mm. Ce qui donne un taux de fibre d'environ 35 %. Enfin on veille à éliminer les bulles d'air avant la gélification de la résine (de 20 à 30 mn). Le matériau final est sous forme de sandwich (Fig.3)

Fig. 3 : Composite Polyester/Mat Alfa.

II. 3. Caractérisations mécaniques :

Nous avons effectué des essais de flexion trois points sur deux types d'éprouvettes (éprouvettes lisses et entaillées) à l'aide d'une machine de traction/compression (ZWICK - Z050). La vitesse de la traverse mobile est de 1 mm/min. La distance entre appuis est de 60 mm. Les entailles sont pratiquées à l'aide d'une fraise scie. Le tableau 1, résume les différentes configurations d'éprouvettes testées.

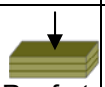
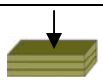
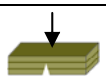
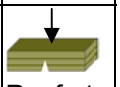
Désig	I.1	I.2	II.1	II.2
Eprouvette				
	Renfort brute	Renfort traité	Renfort brute	Renfort traité

Tableau. 1 : *Différents types d'éprouvettes testées.*

La contrainte de flexion et la déformation sont données par les formules suivantes :

$$\sigma_F = \frac{3}{2} \cdot \frac{P_F \cdot L}{B \cdot (W)^2} \qquad (1)$$

L : est la longueur entre appuis (60mm)
B : est la largeur de l'éprouvette
W : est la hauteur de l'éprouvette

Le facteur d'intensité de contrainte critique (K_{IC}) est déterminé en utilisant la formule suivante [**25**] :

$$K_{IC} = \sigma \cdot Y \cdot \sqrt{a_0} \qquad (2)$$

Y est un facteur de forme qui dépend des dimensions de l'éprouvette.

$$Y(a/W) = 1{,}96 - 2{,}75 \cdot (a_0/W) + 13{,}66 \cdot (a_0/W)^2 - 23{,}98 \cdot (a_0/W)^3 + 25{,}22 \cdot (a_0/W)^4 \qquad (3)$$

D'où a_0 = 3mm (la profondeur de l'entaille).

II. 4. Taux d'absorption d'eau :

Les échantillons sont séchés à 105°C pendant 24 heures. Ils sont ensuite mis dans l'eau. Ils sont tirés au fur et à mesure de l'eau, essuyé et ensuite pesés. On refait l'essai jusqu'à la saturation de l'échantillon. Le taux d'absorption d'eau est calculé selon la formule suivante :

$$T_{AE}(\%) = \frac{m_s - m_0}{m_0} \cdot 100\,\% \qquad (5)$$

Avec : ms : masse de l'échantillon saturé.
m_0 : masse de l'échantillon sec.

II. 5. Analyse par IRTF :

L'appareil utilisé est un spectromètre (Perkin Elmer). Les différents spectres de la transmittance (%) en fonction du nombre d'onde (cm-1) sont obtenus à partir des pastilles d'un diamètre de 12mm et d'une épaisseur ≈ 1/20 mm. Il s'agit d'un mélange de 98% de KBr et de 2% de fibres finement broyées traitées et non traitées, sous une pression de 10 tonnes.

III. Résultats et discussions

Les observations microscopiques (Fig. 4) montrent la morphologie de cette herbe.

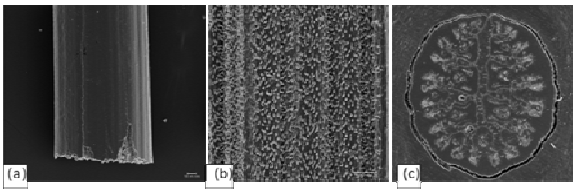


Fig. 4: Observations microscopiques de la fibre Alfa: (a) face extérieure, (b) coupe longitudinale et (c) coupe transversale

La fibre est une feuille enroulée. Elle se présente sous la forme d'un cylindre de surface extérieure plus au moins lisse (Fig. 5 a). Par contre, la surface intérieure est fortement crêpée. La fibre est constituée de filaments constitués de fibrilles de cellulose noyées dans une matrice (lignine). Les fibrilles tordues confèrent une certaine flexibilité au filament, et par conséquent de la fibre.

Les observations des faces extérieures des fibres traitées (Fig. 5) montrent que l'état de surface se dégrade en fonction du temps de traitement, donc la rugosité extérieure augmente, ce qui favorise une bonne adhésion par ancrage mécanique avec la matrice. Cette tendance est très bénéfique pour la mise au point des composites

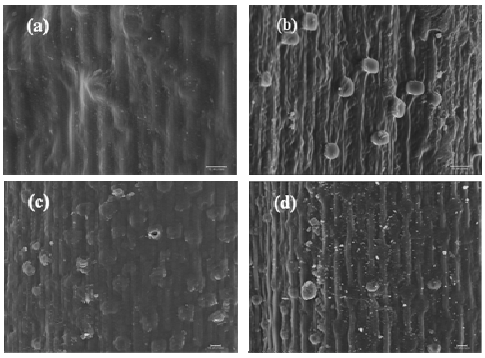


Fig. 5 : Etat de surface des fibres traitées (a) pendant 2H, (b) pendant 4H, (c) pendant 6H et (d) pendant 8H.

L'objectif essentiel du traitement est la diminution des groupements OH présents dans la structure de la fibre. Nous avons effectué le test d'absorption d'eau sur les composites à fibres traitées et non traitées. La quantité d'eau absorbée dans les composites est calculée à partir de la différence de masse entre l'échantillon immergé dans l'eau et celui étuvé.

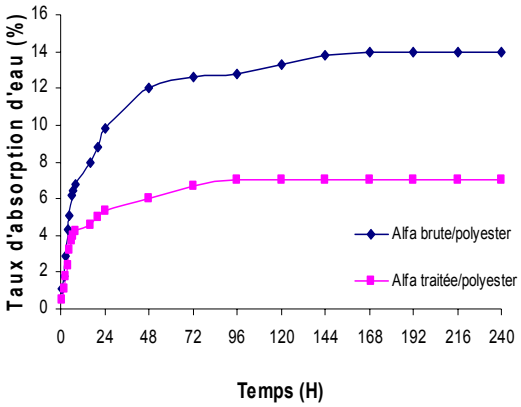


Fig. 6 : Variation du taux d'absorption d'eau en fonction du temps

Fig. 6 illustre l'évolution du taux d'absorption d'eau en fonction du temps d'immersion des deux composites. On marque une nette diminution du taux d'absorption entre les deux types de composites. Le traitement alcalin des fibres provoque une nette décroissance du taux d'absorption. La saturation du composite avec un renfort traité à 6 heures est de 7 % tandis que pour le composite à renfort brut est de l'ordre de 14%. Donc le traitement réduit considérablement le taux d'absorption.

En outre pour déterminer l'ensemble des changements de la structure causé par le traitement alcalin de la fibre, on a effectué une analyse par IRTF. Les spectres des fibres brutes et traitées à différents temps de traitement sont représentés sur (Fig. 7).

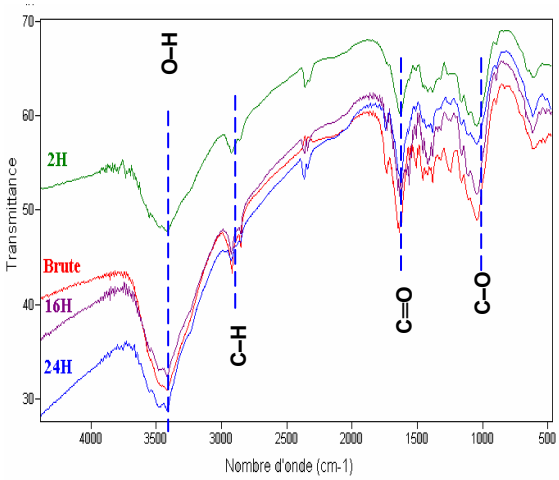


Fig. 7 : Spectres IFTR des fibres brutes et traitées par NaOH (5%).

On observe une large bande à 3500 cm-1. Elle est due principalement aux groupements OH existants dans la structure des fibres. On remarque que l'amplitude de ce pic (3500 cm-1) pour les fibres brutes est la plus importante. Ce qui confirme que le traitement chimique réduit les liaisons OH.

On note également la présence d'une bande à 1050 cm-1, et une seconde à 1630 cm-1 ce qui traduit l'existence des liaisons simple C─O et double C═O. le nombre d'onde 2920 cm-1 correspond aux vibrations des chaînes aliphatiques C-H.

Des essais préliminaires de flexion trois points et de rupture sont effectués. Fig. 8 présente les courbes charge/déplacement effectués sur des éprouvettes avec renfort traité et non traité.

La courbe I–1 présente un comportement linéaire jusqu'à la charge maximale suivie d'une importante instabilité. Cette instabilité est probablement due une adhésion relativement forte entre la matrice et le renfort fibreux. Le traitement du renfort par la soude caustique provoque une légère diminution de la contrainte à la rupture du composite avec une certaine stabilité de la courbe charge déplacement. Cette diminution est de l'ordre de 10%. Elle est due à l'affaiblissement de la fibre végétale par le traitement chimique.

Les essais de rupture sur des éprouvettes entaillées (Fig. 8. II-1 et II-2), montre une diminution de la ténacité. Par contre le travail de rupture sous la courbe se trouve amélioré par le traitement chimique des fibres.

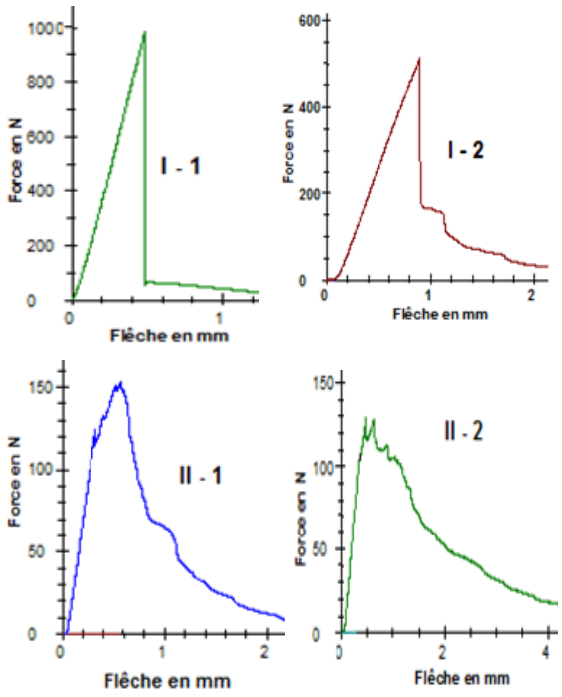


Fig. 8: Courbes charge déplacement des différentes configurations de composite polyester fibres Alfa

Le tableau 2 résume les différents paramètres de rupture des éprouvettes testées. Chaque valeur mentionnée présente la moyenne de 5 essais.

Config	σ_f [Mpa]	F_{max} [N]	E [Gpa]	K1C [Mpa. $m^{1/2}$]
I – 1	47.8	910.5	2.1	-
I – 2	37.6	474.5	0.9	-
II – 1	13.1	144.2	-	4.5
II – 2	11.8	128.6	-	4.2

Tableau. 2 : Résultats des essais de flexion 3 points sur les deux types de composite.

Fig.9 montre les faciès de rupture des éprouvettes testées. L'observation des faciès de rupture montre que le traitement des fibres entraîne une modification de la nature de l'interface. On constate que les longueurs déchaussées sont plus importantes dans le cas des fibres non traitées. On observe une modification de la morphologie des fibres. L'adhésion fibre matrice se trouve améliorée dans le cas des fibres traitées.

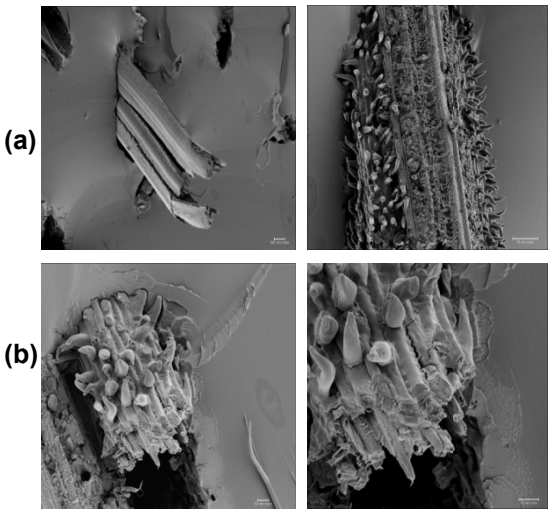


Fig. 9 : Faciès de rupture :

(a) éprouvette de composite à renfort brute,
(b) éprouvette de composite à renfort traité,

IV. Conclusion

L'introduction des fibres végétales **dans les thermoplastiques ou thermodurcissables en la place des** fibres **de synthétiques est un concept déjà industrialisé.** Mais ces composites renforcés par des fibres naturelles sont encore peu utilisés et en cours de développement.

Les résultats obtenus montrent que le traitement alcalin des fibres provoque une légère chute de la contrainte à la rupture. Le même effet est observé pour les valeurs du module de Young. Ainsi que pour la ténacité. Cela est attribué aux changements de la structure de la fibre.

En outre L'introduction des fibres Alfa traitées à la matrice du polyester a diminuée le pouvoir hydrophile du composite. La différence entre les taux d'absorptions des deux composites est de 50 %. Ceci confirme que le traitement alcalin des fibres est très bénéfique pour la sensibilité à l'eau.

Références bibliographiques :

[1]. VA. Alvarez, A. Vázquez, Composites: Part A, Vol 37 (2006) pp 1672–1680.
[2]. J. Rout, M. Misra, SS. Tripathy, SK. Nayak, AK. Mohanty, Composites Science and Technology, Vol61, (2001) pp 1303–1310.
[3]. K. Al-Kaabi, Al-Khanbashi A., Hammami A. Polymer Composites, (2005), pp 604-613.
[4]. MS. Sreekala, MG. Kumaran, J. Seena, J. Maya, Applied Composite Materials, Vol7, (2000), pp 295–329

[5]. A. Al-Khanbashi, K. Al-Kaabi, A. Hammami, Polymer Composites, (2005), pp 486-497
[6]. R. M. Rowell, R.A. Young, J. K. Rowel. CRC. Lewis publishers, Boca Raton, USA, (1997)
[7]. F. Michaud, "Rhéologie de panneaux composites bois/thermoplastiques sous chargement thermomécanique: Aptitude au postformage" thèse Phd, univ LAVAL+ BORDEAUX I (2003).
[8]. T. Collins, C. Gerday, G. Feller, FEMS Microbiology Reviews, In Press (August 2004)
[9]. Sophie Thiébaud, "Valorisation chimique de compose lignocellulosiques : Obtention de nouveau matériaux" thèse doctorat, INP- Toulouse (1995).
[10]. Nicolas Joly, « Synthèse et caractérisation de nouveaux films plastiques obtenus par acylation et réticulation de la cellulose", thèse doctorat uni Limoges (2003).
[11]. A. K. Mohanty, M. Misra, L. T. Drzal. Compos Interfaces 8(2001) 313
[12]. R. Agrawal, N.S. Saxena, K. B. Sharma, S. Thomas, M. S. Sreekala. Mater Sci Eng A 77(2000) 277
[13]. D. Ray, B. K. Sarkar, A. K. Rana, N. R. Bose. Bull Mater Sci 24(2001) 129
[14]. S. Mishra, M. Misra, S. S. Tripathy, S. K. Nayak, A. K. Mohanty. Macromo(2001).
[15]. W. H. Morrison, D.D. Archibald, H.S.S. Sharma, D.E. Akin. Ind Crops Prod (2000) 12-39
[16]. C. Garcia-Jaldon, D. Dupeyre, M. R. Vignon. Biomass Bioenergy 14(1998) 251
[17]. A. Valadez-Gonzalez, J. M. Cervantes-Uc, R. Olayo, P. J. Herrera-Franco. Compos B Eng 30 (1999) 309.
[18]. I. van de Weyenberg, J. Ivens, A. De Coster, B. Kino, E. Baetens, I. Vepoes. Compos Sci Technol 63(2003) 1241.
[19]. K. Joseph, S. Thomas. Polymer 37(1996) 5139.
[20]. M. Jacob, S. Thomas, K. T. Varughese. Compos Sci Technol 64(2004) 955
[21]. S. Mishra, A. K. Mohanty, L. T. Drzal, M. Misra, S. Parija, S. K. Nayak, S. S. Tipathy. Composites Science and Technology, Vol63, (2003) pp 1377- 1384.
[22]. Site web www.algerie.el-annabi.com/wilaya/batna.htm
[23]. S. Hattalli, A. Benabouraa, F. Ham-Pichavant, A. Nourmamode, A. Castellan. Polym Deg & Stab 75 (2002) pp 259-264
[24]. M. Rokbi, H. Osmani, A. Imad, N. Benseddiq, Procedia Engineering Vol10 (2011) pp 2092–2097.
[25]. ASTM. Standard test method for plane-strain fracture toughness of metallic materials. ASTM standard E399-90; 1993
[26]. A. Sabin, B. Albert, The American ceramic society bulletin, (1997)