

Thèse en cotutelle internationale pour
l'obtention d'un doctorat sur mesure en génie de

**l'Université de Lille 1 – Sciences et Technologies
et l'Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue**

Discipline : Mécanique des solides, des matériaux, des structures et des surfaces

Présentée par : **Muhamad Shafiq SUKIMAN**

**ETUDE DES PROPRIETES MECANIQUE ET THERMIQUE DES
BIOCOMPOSITES BASEE SUR L'HOMOGENEISATION
NUMERIQUE**

Thèse soutenue publiquement le 14 décembre 2017

Devant le jury composé de

| | |
|---|--------------------|
| HABRAKEN Anne-Marie Docteure FNRS (Université Liège Belgique) | Rapporteure |
| TOUBAL Lotfi Professeur (Université du Québec à Trois-Rivières Canada) | Rapporteur |
| SAOUAB Abdelghani Professeur (Université du Havre) | Examineur |
| KOFFI Demagna Professeur (Université du Québec à Trois-Rivières Canada) | Examineur |
| BERGHEAU Jean-Michel Professeur (ENI Saint-Etienne) | Examineur |
| KANIT Toufik Maître de Conférences - HDR (Université Lille 1) | Co-encadrant |
| ERCHIQUI Fouad Professeur (Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue) | Directeur de thèse |
| IMAD Abdellatif Professeur (Université Lille 1) | Directeur de thèse |

Résumé

Ce travail de thèse porte essentiellement sur la détermination des propriétés mécanique et thermique des biocomposites HDPE-particules de bois et PET-fibres de chanvre, en utilisant des approches expérimentales, numériques et analytiques. Les données expérimentales ont été fournies par le Laboratoire de Bioplasturgie, de l'Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue. L'effet de la fraction volumique et celui de la longueur des renforts naturels sur les propriétés effectives des biocomposites ont été étudié grâce à l'outil de l'homogénéisation numérique. Nous avons pris en compte différents paramètres tels que la morphologie et l'orientation des fibres, d'une part, la porosité, et l'interphase, d'autre part. Les calculs numériques ont permis d'obtenir les propriétés élastiques ainsi que la conductivité thermique des biocomposites en fonction de la fraction volumique des renforts naturels qui sont cohérentes aux données expérimentales.

L'objectif ultime de ce travail consiste à une modélisation de la mise en forme des biocomposites par thermoformage. A cet effet, une étude a été axée sur la thermoformabilité d'un coffrage en biocomposite HDPE-particules de bois en fonction de la teneur en bois. En se basant sur des données expérimentales, le comportement viscoélastique en vue d'une modélisation numérique du thermoformage est obtenu grâce au modèle intégral de Lodge. La contrainte et la déformation subies par la pièce thermoformée à la fin du cycle de la mise en forme sont ensuite analysées. Les résultats ont montré que la thermoformabilité est fortement dépendant à la teneur en bois et à la forme géométrique du coffrage.

Remerciements

Je remercie tout premièrement Dieu de m'avoir donné le courage et la motivation qu'il fallait pour accomplir ce travail de thèse.

Un très grand merci à mes directeurs de thèse, Prof Abdellatif IMAD de l'Université de Lille 1 et Prof Fouad ERCHIQUI de l'Université du Québec en Abitibi Témiscamingue. Le suivi de mon projet, leur pédagogie, leur disponibilité, et leur expertise dans le domaine des biocomposites m'ont motivé à progresser dans ce domaine très vaste et novateur. Sans leurs encouragements et idées, la réussite de ce travail de thèse serait une tâche très difficile. Je tiens à remercier également Dr Toufik KANIT qui m'a introduit le monde de l'homogénéisation numérique et qui m'a guidé depuis les premiers jours de mon stage jusqu'à la fin de ma thèse.

A mes collègues lillois, Dr Ahmed ELMOUMEN qui m'a enseigné tout ce qu'il y a à savoir sur les calculs numériques avec Zébulon, Dr Youcef DJEBARA et futur Dr Rachid BENZAADA qui m'ont accompagné pendant la rédaction de ma thèse, et aux nouveaux doctorants Lamyae LAKHAL, Pham Quoc HOAN et Muzzamal HUSSAIN, je vous souhaite bon courage pour la suite de vos études.

A mes collègues québécois, Rédouane FARID qui m'a accueilli, Mostafa TAZI qui m'a intégré dans l'équipe, et Abdessamad BAATTI qui a toujours été là pendant mon séjour et qui m'a soutenu dans ce pays étranger, et mon collègue pendant les cours Najm BENAOUN.

Je remercie les directions de l'Université de Lille 1 et de l'Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue qui ont rendu possible ce travail de thèse en cotutelle avec leurs soutiens. Aussi, les membres du jury qui ont accepté d'évaluer ce travail.

A ma femme, ma famille et tous mes amis, je ne vais pas oublier vos soutiens pendant tout ce temps. Merci.

Table des matières

| | |
|---|-----|
| Résumé..... | i |
| Remerciements..... | ii |
| Table des matières..... | iii |
| Liste des tableaux..... | vii |
| Liste des figures..... | x |
| Introduction Générale..... | 1 |
| Chapitre I : Étude bibliographique..... | 4 |
| I.1. Introduction..... | 6 |
| I.2. Fibres végétales..... | 7 |
| I.2.1 Structure d'une fibre végétale..... | 8 |
| I.2.2 Propriétés des fibres végétales..... | 12 |
| I.2.3 Paramètres influençant les propriétés des fibres végétales..... | 16 |
| I.3. Biocomposites..... | 19 |
| I.3.1 Propriétés mécaniques..... | 19 |
| I.3.2 Propriétés thermiques..... | 32 |
| I.4. Mise en forme par thermoformage des composites polymères..... | 38 |
| I.4.1 Principe de fonctionnement..... | 38 |
| I.4.2 Modélisation et caractérisation des matériaux en thermoformage.... | 40 |
| I.5. Conclusion..... | 46 |
| Chapitre II : Influence de la taille des fibres sur les propriétés mécaniques et thermiques d'un composite..... | 47 |
| II.1. Introduction..... | 49 |
| II.2. Principes de l'homogénéisation..... | 49 |
| II.2.1 Méthodes analytiques..... | 50 |
| II.2.2 Méthodes numériques..... | 50 |
| II.2.3 Notion du Volume Elémentaire Représentatif..... | 51 |

| | | |
|---|---|-----|
| II.3. | Objectif de l'étude..... | 53 |
| II.4. | Méthode d'homogénéisation numérique par élément finis | 54 |
| II.4.1 | Génération des microstructures..... | 54 |
| II.4.2 | Maillage de la microstructure..... | 55 |
| II.4.3 | Technique d'homogénéisation numérique..... | 58 |
| II.4.4 | Conditions aux limites | 60 |
| II.5. | Résultats et discussions..... | 66 |
| II.5.1 | Composites renforcés par des Fibres Courtes Aléatoires..... | 68 |
| II.5.2 | Composite renforcé par des Fibres Longues Aléatoires..... | 87 |
| II.5.3 | Effets du contraste | 96 |
| II.6. | Conclusion..... | 97 |
| Chapitre III : Etude des propriétés mécaniques des biocomposites à base de fibres de chanvre et de particules de bois | | |
| | | 99 |
| III.1. | Introduction..... | 101 |
| III.2. | Données expérimentales..... | 101 |
| III.2.1 | HDPE-particules de bois..... | 101 |
| III.2.2 | PET-fibres de chanvre | 105 |
| III.2.3 | Analyses des données expérimentales | 107 |
| III.3. | Homogénéisation numérique..... | 110 |
| III.3.1 | Génération des modèles 3D..... | 110 |
| III.3.2 | Maillage des modèles 3D..... | 115 |
| III.3.3 | Conditions des calculs..... | 118 |
| III.3.4 | Propriétés des renforts | 119 |
| III.4. | Résultats et discussions | 120 |
| III.4.1 | HDPE-particules de bois..... | 120 |
| III.4.2 | PET-fibres de chanvre | 123 |
| III.4.3 | Etude paramétrique | 125 |
| III.4.4 | Orientation des fibres | 129 |

| | | |
|---|---|-----|
| III.4.5 | Interphase | 134 |
| III.4.6 | Cristallisation | 140 |
| III.5. | Conclusion..... | 144 |
| Chapitre IV : Etude des propriétés thermiques des biocomposites à base de fibres de chanvre et de particules de bois..... | | |
| IV.1. | Introduction | 148 |
| IV.2. | Méthode de Flash | 148 |
| IV.2.1 | Théorie de l'analyse de Flash..... | 149 |
| IV.3. | Homogénéisation numérique | 154 |
| IV.3.1 | Génération des images | 154 |
| IV.3.2 | Maillage des images..... | 156 |
| IV.3.3 | Conditions des calculs..... | 158 |
| IV.3.4 | Propriétés des renforts naturels | 160 |
| IV.4. | Méthode analytique | 161 |
| IV.4.1 | Modèle auto-cohérent de Bruggeman..... | 161 |
| IV.4.2 | Modèle de Halpin-Tsai | 161 |
| IV.4.3 | Bornes de Hashin-Shtrikman | 162 |
| IV.5. | Résultats et discussions | 163 |
| IV.5.1 | HDPE-particules de bois..... | 163 |
| IV.5.2 | PET-fibres de chanvre | 171 |
| IV.6. | Conclusion..... | 174 |
| Chapitre V : Thermoformage d'un coffrage en biocomposite HDPE-particules de bois..... | | |
| V.1. | Introduction | 178 |
| V.2. | Modélisation numérique d'un coffrage | 179 |
| V.3. | Thermoformage du coffrage..... | 182 |
| V.3.1 | Caractérisation expérimentale et numérique du comportement viscoélastique du biocomposite HDPE-particules de bois | 183 |
| V.3.2 | Formulation par la méthode des éléments finis..... | 187 |

| | | |
|-------|--|-----|
| V.3.3 | Soufflage libre des biocomposites | 193 |
| V.3.4 | Thermoformage du coffrage en biocomposite HDPE-particules de bois 198 | |
| V.4. | Conclusion | 203 |
| | Conclusions Générales | 205 |
| | Perspectives | 208 |
| | Annexe..... | 209 |
| | Bibliographie..... | 229 |

Liste des tableaux

| | |
|--|----|
| Tableau I-1 Composition chimique des différentes fibres végétales..... | 10 |
| Tableau I-2 Comparaison des propriétés mécaniques des fibres végétales et des fibres de verre. Tableau extrait de Baley (2005) | 13 |
| Tableau I-3 Conductivité thermique des fibres végétales comparée à celle de fibres de verre | 15 |
| Tableau I-4 Propriétés mécaniques des biocomposites PP + 30% fibres de chanvre et de chènevottes selon Elouaer (2011)..... | 20 |
| Tableau I-5 Résultats des essais de traction des biocomposites HDPE-fibres de chanvre selon Lu et Oza (2013a) | 22 |
| Tableau I-6 Propriétés du biocomposite HDPE-bois selon Bengtsson et al. (2005) | 26 |
| Tableau I-7 Propriétés mécaniques du HDPE-bois avec différentes tailles de particules selon Migneault et al. (2008)..... | 29 |
| Tableau I-8 Propriétés mécaniques de biocomposites à base de matrices therm durcissables. Tableau extrait de Pickering et al. (2016) | 30 |
| Tableau I-9 Propriétés mécaniques de biocomposites à base de matrices thermoplastiques. Tableau extrait de Pickering et al. (2016)..... | 31 |
| Tableau I-10 Conductivité thermique du biocomposite PF-fibres d’ananas selon Mangal et al. (2003)..... | 36 |
| Tableau I-11 Conductivité thermique du biocomposite polyester-fibres de banane/sisal selon Idicula et al. (2006) | 37 |
| Tableau I-12 Conductivité thermique du biocomposite époxy renforcé par des particules de pin selon Nayak et al. (2010) | 37 |
| Tableau I-13 Conductivité thermique du biocomposite polyester renforcé par des particules de bois selon Agoua et al. (2013) | 38 |
| Tableau II-1 Résultats de l’étude de la densité du maillage..... | 57 |
| Tableau II-2 Différentes tailles de s et le nombre de réalisation n requis | 60 |
| Tableau II-3 Erreurs relatives du module de compression et de cisaillement en fonction de la fraction surfacique A_f | 78 |

| | |
|--|-----|
| Tableau II-4 Erreurs relatives de la conductivité thermique apparente moyenne en fonction de la fraction surfacique A_f | 86 |
| Tableau II-5 Propriétés mécaniques et thermiques moyennes apparentes du CFLA au plus grand S et l'erreur relative entre les différentes conditions aux limites.... | 89 |
| Tableau III-1 Dimensions moyennes des particules de bois..... | 102 |
| Tableau III-2 Propriétés mécaniques des biocomposites HDPE-particules de bois selon Godard et al. (2008) | 103 |
| Tableau III-3 Propriétés mécaniques des biocomposites PET-fibres de chanvre selon Talla et al. (2017)..... | 106 |
| Tableau III-4 Paramètres obtenus par le fittage | 108 |
| Tableau III-5 Densités du PET et des fibres de chanvre | 114 |
| Tableau III-6 Evolution des erreurs relatives en fonction du nombre de particules | 119 |
| Tableau III-7 Différentes propriétés des particules de bois et des fibres de chanvre | 120 |
| Tableau III-8 Comparaison des résultats expérimentaux et numériques du biocomposite HDPE-particules de bois..... | 121 |
| Tableau III-9 Comparaison des résultats expérimentaux et numériques du composite PET-fibres de chanvre..... | 123 |
| Tableau III-10 Erreurs relatives entre le calcul numérique avec différents E_f et les données expérimentales du biocomposite HDPE-particules de bois..... | 126 |
| Tableau III-11 Erreurs relatives entre le calcul numérique avec différents E_f et les données expérimentales du biocomposite PET-fibres de chanvre | 127 |
| Tableau III-12 Erreurs relatives entre le calcul numérique et les données expérimentales du biocomposite HDPE-particules de bois alignées | 131 |
| Tableau III-13 Erreurs relatives entre le calcul numérique et les données expérimentales du biocomposite PET-fibres de chanvre alignées..... | 132 |
| Tableau III-14 Erreurs relatives entre le calcul numérique et les données expérimentales du composite HDPE-particules de bois avec interphase..... | 136 |
| Tableau III-15 Erreurs relatives entre le calcul numérique et les données expérimentales du composite PET-fibres de chanvre avec interphase | 137 |
| Tableau IV-1 Diffusivité et conductivité thermique expérimentales | 152 |

| | |
|--|-----|
| Tableau IV-2 Résultats de l'étude de la densité du maillage du HDPE-particules de bois..... | 157 |
| Tableau IV-3 Résultats de la vérification du VER..... | 159 |
| Tableau IV-4 Conductivité thermique des matériaux pour l'analyse numérique et analytique | 160 |
| Tableau IV-5 Comparaison de la conductivité thermique du HDPE-particules de bois obtenue par les trois méthodes..... | 164 |
| Tableau IV-6 Résultats des calculs numériques avec considération de la phase poreuse | 168 |
| Tableau IV-7 Comparaison de la conductivité thermique du PET-fibres de chanvre obtenue par les deux méthodes..... | 172 |
| Tableau V-1 Modules de rigidité et temps de relaxation des biocomposites à T=170°C..... | 186 |

Liste des figures

| | |
|---|----|
| Figure I-1 Intégration du biocomposite à base de fibres naturelles dans un panneau de portière. Image extraite de Stewart (2010)..... | 7 |
| Figure I-2 Classification des différents types de fibres végétales selon Bos (2004) .8 | |
| Figure I-3 Coupe transversale d'une tige de lin selon Bos (2004) | 9 |
| Figure I-4 Structure d'une fibre végétale selon Charlet (2008) | 11 |
| Figure I-5 Structure d'une trachéide selon Agarwal (2006) | 11 |
| Figure I-6 (a) Différents types de courbes contrainte-déformation des fibres de chanvre (Duval et al. 2011) et (b) différentes zones de la courbe de Type 3 (Placet et al. 2014)..... | 12 |
| Figure I-7 Courbes TGA des fibres vierges et des fibres traitées selon (a) Talla et al. (2015) et (b) Oza et al. (2011) | 15 |
| Figure I-8 Différents diamètres mesurés sur une fibre de lin selon Charlet et al. (2010)..... | 17 |
| Figure I-9 Propriétés mécaniques en fonction du diamètre des fibres par Placet et al. (2012b) | 18 |
| Figure I-10 Images MEB des sections (a) d'une fibre de chanvre vierge et (b) d'une fibre cassée selon Placet et al. (2012b)..... | 18 |
| Figure I-11 Courbes contrainte-déformation des biocomposites PP + 30% de fibres de chanvre et de chènevotte selon Elouaer (2011) | 20 |
| Figure I-12 Propriétés mécaniques des biocomposites de PP-fibres de lin en fonction de la fraction volumique des fibres. Courbes extraites de Ausias et al. (2013) | 21 |
| Figure I-13 Module de Young d'un biocomposite HDPE-fibres de chanvre selon Facca et al. (2006)..... | 23 |
| Figure I-14 Module de Young d'un biocomposite PLLA-fibres de lin selon Roussière et al. (2012) | 24 |
| Figure I-15 Module de Young d'un biocomposite époxy-fibres de lin unidirectionnelles selon Charlet et al. (2007) | 25 |
| Figure I-16 Module de Young d'un biocomposite PET-fils de chanvre alignées selon Madsen et al. (2007)..... | 25 |

| | |
|--|----|
| Figure I-17 Module de Young du biocomposite PLA-bois selon Huda et al. (2006) | 26 |
| Figure I-18 (a) Module de Young et (b) déformation à la rupture du biocomposite HDPE-bois en fonction du pourcentage de bois selon Raj et al. (1990)..... | 27 |
| Figure I-19 Définition du rapport de forme l/d..... | 28 |
| Figure I-20 Courbe de contrainte-déformation du HDPE-bois avec différentes tailles de particules selon Migneault et al. (2008)..... | 29 |
| Figure I-21 Courbe de TGA du biocomposite HDPE-bois selon Tazi et al. (2014) | 33 |
| Figure I-22 Courbe de TGA pour les biocomposites HDPE renforcé par des fibres (a) non traitées, (b) traitées avec NaOH et (c) traitées avec la silane selon Lu et Oza (2013b) | 34 |
| Figure I-23 Courbe TGA du biocomposite PET-fibres de chanvre selon Talla et al. (2015)..... | 35 |
| Figure I-24 Schéma d'un appareil pour mesurer la conductivité thermique illustré par Kim et al. (2006)..... | 36 |
| Figure I-25 Déroulement d'un cycle de thermoformage. Image extraite de "Thermoformage" (2015) | 39 |
| Figure I-26 Différents types de rhéomètre (a) cylindrique (b) conique et (c) plaque. Image extraite de "Guide to Rheological Nomenclature: Measurements in Ceramic Particulate Systems"..... | 40 |
| Figure I-27 Soufflage libre d'une membrane polymérique selon Erchiqui et al. (2010) | 41 |
| Figure I-28 Modélisation numérique du thermoformage par éléments finis selon Erchiqui et al. (2009b)..... | 45 |
| Figure II-1 Passage d'un milieu hétérogène à un milieu homogène équivalent fictif via l'homogénéisation..... | 50 |
| Figure II-2 (a) Différents tailles de la microstructure et (b) Evolution des propriétés apparentes en fonction de la taille | 52 |
| Figure II-3 Différentes positions de deux particules de rayon R et de distance de répulsion a selon El Moumen et al. (2013) | 54 |
| Figure II-4 Renforts de type (a) particule (b) particule connectée et (c) ellipsoïde | 55 |

| | |
|--|----|
| Figure II-5 Technique du maillage multiphasique..... | 56 |
| Figure II-6 Composite renforcé par des fibres courtes avec une fraction surfacique $A_f = 0,81$ | 57 |
| Figure II-7 Evolution de $\langle \sigma_{11} \rangle$ en fonction du nombre d'éléments finis | 57 |
| Figure II-8 Zoom sur (a) l'image maillée et (b) l'image d'origine | 58 |
| Figure II-9 (a) Différentes tailles de s et (b) les positions aléatoires de s dans S . | 59 |
| Figure II-10 Valeurs moyennes de A_f en fonction de la taille de s | 60 |
| Figure II-11 Microstructures du CFCA en ordre croissant de $A_f = 0,11, 0,17, 0,23, 0,32, 0,42, 0,51, 0,61, 0,71$ et $0,81$ | 69 |
| Figure II-12 (a – t) Microstructures du CFCA et le module de compression k moyen apparent en fonction de la longueur de côté L..... | 73 |
| Figure II-13 (a – t) Microstructures du CFCA et la distribution de la contrainte équivalente de von Mises..... | 78 |
| Figure II-14 Evolution de l'erreur du module de compression en fonction de la fraction surfacique | 79 |
| Figure II-15 (a – t) Microstructures du CFCA et la conductivité thermique λ moyenne apparente en fonction de la longueur de côté L | 82 |
| Figure II-16 (a – t) Microstructures du CFCA et la distribution de la conductivité thermique..... | 86 |
| Figure II-17 Evolution de l'erreur de la conductivité thermique en fonction de la fraction surfacique | 87 |
| Figure II-18 Microstructures du CFLA à une fraction surfacique A_f de $0,51$ | 88 |
| Figure II-19 (a) Module de compression k, (b) Module de cisaillement μ et (c) conductivité thermiques λ moyens apparents du composite CFLA en fonction de la longueur de côté L..... | 90 |
| Figure II-20 Distribution de la contrainte équivalente de von Mises après le calcul du module de (a) compression et (b) cisaillement et (c) la distribution de la conductivité thermique dans la microstructure du CFLA..... | 91 |
| Figure II-21 (a) Microstructure du CFCA et ses déformées après les calculs du module de (b) compression et de (c) cisaillement | 92 |
| Figure II-22 Covariogramme du CFLA dans les deux directions x et y..... | 93 |

| | |
|--|-----|
| Figure II-23 Evolution de l'erreur relative en fonction du contraste entre les propriétés | 97 |
| Figure III-1 Eprouvette du biocomposite HDPE-particules de bois | 102 |
| Figure III-2 Module de Young du biocomposite HDPE-bois en fonction de la fraction massique des particules de bois et la droite de tendance | 104 |
| Figure III-3 Eprouvettes du biocomposite PET-fibres de chanvre | 105 |
| Figure III-4 Module de Young du biocomposite PET-chanvre en fonction de la fraction massique des fibres de chanvre selon Talla et al. (2017)..... | 106 |
| Figure III-5 Fittage du modèle de Karam (1991) et les données expérimentales du HDPE-particules de bois..... | 109 |
| Figure III-6 Fittage du modèle de Karam (1991) et les données expérimentales du PET-fibres de chanvre | 109 |
| Figure III-7 Modèle numérique d'une particule de bois..... | 111 |
| Figure III-8 Microstructures du biocomposite HDPE-particules de bois avec $V_f =$ (a) 0,14 (b) 0,22 (c) 0,30 (d) 0,39 et (e) 0,50 | 112 |
| Figure III-9 Modèle numérique d'une fibre de chanvre | 113 |
| Figure III-10 Microstructures du biocomposite PET-fibres de chanvre avec $V_f =$ (a) 0,05 (b) 0,10 (c) 0,15 et (d) 0,20 | 115 |
| Figure III-11 Maillage voxel sur le biocomposite HDPE-particules de bois (a) avec et (b) sans la matrice..... | 116 |
| Figure III-12 Contrainte macroscopique $\langle \sigma_{11} \rangle$ du biocomposite HDPE-particules de bois et PET-fibres de chanvre en fonction du nombre d'éléments e | 116 |
| Figure III-13 (a) Zoom sur une particule de bois et (b) la particule maillée..... | 117 |
| Figure III-14 (a) Zoom sur une fibre de chanvre et (b) la fibre maillée | 117 |
| Figure III-15 Module de Young E du composite HDPE-particules de bois en fonction de la fraction volumique du bois V_f | 121 |
| Figure III-16 (a) Microstructure du HDPE-bois et (b) sa déformée après les calculs du module de compression k..... | 122 |
| Figure III-17 (a) Microstructure du HDPE-bois et (b) sa déformée après les calculs du module de cisaillement μ | 122 |
| Figure III-18 Module de Young E du composite PET-fibres de chanvre en fonction de la fraction volumique du bois V_f | 124 |

| | |
|---|-----|
| Figure III-19 Contrainte équivalente de von Mises sur la (a) microstructure du PET-chanvre et (b) sa déformée après les calculs du module de compression k . | 125 |
| Figure III-20 Contrainte équivalente de von Mises sur la (a) microstructure du PET-chanvre et (b) sa déformée après les calculs du module de cisaillement μ . | 125 |
| Figure III-21 Progression de E_{num} du biocomposite HDPE-particules de bois calculés avec différents E_f | 126 |
| Figure III-22 Progression de E_{num} du biocomposite PET-fibres de chanvre calculés avec différents E_f | 128 |
| Figure III-23 Différentes orientation des fibres dans un composite injecté selon Ho et al. (2012) | 129 |
| Figure III-24 (a) Particules de bois et (b) fibres de chanvre parfaitement alignées | 130 |
| Figure III-25 Progression de E_{num} du biocomposite HDPE-particules de bois aligné | 131 |
| Figure III-26 Progression de E_{num} du biocomposite PET-fibres de chanvre alignées | 132 |
| Figure III-27 Contrainte équivalente de von Mises sur les (a et c) microstructures et (b et d) leurs déformées après l'essai de traction | 133 |
| Figure III-28 (a) Microstructure du biocomposite HDPE-particules de bois avec l'interphase et (b) un zoom sur une particule de bois enrobée de l'interphase | 135 |
| Figure III-29 Module de Young de HDPE-particules de bois avec interphase | 136 |
| Figure III-30 Module de Young de PET-fibres de chanvre avec interphase | 138 |
| Figure III-31 Contrainte équivalente de von Mises sur les microstructures (a et c) avec interphase et (b et d) sans interphase | 139 |
| Figure III-32 Comparaison entre les fibres de chanvre (a) sans et (b) avec interphase | 139 |
| Figure III-33 Cristallisation autour de la fibre. Image extraite de Talla et al. (2013) | 140 |
| Figure III-34 Phase cristalline dans un composite PLA-fibres de chanvre. Image extraite de Pickering et al. (2011) | 141 |
| Figure III-35 Module de Young expérimental de HDPE-particules de bois sans celui du HDPE | 141 |

| | |
|---|-----|
| Figure III-36 Module de Young expérimental de PET-fibres de chanvre sans celui du PET | 142 |
| Figure III-37 Module de Young de HDPE-particules de bois avec propriétés de HDPE ajustées..... | 143 |
| Figure III-38 Module de Young de PET-fibres de chanvre avec propriétés de PET ajustées | 143 |
| Figure IV-1 Montage expérimental de l'analyse de Flash | 149 |
| Figure IV-2 Eprouvette cylindrique du biocomposite HDPE-particules de bois . | 151 |
| Figure IV-3 Résultats expérimentaux de (a) HDPE, (b) 30 wt% et (c) 60 wt% de particules de bois | 152 |
| Figure IV-4 Evolution de la diffusivité et de la conductivité thermique en fonction de la fraction massique de particules de bois..... | 153 |
| Figure IV-5 Microstructures des composites de HDPE-particules de bois générées virtuellement par ordre croissant de pourcentage de bois $A_f = 0,14, 0,22, 0,30, 0,39$ et $0,50$ | 155 |
| Figure IV-6 Microstructures des composites de PET-fibres de chanvre générées virtuellement par ordre croissant de pourcentage de fibre $A_f = 0,05, 0,10, 0,15, 0,20$ | 156 |
| Figure IV-7 Evolution de la conductivité thermique du HDPE-particules de bois en fonction du nombre d'éléments finis | 158 |
| Figure IV-8 (a) Microstructure du HDPE-particules de bois maillée avec 90000 éléments finis carrés et (b) un zoom sur une zone de l'image montrant la précision du maillage..... | 158 |
| Figure IV-9 Conductivité thermique effective en fonction du pourcentage de particules de bois | 164 |
| Figure IV-10 Distribution de la conductivité thermique λ sur les microstructures du biocomposite HDPE-particules de bois en ordre croissant de la fraction surfacique du bois A_f | 165 |
| Figure IV-11 Microstructure du composite avec 30 wt% de bois et le zoom montrant les pores distribués aléatoirement | 167 |
| Figure IV-12 Conductivité thermique effective du biocomposite HDPE-particules de bois poreux..... | 168 |

| | |
|---|-----|
| Figure IV-13 Distribution de la conductivité thermique λ sur les microstructures du biocomposite HDPE-particules de bois avec porosité en ordre croissant de la fraction surfacique du bois A_f | 170 |
| Figure IV-14 Comparaison de la distribution de la conductivité thermique λ entre une microstructure (a) sans pores et (b) avec pores | 171 |
| Figure IV-15 Conductivité thermique effective en fonction du pourcentage de fibres de chanvre | 173 |
| Figure IV-16 Distribution de la conductivité thermique λ sur les microstructures du biocomposite PET-fibres de chanvre en ordre croissant de la fraction surfacique des fibres A_f | 174 |
| Figure V-1 (a) Coffrage en bois et (b) coffrage en acier..... | 179 |
| Figure V-2 Coffrage en acier pour le plancher | 180 |
| Figure V-3 Coulage du béton et mise en place des barres d'acier..... | 180 |
| Figure V-4 Coffrage en copeaux de bois..... | 181 |
| Figure V-5 Conception du coffrage complet..... | 182 |
| Figure V-6 Modules dynamiques G' mesurés en fonction du teneur en particules de bois | 184 |
| Figure V-7 Modules dynamiques G'' mesurés en fonction du teneur en particules de bois..... | 185 |
| Figure V-8 Résultats de l'optimisation vis-à-vis l'expérimental des modules G' en fonction de teneur en bois | 186 |
| Figure V-9 Résultats de l'optimisation vis-à-vis l'expérimental des modules G'' en fonction de teneur en bois | 187 |
| Figure V-10 Fonction débit d'air en fonction du temps..... | 191 |
| Figure V-11 Maillage de la feuille circulaire avec des éléments triangulaires linéaires | 191 |
| Figure V-12 Maillage de la feuille rectangulaire avec des éléments triangulaires linéaires..... | 192 |
| Figure V-13 Vue (a) externe et (b) interne du moule maillé à l'aide d'éléments triangulaires linéaires..... | 193 |
| Figure V-14 Évolution de la pression interne en fonction du temps : cas de HDPE vierge et renforcé par 50 wt% de particules de bois..... | 193 |

| | |
|--|-----|
| Figure V-15 Évolution du volume interne en fonction du temps : cas de HDPE vierge et renforcé par 50 wt% de particules de bois | 194 |
| Figure V-16 Pression interne induite en fonction du volume interne généré dans la bulle : cas de HDPE vierge et renforcé par 50 wt% de particules de bois..... | 195 |
| Figure V-17 Extension principale λ_3 induite sur la trace milieu de la structure : cas de HDPE vierge et renforcé par 50 wt% de particules de bois..... | 196 |
| Figure V-18 Contraintes de von Mises induites sur la trace milieu de la structure : cas de HDPE vierge et renforcé par 50 wt% de particules de bois..... | 196 |
| Figure V-19 Extension λ_2 induite sur la trace milieu de la structure à la fin de cycle de soufflage : cas de HDPE vierge et renforcé par 50 wt% de particules de bois | 197 |
| Figure V-20 Extension principale λ_3 induite sur la trace milieu de la structure : cas de HDPE vierge et renforcé par 50 wt% de particules de bois..... | 197 |
| Figure V-21 Vue de la distribution (a) des extensions principales et (b) des contraintes de von Mises induites dans le biocomposite HDPE-50 wt% de bois. | 198 |
| Figure V-22 Vue de l'évolution de la distribution des nœuds de contact avec le moule lors (a) du début, (b – c) intermédiaire et (d) la fin du cycle de formage du coffrage dans le cas de HDPE vierge | 199 |
| Figure V-23 Nœuds de la trace concernée par l'analyse des extensions et de la contrainte de von Mises induite dans le coffrage au (a) début et (b) à la fin du formage | 200 |
| Figure V-24 Extension λ_3 induite sur la trace milieu de la structure à la fin du cycle de formage en fonction de la teneur en particules de bois..... | 200 |
| Figure V-25 Extension λ_1 induite sur la trace milieu de la structure à la fin de cycle de formage en fonction de la teneur en particules de bois..... | 201 |
| Figure V-26 Extension λ_2 induite sur la trace milieu de la structure à la fin de cycle de formage en fonction de la teneur en particules de bois..... | 201 |
| Figure V-27 Contraintes de von Mises induites sur la trace milieu de la structure à la fin de cycle de formage en fonction de la teneur en particules de bois..... | 202 |
| Figure V-28 Travail effectué par la structure à la fin de cycle de formage en fonction de la teneur en particules de bois | 203 |

Introduction Générale

Contexte et objectif de l'étude

Depuis les dernières décennies, nous assistons à un fort développement de la recherche dans le domaine des composites chargés par des fibres ou des particules d'origine végétales (lin, chanvre, jute, bois, coton, etc.), qui sont connus sous le vocable : matériaux biocomposites, biosourcés, éco-composites ou composites verts, etc. Ces matériaux sont souvent élaborés par l'incorporation de ces charges végétales dans des polymères thermoplastiques synthétiques (PP, PET, HDPE, etc.) ou des biopolymères (PLA, PCL, etc.). On note que les matériaux biocomposites sont utilisés dans l'élaboration de composants mécaniques et ceci dans plusieurs domaines d'applications industrielles : automobile, ferroviaire, aéronautique, bâtiment, équipements sportifs, accessoires, etc. De par leurs propriétés intéressantes aussi bien mécaniques, thermiques qu'acoustiques, les biocomposites répondent à plusieurs besoins industriels, avec une dimension de respect manifeste de l'environnement.

La détermination des propriétés des biocomposites est primordiale afin d'explorer la potentialité de leurs applications dans différents domaines. A cet effet, les approches expérimentales, numériques et analytiques sont applicables. Les biocomposites étant un mélange de deux matériaux opposés, ils pourraient présenter des défis lors de la confrontation des approches numériques et analytiques avec l'approche expérimentale.

En se basant sur des résultats expérimentaux obtenus par des études antérieures, notre objectif principal est de déterminer les propriétés mécaniques et thermiques des biocomposites HDPE-particules de bois et PET-fibres de chanvre en utilisant la technique d'homogénéisation numérique. La recherche des propriétés effectives de ces biocomposites nous a mené à simuler numériquement les phénomènes qui apparaissent dans des cas réels des biocomposites. Les paramètres

comme l'orientation des fibres, la porosité, et l'interphase sont incorporés dans les études numériques afin de s'approcher au mieux de la réalité.

L'étude a porté aussi sur la mise en forme des biocomposites par thermoformage. En effet, ce travail a été axé sur la thermoformabilité d'un coffrage en biocomposite dédié à une utilisation dans le domaine du bâtiment souvent fabriqué en bois ou en métal. En employant l'approche expérimentale et numérique, nous modélisons tous les aspects du thermoformage d'un coffrage en biocomposite HDPE-particules de bois dans le but de vérifier par la suite si la fabrication réelle de cette pièce est possible.

Structure du manuscrit

Le présent manuscrit est organisé en cinq chapitres :

- **Le premier chapitre** est dédié à une étude bibliographique qui présente les généralités sur les fibres végétales et les biocomposites. Nous présentons les travaux antérieurs qui s'appuient sur les propriétés thermiques et mécaniques des biocomposites ainsi que les différents paramètres qui les influencent. Cette synthèse a permis une compréhension globale des paramètres importants à considérer lors d'une étude d'élaboration des biocomposites. Nous présentons également les éléments nécessaires dans une étude de thermoformage des biocomposites.
- **Le deuxième chapitre** porte principalement sur la présentation de la méthode d'homogénéisation numérique utilisée dans l'ensemble du travail. Plus précisément, cette étude est axée sur l'effet de la longueur des fibres sur les propriétés mécaniques et thermiques d'un composite. Les effets de la géométrie des renforts sont importants à identifier vu que les biocomposites sont à base de particules et de fibres longues. L'homogénéisation numérique doit être indépendante de toutes difficultés possibles liées à la géométrie des renforts afin d'assurer des calculs précis.

- **Le troisième chapitre** est consacré à la détermination des propriétés mécaniques des biocomposites à base de particules de bois et de fibres de chanvre par la méthode d'homogénéisation numérique. Les résultats numériques sont confrontés aux résultats expérimentaux effectués par des travaux antérieurs au sein du Laboratoire de Bioplasturgie à l'UQAT. La recherche d'une meilleure cohérence entre les résultats numériques et expérimentaux a fait intervenir plusieurs paramètres à la fois physiques et chimiques comme l'orientation des fibres et l'interphase qui se produisent au niveau des biocomposites.
- **Le quatrième chapitre** est destiné à la détermination des propriétés thermiques des biocomposites. Une étude expérimentale se basant sur l'analyse Flash est effectuée sur le biocomposite HDPE-particules de bois. Cette méthode est détaillée et les résultats obtenus sont comparés avec ceux obtenus par l'homogénéisation numérique. Des différents paramètres comme la porosité sont explorés afin de réussir la meilleure cohérence entre l'approche expérimentale et numérique.
- **Le cinquième chapitre** est dédié à la conception numérique du coffrage ainsi que la simulation de sa mise en forme par thermoformage. Nous étudions la possibilité d'élaborer un coffrage en biocomposite HDPE-particules de bois en analysant sa résistance mécanique dans des situations réelles et sa thermoformabilité. En couplant les simulations numériques et les résultats expérimentaux antérieurs, nous présentons dans ce chapitre une étude complète de l'élaboration d'une pièce industrielle qui peut être ensuite vérifiée par des simulations réelles du thermoformage.

Le mémoire se termine par une conclusion générale englobant la totalité des cinq chapitres et propose différentes perspectives à l'issue de ce travail de recherche.

Chapitre I : Étude bibliographique

Sommaire

| | |
|--|----|
| Chapitre I : Étude bibliographique | 4 |
| I.1. Introduction | 6 |
| I.2. Fibres végétales | 7 |
| I.2.1 Structure d'une fibre végétale | 8 |
| I.2.2 Propriétés des fibres végétales | 12 |
| I.2.2.1 Propriétés mécaniques | 12 |
| I.2.2.2 Propriétés thermiques | 14 |
| I.2.3 Paramètres influençant les propriétés des fibres végétales | 16 |
| I.3. Biocomposites | 19 |
| I.3.1 Propriétés mécaniques | 19 |
| I.3.2 Propriétés thermiques | 32 |
| I.3.2.1 Stabilité thermique | 32 |
| I.3.2.2 Conductivité thermique | 35 |
| I.4. Mise en forme par thermoformage des composites polymères | 38 |
| I.4.1 Principe de fonctionnement | 38 |
| I.4.2 Modélisation et caractérisation des matériaux en thermoformage | 40 |
| I.4.2.1 Caractérisation des propriétés viscoélastiques par approche expérimentale | 40 |
| I.4.2.2 Identification numérique des modèles viscoélastiques | 42 |
| I.4.2.3 Simulation numérique du thermoformage | 44 |
| I.5. Conclusion | 46 |

I.1. Introduction

Les matériaux composites ont existé depuis les premières civilisations humaines. L'exemple le plus évident en France est le torchis utilisé pour bâtir les maisons artisanales. Aujourd'hui, les matériaux composites sont produits en série et ont connu une croissance importante de son utilisation dans de divers domaines. Grâce à leurs rigidité et malléabilité, on trouve des matériaux composites dans les plus simples pièces d'automobiles jusqu'aux pièces les plus sophistiquées dans l'aéronautique. Les composites modernes se composent généralement des matériaux synthétiques.

Ces dernières décennies, sous les exigences environnementales et économiques, l'industrie vise la substitution des matériaux synthétiques par des matériaux naturels. Les composites utilisant des matériaux naturels sont appelés matériaux biocomposites ou biosourcés.

Globalement, les biocomposites sont divisés en deux grandes classes, selon le type de biomatériaux utilisés :

- i. Biocomposites 100% naturels qui sont constitués de renforts naturels et de matrices également naturelles. A titre d'exemple : Amidon de maïs renforcé par des fibres de lin et de chanvre par Peltola *et al.* (2011)
- ii. Biocomposites partiellement naturels qui sont un mélange de matériaux synthétiques et naturels. Généralement, les renforts sont d'origine naturelle et les matrices sont des polymères à base du pétrole. A titre d'exemple : Polypropylène renforcé par des fibres de lin par Zafeiropoulos *et al.* (2001)

Du point de vue industriel, il est opportun de souligner que les matériaux biocomposites sont utilisés dans de divers produits de consommation. Par exemple, les fabricants d'automobiles utilisent des biocomposites pour les intérieurs de véhicules, notamment la portière comme montré dans la Figure I-1. Dans leurs travaux, Koronis *et al.* (2013), Zah *et al.* (2007) et Drzal *et al.* (2001) ont réalisé des études profondes sur les applications des biocomposites dans l'automobile. Alors que Dicker *et al.* (2014) ont montré que les biocomposites peuvent aussi être utilisés dans les équipements sportifs et les domaines biomédicaux. En surcroît, depuis les

deux dernières décennies, plusieurs revues bibliographiques ont porté sur la caractérisation mécanique et physique des biocomposites thermoplastiques à base de renforts naturels. A titre d'exemple : Faruk *et al.* (2012), Bledzki et Gassan (1999), La Mantia et Morreale (2011), Mohanty *et al.* (2000) et Pickering *et al.* (2016). Au sein de notre laboratoire, Tazi *et al.* (2014), Talla *et al.* (2013, 2015), et Godard *et al.* (2008) sont parmi les travaux de recherche effectués sur les biocomposites à base de fibres de chanvre et de particules de bois.



Figure I-1 Intégration du biocomposite à base de fibres naturelles dans un panneau de portière. Image extraite de Stewart (2010)

I.2. Fibres végétales

Ces dernières décennies, les fibres végétales connaissent un important développement, ce qui a contribué à l'élaboration des produits biocomposites pour diverses applications industrielles. La Figure I-2 illustre un schéma qui regroupe les différentes fibres végétales selon leurs sources. Globalement, on note l'existence de cinq familles principales de fibres végétales provenant de : pailles, tiges, feuilles, fruits et bois. Ces fibres sont caractérisées par leurs propriétés morphologiques, physiques et mécaniques. On peut classer ces sources en deux catégories de plantes : les plantes primaires cultivées pour ses fibres, et les plantes secondaires dont les fibres sont des sous-produits. Généralement, les fibres provenant de la tige appartiennent aux plantes primaires alors que les fibres des autres sources appartiennent aux plantes secondaires.

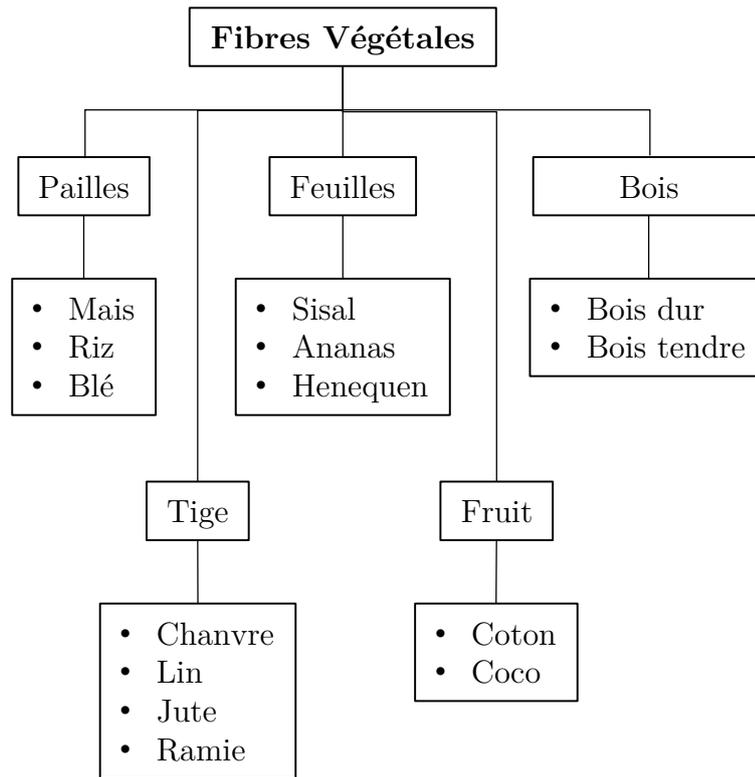


Figure I-2 Classification des différents types de fibres végétales selon Bos (2004)

Il faut noter que les fibres végétales les plus utilisées dans l'industrie émergente sont le lin, le chanvre et le jute. Elles ont quelques avantages par rapport aux fibres synthétiques : l'isolation thermique et acoustique, biodégradabilité, etc. Mais, ces fibres présentent aussi des inconvénients comme l'absorption d'eau (Korjenic *et al.* 2011, Placet *et al.* 2012a, Baley *et al.* 2005), la variabilité de qualité (Duval *et al.* 2011, Charlet *et al.* 2007) et la faible tenue thermique (Tazi *et al.* 2014, Talla *et al.* 2015).

Dans ce chapitre, nous présentons les principaux résultats relatifs aux fibres végétales portant sur leurs microstructures, leurs propriétés mécaniques et thermiques. Aussi, nous exposons les facteurs essentiels qui influencent ces propriétés.

I.2.1 Structure d'une fibre végétale

Une fibre végétale est une structure avec une organisation complexe. La Figure I-3 montre une coupe transversale d'une tige de lin, qui est similaire à celle du chanvre. Il existe plusieurs composants distincts qui sont séparés par couches.

L'épiderme est la couche extérieure en dessous de l'écorce. Ensuite, on trouve les faisceaux de fibres qui sont intégrés dans le phloème (la zone conductrice à l'intérieur de l'écorce). Chaque faisceau contient 10 à 30 fibres élémentaires, tenues ensemble par la lamelle moyenne. C'est une interface de pectine et lignine qui assure une cohésion intercellulaire forte. Après, il y a la couche ligneuse qui s'appelle le xylème. Dans une plante de chanvre, elle s'appelle la chènevotte. Le centre de la tige est vide.

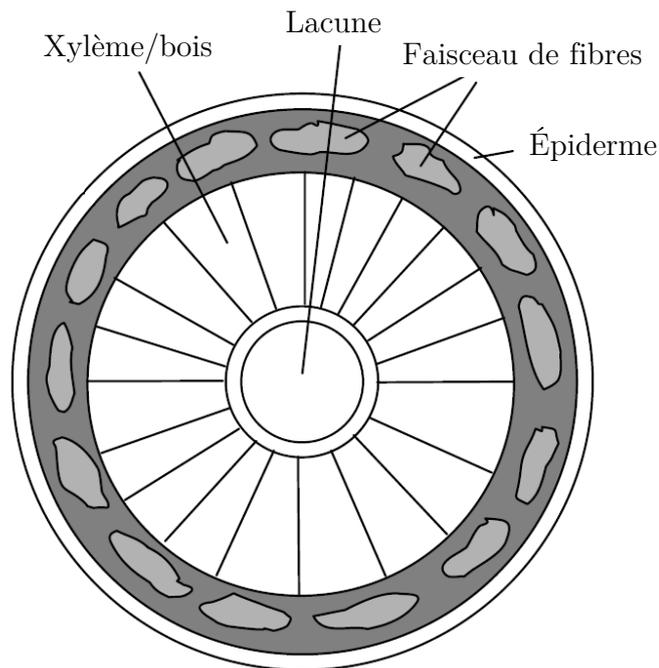


Figure I-3 Coupe transversale d'une tige de lin selon Bos (2004)

La fibre élémentaire est la partie utilisée pour renforcer les biocomposites. Les composants principaux dans une fibre élémentaire sont la cellulose, l'hémicellulose et la lignine. Le Tableau I-1 précise le pourcentage en moyenne de chaque composant dans une fibre élémentaire de chanvre ainsi que d'autres fibres végétales. La cellulose est un polymère qui possède une structure en grande partie cristalline. Elle lui attribue un grand module d'élasticité et c'est pour cela que la cellulose porte la majorité du chargement. Ces fibres ont une forme polygonale et non cylindrique, contrairement aux fibres conventionnelles comme les fibres de verre. En plus, son diamètre est irrégulier sur toute sa longueur, ce qui peut expliquer les dispersions des valeurs de ses propriétés mécaniques.

| Type de fibres | Cellulose (%) | Hémicellulose (%) | Lignine (%) | Pectine (%) | Cire (%) | Angle des microfibrilles (°) | Références |
|----------------|---------------|-------------------|-------------|-------------|----------|------------------------------|--------------------------------|
| Jute | 61 – 71,5 | 13,6 – 20,4 | 12 – 13 | 0,2 | 0,5 | 8 | Bledzki <i>et al.</i> (1996) |
| Lin | 71 | 18,6 – 20,6 | 2,2 | 2,3 | 1,7 | 10 | |
| Chanvre | 70,2 – 74,4 | 17,9 – 22,4 | 3,7 – 5,7 | 0,9 | 0,8 | 6,2 | |
| Sisal | 67 – 78 | 10,0 – 14,2 | 8 – 11 | 10 | 2 | 20 | |
| Ananas | 70 – 82 | – | 5 – 12 | – | – | 14 | Mukherjee <i>et al.</i> (1986) |
| Coco | 36 – 43 | 0,15 – 0,25 | 41 – 45 | 3 – 4 | – | 41 – 45 | Varma <i>et al.</i> (1986) |
| Bois | 83 | 5 | 19 – 26 | 0 | – | – | Ilczyszyn (2013) |

Tableau I-1 Composition chimique des différentes fibres végétales

La structure typique d'une fibre de végétale est illustrée dans la Figure I-4. Plusieurs couches constituent la fibre élémentaire, la paroi primaire, la paroi secondaire (la couche la plus épaisse) et le lumen. La paroi secondaire se compose de trois couches appelées S1, S2 et S3. La couche S2 représente 90% de l'épaisseur totale de la paroi secondaire. Dans la couche S2, il y a des microfibrilles de cellulose qui permettent aux fibres élémentaires de résister aux efforts mécaniques. Ces microfibrilles sont orientées dans la direction de la fibre en forme hélicoïdale, créant un angle entre les microfibrilles et l'abscisse. Un angle plus petit signifie alors une meilleure résistance mécanique. On peut imaginer la couche S2 comme un composite renforcé de microfibrilles de cellulose. L'angle des microfibrilles peut varier selon les plantes et ceci contribue aux propriétés variables des fibres végétales. Les microfibrilles sont également présentes dans les couches S1 et S3 mais leurs angles sont grands et ces couches sont très fines pour pouvoir influencer les propriétés des fibres.

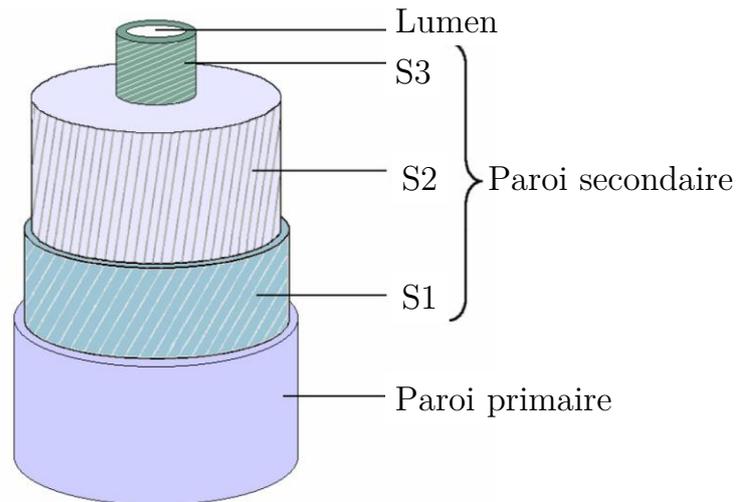


Figure I-4 Structure d'une fibre végétale selon Charlet (2008)

Dans le cas des fibres de bois, les mêmes caractéristiques sont présentes avec quelques petites différences. La fibre élémentaire du bois s'appelle en général la trachéide et elle a un gros lumen au centre. Selon Siau (1995), il fait partie de 20 à 70% de la section de la trachéide. La Figure I-5 montre la structure de la trachéide qui est similaire à celle des fibres élémentaires.

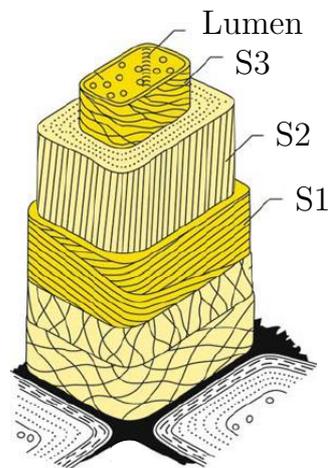


Figure I-5 Structure d'une trachéide selon Agarwal (2006)

I.2.2 Propriétés des fibres végétales

I.2.2.1 Propriétés mécaniques

Les fibres végétales se comportent différemment des autres matériaux conventionnels. Généralement, sur une courbe de contrainte-déformation des matériaux synthétiques, la contrainte augmente linéairement avec la déformation avant d'arriver à la zone plastique. Or, les fibres végétales peuvent présenter différents types de courbe de contrainte-déformation. Puisque la composition chimique des fibres peut varier, son comportement mécanique varie aussi. Placet *et al.* (2012a, 2014) ont tracé la courbe de contrainte-déformation en réalisant des essais de traction sur des fibres élémentaires de chanvre. Les fibres n'ont pas été traitées mais seulement rouies à 30°C pendant 72 h pour faciliter la séparation des fibres (Bourmaud *et al.* 2010). Trois types de courbes de contrainte-déformation sont issus des essais de traction sur les fibres végétales. Dans la Figure I-6 (a), Duval *et al.* (2011) ont mis en évidence ces trois types de courbes. La Figure I-6 (b) décrit les différentes zones dans la courbe de Type 3.

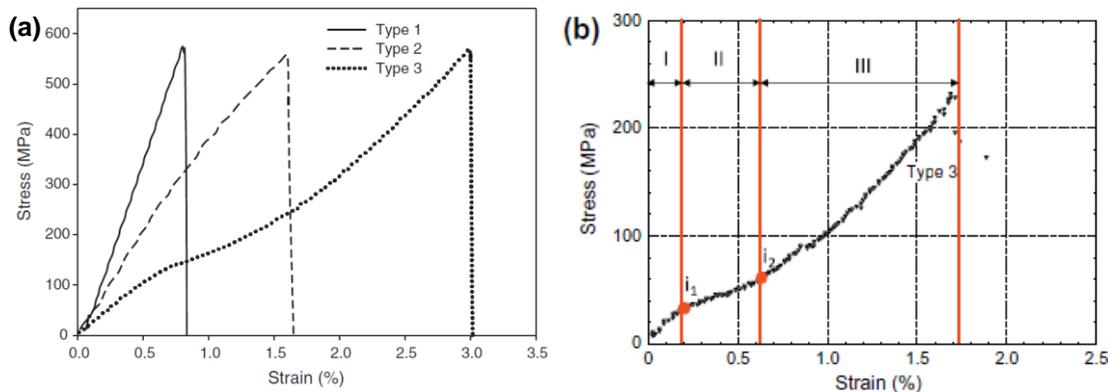


Figure I-6 (a) Différents types de courbes contrainte-déformation des fibres de chanvre (Duval *et al.* 2011) et (b) différentes zones de la courbe de Type 3 (Placet *et al.* 2014)

La courbe du ‘Type 1’ décrit un comportement purement élastique avec le module de Young facilement calculé sur la pente de la partie linéaire. La courbe du ‘Type 2’ est non linéaire avec de l’écoulement plastique et une diminution de rigidité. Alors que la courbe du ‘Type 3’ présente plusieurs non-linéarités et a été désignée comme la courbe typique des fibres végétales par Baley (2002), Bourmaud et Baley

(2009), et Charlet *et al.* (2007). Selon la Figure I-6(b), la zone I est linéaire et une diminution de rigidité apparaît à la zone II. Cette diminution est engendrée par le réarrangement des microfibrilles selon la direction de la traction (Duval *et al.* 2011). Une autre explication pour ces deux zones serait la déformation par cisaillement dans les régions non cristallines de la fibre qui endommage les parois cellulaires (Hearle 1963). Ensuite, la rigidité augmente d'une façon quasi-parabolique dans la zone III jusqu'à la rupture. Il se peut que les fibres provenant de la même récolte présentent ces trois types de courbes. Pour connaître la cause de cette disparité, des hypothèses comme la maturité ou la position des fibres dans la tige pourraient être considérées. Néanmoins, la courbe du Type 3 est la plus souvent rencontrée pour la plupart des fibres végétales.

| Fibre | Densité (g/cm ³) | Contrainte maximale (MPa) | Module de Young (GPa) | Déformation à la rupture (%) |
|---------|------------------------------|---------------------------|-----------------------|------------------------------|
| Chanvre | 1,07 | 389 | 35 | 1,6 |
| 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 |
| Bois | 0,3 – 1,1 | 80 – 200 | 8 – 15 | - |
| Verre | 2,54 | 2000 – 3400 | 72 – 73 | 3 – 4,6 |

Tableau I-2 Comparaison des propriétés mécaniques des fibres végétales et des fibres de verre. Tableau extrait de Baley (2005)

Le Tableau I-2 détaille les propriétés mécaniques des fibres végétales comparativement aux fibres de verre. On note que le module de Young et la densité des fibres végétales sont inférieurs à ceux des fibres de verre. En se basant sur la rigidité spécifique (rigidité/densité), les fibres végétales ont montré des rigidités

spécifiques supérieures à celle de fibres de verre. Cette caractéristique rend les fibres végétales comparables voire meilleures que les fibres synthétiques.

I.2.2.2 Propriétés thermiques

Pour élaborer les biocomposites, le polymère est chauffé jusqu'à sa température de fusion. Ensuite, les fibres végétales sont mélangées dans le polymère fondu et donc doivent subir une température élevée pendant le mélange. Si la température est trop élevée pour les fibres, elles peuvent subir une dégradation thermique qui est une détérioration moléculaire causée par la surchauffe qui ensuite modifie le poids moléculaire du matériau. Par conséquent, elle diminue les propriétés bénéfiques comme la rigidité et la ductilité. La dégradation thermique agit ainsi comme la limite supérieure de la température d'utilisation d'un matériau. Chaque matériau a sa propre température où il commence à se dégrader. Donc, pour les matériaux hétérogènes, il est indispensable de déterminer le début de leur dégradation thermique. A cet effet, il existe l'analyse thermogravimétrique (TGA) qui est effectuée en chauffant l'échantillon dans un environnement contrôlé pendant que sa masse soit mesurée. Si un matériau est thermiquement stable, sa masse reste constante. Les fibres végétales sont généralement moins stables thermiquement que les matrices thermoplastiques, donc la compatibilité thermique entre ces deux matériaux est très importante.

Talla *et al.* (2015) ont étudié un biocomposite PET renforcé par des fibres de chanvre pour analyser sa stabilité thermique. Deux types de fibres sont étudiés : fibres traitées et non traitées. Dans la Figure I-7 (a), ils montrent que les fibres traitées commencent à se dégrader à environ 275°C tandis que les fibres non traitées se dégradent à partir de 230°C. Néanmoins, les deux types de fibres restent stables jusqu'à 300°C. Les données de Oza *et al.* (2011) sont similaires : les fibres traitées se dégradent à partir de 275°C alors que celles non traitées se dégradent à 225°C.

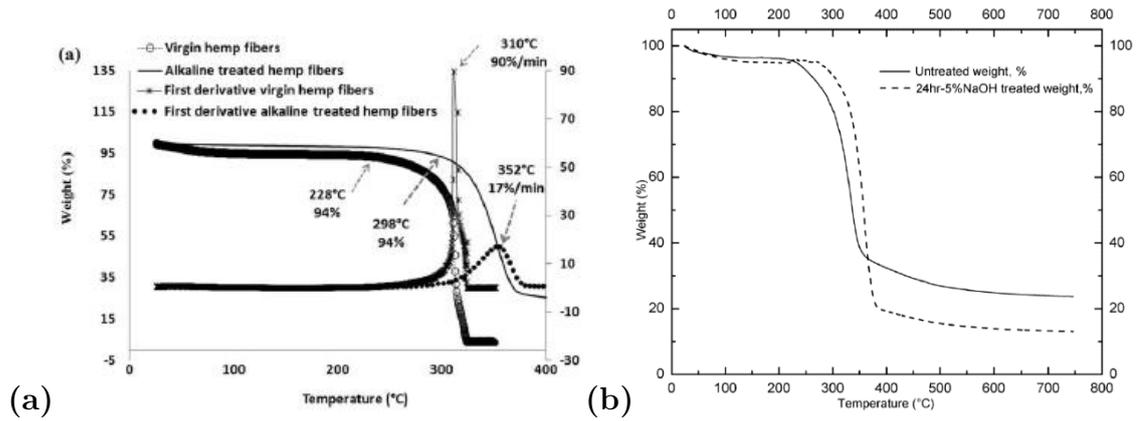


Figure I-7 Courbes TGA des fibres vierges et des fibres traitées selon (a) Talla et al. (2015) et (b) Oza et al. (2011)

| Fibres | Densité ρ (kg/m ³) | Conductivité thermique λ (W/mK) | Références |
|----------------|-------------------------------------|---|------------------------------|
| Lin | 5 – 50 | 0,038 – 0,075 | Wieland <i>et al.</i> (2000) |
| Chanvre | 5 – 50 | 0,040 – 0,082 | Wieland <i>et al.</i> (2000) |
| Coco | 85 | 0,058 | Kochhar et Manohar (1997) |
| Canne à sucre | 100 – 125 | 0,0469 – 0,0496 | Kodah <i>et al.</i> (1999) |
| Liège | 120 – 180 | 0,045 | Silva <i>et al.</i> (2008) |
| Cellulose | 30 – 45 | 0,041 – 0,050 | Kymäläinen et Sjöberg (2008) |
| Laine de verre | 20 – 50 | <0,040 | Murphy <i>et al.</i> (1997) |

Tableau I-3 Conductivité thermique des fibres végétales comparée à celle de fibres de verre

La conductivité thermique des fibres végétales est plus délicate à déterminer. Les techniques expérimentales actuelles nécessitent des échantillons à l'échelle du millimètre au minimum. Les fibres élémentaires qui sont à l'échelle du micron rendent ce procédé difficile. Généralement, les fibres sont compactées à l'aide de l'adhésif pour donner une forme de nattes de fibres végétales afin de faciliter la

détermination de leurs propriétés thermiques. Ces nattes de fibres végétales sont poreuses et leurs propriétés thermiques ne sont pas exactement celles des fibres élémentaires. Or, cela reste la meilleure façon de connaître la conductivité thermique des fibres végétales. Le Tableau I-3 détaille la conductivité thermique de quelques types de nattes de fibres végétales. Ces très basses conductivités motivent l'utilisation de ces nattes pour des applications d'isolation thermique pour les murs et les toitures. D'autres utilisations des fibres végétales sont explorées par Kymäläinen et Sjöberg (2008).

I.2.3 Paramètres influençant les propriétés des fibres végétales

Souvent, lors de la détermination des propriétés mécaniques et thermiques des fibres végétales, on note une large dispersion des résultats expérimentaux et cela rend leur caractérisation très difficile. En effet, il existe plusieurs paramètres qui influencent les propriétés mécaniques et thermiques des fibres végétales. Par exemple, la sensibilité des fibres végétales à l'humidité a augmenté leur conductivité thermique (Korjenic *et al.* 2011) et leurs propriétés mécaniques (Placet *et al.* 2012a, Baley *et al.* 2005). Les techniques de culture, d'extraction ou de séparation peuvent également les influencer. Duval *et al.* (2011) et Charlet *et al.* (2007) ont souligné que les fibres de chanvre et de lin qui se situent au milieu de la tige possèdent les meilleures propriétés mécaniques alors que celles en bas de la tige sont mauvaises dues à leur âge. Les fibres végétales qui sont constituées de plusieurs composants peuvent être considérées comme un composite, avec le pourcentage de cellulose ou l'angle des microfibrilles comme facteurs déterminants. Dai et Fan (2010) ont montré que les fibres de chanvre possédant le plus petit angle de microfibrilles présentent les meilleures propriétés mécaniques. Mwaikambo (2006) a confirmé cette observation en étudiant différentes fibres végétales avec différents angles de microfibrilles. Dans cette partie, nous mettons en avant la variabilité de la géométrie des fibres végétales et son influence sur leurs propriétés.

La notion des diamètres des fibres végétales doit être considérée avec prudence. Le diamètre des fibres végétales varie fortement et n'est jamais constant sur leur longueur. Il peut varier de 10 à 50 μm et donc influencer les propriétés

mécaniques des fibres. Charlet *et al.* (2010) qui ont étudié la morphologie des fibres de lin, ont observé une large dispersion de leur diamètre. La Figure I-8 montre les différents diamètres mesurés sur une fibre de lin ainsi que son diamètre moyen. Pour un diamètre moyen de $16,9 \mu\text{m}$, son diamètre peut varier de $\pm 2,9 \mu\text{m}$ sur toute la longueur de la fibre. Cette variation de diamètre peut expliquer les fortes dispersions des propriétés mécaniques sur les courbes de contrainte-déformation. Le calcul de la contrainte nécessite un diamètre constant. Pour effectuer un calcul rapide et uniforme sur toutes les fibres, le diamètre moyen est souvent utilisé. Mais, on note que cette méthode ne représente pas les vraies propriétés des fibres. Les essais mécaniques sur les fibres de lin ont montré des fortes dispersions sur le module de Young de $63 \pm 36 \text{ GPa}$ et la contrainte maximale de $1250 \pm 700 \text{ MPa}$.

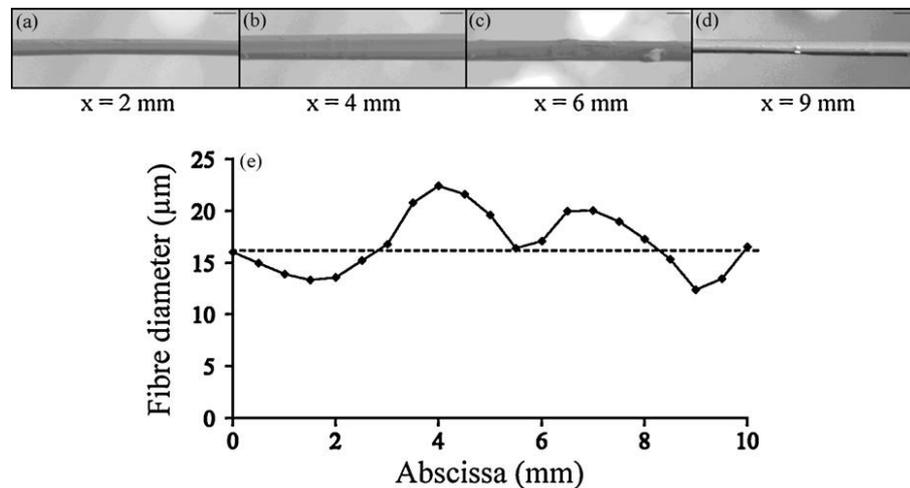


Figure I-8 Différents diamètres mesurés sur une fibre de lin selon Charlet *et al.* (2010)

Placet *et al.* (2012b) ont étudié l'effet du diamètre sur les propriétés mécaniques des fibres de chanvre et ont trouvé une forte dispersion avec un module de Young qui varie entre 8 GPa et 47 GPa. Ils montrent que la rigidité des fibres diminue quand le diamètre augmente, de même que pour la contrainte maximale. Dans la Figure I-9, deux méthodes de mesures sont utilisées, la première avec le diamètre moyen et la deuxième avec le diamètre correspondant à la zone de rupture. Cette dépendance au diamètre est plus forte quand le diamètre à la zone de rupture est considéré (Duval *et al.* 2011). Les fibres ont tendance à rompre au point où le diamètre est plus petit que le diamètre moyen. Par contre, une forte dispersion est toujours présente même pour les diamètres identiques. Ceci est expliqué par les

approximations nécessaires pour la détermination des sections qui sont considérées circulaires alors qu'elles sont plutôt polygonales. Dans la Figure I-10, il est évident que la fibre vierge et la fibre cassée après l'essai de traction n'ont pas de forme circulaire. En plus, il y a aussi les dimensions du lumen qui sont négligées car parfois ils disparaissent à la zone de rupture. Bien que la mesure des diamètres à la zone de rupture représente mieux la réalité, il existe toujours des approximations dans le calcul des propriétés. De plus, environ 30% des fibres se cassent dans les régions où le diamètre est plus grand que le diamètre moyen. Donc, le diamètre n'est pas la raison principale pour la variation des propriétés mécaniques. Placet *et al.* (2012b) ont proposé que c'est les paramètres liés au diamètre (angle des microfibrilles, défauts sur les fibres, etc.) qui influencent vraiment les propriétés.

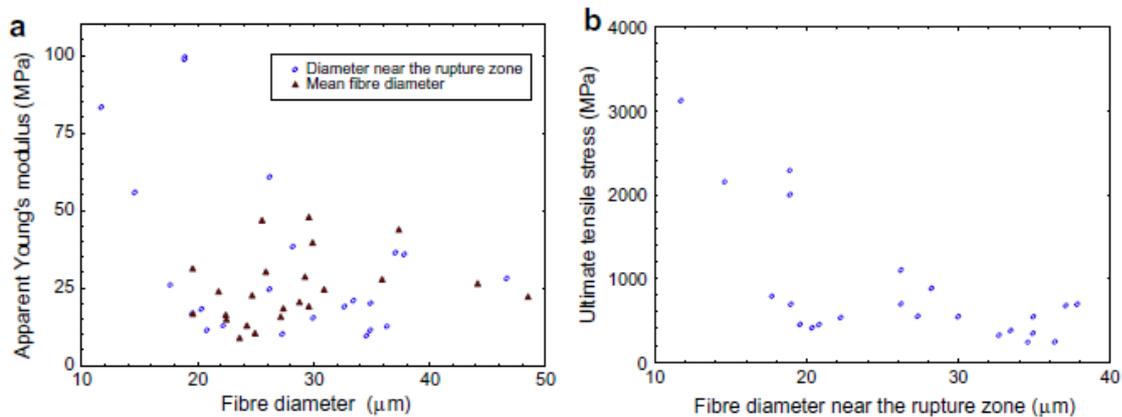


Figure I-9 Propriétés mécaniques en fonction du diamètre des fibres par Placet *et al.* (2012b)

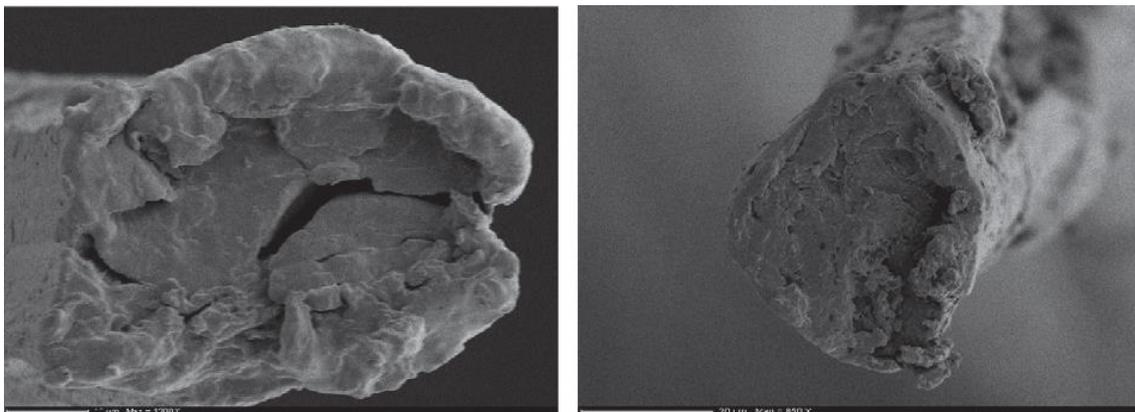


Figure I-10 Images MEB des sections (a) d'une fibre de chanvre vierge et (b) d'une fibre cassée selon Placet *et al.* (2012b)

I.3. Biocomposites

L'incorporation des fibres végétales à base de cellulose telles que le lin, le chanvre, le jute, le sisal, le kenaf, le coco, le bois etc. dans des matériaux thermoplastiques ou thermodurcissables constitue une démarche scientifique couramment utilisée en vue d'élaboration des biocomposites destinés à diverses applications industrielles. Ces matériaux sont souvent répertoriés comme étant des biocomposites, des agro-composites, des composites verts, des éco-composites, des composites biosourcés etc.

Dans cette partie, il est question de présenter les principaux travaux issus de la littérature qui sont relatifs à la détermination des propriétés mécaniques et thermiques des biocomposites à base de fibres végétales. Nous nous intéressons plus particulièrement aux fibres végétales les plus utilisées dans l'élaboration des biocomposites technique, à savoir : les fibres de chanvre, de lin, de jute, de bois etc. Les biocomposites sont aussi renforcés par des particules de formes et de taille différentes. Dans les différents travaux antérieurs, nous pouvons citer les particules de : bois, argan, olive etc. Dans la suite de l'étude, nous présentons les propriétés des biocomposites et les paramètres principaux qui les influencent.

I.3.1 Propriétés mécaniques

L'incorporation des fibres végétales dans une matrice polymère conduit à l'élaboration de biocomposites ayant des propriétés mécaniques intéressantes. Souvent, les matrices présentent une certaine ductilité par rapport aux fibres végétales. Plusieurs travaux dans la littérature ont été consacrés à l'étude des propriétés mécaniques d'une diversité de matériaux biocomposites à matrice polymérique renforcés par des fibres ou des particules végétales (chanvre, lin, jute sisal, bois etc.).

Elouaer (2011) ont effectué des essais de traction sur un polypropylène (PP) renforcé avec 30% de fibres de chanvre et de chènevotte (partie ligneuse du chanvre). Des échantillons de type : PP vierge, PP-chanvre et PP-chènevotte ont été préparés. Les résultats expérimentaux sont présentés sous forme de courbes de contrainte-déformation dans la Figure I-11. Il faut noter que, pour les deux biocomposites, les

courbes mettent en évidence deux zones qui sont typiques d'une courbe de traction : partie linéaire élastique et partie non linéaire. Ces résultats montrent que le module de Young du PP qui est de 1735 MPa, augmente à 4500 MPa après l'ajout de 30% de fibres de chanvre. Les chènevottes font augmenter la rigidité à seulement 3328 MPa mais la résistance maximale du PP-chènevotte est meilleure que celle du PP-chanvre. Le polypropylène PP, comme tous les thermoplastiques, présente une bonne ductilité, avec une déformation à la rupture allant jusqu'à 16%. L'ajout de renfort rend le composite plus fragile avec une déformation à la rupture qui ne dépasse pas 3% pour les deux biocomposites de PP-chènevotte et PP-chanvre. Les résultats expérimentaux, en termes de : module de Young E , contrainte maximale σ_m et déformation à la rupture ε_R sont détaillés dans le Tableau I-4.

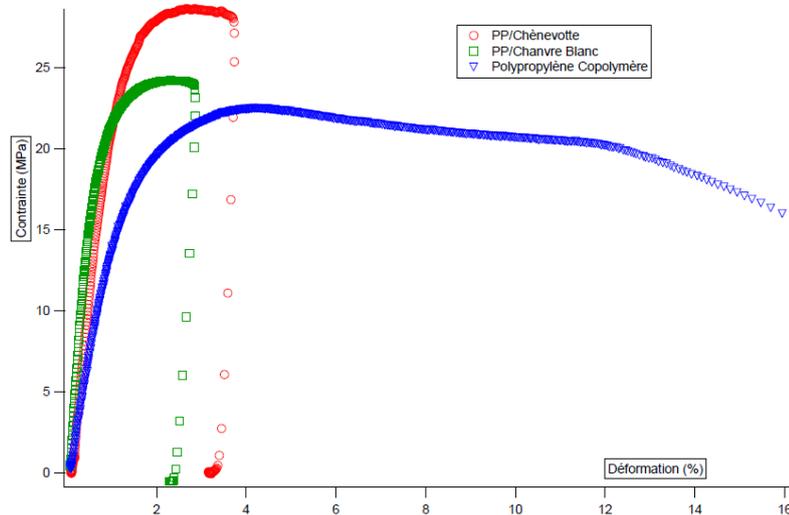


Figure I-11 Courbes contrainte-déformation des biocomposites PP + 30% de fibres de chanvre et de chènevotte selon Elouaer (2011)

| Matériau | E (MPa) | σ_m (MPa) | ε_R (%) |
|----------------------------|---------------------|------------------|---------------------|
| PP vierge | $1734,6 \pm 65,28$ | $22,77 \pm 0,18$ | $16,09 \pm 3,27$ |
| PP + 30% fibres de chanvre | $4500,4 \pm 338,34$ | $24,46 \pm 0,13$ | $2,61 \pm 0,31$ |
| PP + 30% chènevotte | $3328,2 \pm 501,85$ | $27,31 \pm 1,16$ | $2,90 \pm 0,92$ |

Tableau I-4 Propriétés mécaniques des biocomposites PP + 30% fibres de chanvre et de chènevottes selon Elouaer (2011)

Le paramètre qui influence les propriétés mécaniques des biocomposites est principalement la fraction volumique des renforts naturels. Dans ce qui suit, nous explorons plus profondément l'effet de la fraction volumique dans le cas de plusieurs types de renforts naturels.

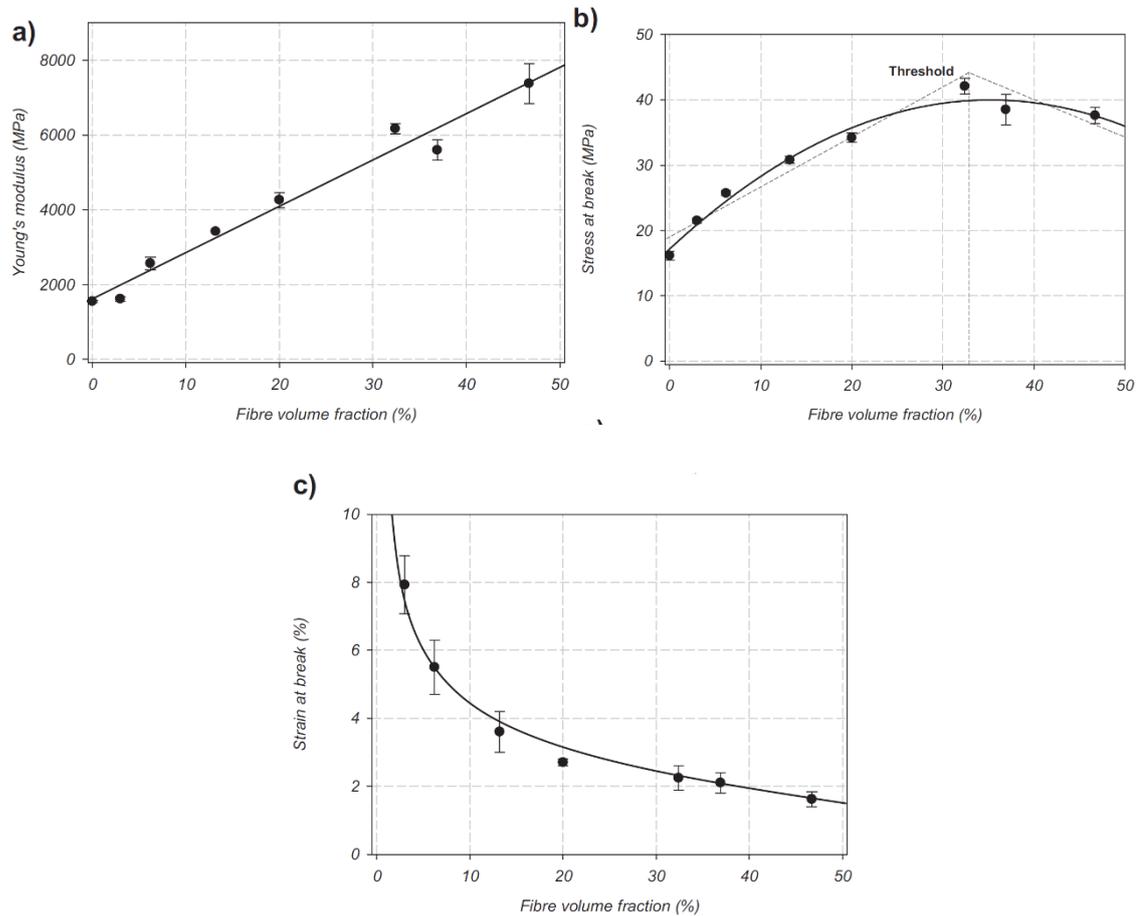


Figure I-12 Propriétés mécaniques des biocomposites de PP-fibres de lin en fonction de la fraction volumique des fibres. Courbes extraites de Ausias *et al.* (2013)

Les travaux effectués par Ausias *et al.* (2013) ont mis en évidence l'influence de taux de renfort d'un polypropylène PP par des fibres de lin sur les propriétés mécaniques des biocomposites chargés entre 0 et 50%. La Figure I-12 illustre les courbes montrant les évolutions typiques du module de Young, de la contrainte à la rupture et de la déformation à la rupture en fonction de la fraction volumique V_f . Globalement, on note qu'une augmentation de la valeur de V_f s'accompagne d'une augmentation du module de Young d'une façon linéaire (Figure I-12 a). Tandis que l'évolution de la contrainte à la rupture est caractérisée par un seuil

maximum, situé à 32%, à partir duquel sa valeur chute (Figure I-12 b). Ce point correspond à l'existence des contacts entre les fibres de lin, ce qui explique cette perte de résistance. On note aussi une perte de ductilité des biocomposites. En effet, l'ajout des fibres de lin engendre une forte diminution de la déformation à la rupture qui passe de plus de 10% pour le polypropylène PP vierge à 2% environ pour 47% de fibres (Figure I-12 c).

Lu et Oza (2013a) ont étudié un biocomposite à base de fibres de chanvre avec un polymère HDPE recyclé (rHDPE). Une couche de fibres de chanvre orientées aléatoirement est serrée entre deux films de rHDPE et ils sont fusionnés par une presse hydraulique chauffante. Trois types de biocomposites, qui sont préparés avec des taux de renforts de 20, 30 et 40%, sont testés en traction. Le Tableau I-5 donne les principales propriétés mécaniques des 3 biocomposites comparées à celle de la matrice polymère. Il faut noter qu'une fraction volumique de 20% de fibres de chanvre affectent peu les propriétés mécaniques de ce biocomposite, qui restent similaires à celles du polymère vierge. Néanmoins, une croissance significative de la résistance mécanique est observée pour 30% et 40% de fibres de chanvre. A 40% de fibres, le module de Young du biocomposite est cinq fois plus élevés que celui du rHDPE. Tandis que la déformation à la rupture diminue drastiquement de 17,9% à 3,3% pour une fraction volumique de 40% de fibres de chanvre.

| | E (MPa) | σ_m (MPa) | ϵ_R (%) |
|----------------------------|----------------|------------------------------------|------------------------------------|
| rHDPE (recyclé) | 441,2 | 19,1 | 17,9 |
| rHDPE + 20% chanvre | 471,2 | 18,6 | 7,5 |
| rHDPE + 30% chanvre | 1486,5 | 43,3 | 4,0 |
| rHDPE + 40% chanvre | 2311,2 | 60,2 | 3,3 |

Tableau I-5 Résultats des essais de traction des biocomposites HDPE-fibres de chanvre selon Lu et Oza (2013a)

Facca *et al.* (2006) ont également étudié des biocomposites HDPE renforcé par des fibres de chanvre. Les fibres ont un rapport de forme (longueur sur diamètre de la fibre) moyen de 11,7 et sont orientées aléatoirement dans la matrice. Ils ont observé que le module de Young E des biocomposites augmente de façon linéaire avec la fraction volumique des fibres, comme le montre la Figure I-13. Pour un pourcentage de fibres de chanvre de 60%, sa valeur du module de Young atteint sept fois la valeur pour le HDPE pur. Par contre, ils ont noté qu'à la même fraction massique, les fibres de verre apportent douze fois plus de rigidité au HDPE. Du fait que les fibres de verre et de chanvre ont des longueurs et des modules de Young similaires, les auteurs ont conclu que les différences des résultats expérimentaux peuvent provenir de la dégradation thermique des fibres de chanvre et de la mauvaise cohésion avec la matrice HDPE.

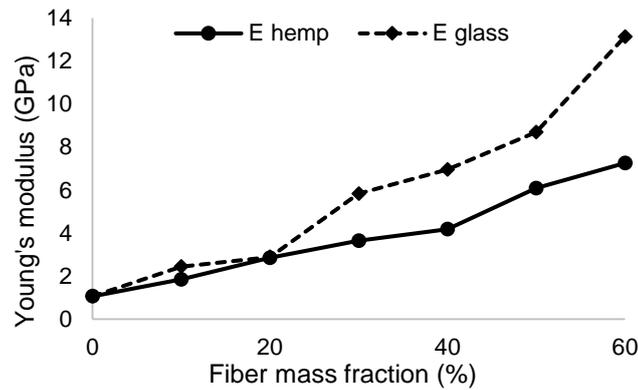


Figure I-13 Module de Young d'un biocomposite HDPE-fibres de chanvre selon Facca *et al.* (2006)

Roussière *et al.* (2012) ont étudié un biocomposite des fibres de lin mélangées dans un thermoplastique Acide Poly L-Lactide (PLLA). Des essais de traction ont été réalisés sur ce biocomposite avec des fractions volumiques de 15%, 25%, 34% et 44%. Un modèle analytique a été développé se basant sur les plis de composites unidirectionnels. Ce modèle permet de prédire le module de Young du composite E_c par l'équation suivante :

$$E_c = 4 \frac{U_5(U_1 - U_5)}{U_1} \quad \text{Eq. (I.1)}$$

$$\text{avec } U_1 = \frac{E_L(3 + 2\nu_{TL}) + 3E_T + 4G_{LT}(1 - \nu_{LT}\nu_{TL})}{8(1 - \nu_{LT}\nu_{TL})} \quad \text{Eq. (I.2)}$$

$$\text{et } U_5 = \frac{E_L(1 - 2\nu_{TL}) + E_T + 4G_{LT}(1 - \nu_{LT}\nu_{TL})}{8(1 - \nu_{LT}\nu_{TL})} \quad \text{Eq. (I.3)}$$

Les lettres souscrites L et T signifie longitudinal et transversal. Il est à noter que le module de Young E dans les équations ci-dessus est celui d'un composite unidirectionnel et est estimé par le modèle de Halpin et Tsai (1967). Les résultats montrent une augmentation du module de Young E_c du biocomposite avec la fraction volumique des fibres. Le module de Young atteint un maximum de 9822 MPa comparé à 3321 MPa du PLLA. Néanmoins, la comparaison avec le modèle analytique montre que le module de Young du biocomposite E_c est inférieur à son potentiel (Figure I-14). Cette diminution pourrait être attribuée à la morphologie des fibres et la qualité de l'interface fibre/matrice.

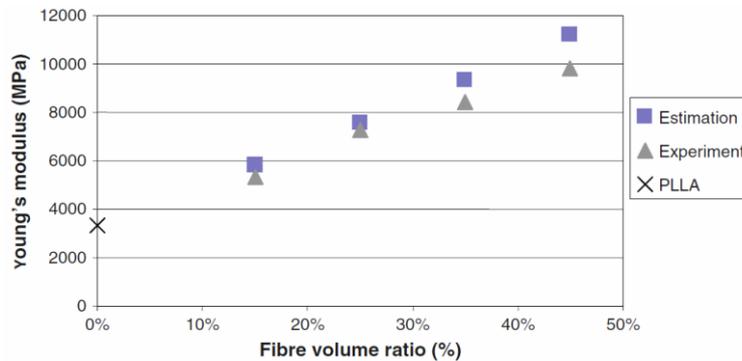


Figure I-14 Module de Young d'un biocomposite PLLA-fibres de lin selon Roussière *et al.* (2012)

Pour maximiser la rigidité que les fibres végétales peuvent apporter à un biocomposite, Charlet *et al.* (2007) ont étudié un biocomposite époxy renforcé par des fibres de lin unidirectionnelles pour des fractions volumiques de 0 à 47%. Sur la Figure I-15, le biocomposite avec une fraction volumique de 47% est 10 fois plus rigide que l'époxy qui a une rigidité de 3,1 GPa. Charlet *et al.* (2007) ont également remarqué que les fibres de lin provenant du milieu de la tige apportent les meilleures propriétés au biocomposite, soulignant l'importance du choix des fibres.

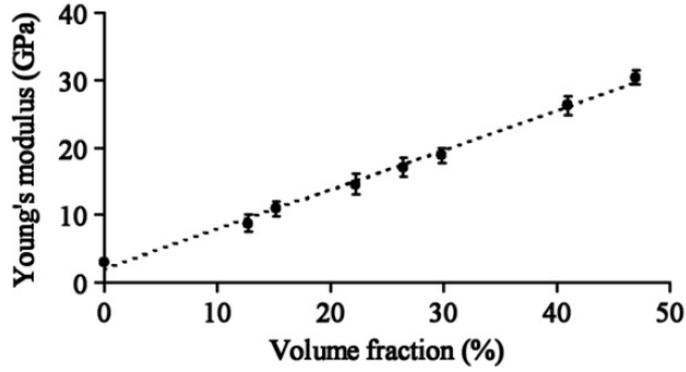


Figure I-15 Module de Young d'un biocomposite epoxy-fibres de lin unidirectionnelles selon Charlet et al. (2007)

Madsen *et al.* (2007) ont étudié le PET renforcé par des fils de chanvre alignés. Des essais tractions sont effectués selon la direction des fibres et un modèle prenant en compte la fraction volumique de la porosité V_p a été développé. Ce modèle se base sur la loi de mélange et est décrit par l'équation suivante :

$$E_c = (V_f E_f + V_m E_m)(1 - V_p)^2 \quad \text{Eq. (I.4)}$$

Les lettres souscrites f , m et p signifie fibres, matrice et porosité. A la fraction volumique de 48%, le module de Young du biocomposite est de 27,6 GPa comparé à celui du PET qui est de 2,7 GPa. Ils ont observé une amélioration du module de Young E_c de 10 fois. Mais dans la Figure I-16, les résultats expérimentaux sont inférieurs au modèle analytique et la loi de mélange. Ils ont attribué cette diminution de propriétés à la porosité qui est présente dans le biocomposite.

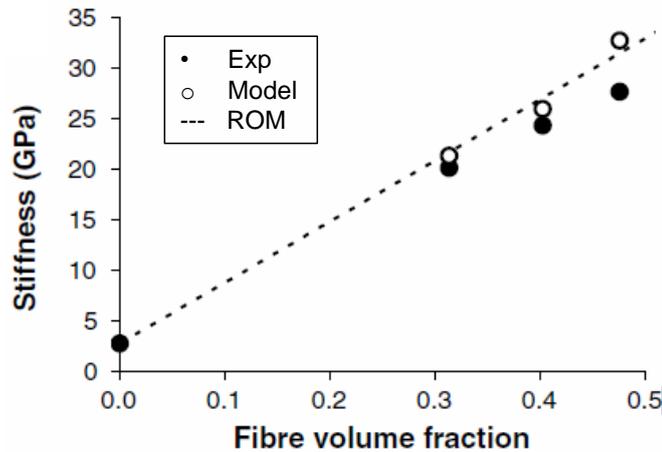


Figure I-16 Module de Young d'un biocomposite PET-fils de chanvre alignées selon Madsen et al. (2007)

Huda *et al.* (2006) ont étudié un biocomposite à base d'acide polylactique (PLA) renforcé par des particules de bois. Ils ont fait varier la fraction volumique à 20%, 30% et 40%. Ils ont noté une augmentation linéaire de la rigidité avec le taux du renfort (Figure I-17). A 40% de particules de bois, la valeur du module de Young est le double de celle de la matrice PLA.

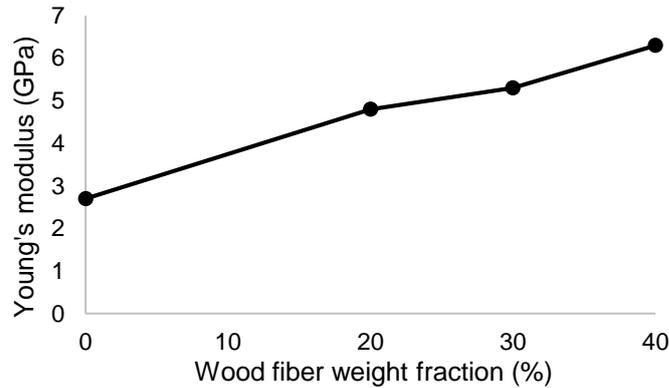


Figure I-17 Module de Young du biocomposite PLA-bois selon Huda *et al.* (2006)

Bengtsson *et al.* (2005) ont étudié un biocomposite HDPE renforcé par des fibres de bois. Le Tableau I-6 montre l'effet du taux renfort sur les propriétés mécaniques du biocomposite. Avec plus de particules de bois, la rigidité augmente de façon significative, mais le composite devient également plus fragile. A 30% et 40% de renfort, la déformation maximale du HDPE-bois est seulement de 2 à 3%. Contrairement au module de Young, la résistance à la traction a diminué quand le taux de fibres augmente. Selon Bengtsson *et al.* (2005), ceci est dû aux faibles liaisons interfaciales entre les fibres et la matrice.

| | E (MPa) | σ_m (MPa) | ϵ_R (%) |
|------------------------|----------------|------------------|------------------|
| HDPE | 694,3 ± 31,9 | 19,1 ± 0,4 | - |
| HDPE + 20% bois | 1116,7 ± 60,4 | 18,8 ± 0,7 | 6,3 ± 0,8 |
| HDPE + 30% bois | 1365,3 ± 122,5 | 17,8 ± 1,3 | 2,9 ± 0,5 |
| HDPE + 40% bois | 1490,2 ± 97,1 | 17,5 ± 0,9 | 2,1 ± 0,3 |

Tableau I-6 Propriétés du biocomposite HDPE-bois selon Bengtsson *et al.* (2005)

Des particules de bois sont utilisées en tant que renfort pour le HDPE dans une étude menée par Raj *et al.* (1990). Ils ont fait varier le pourcentage de bois à 20, 30 et 40% et ont observé son effet sur les propriétés mécaniques du biocomposite. Les particules de bois peuvent être assimilées aux fibres courtes avec un rapport de forme de 6. La Figure I-18 montre l'évolution du module de Young et de la déformation à la rupture en fonction du taux de fibres. Le module de Young augmente linéairement jusqu'à 30% de bois. Ensuite, seule une légère augmentation est observée à 40% de bois. La déformation à la rupture diminue de 11% jusqu'à seulement 3 à 4%, qui signifie une fragilisation du biocomposite.

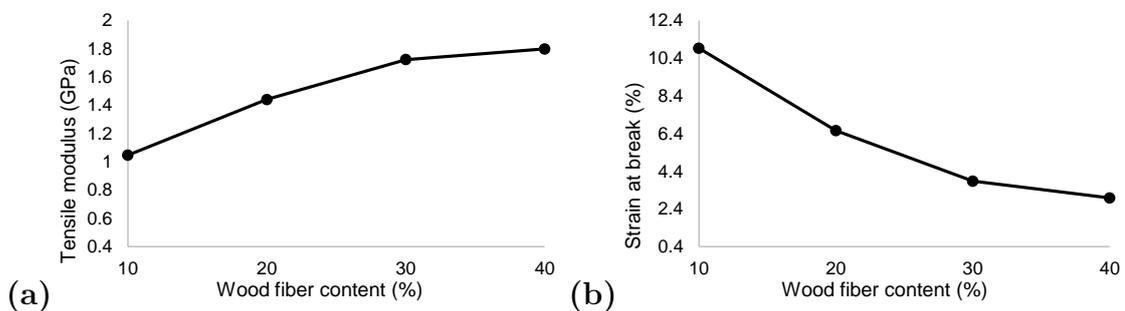


Figure I-18 (a) Module de Young et (b) déformation à la rupture du biocomposite HDPE-bois en fonction du pourcentage de bois selon Raj *et al.* (1990)

L'étude de Raj *et al.* (1990) peut être comparée à celle de Bengtsson *et al.* (2005) qui utilisent les matériaux similaires. A 20, 30 et 40% de fibres de bois, ces biocomposites de Raj *et al.* (1990) possèdent de meilleurs modules de Young avec des valeurs entre 1400 et 1800 MPa. Ces propriétés sont apportées au biocomposite probablement par la taille et la forme des fibres de bois. En effet, les fibres de Raj *et al.* (1990) ont une taille maximum de 250 μm (tamis taille 60) et un rapport de forme de 6. Alors que celles de Bengtsson *et al.* (2005) ont des tailles qui sont majoritairement entre 315 et 1000 μm . Dans cette comparaison, les particules fines et le rapport de forme de 6 apportent de meilleures propriétés au biocomposite. Par contre, les valeurs de la déformation à la rupture des deux biocomposites sont similaires avec une valeur maximum de 6% pour 20% de fibres et une valeur minimum de 2% pour 40% de fibres.

Dans la littérature, plusieurs recherches ont été menées pour étudier les effets de la taille des fibres et des particules sur les propriétés mécaniques des

biocomposites. Maiti et Singh (1986) ont montré que les particules fines apportent plus de rigidité au biocomposite HDPE-bois comparées aux grosses particules. Myers *et al.* (1991) ont aussi confirmé la même conclusion pour un biocomposite PP-bois. Cependant, les travaux de Zaini *et al.* (1996) et Ichazo *et al.* (2006) ont montré des résultats opposés, les grosses particules apportent plus de rigidité et de résistance mécanique au biocomposite PP-bois. Finalement, Stark et Rowlands (2003) ont souligné que ce n'est pas la taille des particules qui influence les propriétés mécaniques, mais plutôt le rapport de forme. Le rapport de forme (l/d) est défini par le rapport entre la longueur l et le diamètre d des fibres (Figure I-19). Selon leurs conclusions, un grand rapport de forme apporte des meilleures propriétés mécaniques au biocomposite.

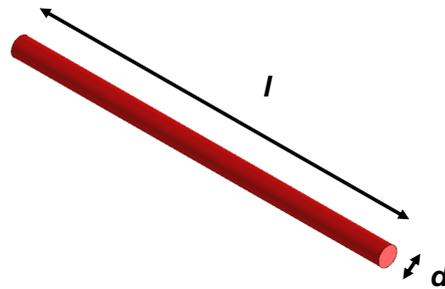


Figure I-19 Définition du rapport de forme l/d

Migneault *et al.* (2008) ont fait varier la taille des particules d'un biocomposite de HDPE-bois avec trois rapports de forme de 21,3, 13 et 8,3. Les résultats obtenus dans cette étude sont donnés par le Tableau I-7 et la Figure I-20 sous forme de courbes contrainte-déformation. Ils montrent que les propriétés mécaniques augmentent avec le rapport de forme. Effectivement, plus le rapport de forme est grand, plus le module de Young et la contrainte maximale augmentent. Tandis que la déformation à la rupture n'est pas sensible au rapport de forme. Ces résultats sont confirmés par plusieurs travaux, dont ceux de Stark et Rowlands (2003).

| (l/d) | E (GPa) | ε_R (%) |
|-------------|-----------------|---------------------|
| 21,3 | $2,99 \pm 0,02$ | $2,58 \pm 0,08$ |
| 13 | $2,96 \pm 0,10$ | $2,13 \pm 0,11$ |
| 8,3 | $2,83 \pm 0,04$ | $2,20 \pm 0,11$ |

Tableau I-7 Propriétés mécaniques du HDPE-bois avec différentes tailles de particules selon Migneault et al. (2008)

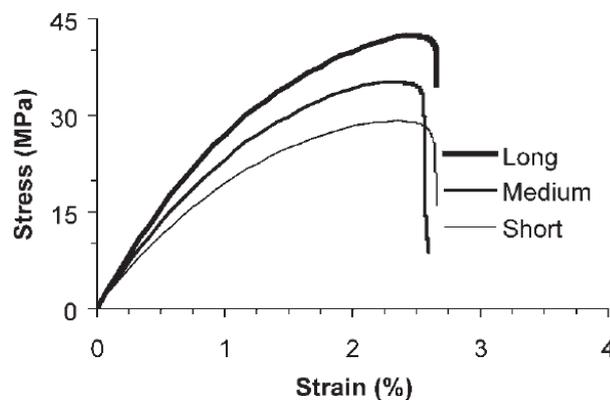


Figure I-20 Courbe de contrainte-déformation du HDPE-bois avec différentes tailles de particules selon Migneault et al. (2008)

Plusieurs études dans la littérature ont porté sur l'influence des fibres et des particules végétales sur les propriétés mécaniques des biocomposites. On note aussi la publication de plusieurs articles faisant état d'une revue générale des principaux résultats portant sur les propriétés mécaniques d'une large variété de biocomposites. Dans une étude récente, Pickering *et al.* (2016) ont dressé un tableau qui fournit les valeurs de la contrainte maximale et du module de Young issues de plusieurs sources bibliographiques pour un large éventail de biocomposites comparés aux composites à fibres de verre (Tableau I-8 et Tableau I-9). Ces tableaux mettent en évidence la dispersion des résultats due aux variétés des fibres végétales et différents paramètres qui peuvent influencer les propriétés mécaniques des biocomposites.

| Fibre | Matrice | Pourcentage de fibres (%) | Contrainte maximale (MPa) | Module de Young (GPa) | Références |
|-----------------------|---------|---------------------------|---------------------------|-----------------------|---------------------------------------|
| Sisal (alignées) | Epoxy | ~73/77 | 410/330 | 6/10 | Rong <i>et al.</i> (2001) |
| Lin (alignées) | Epoxy | 46/54 | 280/279 | 35/39 | Oksman (2001) |
| Sisal (alignées) | Epoxy | 37/48 | 183/211 | 15/20 | Oksman <i>et al.</i> (2002) |
| Chanvre (alignées) | Epoxy | 65 | 165 | 17 | Islam <i>et al.</i> (2011) |
| Fils de lin (alignés) | Epoxy | ~31 | 160 | 15 | Goutianos <i>et al.</i> (2006) |
| Fils de lin (alignés) | Epoxy | 45 | 133 | 28 | Van de Weyenberg <i>et al.</i> (2003) |
| Lin (alignées) | Epoxy | 37 | 132 | 15 | Oksman <i>et al.</i> (2002) |
| Lin (biaxiales) | Epoxy | ~46 | 200 | 17 | Carpenter <i>et al.</i> (2007) |
| Lin (tissées) | Epoxy | ~50 | 104 | 10 | Phillips <i>et al.</i> (2013) |
| Chanvre (DSF) | Epoxy | 65 | 113 | 18 | Islam <i>et al.</i> (2011) |
| Lin (alignées) | UP | ~58 | 304 | 30 | Hughes <i>et al.</i> (2007) |
| Lin (alignées) | UP | ~34 | 143 | 14 | Goutianos <i>et al.</i> (2006) |
| Alfa (alignées) | UP | 48 | 149 | 12 | Brahim et Cheikh (2007) |
| Jute (tissées) | UP | 35 | 50 | 8 | Rodríguez <i>et al.</i> (2005) |
| Lin (aléatoires) | UP | 39 | 61 | 6 | Rodríguez <i>et al.</i> (2005) |
| Ananas (aléatoires) | UP | 30 | 53 | 2 | Devi <i>et al.</i> (1997) |
| Lin (courtes) | Laque | ~49 | 109 | 10 | Herrmann <i>et al.</i> (1998) |
| Verre (alignées) | VE | ~60 | 905 | 39 | Goutianos <i>et al.</i> (2006) |
| Verre (alignées) | UP | ~60 | 695 | 31 | Hughes <i>et al.</i> (2007) |
| Verre (tissées) | VE | ~59 | 483 | 33 | Goutianos <i>et al.</i> (2006) |
| Verre (aléatoires) | UP | ~47 | 201 | 13 | Rodríguez <i>et al.</i> (2005) |

Tableau I-8 Propriétés mécaniques de biocomposites à base de matrices thermodurcissables. Tableau extrait de Pickering *et al.* (2016)

| Fibre | Matrice | Pourcentage de fibres (%) | Contrainte maximale (MPa) | Module de Young (GPa) | Références |
|-----------------------|---------|---------------------------|---------------------------|-----------------------|--------------------------------|
| Fils de lin (alignés) | PP | 72 | 321 | 29 | Madsen et Lilholt (2003) |
| Fils de lin (alignés) | PP | 30 | 89/70 | 7/6 | Angelov <i>et al.</i> (2007) |
| Lin (alignées) | PP | 50 | 40 | 7 | Oksman (2000) |
| Bois (pulpe) | PP | 40 | 50 | 3 | Li et Sain (2003) |
| Jute | PP | 60 | 74 | 11 | Rana <i>et al.</i> (1998) |
| Kraft | PP | 40 | 52 | 3 | Sain <i>et al.</i> (2005) |
| Chanvre | PP | 40 | 52 | 4 | Sain <i>et al.</i> (2005) |
| Kenaf (aléatoires) | PP | 30 | 46 | 5 | Zampaloni <i>et al.</i> (2007) |
| Lin | PP | 30 | 52 | 5 | Bledzki <i>et al.</i> (2008) |
| Kenaf (alignées) | PLA | ~80 | 223 | 23 | Ochi (2008) |
| Chanvre | PLA | 30 | 83 | 11 | Islam <i>et al.</i> (2010) |
| Kenaf (alignées) | PLA | 40 | 82 | 8 | Graupner et Müssig (2011) |
| Chanvre (alignées) | PLA | 30 | 77 | 10 | Baghaei <i>et al.</i> (2014) |
| Lin (aléatoires) | PLA | 30 | 100 | 8 | Bodros <i>et al.</i> (2007) |
| Chanvre (biaxial) | PLA | 45 | 62 | 7 | Baghaei <i>et al.</i> (2013) |
| Chanvre (aléatoires) | PLA | 47 | 55 | 9 | Hu et Lim (2007) |
| Lin (aléatoires) | PLLA | 30 | 99 | 9 | Bodros <i>et al.</i> (2007) |
| Kenaf (alignées) | PHB | 40 | 70 | 6 | Graupner et Müssig (2011) |

Tableau I-9 Propriétés mécaniques de biocomposites à base de matrices thermoplastiques. Tableau extrait de Pickering et al. (2016)

I.3.2 Propriétés thermiques

Dans cette partie, nous présentons quelques travaux sur la stabilité thermique des biocomposites qui constitue un indicateur important de la dégradation des fibres végétales sous l'effet de la température. De même, nous exposons les principaux résultats antérieurs portant sur l'évolution de la conductivité thermique des biocomposites en analysant les effets bénéfiques de la présence des fibres végétales dans un biocomposite.

I.3.2.1 Stabilité thermique

La stabilité thermique est importante surtout pour les fibres végétales qui peuvent se dégrader à température élevée. Lors du mélange avec des fibres végétales, les polymères doivent être fondus et la température de fusion des polymères est généralement plus élevée que la limite de dégradation thermique de ces fibres végétales. Il faut alors trouver un compromis entre la température de fusion des polymères et la dégradation thermique des fibres. Les mesures de la stabilité thermique sont souvent réalisées avec le TGA, technique qui est expliquée dans la section précédente sur les fibres végétales.

Tazi *et al.* (2014) ont étudié un biocomposite HDPE renforcé par des particules de bois. Ils ont effectué l'analyse TGA pour déterminer la stabilité thermique du biocomposite en fonction du taux de renfort. Dans la Figure I-21, ils ont montré que le biocomposite se dégrade plus vite quand le taux de renfort augmente. Du fait de la faible résistance thermique des particules de bois, le biocomposite commence à se dégrader à environ 175°C. A partir de cette température, la décomposition chimique des celluloses, hémicelluloses et la lignine a lieu et cause la perte en masse du biocomposite. Ensuite, le polymère dans le biocomposite se dégrade à environ 400°C, ce qui donne la forme de coude sur les courbes. Il continue à perdre en masse jusqu'à environ 500°C où le biocomposite est complètement dégradé. Sur la plupart des analyses TGA sur les biocomposites, on observe cette forme de courbe. La stabilité thermique des biocomposites se trouve toujours entre celle du polymère et des renforts naturels.

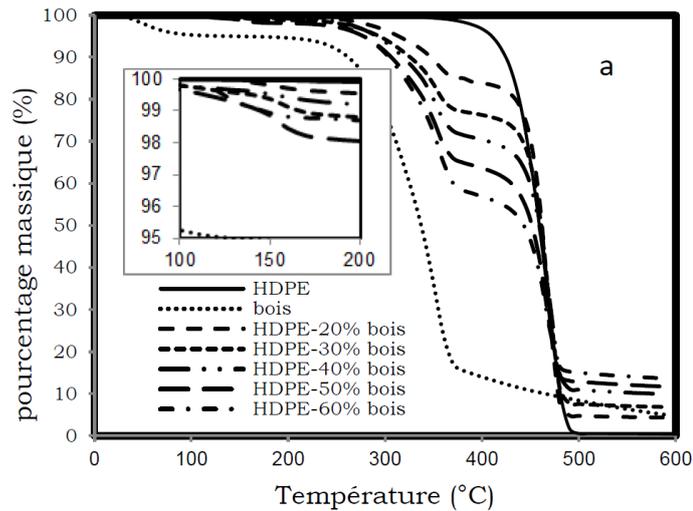


Figure I-21 Courbe de TGA du biocomposite HDPE-bois selon Tazi et al. (2014)

Lu et Oza (2013b) ont étudié la stabilité thermique d'un HDPE renforcé par des fibres de chanvre. Différents pourcentages de fibres et différents types de traitements de surface (silane, NaOH) sont effectués pour analyser leurs effets sur la dégradation thermique du composite. Les courbes de TGA sont illustrées dans la Figure I-22. En comparant aux biocomposites renforcés par des fibres non traitées, ceux renforcés par des fibres traitées avec les deux solutions présentent des meilleures stabilités thermiques. Or, parmi les fibres traitées, le traitement de silane donne un meilleur résultat. On peut noter que le biocomposite contenant plus de fibres se dégrade plus rapidement. Avec les traitements, les fibres résistent mieux à la température mais elles restent toujours faibles comparées aux polymères. Globalement, la stabilité thermique des biocomposites est réduite quand le pourcentage de fibres augmente.

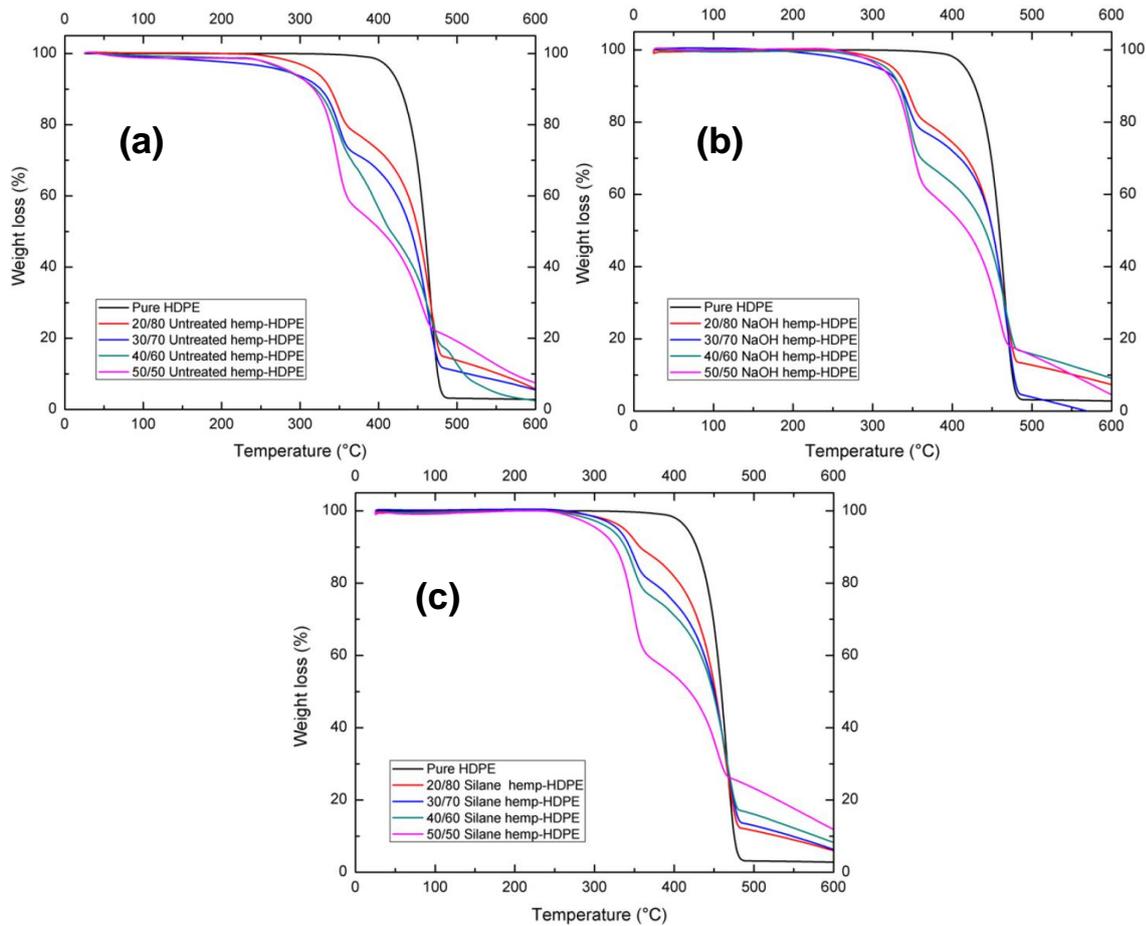


Figure I-22 Courbe de TGA pour les biocomposites HDPE renforcé par des fibres (a) non traitées, (b) traitées avec NaOH et (c) traitées avec la silane selon Lu et Oza (2013b)

Talla *et al.* (2015) ont effectué une étude de la stabilité thermique d'un biocomposite PET-fibres de chanvre. Cette étude est importante car la température de fusion du PET, qui est de 300°C d'environ, est bien supérieure à la dégradation thermique des fibres de chanvre qui est d'environ 200°C. Pour faire baisser la température de fusion du PET, ils l'ont mélangé avec un polymère Polycaprolactone (PCL) qui fond à 60°C. En plus, les fibres de chanvre ont été traitées avec une solution alcaline pour améliorer leur résistance à la température. La combinaison de ces deux précautions assure un bon mélange du biocomposite sans dégradation des fibres. Cette résistance à la température est montrée dans la Figure I-23. Jusqu'à environ 300°C, les biocomposites ne se dégradent pas et gardent 100% de leur masse. Ils commencent seulement à se dégrader à partir de 304°C. Les auteurs ont noté que les biocomposites contenant plus de fibres de chanvre se dégradent

plus rapidement à ce stade. Cette étude souligne l'importance de la modification des fibres et de la matrice pour assurer le bon mélange de ces deux matériaux.

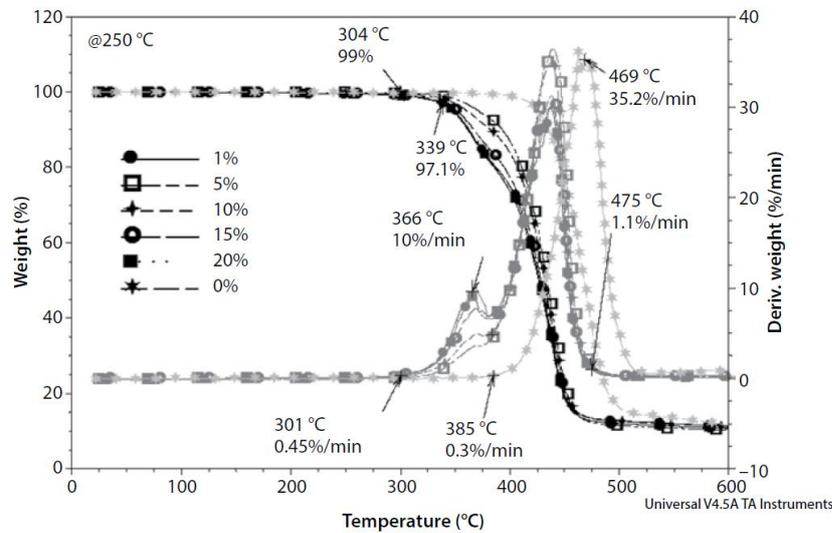


Figure I-23 Courbe TGA du biocomposite PET-fibres de chanvre selon Talla et al. (2015)

I.3.2.2 Conductivité thermique

Pour évaluer l'efficacité thermique d'un biocomposite renforcé par des fibres végétales, l'évaluation de l'évolution de la conductivité thermique constitue un indicateur important.

Kim *et al.* (2006) ont étudié la conductivité thermique d'un biocomposite PP renforcé par un mélange de fibres végétales (kenaf, chanvre, lin, sisal) à 50% en fraction massique. Des plaques de biocomposites sont préparées par thermocompression. Ces plaques sont testées par un appareil de mesure de flux de chaleur qui est illustré dans la Figure I-24. Le principe de la machine est de serrer la plaque du biocomposite entre deux plaques chauffantes de l'appareil. L'une des plaques sera plus chaude que l'autre, ainsi créant un flux de chaleur passant par la plaque du biocomposite. La machine mesure ensuite sa conductivité thermique à partir de ce flux. Les résultats montrent que la conductivité thermique du biocomposite PP-fibres végétales est de 0,05 W/mK comparée à celle du PP qui est d'environ 0,1 à 0,2 W/mK. On note que l'ajout de 50% de fibres naturelles a réduit la conductivité thermique de 50% environ.

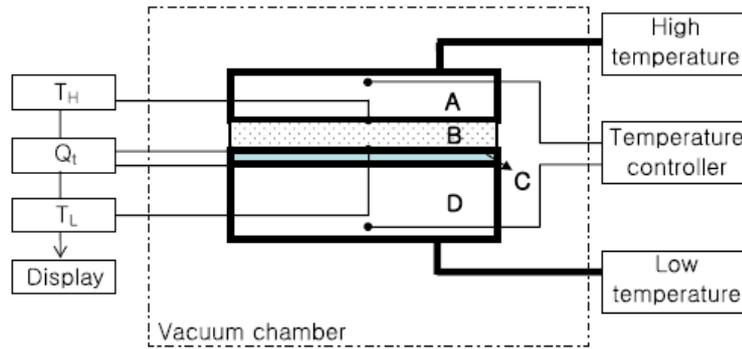


Figure I-24 Schéma d'un appareil pour mesurer la conductivité thermique illustré par Kim et al. (2006)

Mangal *et al.* (2003) ont mélangé un thermodurcissable phénoplaste (PF) avec différents pourcentages de fibres d'ananas. Ils ont utilisé une technique différente pour mesurer la conductivité thermique. La technique « transient plane source » (TPS) est réalisé en mettant un capteur serré entre deux plaques de l'échantillon. Les propriétés mesurées sont détaillées dans le Tableau I-10. On note que plus le pourcentage de fibres augmente, plus la conductivité thermique λ décroît. On peut en déduire que la fraction volumique V_f des fibres végétales joue un rôle important dans la réduction de la conductivité thermique.

| | | | | | | |
|------------------|------|-------|-------|-------|-------|-------|
| V_f | 0 | 0,133 | 0,178 | 0,271 | 0,366 | 0,464 |
| λ (W/mK) | 0,34 | 0,29 | 0,28 | 0,27 | 0,26 | 0,25 |

Tableau I-10 Conductivité thermique du biocomposite PF-fibres d'ananas selon Mangal *et al.* (2003)

Le même effet de la fraction volumique est remarqué par Idicula *et al.* (2006) qui ont étudié un biocomposite polyester renforcé par des fibres de banane et de sisal. Dans le Tableau I-11, ils ont montré une réduction de la conductivité thermique du biocomposite jusqu'à 0,140 W/mK avec 40% de V_f comparé à 0,181 W/mK pour le polyester pur. On note aussi que les fibres végétales apportent une meilleure isolation thermique au biocomposite comparées aux fibres de verre. Le Tableau I-11 montre qu'à la même fraction volumique, la conductivité thermique λ est de 0,140 W/mK dans le cas du biocomposite, alors que cette valeur est de 0,277 W/mK pour un composite à fibres de verre.

| | | | | |
|------------------|-------|-------|-------|------------|
| V_f (%) | 0 | 20 | 40 | 40 (verre) |
| λ (W/mK) | 0,181 | 0,153 | 0,140 | 0,277 |

Tableau I-11 Conductivité thermique du biocomposite polyester-fibres de banane/sisal selon Idicula et al. (2006)

Nayak *et al.* (2010) ont étudié un biocomposite d'époxy renforcé par des particules de pin. Des échantillons avec des fractions volumiques V_f de particules de 6,5%, 11,3%, 26,8% et 35,9% ont été préparés et testés. Les résultats expérimentaux sont donnés dans le Tableau I-12. L'effet de V_f sur la conductivité thermique λ est également observé ici. En effet, la conductivité thermique diminue quand le pourcentage de particules augmente. A 35,9% de particules de pin, la conductivité thermique diminue de 43% environ. Ceci montre l'effet bénéfique des fibres végétales sur le plan thermique.

| | | | | | |
|------------------|-------|-------|-------|-------|-------|
| V_f (%) | 0 | 6,5 | 11,3 | 26,8 | 35,9 |
| λ (W/mK) | 0,363 | 0,291 | 0,273 | 0,242 | 0,155 |

Tableau I-12 Conductivité thermique du biocomposite époxy renforcé par des particules de pin selon Nayak et al. (2010)

Agoua *et al.* (2013) ont étudié l'effet de la taille des renforts dans le cas d'un biocomposite de polystyrène renforcé par 50% et 67% de particules de bois. Ils ont fait varier également la granulométrie des particules. La technique de détermination de la conductivité thermique est similaire à celle montrée par la Figure I-24. Les résultats expérimentaux sont donnés dans le Tableau I-13. Ils ont observé une conductivité thermique qui diminue quand le pourcentage de bois augmente. L'étude sur la taille des particules a montré que les particules fines sont meilleures pour l'isolation thermique. En effet, les particules fines sont mieux dispersées dans la matrice, ce qui contribue à diminuer la conductivité thermique du biocomposite.

| Fraction massique des particules (%) | Conductivité thermique (W/mK) | |
|---|-------------------------------|---------|
| | Fines | Grosses |
| 50 | 0,269 | 0,274 |
| 67 | 0,244 | 0,267 |

Tableau I-13 Conductivité thermique du biocomposite polyester renforcé par des particules de bois selon Agoua et al. (2013)

I.4. Mise en forme par thermoformage des composites polymères

Le thermoformage est un procédé de mise en forme des feuilles, généralement, des thermoplastiques sous forme de produits (pièces de formes embouties). Pour cela, la feuille de plastique est chauffée et lorsque le ramollissement est suffisant, on l'aspire par dépression sur un moule de forme géométrique donnée, ou on la pousse sur le moule à l'aide d'un poinçon ou d'une pression d'air. La plupart des thermoplastiques sont élaborés de cette manière avec des matériels conventionnels. Des technologies plus récentes sont utilisées pour former les composites à base de thermoplastiques. En général, le thermoformage est employé quand une grosse cadence de production des pièces avec un grand rapport de surface/épaisseur est nécessaire. Les produits typiques issus de cette technique sont par exemple les petites boîtes, les gobelets et mêmes les pièces mécaniques et épaisses comme la carrosserie d'automobile et le revêtement intérieur des cabines d'avion.

I.4.1 Principe de fonctionnement

Le thermoformage profite du phénomène de la transition vitreuse et de fusion des thermoplastiques pour l'élaboration des matériaux thermoplastiques. Pour rappel, un matériau dépasse la transition vitreuse quand il reçoit assez d'énergie pour que les molécules puissent se libérer légèrement des liaisons secondaires (van der Waals et liaison hydrogène) mais pas assez pour mettre le matériau en état

liquide. De ce fait, la température de la transition vitreuse (T_g) est toujours inférieure à la température de fusion (T_m). Ce phénomène rend le matériau caoutchouteux et facilite son élaboration.

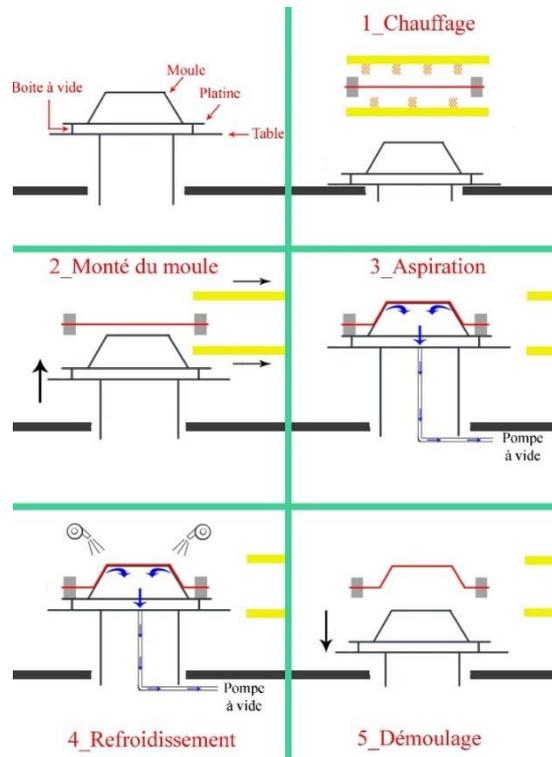


Figure I-25 Déroulement d'un cycle de thermoformage. Image extraite de "Thermoformage" (2015)

Le procédé de thermoformage commence par le chauffage d'une feuille thermoplastique ou biocomposites jusqu'à une température $T > T_g$. La feuille est maintenue à cette température pendant un certain temps pour assurer que le ramollissement est homogène sur toute la feuille. Ensuite, la feuille ramollie est introduite sur le moule. Deux types de moule existe en thermoformage, le moule positif (mâle) vient s'appuyer sur la feuille alors que le moule négatif (femelle) se sert de la pression ou du vide pour que la feuille épouse sa forme. L'exemple d'un cycle de thermoformage dans la Figure I-25 montre un moule positif équipé d'une pompe à vide pour assister la mise en forme de la feuille. Une fois que la feuille a pris sa forme, elle est refroidie pour qu'elle revienne à l'état solide. Finalement elle est démoulée et coupée pour obtenir la pièce finale.

I.4.2 Modélisation et caractérisation des matériaux en thermoformage

La modélisation numérique de la mise en forme des thermoplastiques par le procédé de thermoformage nécessite une bonne connaissance du comportement utilisé pour ces matériaux. Toutefois, l'identification des paramètres thermomécaniques, associés à ces lois de comportements, nécessite des méthodes appropriées pour ajuster des données issues de l'expérimentation avec des données estimées par des modèles mathématiques. Pour le volet expérimental, il existe plusieurs techniques pour caractériser la réponse mécanique des matériaux thermoplastiques, autant pour l'état liquide que semi-solide. Parmi les variables dépendantes d'intérêt expérimental, on trouve les déformations et les taux de déformations en fonction d'une ou plusieurs variables indépendantes tels que : la pression, la force, la température et le temps.

I.4.2.1 Caractérisation des propriétés viscoélastiques par approche expérimentale

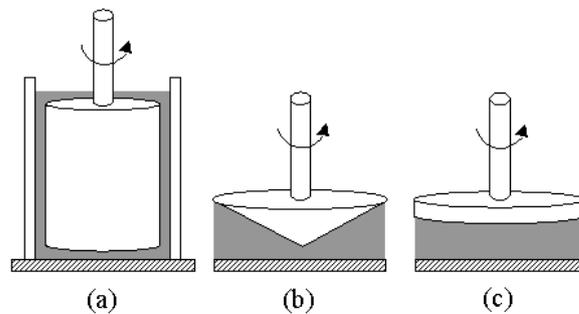


Figure I-26 Différents types de rhéomètre (a) cylindrique (b) conique et (c) plaque. Image extraite de "Guide to Rheological Nomenclature: Measurements in Ceramic Particulate Systems"

En plasturgie, les essais expérimentaux peuvent être catégorisés en deux classes : les tests qui impliquent de petites déformations (faibles amplitudes) et ceux qui impliquent de grandes déformations. À propos de la première catégorie de tests, on peut citer les essais de cisaillement oscillatoire linéaire. Cette technique, qui est très populaire en plasturgie, permet l'accès direct aux propriétés

rhéologiques des matériaux viscoélastiques par l'entremise d'un rhéomètre, illustré dans la Figure I-26. Parmi les paramètres mesurés par cette méthode, on trouve le module d'élasticité G' (aussi nommé module de stockage en cisaillement) et le module de fluidité G'' (ou perte de rigidité en cisaillement). Ces paramètres sont mesurés généralement en fonction de la fréquence et de la température. À titre d'exemple, citons les travaux expérimentaux de Erchiqui *et al.* (2009a) et Godard *et al.* (2009) sur la mesure expérimentale des propriétés rhéologiques (G' et G'') des composites bois-plastique en fonction de la fréquence et de la concentration massique en sciures de bois, de Papanastasiou *et al.* (1983) en recouvrements et ceux de Treloar (1944) relatifs aux tests de traction et de compression uni-axiale.

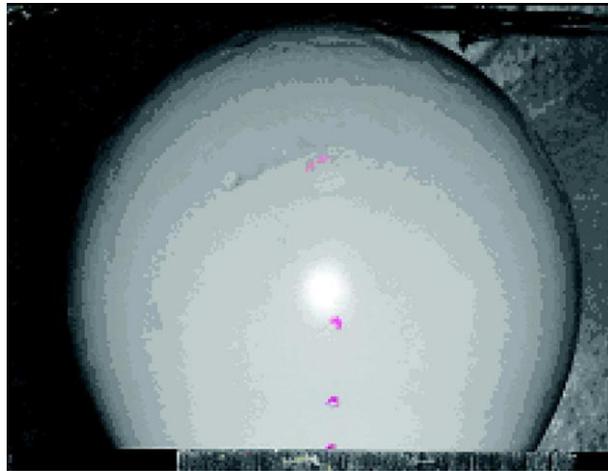


Figure I-27 Soufflage libre d'une membrane polymérique selon Erchiqui et al. (2010)

Les tests expérimentaux impliquant de grandes déformations sont généralement limités en nombre relativement aux petites déformations. On peut citer les essais d'extension équi-biaxiale des thermoplastiques par Meissner *et al.* (1981), les tests de soufflage libre des membranes polymériques circulaires par Erchiqui *et al.* (2010) et Verron *et al.* (2001), les tests d'extension et soufflage combinés de structures cylindriques polymériques par Alexander (1971) et Benjeddou *et al.* (1993), et les essais effectués par Nishioka *et al.* (2000) en uni-axial, biaxial et élongation plane dans le cas de polystyrène. Dans le cas de soufflage libre des membranes thermoplastiques circulaires montré par la Figure I-27, le principe de la technique consiste à chauffer une feuille de polymère à une température donnée à l'intérieure d'un four. Une fois que la structure chaude

devient molle et facilement déformable (thermoformable), on injecte une pression d'air à un débit contrôlé à l'aide d'une valve et d'un robinet. Un système d'acquisition de données enregistre l'évolution de la pression à l'intérieur de la bulle au cours du temps tandis qu'un capteur infrarouge enregistre l'évolution de la hauteur de celle-ci (Erchiqui *et al.* 2010). Les données expérimentales (hauteur, pression, température) sont ensuite utilisées pour le volet de la modélisation et l'identification.

I.4.2.2 Identification numérique des modèles viscoélastiques

Concernant les types de lois viscoélastiques, convoitées en plasturgie pour représenter la réponse des thermoplastiques, il existe plusieurs modèles dans la littérature scientifique. A titre d'exemple : Carreau (1972), Dealy et Larson (2006), Larson (1988), Macosko (1994), Tanner (1985), Treloar (1944), etc.). Toutefois, on peut classer ces lois en deux catégories :

- i) Lois à fonction mémoire ou lois intégrales par Lodge (1964), Christensen (1980), etc.
- ii) Lois à dérivation convective de la contrainte ou lois différentielles par Béraudo *et al.* (1998), Oldroyd (1958), Thien et Tanner (1977), White et Metzner (1963), etc.

À ce stade, il est aussi opportun de souligner l'existence d'autres lois *hybride* tel que le modèle intégral hyperviscoélastique par Ghobadnam *et al.* (2015). Ce dernier est une combinaison de deux modèles de comportements : le modèle viscoélastique représentée par la série Prony et le modèle de hyperélastique de type Ogden (1972).

Comme il est souligné auparavant, le principe général des approches utilisées, pour l'identification comportementale, consiste à simuler numériquement les tests expérimentaux à l'aide d'une loi constitutive appropriée ; dont les paramètres seront estimés par un algorithme d'optimisation. Parmi les approches mathématiques utilisées pour l'identification comportementale des matériaux viscoélastiques, on trouve la méthode analytique (Erchiqui *et al.* 2009a), la méthode des différences

finies (Erchiqui *et al.* 2001), et la méthode des éléments finis (Bergström et Boyce 1998). Par exemple, dans le cas de cisaillement oscillatoire, il existe des solutions exactes associées aux modules dynamiques de conservation G' et aux modules dynamiques de perte G'' . Ces solutions sont construites à partir des lois de comportement viscoélastiques et, ensuite, utilisées par l'entremise d'une fonction objective pour réduire l'écart entre celles-ci et des valeurs mesurées de G' et G'' . Cela permet l'accès aux propriétés mécaniques de la loi constitutive. L'effet de la température sur les propriétés mécaniques ou rhéologique peut-être aussi modélisé par une loi thermique (Ferry 1980). Dans le cas de la méthode des différences finies, mentionnons l'approche à pas variable utilisée dans les travaux de Verron *et al.* (2001) et Erchiqui *et al.* (2010) pour la modélisation du problème de soufflage libre d'une membrane circulaire en Acrylonitrile butadiène styrène (ABS). Finalement, dans le cas de la méthode des éléments finis, on rencontre plusieurs travaux, à titre d'exemple le travail de Zienkiewicz et Taylor (2005).

Quant au volet optimisation, deux approches sont fréquemment utilisées pour l'identification des paramètres structuraux des membranes thermoplastiques :

- (i) celle qui utilise des algorithmes de type moindres carrés (Verron *et al.* 1999) et
- (ii) celle qui utilise des algorithmes de type neuronal (Erchiqui et Kandil 2006, Erchiqui *et al.* 2011).

À titre d'exemple, dans le cas de soufflage libre d'une membrane initialement plane et circulaire, Erchiqui *et al.* (2005) ont utilisé un algorithme de moindre carré pour l'identification des paramètres mécaniques. Le principe de l'approche utilisée est le suivant : pour chaque valeur expérimentale de la hauteur mesurée h_e , de la pression mesurée P_e et de temps t , les auteurs résolvent un système d'équations différentielles non linéaires qui décrivent l'équilibre d'une membrane soufflée. La résolution du système fournit la valeur de la pression calculée P_c compatible avec les déformations mesurées (h_e). Ensuite, il s'agit de construire point par point la courbe $P_c(h_e)$ et ainsi estimer l'écart entre celle-ci et la courbe expérimentale $P_e(h_e)$ par l'intermédiaire d'une fonction erreur au sens des moindres carrées en utilisant un algorithme de Levenberg-Marquardt (Marquardt 1963).

Concernant l'approche neuronale, une approche relativement récente, le principe consiste à l'acquisition de l'information à partir des résultats issus de la modélisation, pendant une phase dite d'apprentissage (Aleksander et Morton 1990), à l'aide d'un algorithme de type neuronale. Dans le cas des travaux de Erchiqui *et al.* (2011) et Erchiqui et Kandil (2006), l'algorithme d'auto-propagation est utilisé. Cet algorithme, dit *algorithme d'entraînement*, est basé sur des règles d'apprentissage. Parmi les règles utilisées pour l'apprentissage, on trouve : des règles purement mathématiques (règle delta, moindre carrée, etc.), des règles basées sur les principes de la mécanique statistique, et des règles associées aux principes de transmission des signaux des neurones biologiques (Peretto 1984).

I.4.2.3 Simulation numérique du thermoformage

À propos des méthodes numériques les plus utilisées pour la modélisation de thermoformage, il y a la méthode des éléments finis. Cette méthode, par l'incorporation d'un modèle constitutif approprié au comportement du matériau permet de simuler l'ensemble des étapes de mise en forme d'un produit fini (chauffage, formage, contact moule/matériau, refroidissement, etc.) pour une variété de configurations de moules et de conditions d'opérations. Parmi les travaux initiateurs sur la modélisation numérique de thermoformage, on trouve ceux de DeLorenzi et Nied (1991) et Nied *et al.* (1990). Pour ce faire, ils ont considéré une approche quasi-statique par éléments finis et deux modèles de comportements hyperélastique de type Ogden (Ogden 1972) et de type Mooney-Rivlin (Mooney 1940). Le domaine physique (feuille thermoplastique) a été subdivisé en un nombre d'éléments fini triangles à interpolation linéaire. Les résultats obtenus ont montré que la distribution des épaisseurs dans les produits finis est indépendante de la loi de comportement. Par la suite, plusieurs travaux comme Chevaugéon *et al.* (2000), Erchiqui *et al.* (2001, 2009b) et Laroche et Erchiqui (1999) ont été développés pour l'étude de thermoformage par éléments finis.

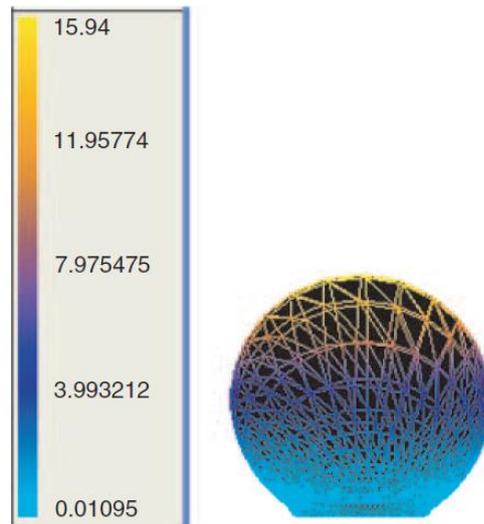


Figure I-28 Modélisation numérique du thermoformage par éléments finis selon Erchiqui et al. (2009b)

Pour ce volet de la modélisation en thermoformage et plus particulièrement la phase de formage, deux méthodes non linéaires sont souvent utilisées : approche quasi-statique (DeLorenzi et Nied 1991, Laroche et Erchiqui 1998, 1999, Souli et Erchiqui 2011) et approche dynamique (Erchiqui *et al.* 2005, Verron *et al.* 1999). Les chargements dans ces deux approches sont généralement en pression. Toutefois, pour ces problèmes, les fortes non-linéarités mécaniques et géométriques impliquent des instabilités lors du formage et nécessitent un contrôle précis des chargements utilisés pour la simulation (Khayat et Derdouri 1994). Ces instabilités, qu'on associe à la branche descendante de la courbe charge/déformation, traduisent physiquement les régions pour lesquelles la charge diminue, tandis que le gonflement augmente (Khayat *et al.* 1992). Pour contourner ce problème d'instabilité, certains auteurs considèrent un chargement en débit d'air à la place d'un chargement en pression ; la pression est alors déduite d'une loi thermodynamique des gaz (Erchiqui 2005). Parmi les travaux d'intérêt, soulignons ceux de Verron *et al.* (2001) qui ont utilisé une approche non linéaire par éléments finis pour le soufflage. Pour cela, ils ont adopté la théorie des éléments de membranes et en supposant un matériau hyperélastique incompressible. Concernant les matériaux viscoélastiques, en grandes transformations, on peut citer les travaux de : Verron *et al.* (2001) avec l'utilisation du modèle de CBT et une approche dynamique explicite par éléments finis, Chevaugon *et al.* (2000) avec une approche quasi statique, et Erchiqui et ses

coauteurs sur l'utilisation de plusieurs modèles de comportements. À ce titre, pour le thermoformage d'une pièce en HDPE, plusieurs modèles intégraux sont utilisés pour la modélisation : le modèle K-BKZ (Erchiqui *et al.* 2005), le modèle de Lodge (Erchiqui *et al.* 2009a), et le modèle de Christensen (Erchiqui *et al.* 2011).

I.5. Conclusion

Ce chapitre bibliographique est concentré à deux volets : le premier est dédié à une étude sur les propriétés des biocomposites à base de fibres végétales et de polymères et, le second, sur la modélisation de thermoformage. Pour le premier volet, nous avons exposé, d'une manière succincte, les principales études sur les fibres végétales et les biocomposites. Les différentes influences de la concentration, de la géométrie, et du type des fibres végétales sur les propriétés mécaniques, thermique et structurales des biocomposites ont été détaillées. Pour le second volet, nous avons exposé les approches utilisées, d'une part, pour la caractérisation expérimentale et numérique des matériaux thermoplastiques et, d'autre part, pour la modélisation numérique de thermoformage.

Chapitre II : Influence de la taille des fibres sur les propriétés mécaniques et thermiques d'un composite

Sommaire

| | |
|--|----|
| Chapitre II : Influence de la taille des fibres sur les propriétés mécaniques et thermiques d'un composite | 47 |
| II.1. Introduction | 49 |
| II.2. Principes de l'homogénéisation | 49 |
| II.2.1 Méthodes analytiques | 50 |
| II.2.2 Méthodes numériques | 50 |
| II.2.3 Notion du Volume Elémentaire Représentatif | 51 |
| II.3. Objectif de l'étude..... | 53 |
| II.4. Méthode d'homogénéisation numérique par élément finis | 54 |
| II.4.1 Génération des microstructures..... | 54 |
| II.4.2 Maillage de la microstructure..... | 55 |
| II.4.3 Technique d'homogénéisation numérique..... | 58 |
| II.4.4 Conditions aux limites | 60 |
| II.5. Résultats et discussions..... | 66 |
| II.5.1 Composites renforcés par des Fibres Courtes Aléatoires..... | 68 |
| II.5.2 Composite renforcé par des Fibres Longues Aléatoires..... | 87 |
| II.5.3 Effets du contraste | 96 |
| II.6. Conclusion..... | 97 |

II.1. Introduction

Ce chapitre vise à explorer l'influence de la taille des fibres sur les propriétés mécaniques et thermiques des composites. Une méthode d'homogénéisation numérique se basant sur des calculs par éléments finis est effectuée sur deux types de microstructures : composite renforcé par des fibres courtes aléatoires (CFCA) et composite renforcé par des fibres longues aléatoires (CFLA). L'étude sur la convergence des propriétés apparentes qui donne par la suite la taille du Volume Élémentaire Représentatif (VER) des deux composites est réalisée par l'homogénéisation numérique. La variation du pourcentage des fibres est envisagée dans le cas des fibres courtes CFCA afin d'observer son influence sur la convergence des propriétés apparentes. Avec la variation du pourcentage des fibres, la notion de la percolation des fibres intervient également dans l'étude. La convergence des propriétés apparentes est aussi vérifiée dans le cas des fibres longues CFLA. Pour distinguer les fibres courtes et les fibres longues, un cas extrême est considéré pour les fibres longues où leur longueur est supposée continue ou infinie. Un grand contraste est appliqué sur les deux types de composites pour mieux observer l'effet du pourcentage et de la longueur des fibres sur la convergence des propriétés apparentes.

II.2. Principes de l'homogénéisation

La mécanique des matériaux hétérogènes constitue un enjeu important en vue de mieux prédire leurs propriétés physiques et mécaniques effectives. L'homogénéisation est une opération permettant de transformer un milieu hétérogène en un milieu homogène équivalent (MHE) fictif. Le MHE présente les propriétés effectives du milieu hétérogène en prenant en compte toutes les hétérogénéités. Ces propriétés sont ce qu'on appelle les propriétés effectives. La Figure II-1 montre un schéma simplifié du passage d'un milieu hétérogène à un milieu homogène équivalent MHE à l'aide de la technique d'homogénéisation. Il existe plusieurs techniques d'homogénéisation, notamment analytiques et numériques.

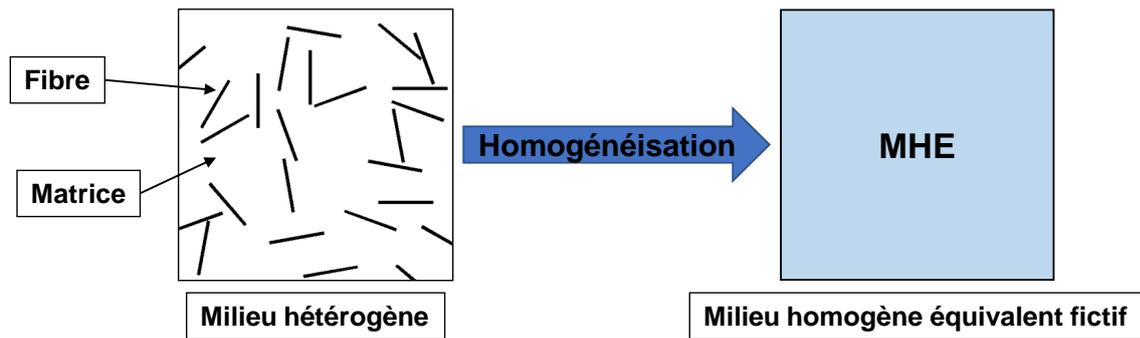


Figure II-1 Passage d'un milieu hétérogène à un milieu homogène équivalent fictif via l'homogénéisation

II.2.1 Méthodes analytiques

Les méthodes analytiques sont les premières techniques d'homogénéisation qui ont été développées. L'exemple classique est la loi de mélanges développée par Voigt (1889) et son inverse par Reuss (1929). Elles sont utilisées pour déterminer les propriétés d'un composite renforcé par des fibres continues et alignées. Elles servent également de bornes supérieure et inférieure pour assurer la validité des estimations des propriétés des matériaux hétérogènes. Pour les renforts particuliers, il existe la théorie de Mori et Tanaka (1973). Autrement, le modèle d'Halpin et Tsai (1967) est un modèle empirique qui prend en compte l'effet de la longueur des fibres sur les propriétés du composite. Pour calculer les propriétés thermiques, le modèle de Maxwell (1873) et le modèle de Bruggeman (1935) sont disponibles. Néanmoins, les modèles analytiques traitent seulement des cas particuliers et ne peuvent pas être appliqués à tous les types de composites.

II.2.2 Méthodes numériques

Actuellement, l'homogénéisation numérique est devenue une méthode robuste pour déterminer les propriétés des matériaux hétérogènes. Elle est appliquée sur tout type de composite. Le calcul est rapide et les résultats sont précis. Il existe plusieurs types d'homogénéisation numérique qui diffèrent par la méthode de la résolution du problème. Par exemple, la *Fast Fourier Transform* (FFT) est un algorithme numérique utilisé par Michel *et al.* (1999) et Eyre et Milton (1999) pour calculer les propriétés effectives des microstructures périodiques. Cependant, Gusev

(1997) applique des simulations de Monte-Carlo pour homogénéiser les composites élastiques. L'une des méthodes numériques les plus employées est l'homogénéisation par éléments finis qui est utilisée par plusieurs études antérieures au sein de notre laboratoire comme Kanit *et al.* (2003) et El Moumen *et al.* (2015a). Cette méthode nécessite la détermination du Volume Élémentaire Représentatif (VER) pour mieux représenter l'hétérogénéité des matériaux composites. C'est la méthode qui est utilisée dans ce travail pour homogénéiser les composites à fibres courtes et longues.

II.2.3 Notion du Volume Élémentaire Représentatif

En dehors des essais expérimentaux, il faut toujours avoir en main un modèle ou un échantillon fictif qui peut représenter le matériau en réalité. Pour les matériaux homogènes, cet échantillon peut être de n'importe quelle taille et il reproduira toujours le même résultat que les essais expérimentaux. Or, les hétérogénéités dans les matériaux hétérogènes compliquent le passage d'un matériau réel à un matériau fictif. La taille de l'échantillon fictif doit être assez grande pour tenir compte des hétérogénéités qui influencent les propriétés d'un matériau hétérogène. Cette taille est ce qu'on appelle le Volume Élémentaire Représentatif VER. Dans la littérature, on note différentes définitions du concept du VER.

Pour sa part, Hill (1963) a donné une définition classique qui indique que le VER est un échantillon qui est structurellement typique de la microstructure entière, c'est-à-dire, il contient suffisamment d'hétérogénéités pour que les propriétés macroscopiques soient indépendantes des conditions aux limites. Cependant, Sab (1992) a souligné que cette définition est seulement valide quand les propriétés du VER tendent vers celles d'un milieu périodique. Cela implique que le VER doit être indépendant des conditions aux limites, qui est en accord avec une étude par Ostoja-Starzewski (1998). Après avoir effectué plusieurs simulations numériques, Terada *et al.* (2000) ont noté que le VER doit être le plus grand possible pour faciliter les calculs. Tandis que Drugan et Willis (1996) ont dit que le VER doit être le plus petit possible où les propriétés apparentes convergent.

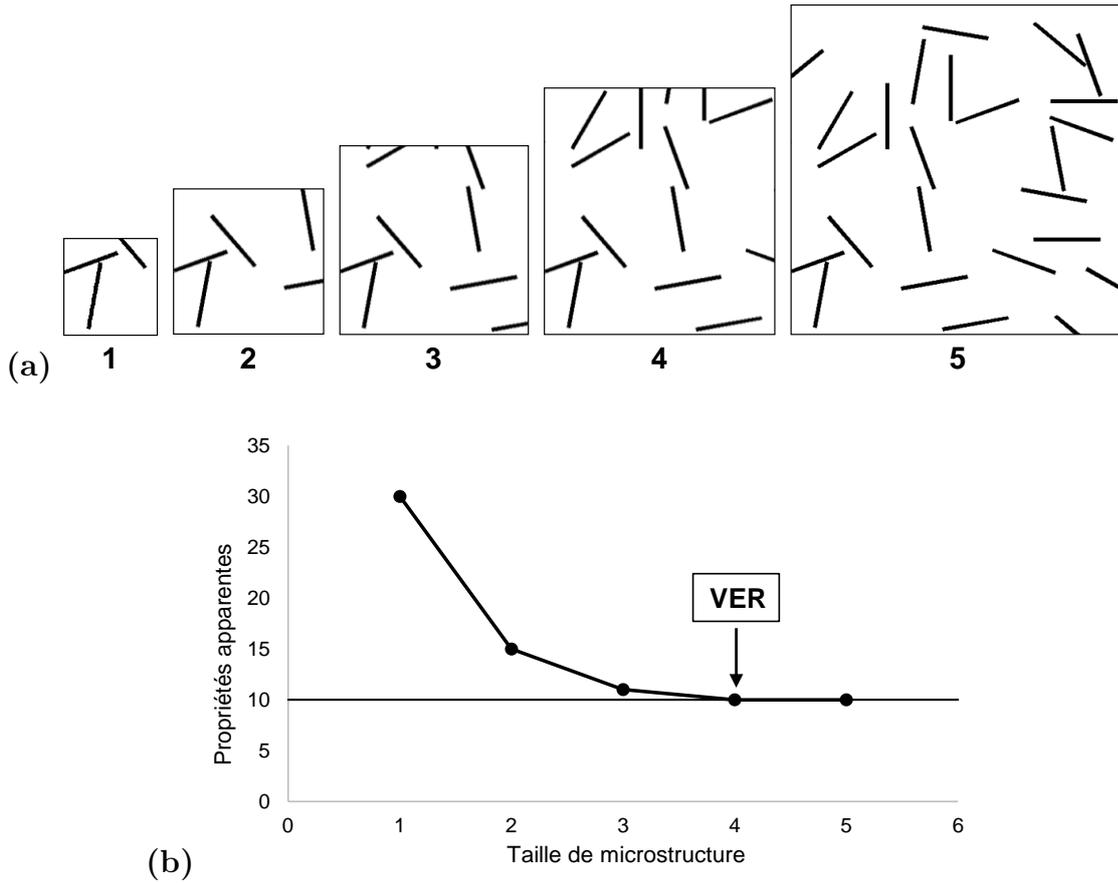


Figure II-2 (a) Différentes tailles de la microstructure et (b) Evolution des propriétés apparentes en fonction de la taille

Pour l'étude numérique des matériaux hétérogènes, le VER est un paramètre important pour assurer un calcul précis de leurs propriétés. Si l'échantillon est trop petit, les calculs numériques ne généreront pas de bons résultats. S'il est trop grand, nous obtiendrons des bons résultats mais le coût et le temps de calcul seront plus élevés. La recherche de la taille juste du VER a motivé beaucoup de travail sur ce sujet. Pour la plupart des études sur la taille du VER, elles peuvent être résumées ainsi : Dans la Figure II-2, nous disposons différentes tailles de la microstructure d'un composite renforcé par des fibres courtes. En calculant les propriétés apparentes de chaque taille de microstructure, nous obtenons l'évolution des propriétés apparentes du composite en fonction de sa taille. Dans cet exemple, la taille 4 a donné des propriétés apparentes convergentes, autrement dit des propriétés effectives. La taille de la microstructure qui génère des propriétés effectives est le Volume Élémentaire Représentatif VER.

II.3. Objectif de l'étude

Dans ce chapitre, nous développons une étude préliminaire afin d'évaluer l'influence de la longueur des fibres sur les propriétés effectives des composites à fibres. Dans un premier temps, nous étudions un composite renforcé par des fibres courtes aléatoires. Ce type de composite est connu dans les domaines de composites conventionnels et de biocomposites. Les fibres végétales sont particulièrement représentées par des fibres courtes dans le cas des biocomposites renforcés par des fibres aléatoires. Des études antérieures sur l'observation de la distribution des fibres naturelles dans la matrice thermoplastique, comme celle faite par Ausias *et al.* (2013), ont toutes montré des fibres courtes aléatoires. Généralement, les fibres végétales qui sont connues pour leur longueur subissent une forte réduction de longueur et de diamètre lors de l'élaboration des biocomposites. Il est primordial de vérifier que les calculs des propriétés mécaniques et thermiques des composites à fibres courtes produisent des propriétés effectives. Pour ce faire, nous faisons varier le pourcentage des fibres dans le composite. La variation de ce paramètre fait intervenir la notion de la percolation des fibres dans le composite. La percolation est définie par une longue chaîne de fibres courtes qui traverse les parois de la microstructure. Les propriétés effectives du composite à fibres courtes sont analysées tout en tenant compte de la variation du pourcentage de fibres et de la percolation.

Le deuxième cas étudié est un composite renforcé par des fibres longues aléatoires. Pour distinguer le cas des fibres longues de celui des fibres courtes, les fibres longues dans cette étude sont considérées continues, c'est-à-dire une longueur infinie. La plupart des fibres continues utilisées dans les biocomposites sont alignées. Dans notre cas, les fibres longues sont orientées aléatoirement dans la matrice. Le composite est comparable aux matelas de fibres longues naturelles souvent utilisés pour l'isolation thermique et acoustique dans les études de Kim *et al.* (2006) et Korjenic *et al.* (2011). Ces biocomposites sont élaborés par thermocompression qui garde la longueur des fibres naturelles pendant le procédé. Or, la morphologie de nos fibres longues aléatoires est beaucoup plus similaire aux fibres de Poisson étudiées par Dirrenberger *et al.* (2014). Ils ont montré que la convergence des

propriétés apparentes n'est pas obtenue pour leur microstructure, mettant en question la taille du VER. A cet effet, nous calculons les propriétés effectives du composite CFLA pour vérifier leur convergence ainsi que la taille de son VER.

II.4. Méthode d'homogénéisation numérique par élément finis

La méthode d'homogénéisation numérique appliquée dans cette étude se base sur les calculs par éléments finis utilisée par plusieurs études antérieures au sein de notre laboratoire. Dans cette partie, nous détaillons toutes les étapes nécessaires pour effectuer l'homogénéisation numérique sur les composites à fibres courtes et longues. Nous commençons par la technique de génération des microstructures, le maillage des microstructures et finalement les conditions aux limites appliquées.

II.4.1 Génération des microstructures

Pour notre étude en 2D, nous avons opté pour la génération des images virtuelles selon le processus aléatoire de Poisson. Cette approche est rapide, flexible et adapté à la génération des microstructures aléatoires et isotropes. Avec cette technique, de divers matériaux virtuels peuvent être créés sans passer par l'étude de la morphologie des matériaux réels.

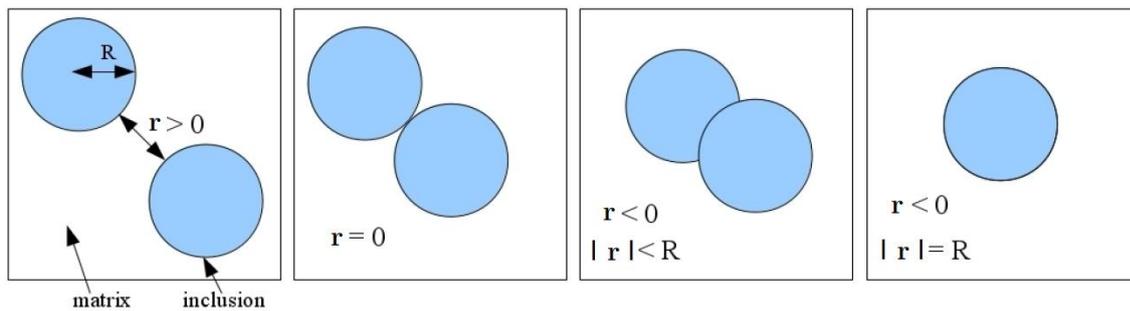


Figure II-3 Différentes positions de deux particules de rayon R et de distance de répulsion a selon El Moumen et al. (2013)

Le processus commence par l'implantation aléatoire des points dans un plan 2D selon le processus de Poisson. Ces points représentent les centres de chaque renfort. A partir de ces points, des droites sont générées pour représenter des fibres,

ou, ces points sont dilatés pour obtenir des particules sphériques. L'algorithme continue de générer les renforts jusqu'à obtenir la fraction surfacique des renforts A_f souhaitée. Il est possible d'imposer une distance de répulsion qui empêche le contact entre les renforts. La Figure II-3 montre des différentes positions de deux particules avec un rayon R et une distance de répulsion r . Pendant la génération des renforts, l'algorithme vérifie si cette distance r est respectée. Dans le cas contraire, il supprime le renfort et recommence l'implantation d'un nouveau renfort dans une autre position aléatoire.

Les images numériques générées sont binaires, c'est-à-dire qu'elles se composent du blanc et du noir. Les deux différentes couleurs créent un contraste clair qui distingue les deux phases différentes. La Figure II-4 montre les différents types de renforts générés par cette méthode. Il faut noter que dans cet exemple, la matrice est noire et les particules sont blanches.

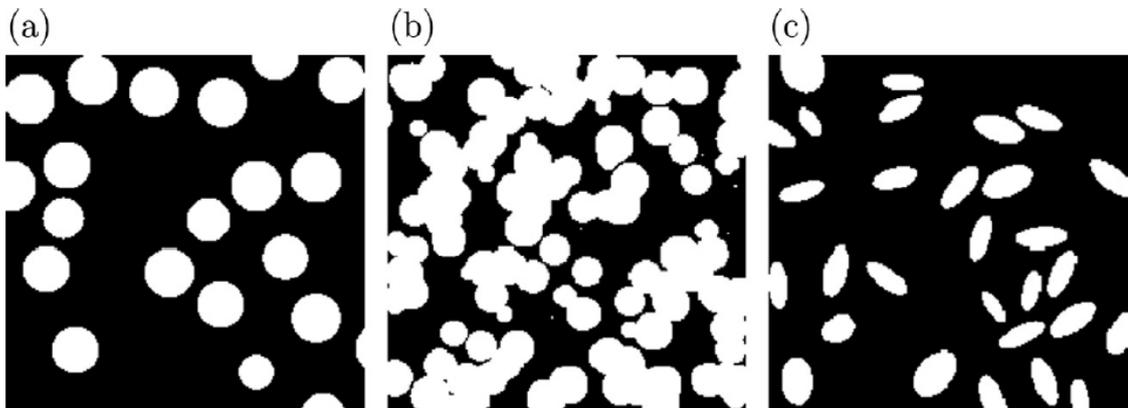


Figure II-4 Renforts de type (a) particule (b) particule connectée et (c) ellipsoïde

II.4.2 Maillage de la microstructure

Les images 2D générées sont maillées selon la technique du maillage multiphasique. Cette technique est effectuée en superposant un maillage composé des éléments carrés à huit nœuds sur l'image de la microstructure. La Figure II-5 montre un schéma simplifié de la technique du maillage multiphasique. Avec cette technique, seul un petit nombre d'éléments finis est nécessaire pour déterminer les propriétés effectives d'un matériau hétérogène. Kanit *et al.* (2003) ont montré que le calcul des propriétés macroscopiques effectué avec le maillage multiphasique donne le même résultat qu'avec le maillage libre composé des éléments triangulaires.

La différence est seulement observée dans les champs locaux où effectivement le maillage libre s'avère plus précis. Dans notre cas, on s'intéresse aux propriétés macroscopiques, donc cette différence ne nous concerne pas. Les éléments carrés assurent également une distribution uniforme de nœuds sur les bords de l'image. Les conditions aux limites périodiques qui sont appliquées aux différentes configurations dans l'étude exigent cette distribution uniforme.

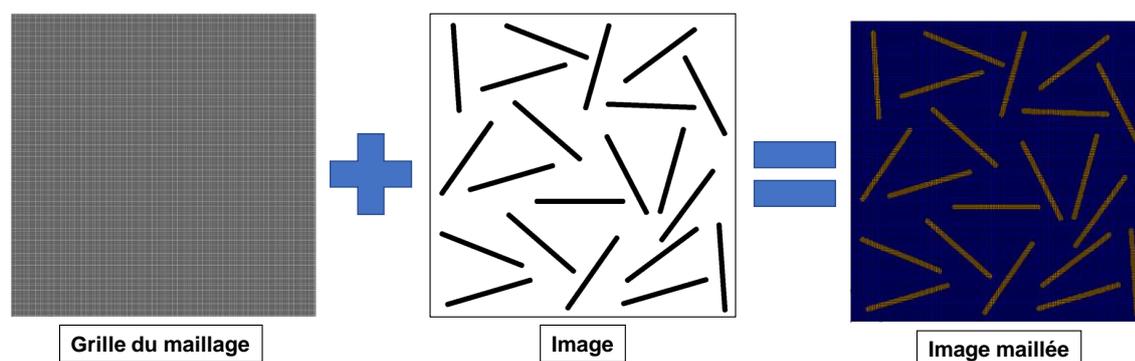


Figure II-5 Technique du maillage multiphasique

Le désavantage de cette technique est la possibilité d'avoir deux phases différentes dans le même élément fini. Le maillage est une grille des éléments carrés de taille fixe qui est superposée sur les fibres aléatoires, donc, la forme exacte des fibres ne peut pas être suivie par le maillage. Le maillage libre est plus précis car les éléments triangulaires sont capables de discrétiser les renforts de toutes formes. Par conséquent, le nombre d'éléments finis augmentera ainsi que le coût des calculs. Comme mentionné avant, une étude de propriétés macroscopiques ne nécessite pas de précision dans les champs locaux. Ceci dit, une étude de densité de maillage est toujours indispensable.

Pour assurer la précision des calculs, il est nécessaire de faire l'étude de la densité du maillage. Pour ce faire, des maillages avec différents nombres d'éléments finis e sont superposés sur l'image dans la Figure II-6. Cette image est un composite renforcé par des fibres courtes avec une fraction surfacique de fibres A_f de 0,81. Un grand contraste c de 2000 est attribué aux phases du composite. Le grand contraste c sert à assurer que le maillage choisi est assez dense pour les calculs sur les contrastes plus petits. Les maillages de 20^2 , 50^2 , 100^2 , 150^2 , 200^2 , 250^2 et 300^2 éléments sont appliqués sur une image qui mesure 1000^2 pixels. Ensuite, une

traction simple est effectuée sur l'image maillée et la contrainte macroscopique $\langle \sigma_{11} \rangle$ dans la direction de x est calculée pour les différents maillages. Les résultats de cette étude sont détaillés dans le Tableau II-1 et illustrés dans la Figure II-7.

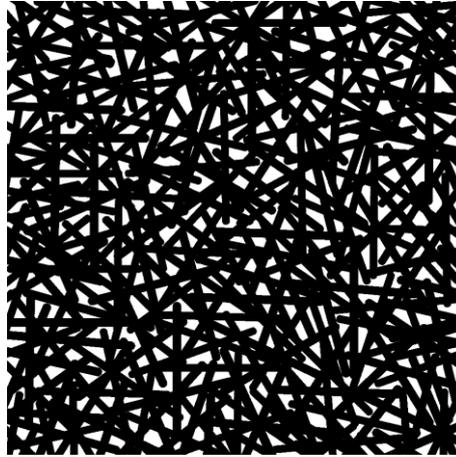


Figure II-6 Composite renforcé par des fibres courtes avec une fraction surfacique $A_f = 0,81$

| e | 20^2 | 50^2 | 100^2 | 150^2 | 200^2 | 250^2 | 300^2 |
|-------------------------------------|--------|--------|---------|---------|---------|---------|---------|
| $\langle \sigma_{11} \rangle$ (MPa) | 1687 | 1444 | 1209 | 1137 | 1102 | 1078 | 1056 |

Tableau II-1 Résultats de l'étude de la densité du maillage

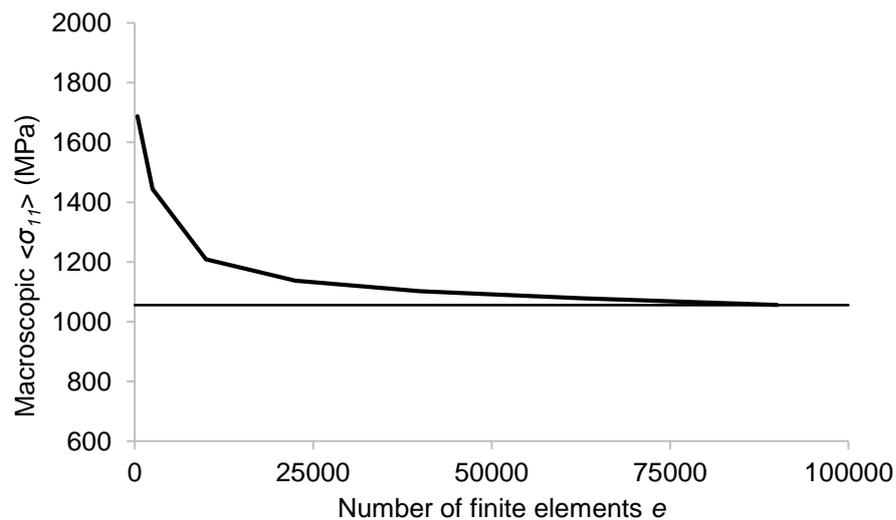


Figure II-7 Evolution de $\langle \sigma_{11} \rangle$ en fonction du nombre d'éléments finis

Plus le nombre d'éléments e augmente, plus la contrainte $\langle \sigma_{11} \rangle$ diminue jusqu'à atteindre un asymptote. Dans la Figure II-7, on observe que le calcul se stabilise déjà à 150^2 éléments. En fait, la différence entre ce résultat et celui de 200^2 éléments est seulement de 2%. Or, nous avons choisi le maillage avec 300^2 éléments pour avoir une précision maximum sur les calculs. Il est à noter que le temps de calcul pour ce maillage maximum diffère peu par rapport aux maillages moins denses. Le maillage de 300^2 éléments sur une image de 1000^2 pixels signifie qu'un élément fini couvre 3 pixels. Cette densité est gardée pour tous les calculs dans la suite de l'étude afin d'avoir la même précision des calculs. La Figure II-8 est un zoom sur le maillage et l'image d'origine pour montrer la précision du maillage choisi.

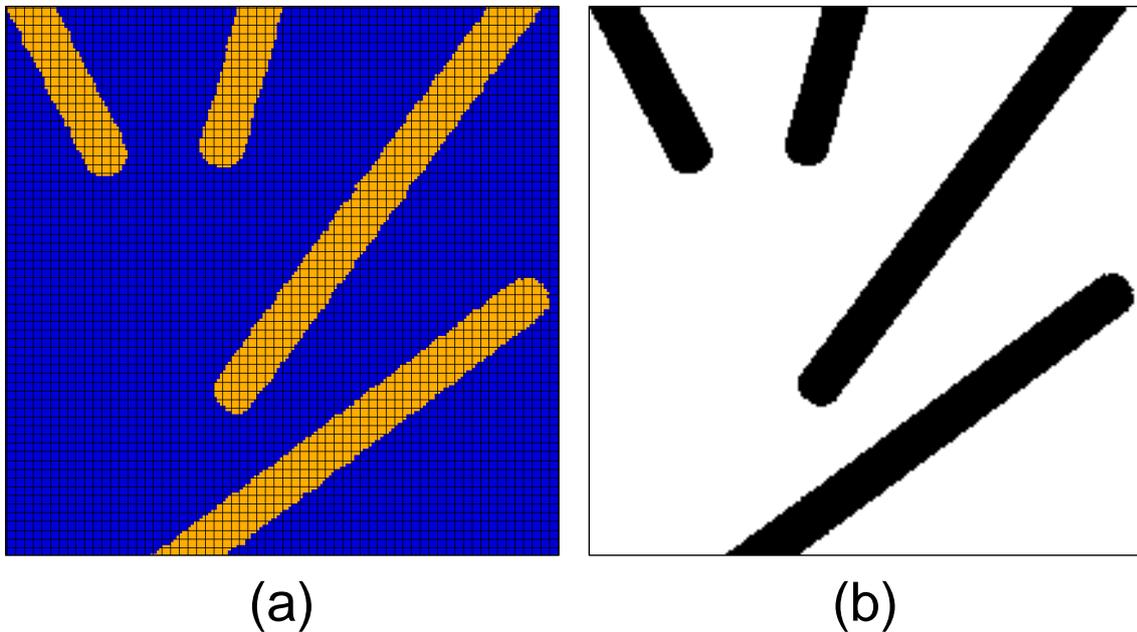


Figure II-8 Zoom sur (a) l'image maillée et (b) l'image d'origine

II.4.3 Technique d'homogénéisation numérique

En principe, la technique d'homogénéisation numérique appliquée dans cette étude a pour but de déterminer la taille du VER d'un milieu hétérogène. La vérification de la convergence des propriétés apparentes est effectuée depuis la plus petite taille de la microstructure jusqu'à la plus grande. Considérons que la microstructure S est divisée en plus petites tailles s , autrement appelées sous-images.

Ensuite, chaque échantillon s est maillée et homogénéisée. Ce processus est répété pour tous les échantillons s jusqu'à atteindre le nombre de réalisations n nécessaire qui produit des résultats stables. Après, une taille de s plus grande est homogénéisée et ainsi de suite. Si la taille de l'échantillon s est assez grande, ses propriétés apparentes moyennes seront les mêmes que celles de la microstructure S . Ceci signifie que cette taille de l'échantillon s est un Volume Elémentaire Représentatif VER. Pour une meilleure compréhension, cette méthode s'explique par un schéma simplifié dans la Figure II-9. Les différentes tailles des sous-images s sont montrées dans la Figure II-9 (a) et elles sont extraites aléatoirement de S comme la Figure II-9 (b).

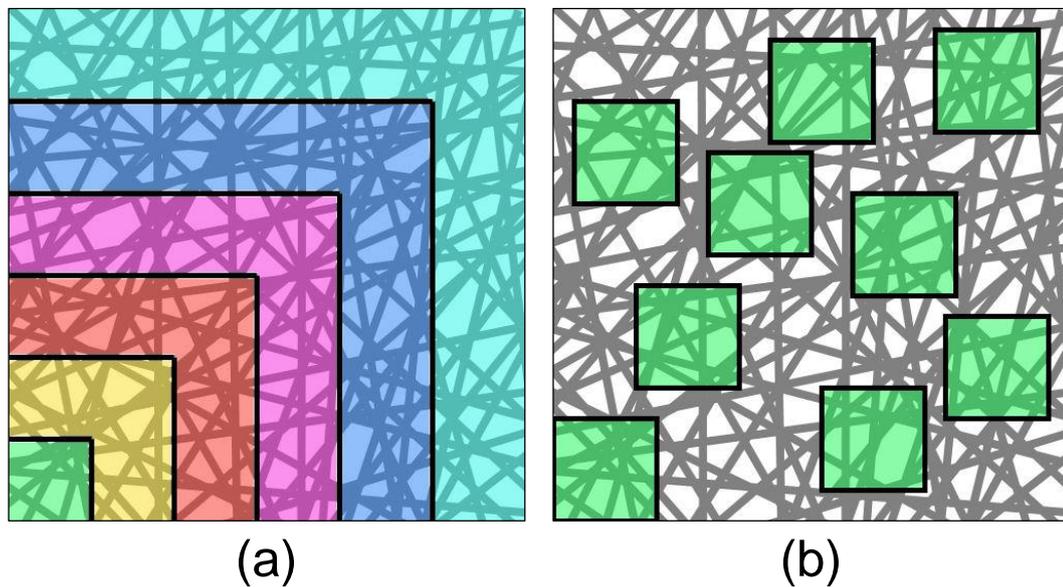


Figure II-9 (a) Différentes tailles de s et (b) les positions aléatoires de s dans S

Le nombre de réalisations n pour chaque taille de l'échantillon s est déterminé en calculant la fraction surfacique A_f de la microstructure concernée. Prenons la microstructure renforcée par des fibres courtes avec une valeur de $A_f = 0,81$ utilisée pour l'étude de la densité du maillage (Figure II-6). L'échantillon est divisé en tailles de 67^2 , 110^2 , 220^2 , 443^2 , 667^2 , 900^2 et 1000^2 pixels. Ensuite, chaque taille de s est homogénéisée pour calculer la fraction surfacique des fibres A_f . Il faut que la moyenne de A_f reste constante sur toutes les tailles de s . La différence entre les résultats moyennés et leurs variances ne doit pas dépasser un certain pourcentage pour assurer la précision des calculs. Ici, elle est moins de 0,5%. Par conséquent, un grand n est nécessaire pour les petites tailles de s et le nombre de

réalisations n diminue quand la taille de s augmente. Le Tableau II-2 détaille le nombre de réalisations n nécessaire pour chaque taille de s et la Figure II-10 montre les valeurs moyennes de A_f ainsi que l'intervalle de confiance. On observe que les valeurs moyennes de A_f restent constantes sur toutes les tailles de s et que n diminue quand s augmente.

| | | | | | | | |
|-------------|--------|---------|---------|---------|---------|---------|----------|
| s (pixel) | 67^2 | 110^2 | 220^2 | 443^2 | 667^2 | 900^2 | 1000^2 |
| n | 450 | 162 | 75 | 27 | 12 | 8 | 2 |

Tableau II-2 Différentes tailles de s et le nombre de réalisation n requis

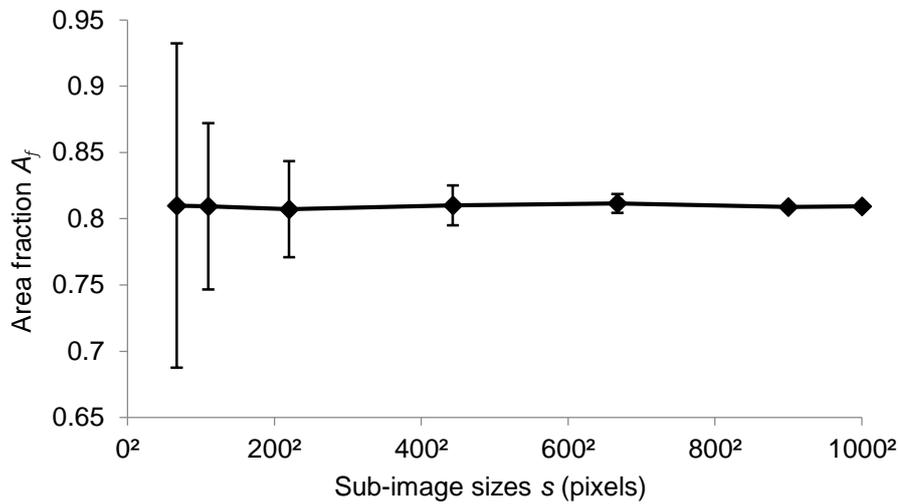


Figure II-10 Valeurs moyennes de A_f en fonction de la taille de s

II.4.4 Conditions aux limites

Lors de l'homogénéisation numérique, les conditions aux limites appliquées sur l'échantillon sont importantes afin de déterminer la taille du Volume Élémentaire Représentatif VER. Il existe des conditions aux limites de type cinématique (KUBC), statique (SUBC) et périodique (PBC). Kanit *et al.* (2003) et Nguyen *et al.* (2012) ont appliqué et étudié l'influence de ces trois conditions aux limites sur des microstructures aléatoires. Ils ont montré que lorsque le volume est petit, le KUBC donne des résultats proches de la borne de Voigt alors que le SUBC génère des résultats proches de la borne de Reuss. Quant au PBC, il fournit des résultats se situant entre les deux. Plus la taille des microstructures s'approche du

VER, plus les solutions calculées par ces trois conditions aux limites convergent vers les valeurs effectives. Nous détaillons par la suite ces trois conditions aux limites dans les cas de l'élasticité linéaire et de la conductivité thermique.

II.4.4.1 Elasticité linéaire

Pour chaque échantillon S , les deux conditions aux limites de KUBC et PBC sont appliquées. Ils sont imposés sur les frontières ∂S afin de déterminer ses propriétés globales. Pour mieux expliquer la théorie de l'homogénéisation, le SUBC est également détaillé ici. Par contre, il ne sera pas pris en compte dans l'étude principale.

- KUBC est décrit en imposant un vecteur de déplacement \underline{u} aux points \underline{x} appartenant à la frontière ∂S :

$$\underline{u} = \underline{E} \cdot \underline{x} \quad \forall \underline{x} \in \partial S \quad \text{Eq. (II.1)}$$

Soit \underline{E} un tenseur symétrique du 2^{ème} ordre indépendant de \underline{x} qui implique que :

$$\langle \underline{\underline{\varepsilon}} \rangle \triangleq \frac{1}{S} \int_S \underline{\underline{\varepsilon}} \, dS = \underline{E} \quad \text{Eq. (II.2)}$$

Le tenseur de contrainte macroscopique $\underline{\underline{\Sigma}}$ est défini par la moyenne spatiale :

$$\underline{\underline{\Sigma}} \triangleq \langle \underline{\underline{\sigma}} \rangle = \frac{1}{S} \int_S \underline{\underline{\sigma}} \, dS \quad \text{Eq. (II.3)}$$

- SUBC est défini en appliquant un vecteur de traction à la frontière ∂S :

$$\underline{\underline{\sigma}} \cdot \underline{n} = \underline{\underline{\Sigma}} \cdot \underline{n} \quad \forall \underline{x} \in \partial S \quad \text{Eq. (II.4)}$$

Soit $\underline{\underline{\Sigma}}$ un tenseur symétrique du 2^{ème} ordre indépendant de \underline{x} , et \underline{n} le vecteur normal à ∂S et \underline{x} . Cela implique que :

$$\langle \underline{\underline{\sigma}} \rangle \triangleq \frac{1}{S} \int_S \underline{\underline{\sigma}} \, dS = \underline{\underline{\Sigma}} \quad \text{Eq. (II.5)}$$

Le tenseur macroscopique de déformation $\underline{\underline{E}}$ est donc défini par la moyenne spatiale :

$$\underline{\underline{E}} \triangleq \langle \underline{\underline{\varepsilon}} \rangle = \frac{1}{S} \int_S \underline{\underline{\varepsilon}} \, dS \quad \text{Eq. (II.6)}$$

- PBC applique le même champ de déplacement que KUBC mais une fluctuation périodique \underline{v} est ajoutée à l'équation. Cette fluctuation prend les mêmes valeurs aux deux points homologues sur deux côtés opposés de S :

$$\underline{u} = \underline{\underline{E}} \cdot \underline{x} + \underline{v} \quad \forall \underline{x} \in \partial S \quad \text{Eq. (II.7)}$$

Si le comportement des composants est élastique linéaire, toutes les conditions aux limites (KUBC, PBC et SUBC) admettent une seule solution. Donc, un champ de tenseur de concentration du 4^{ème} ordre $\underline{\underline{A}}$ existe pour le KUBC et PBC de cette manière :

$$\underline{\underline{\varepsilon}}(\underline{x}) = \underline{\underline{A}}(\underline{x}) : \underline{\underline{E}} \quad \forall \underline{x} \in S \text{ et } \forall \underline{\underline{E}} \quad \text{Eq. (II.8)}$$

Ainsi qu'un champ de tenseur de concentration du 4^{ème} ordre $\underline{\underline{B}}$ pour le SUBC :

$$\underline{\underline{\sigma}}(\underline{x}) = \underline{\underline{B}}(\underline{x}) : \underline{\underline{\Sigma}} \quad \forall \underline{x} \in S \text{ et } \forall \underline{\underline{\Sigma}} \quad \text{Eq. (II.9)}$$

D'après les équations Eq. (II.1) et Eq. (II.4), les tenseurs de concentration sont reliés au tenseur d'identité du 4^{ème} ordre $\underline{\underline{I}}$:

$$\langle \underline{\underline{A}} \rangle = \langle \underline{\underline{B}} \rangle = \underline{\underline{I}} \quad \text{Eq. (II.10)}$$

Soit $\underline{\underline{c}}(\underline{x})$ et $\underline{\underline{s}}(\underline{x})$ les champs de tenseur du 4^{ème} ordre du module élastique et de souplesse dans S :

$$\underline{\underline{\sigma}} \underline{x} = \underline{\underline{c}} \underline{x} : \underline{\underline{\varepsilon}} \underline{x}, \quad \underline{\underline{\varepsilon}} \underline{x} = \underline{\underline{s}} \underline{x} : \underline{\underline{\sigma}} \underline{x} \quad \forall \underline{x} \in S \quad \text{Eq. (II.11)}$$

Pour le problème de KUBC, nous avons :

$$\underline{\underline{\Sigma}} = \langle \underline{\underline{\sigma}} \rangle = \langle \underline{\underline{c}} : \underline{\underline{A}} : \underline{\underline{E}} \rangle = \langle \underline{\underline{c}} : \underline{\underline{A}} \rangle : \underline{\underline{E}} = \underline{\underline{C}}_E^{app} : \underline{\underline{E}} \quad \text{Eq. (II.12)}$$

Alors que pour le SUBC, nous avons :

$$\underline{\underline{E}} = \langle \underline{\underline{\varepsilon}} \rangle = \langle \underline{\underline{s}} : \underline{\underline{B}} : \underline{\underline{\Sigma}} \rangle = \langle \underline{\underline{s}} : \underline{\underline{B}} \rangle : \underline{\underline{\Sigma}} = \underline{\underline{S}}_\Sigma^{app} : \underline{\underline{\Sigma}} \quad \text{Eq. (II.13)}$$

qui définissent le module de rigidité apparent \mathcal{Q}_E^{app} et de souplesse apparente \mathcal{S}_Σ^{app} pour toutes tailles de S . Les équations montrent que les propriétés apparentes ne se décrivent pas par une simple loi de mélanges, mais elles sont concernées par un processus de moyennage plus complexe. Pour une taille de S suffisamment grande, ses modules apparentes sont indépendantes des types de conditions aux limites et coïncident avec ses valeurs effectives (Sab 1992) :

$$\mathcal{Q}_E^{app} = \mathcal{S}_\Sigma^{app-1} = \mathcal{Q}^{eff} = \mathcal{S}^{eff-1} \quad \text{Eq. (II.14)}$$

Pour une taille de S intermédiaire, les propriétés effectives sont situées entre les propriétés apparentes (Huet 1990) :

$$\mathcal{Q}_E^{app} \geq \mathcal{Q}^{eff} \geq \mathcal{S}_\Sigma^{app-1} \quad \text{Eq. (II.15)}$$

Il faut comprendre cette inégalité sous formes quadratiques. L'estimation de PBC se situe entre \mathcal{Q}_E^{app} et $\mathcal{S}_\Sigma^{app-1}$. Puisque le SUBC sera négligé dans cette étude, le PBC se situe alors entre \mathcal{Q}_E^{app} et \mathcal{Q}^{eff} pour toutes tailles de S .

Pour déterminer les propriétés mécaniques apparentes, le tenseur de déformation macroscopique $\underline{\underline{E}}$ est défini dans le calcul de chaque module élastique. Les calculs dans cette étude sont strictement élastique linéaire avec une hypothèse de déformation plane. Les modules élastiques calculés sont le module de compression k et le module de cisaillement μ . Pour KUBC et PBC, les tenseurs de déformations macroscopiques $\underline{\underline{E}}$ constants sont appliqués de cette manière :

$$\underline{\underline{E}}_k = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix}, \quad \underline{\underline{E}}_\mu = \begin{bmatrix} 0 & 1/2 \\ 1/2 & 0 \end{bmatrix} \quad \text{Eq. (II.16)}$$

Avec les lettres souscrites k et μ signifiant les cas du module de compression et de cisaillement respectivement. Ensuite, les modules apparents k_{app} et μ_{app} sont calculés par ces relations :

$$k_{app} = \text{trace} \langle \underline{\underline{\sigma}} \rangle / 4 \quad \text{Eq. (II.17)}$$

$$\mu_{app} = \langle \sigma_{12} \rangle \quad \text{Eq. (II.18)}$$

II.4.4.2 Conductivité thermique

Dans le cas de la conductivité thermique, T , ∇T et \underline{q} représentent la température, le gradient de température et le flux de chaleur respectivement. Dans un milieu isotrope, la loi de Fourier décrit la relation de ces paramètres et la conductivité thermique λ par l'équation suivante :

$$\underline{q} = -\lambda \nabla T \quad \text{Eq. (II.19)}$$

Deux types de conditions aux limites sont utilisées, le Gradient de Température Uniforme (UGT) et le PBC thermique. Le Flux de Chaleur Uniforme (UHF) est seulement inclus pour expliquer la théorie d'homogénéisation dans le cas thermique et ne sera pas utilisé dans nos calculs numériques.

- UGT est l'équivalent du KUBC en thermique qui est également appliqué sur la frontière ∂S :

$$T = \underline{G} \cdot \underline{x} \quad \forall \underline{x} \in \partial S \quad \text{Eq. (II.20)}$$

Soit \underline{G} le vecteur constant indépendant de \underline{x} qui implique que :

$$\langle \nabla T \rangle = \frac{1}{S} \int_s \nabla T \, dS = \underline{G} \quad \text{Eq. (II.21)}$$

Le vecteur du flux de chaleur macroscopique est défini par la moyenne spatiale :

$$\underline{Q} \triangleq \langle \underline{q} \rangle = \frac{1}{S} \int_s \underline{q} \, dS \quad \text{Eq. (II.22)}$$

- UHF est défini sur ∂S :

$$\underline{q} \cdot \underline{n} = \underline{Q} \cdot \underline{x} \quad \forall \underline{x} \in \partial S \quad \text{Eq. (II.23)}$$

Soit \underline{Q} le vecteur constant indépendant de \underline{x} qui implique que :

$$\langle \underline{q} \rangle = \frac{1}{S} \int_s \underline{q} \, dS = \underline{Q} \quad \text{Eq. (II.24)}$$

Le gradient de température macroscopique est défini par la moyenne spatiale :

$$\underline{G} \triangleq \langle \nabla T \rangle = \frac{1}{S} \int_S \nabla T \, dS \quad \text{Eq. (II.25)}$$

- PBC thermique inclut la fluctuation périodique de température qui est représentée par t dans l'équation suivante :

$$T = \underline{G} \cdot \underline{x} + t \quad \forall \underline{x} \in \partial S \quad \text{Eq. (II.26)}$$

Comme le cas élastique, il existe un tenseur de concentration du 2^{ème} ordre \underline{A} et \underline{B} pour les problèmes de UGT et UHF :

$$\nabla T \cdot \underline{x} = \underline{A} \cdot \underline{x} \cdot \underline{G} \text{ et } \underline{q} \cdot \underline{x} = \underline{B} \cdot \underline{x} \cdot \underline{Q} \quad \text{Eq. (II.27)}$$

Donc, les tenseurs de la conductivité thermique apparents sont définis par :

$$\underline{\lambda}_G^{app} = \langle \lambda \underline{A} \rangle \text{ et } \underline{\lambda}_Q^{app-1} = \left\langle \frac{1}{\lambda} \underline{B} \right\rangle \quad \text{Eq. (II.28)}$$

Avec une taille de S suffisamment grande, les conductivités thermiques apparentes coïncident avec les valeurs effectives.

Ici, le gradient de température macroscopique ∇T constant qui peut être représenté par le vecteur \underline{G} est défini de cette manière pour calculer la conductivité thermique λ :

$$\underline{G} = \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \end{pmatrix} \quad \text{Eq. (II.29)}$$

Ensuite, la conductivité thermique apparente λ_{app} est obtenue par l'équation suivante :

$$\lambda_{app} = \text{trace} \langle \underline{q} \rangle / 2 \quad \text{Eq. (II.30)}$$

Des études précédentes faites par Kanit *et al.* (2003, 2006) ont montré que la convergence des propriétés apparentes est obtenue plus rapidement avec le PBC qu'avec le KUBC et l'UGT. Néanmoins, les conditions aux limites de type Dirichlet sont nécessaires dans cette étude pour observer si les propriétés apparentes calculées coïncident avec celles du PBC.

II.5. Résultats et discussions

Dans cette partie, nous présentons les résultats de l'homogénéisation numérique sur les composites renforcés par des fibres courtes et longues. Un grand contraste c de 2000 est imposé dans le cas mécanique et thermique pour les deux types de composites. Le but est d'observer au maximum l'effet des fibres sur les propriétés mécaniques et thermiques des deux composites. Nous décrivons premièrement les démarches qui permettent d'interpréter les résultats des calculs.

Après la réalisation des calculs numériques, la moyenne des propriétés apparentes de chaque taille de l'échantillon s est calculée. Ensuite, l'évolution de ces propriétés apparentes moyennes $\overline{Z_{app}}$ en fonction de la taille de s est observée. Elles sont calculées par les équations suivantes :

$$\overline{k_{app}} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (k_{app})_i = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \left(\frac{1}{4} \text{trace} \langle \underline{\underline{\sigma}} \rangle \right)_i \quad \text{Eq. (II.31)}$$

$$\overline{\mu_{app}} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (\mu_{app})_i = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \langle \sigma_{12} \rangle_i \quad \text{Eq. (II.32)}$$

$$\overline{\lambda_{app}} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (\lambda_{app})_i = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \left(\frac{1}{2} \text{trace} \langle \underline{\underline{q}} \rangle \right)_i \quad \text{Eq. (II.33)}$$

Pour chaque taille de l'échantillon s , on examine également la dispersion des résultats en observant l'écart type D_Z . Sur les courbes, nous incluons l'intervalle de confiance qui est calculé ainsi : $\overline{Z_{app}} \pm 2D_Z$. L'élément le plus important dans l'interprétation des résultats est l'erreur relative $\Delta \overline{Z_{app}}$ entre les résultats des conditions aux limites KUBC ($\overline{Z_{app}^{KUBC}}$) et de PBC ($\overline{Z_{app}^{PBC}}$). Cette erreur permet de vérifier si la convergence des propriétés apparentes moyennes $\overline{Z_{app}}$ est obtenue. Dans cette étude, les propriétés apparentes moyennes $\overline{Z_{app}}$ sont considérées convergentes si l'erreur $\Delta \overline{Z_{app}}$ est inférieure à 10%. L'erreur relative $\Delta \overline{Z_{app}}$ est calculée par l'équation suivante :

$$\Delta \overline{Z_{app}} = \frac{\overline{Z_{app}^{KUBC}} - \overline{Z_{app}^{PBC}}}{\overline{Z_{app}^{PBC}}} \quad \text{Eq. (II.34)}$$

Pour assurer la validité des calculs numériques, des bornes analytiques pour les cas élastique et thermique sont nécessaires. Dans ce travail, les bornes HS de Hashin et Shtrikman (1963) sont considérées. Nos résultats sont valides s'ils restent entre les bornes de HS . Les équations ci-dessous permettent de calculer la borne supérieure HS^+ et la borne inférieure HS^- de chaque propriété mécanique et thermique :

$$k^{HS^+} = k_f + \frac{A_m}{\frac{1}{k_m - k_f} + \frac{3A_f}{3k_f + 4\mu_f}} \quad \text{Eq. (II.35)}$$

$$k^{HS^-} = k_m + \frac{A_f}{\frac{1}{k_f - k_m} + \frac{3A_m}{3k_m + 4\mu_m}} \quad \text{Eq. (II.36)}$$

$$\mu^{HS^+} = \mu_f + \frac{A_m}{\frac{1}{\mu_m - \mu_f} + \frac{6(k_f + 2\mu_f)A_f}{5\mu_f(3k_f + 4\mu_f)}} \quad \text{Eq. (II.37)}$$

$$\mu^{HS^-} = \mu_m + \frac{A_f}{\frac{1}{\mu_f - \mu_m} + \frac{6(k_m + 2\mu_m)A_m}{5\mu_m(3k_m + 4\mu_m)}} \quad \text{Eq. (II.38)}$$

$$\lambda^{HS^+} = \lambda_f + \frac{A_m}{\frac{1}{\lambda_m - \lambda_f} + \frac{A_f}{2\lambda_f}} \quad \text{Eq. (II.39)}$$

$$\lambda^{HS^-} = \lambda_m + \frac{A_f}{\frac{1}{\lambda_f - \lambda_m} + \frac{A_m}{2\lambda_m}} \quad \text{Eq. (II.40)}$$

Pour une meilleure observation des résultats, les propriétés apparentes moyennes $\overline{Z_{app}}$ et les bornes de HS sont tracées en fonction de la longueur de côté L de chaque S , sachant que $S = L^2$.

II.5.1 Composites renforcés par des Fibres Courtes Aléatoires

Pour générer les différentes microstructures du composite renforcé par des fibres courtes aléatoires CFCA, l'effet de la fraction surfacique des fibres sur sa morphologie doit être considéré. L'effet le plus évident est la percolation qui est définie par l'interconnexion de la phase discontinue dans un milieu aléatoire. La percolation dépend de la morphologie des fibres. Dans cette étude 2D, la longueur et le diamètre des fibres influencent le taux de percolation. Les fibres du CFCA ont une longueur l de 210 pixels et un diamètre d de 15 pixels, qui correspond à un rapport de forme de 14. Elles sont imprégnées dans une image carrée avec une longueur L de 1000 pixels. Puisque la percolation apparait en augmentant la fraction surfacique A_f , il est important d'identifier la valeur de A_f exacte à partir de laquelle la percolation commence à se former. Cette valeur exacte est appelée le seuil de percolation.

Pour calculer le seuil de percolation p , la méthode du volume exclu initiée par Balberg *et al.* (1984) est utilisée. Baxter et Robinson (2011) ainsi que Berhan et Sastry (2007) ont appliqué la méthode en 3D alors que Leclerc et Karamian-Surville (2013) et Li et Östling (2013) l'ont appliquée en 2D. Pour des fibres 2D aléatoire, l'aire exclu A_{ex} et le seuil p sont calculés par ces équations :

$$A_{ex} = 2dl + \frac{d^2 + l^2}{2\pi} \quad \text{Eq. (II.41)}$$

$$p = \frac{A}{A_{ex}} \quad \text{Eq. (II.42)}$$

Soit d , l et A le diamètre, la longueur et l'aire d'une fibre respectivement. Le seuil p du composite CFCA est calculé à une fraction surfacique A_f de 0,23. Des microstructures de CFCA avec des valeurs de A_f inférieure et supérieure au seuil p sont générées pour observer l'effet de la percolation sur la convergence des propriétés apparentes du composite CFCA. Dix microstructures sont générées avec des valeurs de A_f de 0,11, 0,17, 0,23, 0,32, 0,42, 0,51, 0,61, 0,71 et 0,81. Ces dix échantillons sont suffisants pour observer tous les effets possibles de la percolation

sur les propriétés effectives du CFCA. Les dix échantillons générés sont montrés par la Figure II-11. Pour faciliter l'appellation des CFCA avec différentes fractions surfaciques, les chiffres souscrits après le CFCA signifient la fraction surfacique concernée. Par exemple, CFCA_{0,11} est le cas du CFCA avec $A_f = 0,11$.

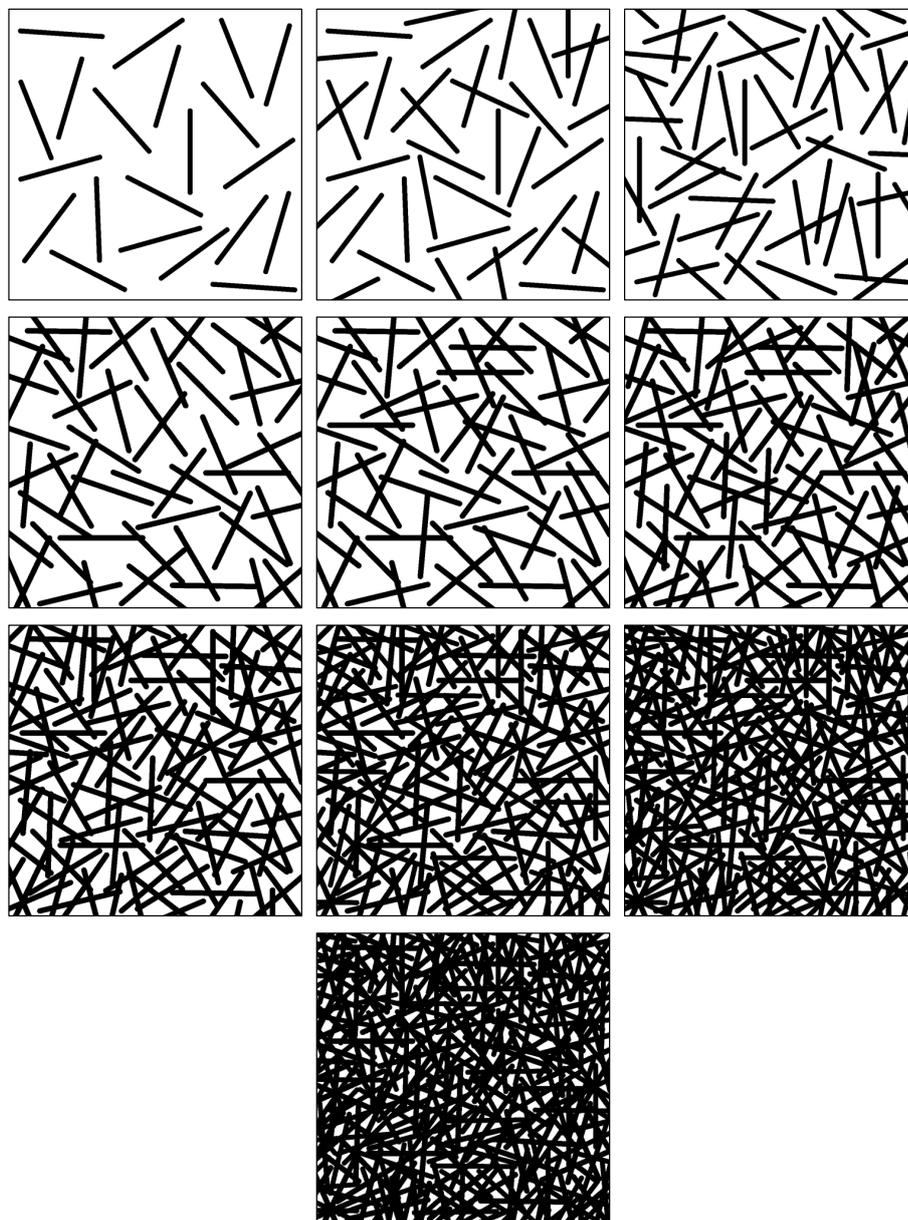


Figure II-11 Microstructures du CFCA en ordre croissant de $A_f = 0,11, 0,17, 0,23, 0,32, 0,42, 0,51, 0,61, 0,71$ et $0,81$

Ces différentes images du CFCA sont maillées et homogénéisées selon les techniques décrites au début de cette étude.

II.5.1.1 Propriétés mécaniques

Les résultats de l'homogénéisation numérique sur les composites CFCA sont illustrés dans la Figure II-12 (a – t). Dans un premier temps, nous présentons uniquement le cas du module de compression k , sachant que le module de cisaillement μ présent des résultats similaires. La comparaison entre ces deux modules élastiques est effectuée à la fin de la section. Pour distinguer les différents cas, chaque figure inclut les données comme la fraction surfacique A_f et l'erreur relative $\overline{\Delta k_{app}}$. Pour la plus petite fraction surfacique A_f dans la Figure II-12 (a), les deux modules de compression apparents moyens $\overline{k_{app}}$ convergent avec seulement 3% d'erreur. Ils sont aussi très proches de la borne inférieure HS , une observation normale pour les composites renforcés par des petits pourcentages de fibres courtes. La convergence signifie que les propriétés effectives sont obtenues pour le composite CFCA_{0,11}. Ensuite, on observe une erreur de 50% dans le cas du CFCA_{0,17}. Bien que l'erreur soit grande, le module apparent de KUBC $\overline{k_{app}^{KUBC}}$ tend à diminuer et s'approche de celui du PBC $\overline{k_{app}^{PBC}}$. Cela veut dire qu'ils vont se converger à une taille de S légèrement plus grande.

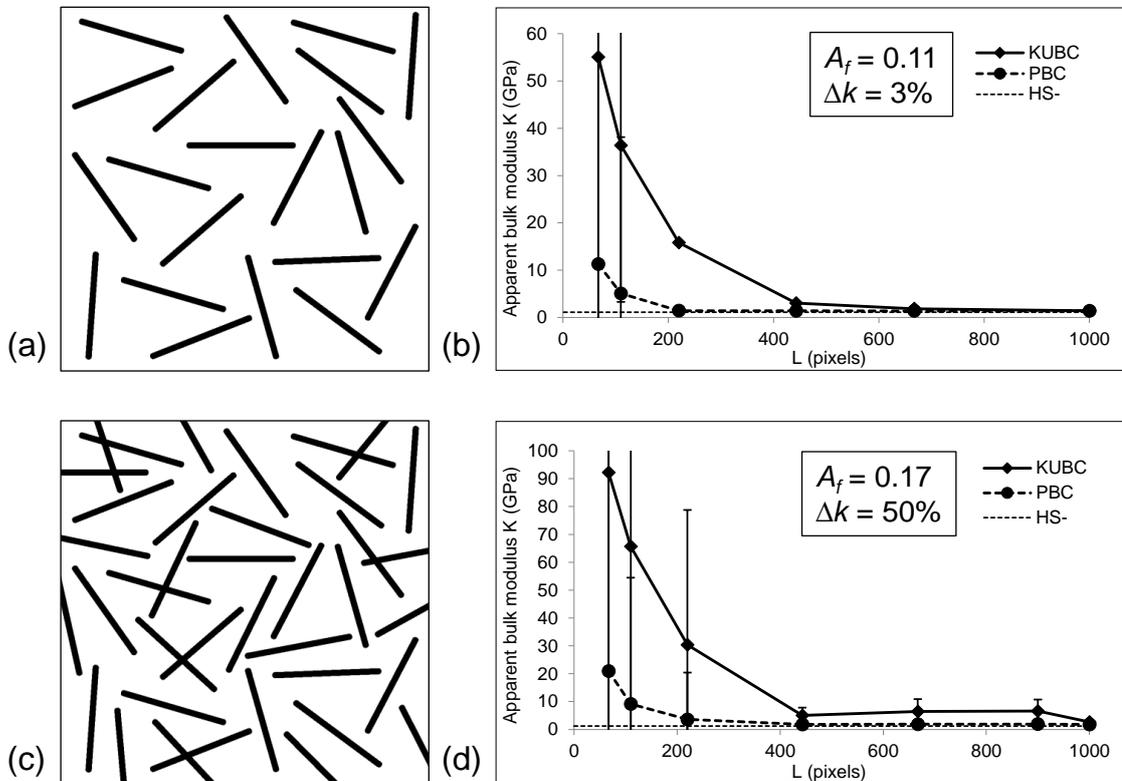
Dans le cas du CFCA_{0,23} où on atteint le seuil de percolation p , la différence entre les propriétés apparentes devient plus évidente. Au plus grand S , la valeur de $\overline{k_{app}^{KUBC}}$ est trois fois plus grand que $\overline{k_{app}^{PBC}}$ avec une grande erreur de 170%. Cette erreur dépasse bien la limite de 10% imposée dans cette étude. Or, le module $\overline{k_{app}^{KUBC}}$ a toujours tendance de diminuer vers le $\overline{k_{app}^{PBC}}$ comme le cas du CFCA_{0,17}. Ils devraient se converger à un S plus grand. Le seuil p n'empêche pas la convergence à ce stade de l'étude.

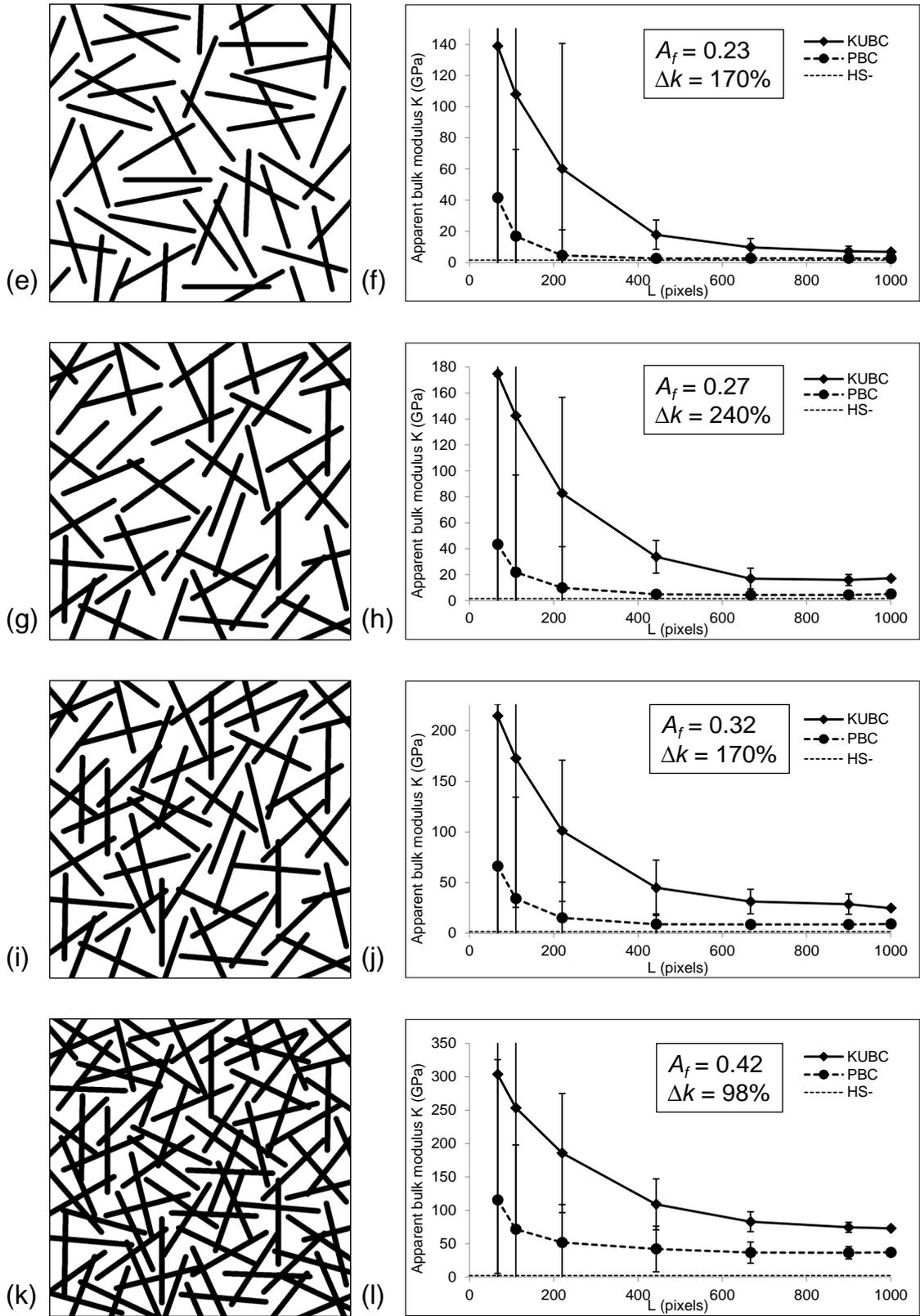
L'erreur maximum de 240% est observée dans le cas du CFCA_{0,27}. Contrairement aux cas précédents, le $\overline{k_{app}^{KUBC}}$ ne semble pas s'approcher du $\overline{k_{app}^{PBC}}$. Ils restent quasi parallèles même au plus grand S qui signifie qu'ils ne vont pas se converger. Les propriétés apparentes ne peuvent pas être considérées effectives si elles ne se convergent pas. Sans la convergence, le prérequis d'un VER indiquant que les propriétés calculées doivent être indépendantes des conditions aux limites

n'est pas respecté. Sans le VER, les calculs numériques ne produiront pas de résultats effectifs.

Nous pouvons supposer que les propriétés divergentes sont à cause de la percolation des fibres. Or, la convergence est toujours observée dans le cas du CFCA_{0,23} où le seuil p est atteint. Cela pourrait s'expliquer par le fait que l'effet de la percolation n'est pas assez prononcé dans le cas du CFCA_{0,23}. Il est possible que parmi les échantillons de CFCA_{0,23} qui ont été générés pour les calculs numériques, les fibres ne sont pas toujours percolées. La méthode d'homogénéisation numérique appliquée ici dépend fortement des images de l'échantillon. Les résultats des calculs seraient différents si la percolation des fibres n'est pas présente sur les images. Dans le cas du CFCA_{0,27} où le nombre de fibres est assez élevé pour former la percolation, les propriétés apparentes calculées sont divergentes.

Les cas de CFCA qui suivent à partir du CFCA_{0,32} continuent à produire des propriétés de $\overline{k_{app}^{KUBC}}$ et $\overline{k_{app}^{PBC}}$ quasi-parallèles. Or, l'erreur diminue lorsque A_f augmente. Finalement, la convergence des propriétés apparentes est obtenue dans le cas du CFCA_{0,71} où une erreur de 8% est notée.





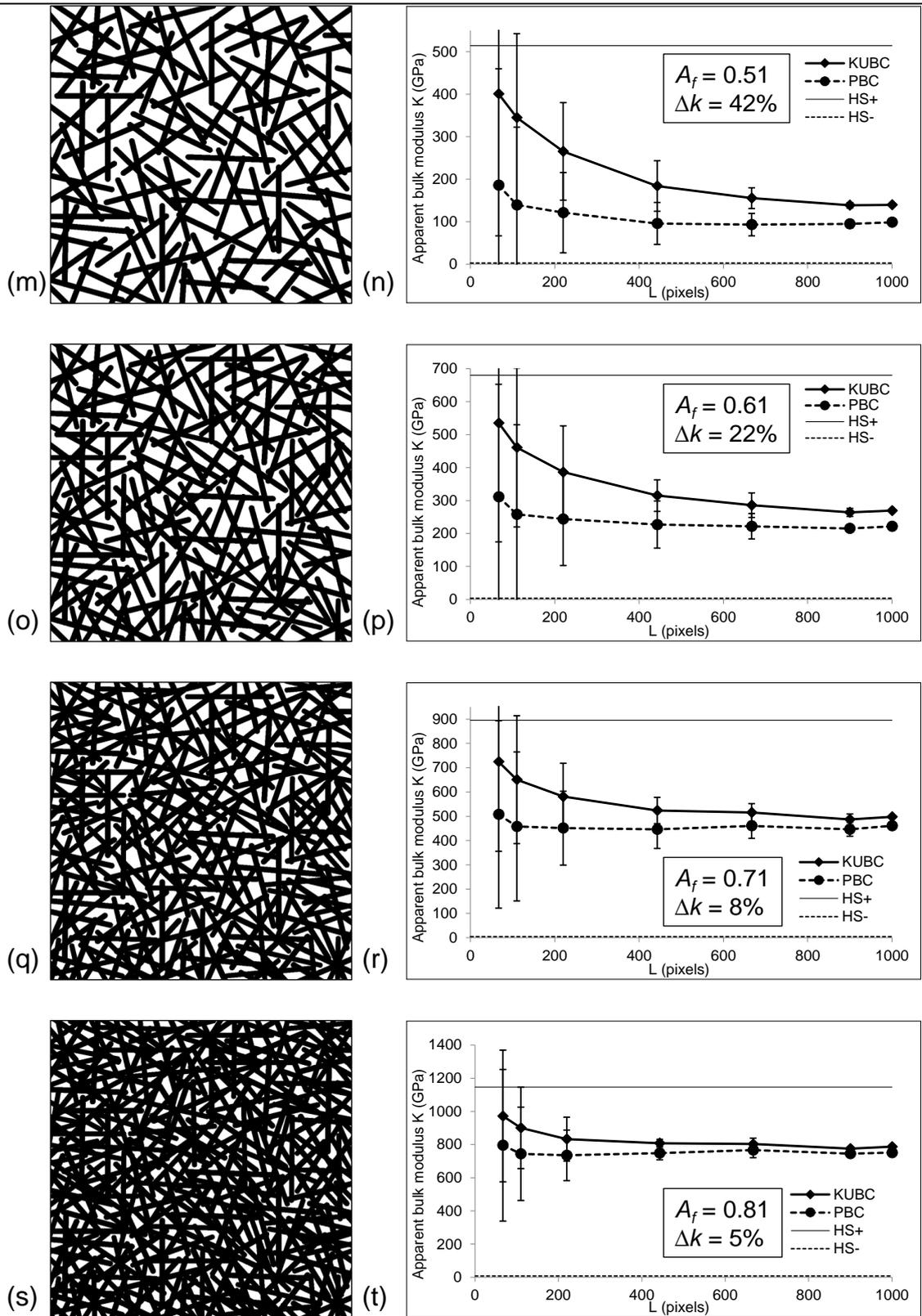
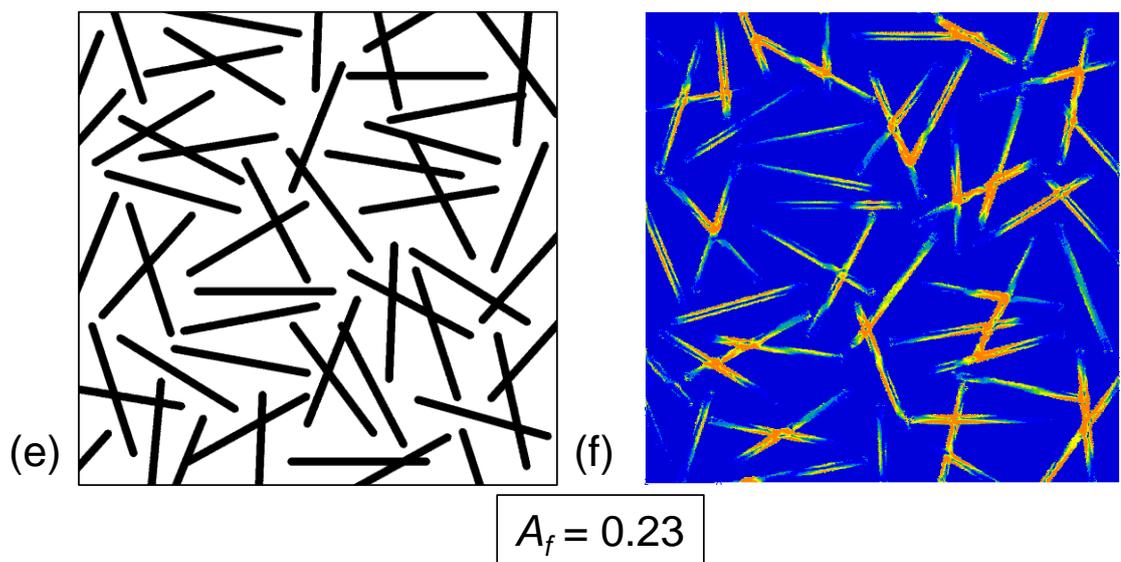
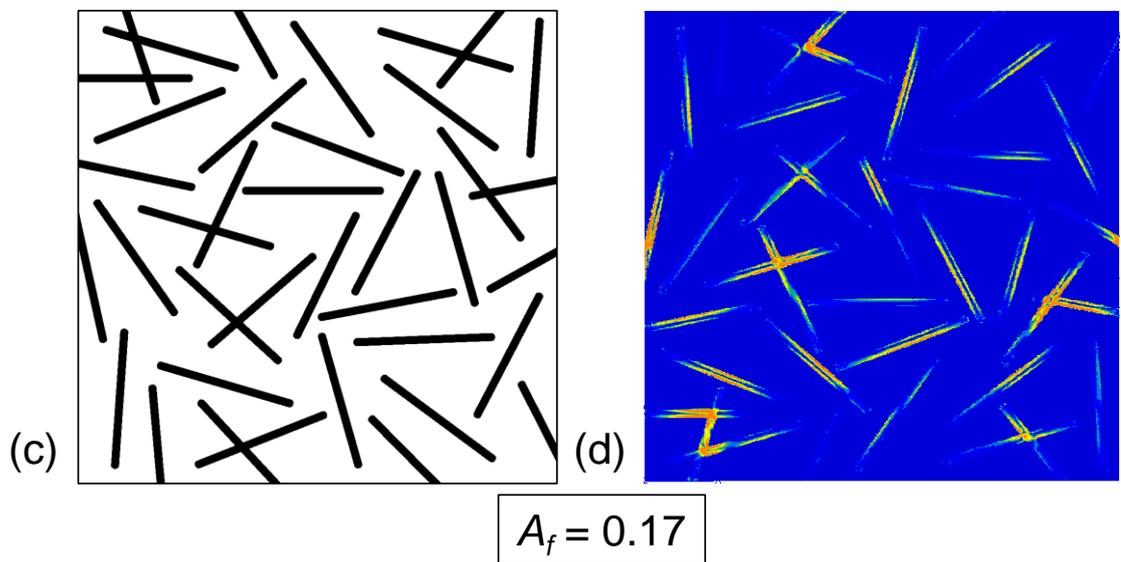
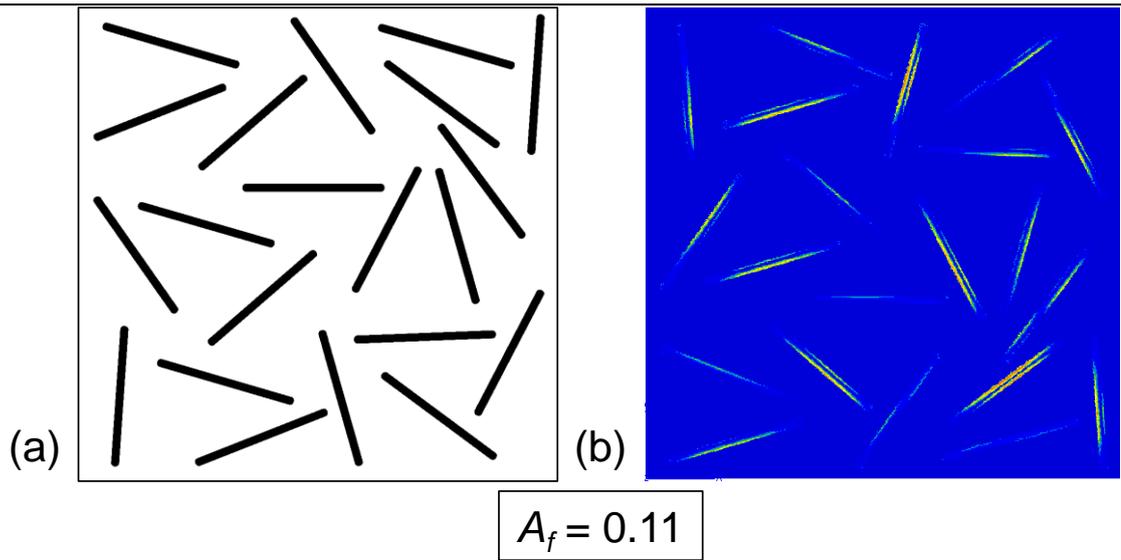
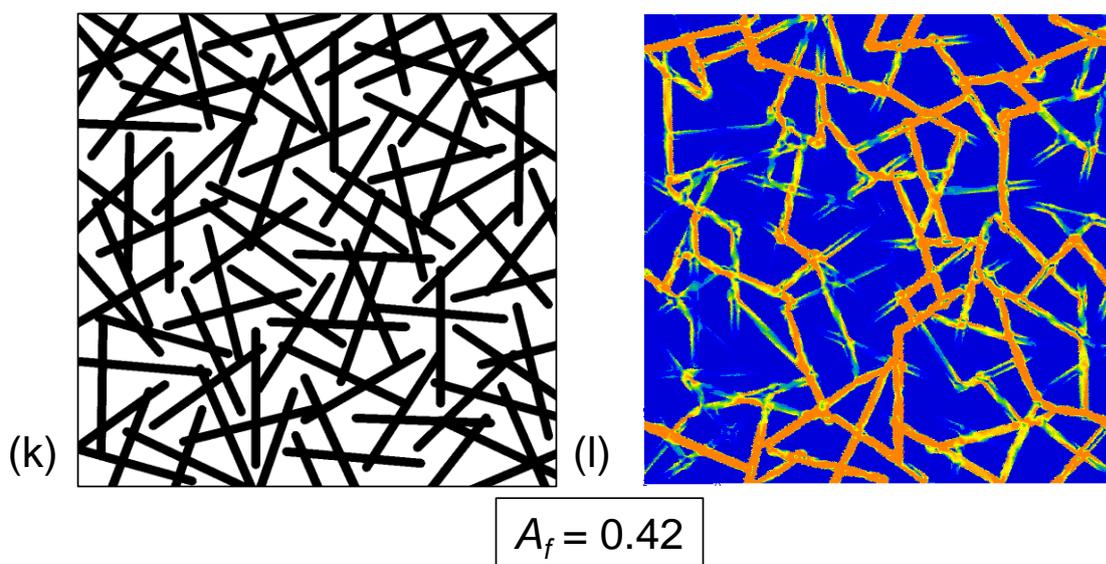
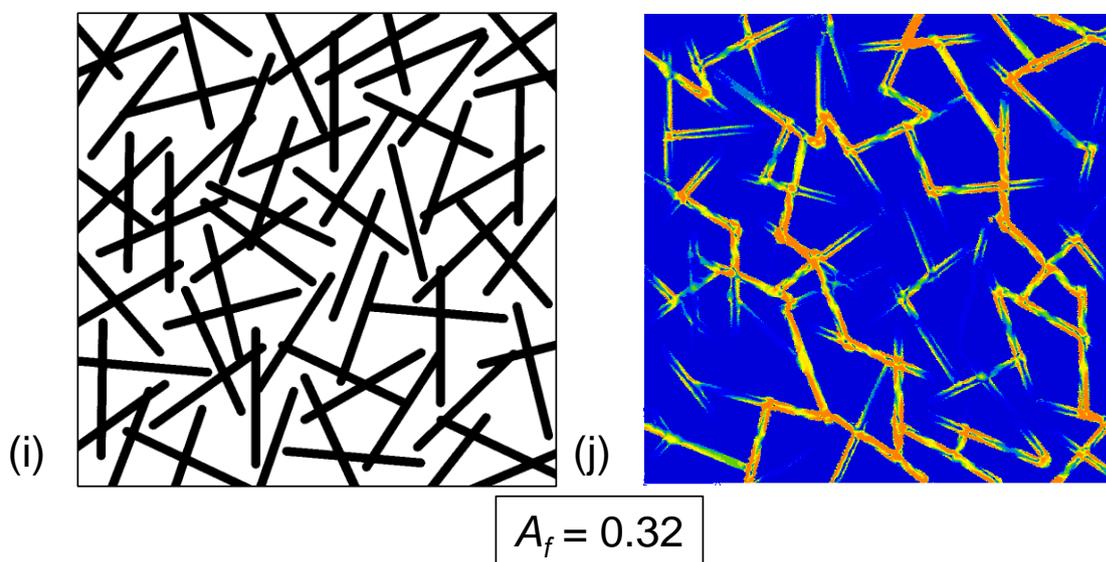
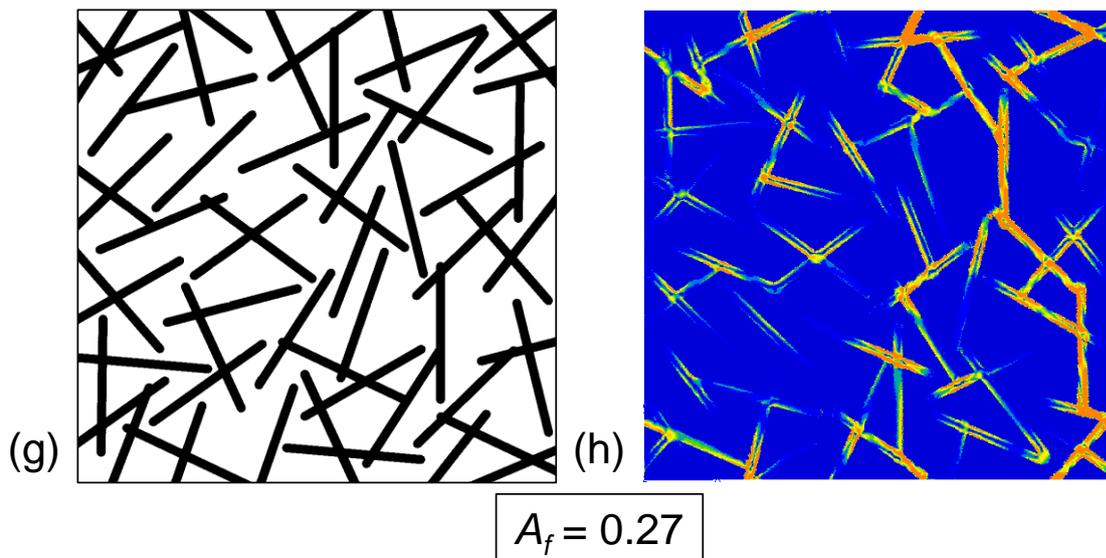
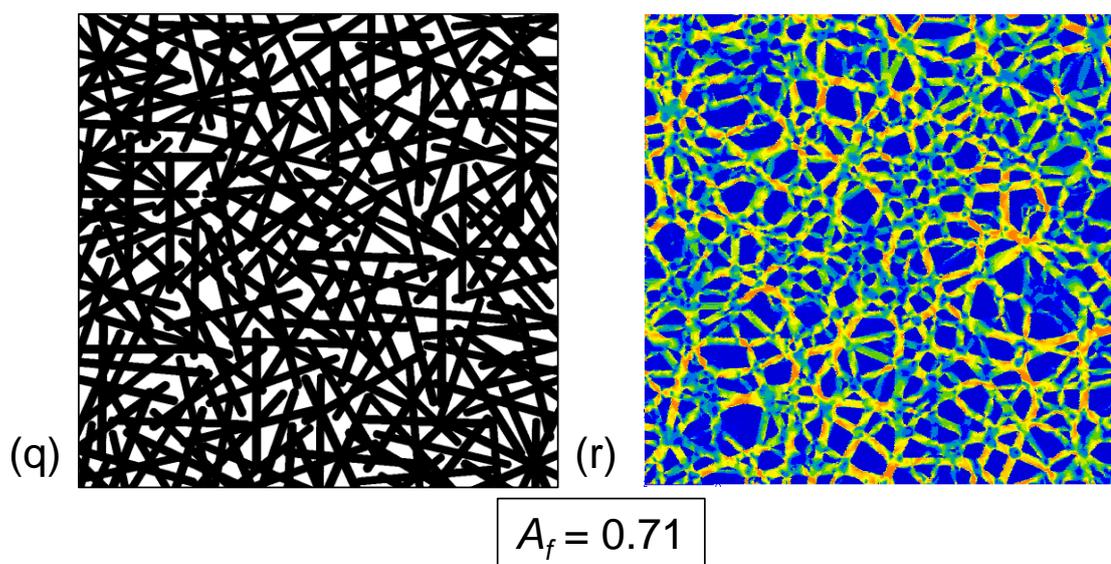
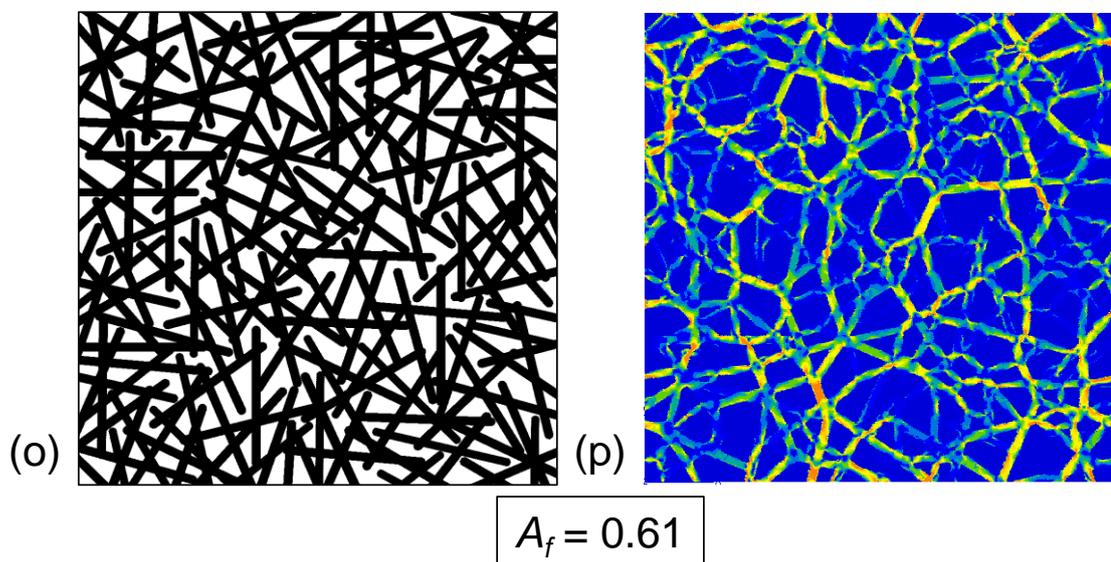
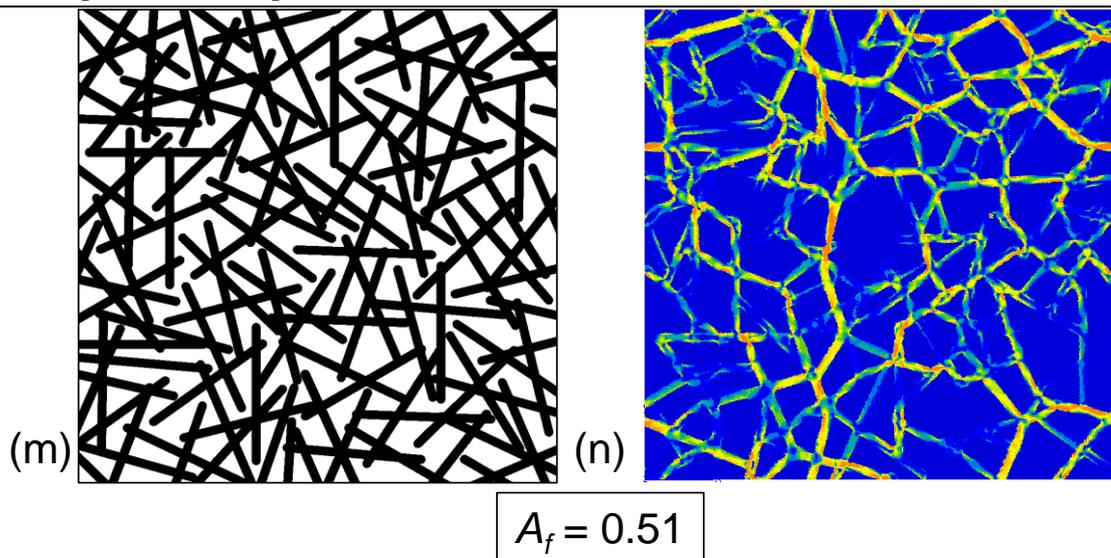


Figure II-12 (a – t) Microstructures du CFCA et le module de compression k moyen apparent en fonction de la longueur de côté L

La Figure II-13 met en disposition la distribution des contraintes de von Mises dans la microstructure du CFCA après les sollicitations mécaniques pour les calculs du module de compression k . Puisque les fibres percolées supportent la majorité des chargements qui sont appliqués sur les frontières de la microstructure, elles présenteront des contraintes plus élevées que les fibres isolées. De cette manière, les longues chaînes de fibres percolées peuvent être observées plus facilement. A bas pourcentages de fibres dans les Figure II-13 (b) et (d), les fibres courtes sont toutes isolées. Au seuil de percolation avec le CFCA_{0,23}, les fibres sont enchainées mais pas assez pour que la percolation apparaisse. Pour le CFCA_{0,27}, on observe une chaîne de percolation des fibres qui traverse d'une paroi à l'autre. Cette observation confirme que la percolation commence seulement à apparaitre dans le cas du CFCA_{0,27}. Elle explique aussi l'erreur relative $\overline{\Delta k_{app}}$ maximum de 240% atteinte à cette fraction surfacique A_f . Ce faible taux de fibres percolées introduirait une préférence directionnelle dans le composite. À partir du CFCA_{0,32}, le nombre de fibres percolées augmente avec la valeur de A_f jusqu'à ce que l'effet de préférence directionnelle disparaisse. La diminution de la préférence directionnelle se traduit par la diminution de l'erreur $\overline{\Delta k_{app}}$ jusqu'à atteindre les propriétés effectives.







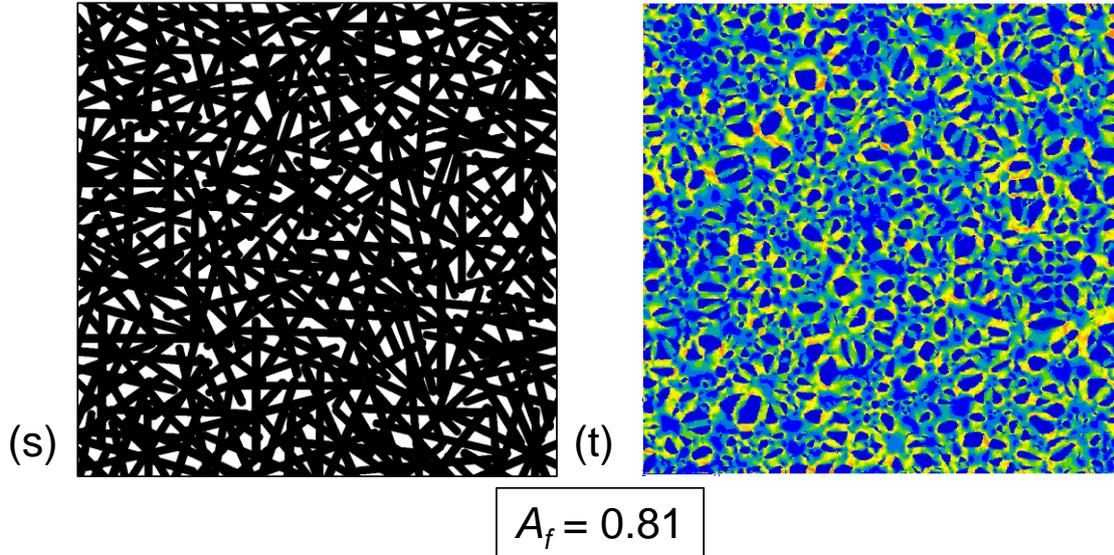


Figure II-13 (a – t) Microstructures du CFCA et la distribution de la contrainte équivalente de von Mises

Pour mieux observer les erreurs relatives des différentes microstructures, l'évolution de l'erreur en fonction de A_f est listée dans le Tableau II-3 et illustrée dans la Figure II-14. Nous incluons ici les résultats du module de cisaillement μ . Sur la Figure II-14, une droite sur $A_f = 0,27$ est tracée pour indiquer à la fois la formation de la percolation et l'erreur maximum. On observe que les fractions A_f autour de la percolation produit les plus grandes erreurs. Une fois que l'erreur atteint le maximum, elle diminue de façon exponentielle. Comme expliqué avant, une forte préférence directionnelle est présente autour du seuil p et crée une réponse mécanique anisotrope dans le CFCA. Le fait que le contraste est très grand amplifie cet effet d'anisotropie. Ce serait la raison pour la divergence des propriétés apparentes moyennes calculées.

| A_f | 0,11 | 0,17 | 0,23 | 0,27 | 0,32 | 0,42 | 0,51 | 0,61 | 0,71 | 0,81 |
|-----------------------------------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| $\overline{\Delta k_{app}}$ (%) | 3 | 50 | 170 | 240 | 170 | 98 | 42 | 22 | 8 | 5 |
| $\overline{\Delta \mu_{app}}$ (%) | 4 | 33 | 211 | 330 | 224 | 145 | 54 | 23 | 8 | 4 |

Tableau II-3 Erreurs relatives du module de compression et de cisaillement en fonction de la fraction surfacique A_f

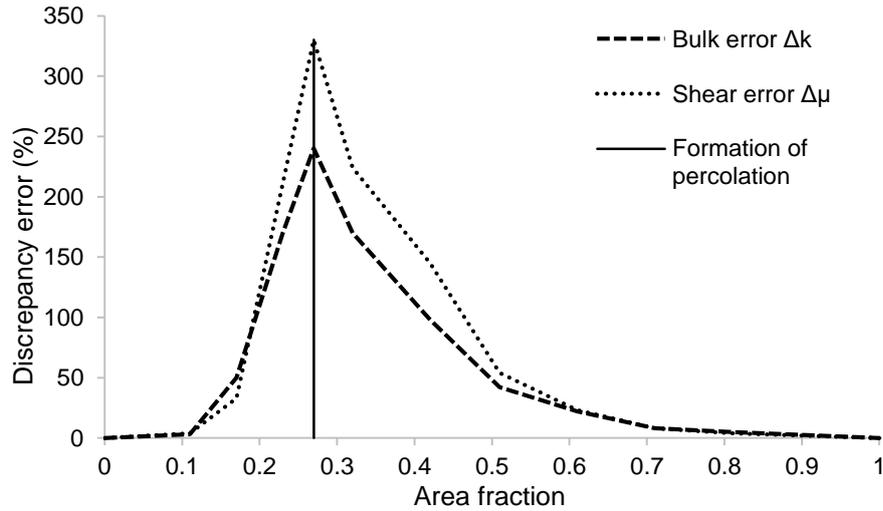


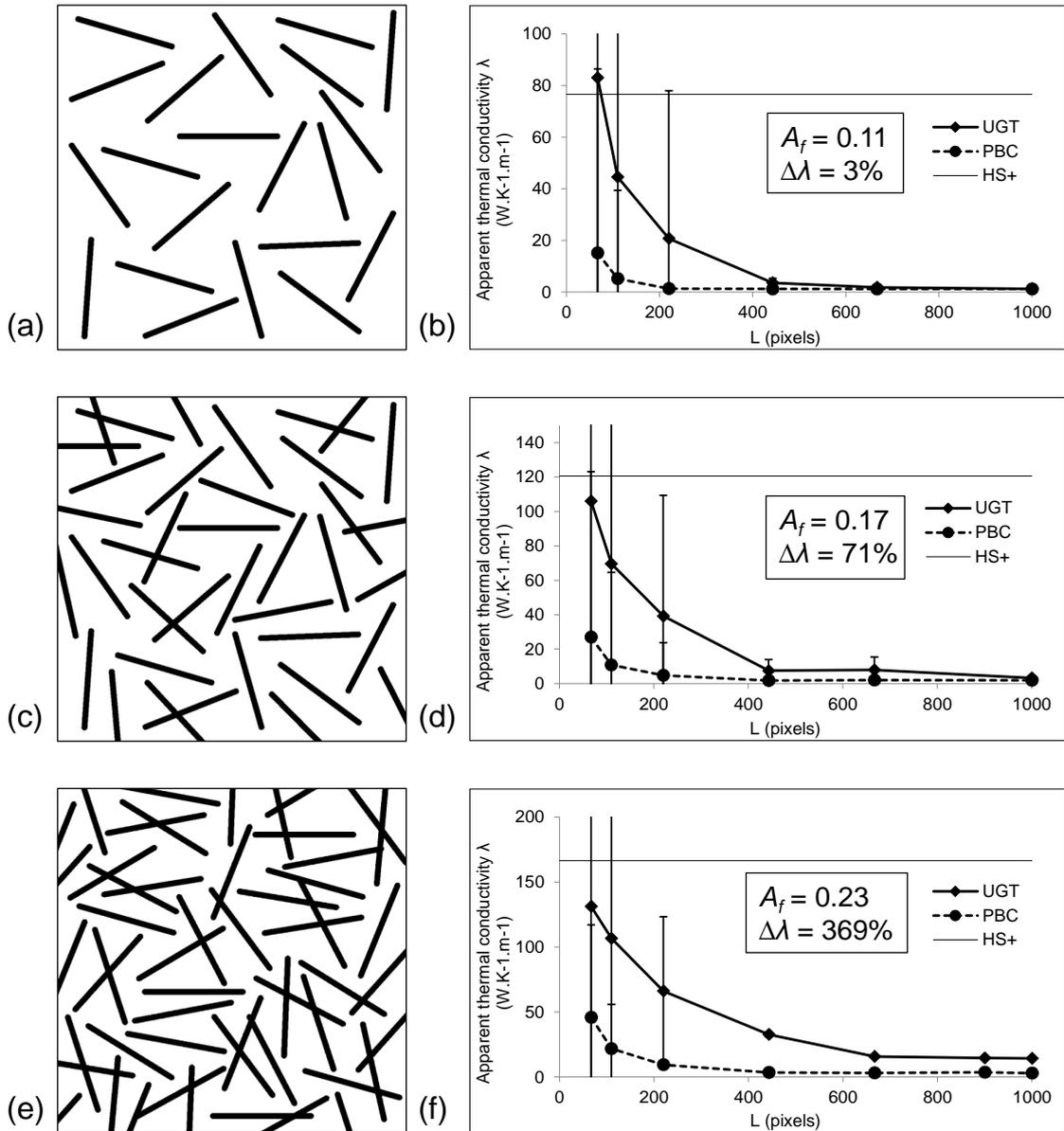
Figure II-14 Evolution de l'erreur du module de compression en fonction de la fraction surfacique

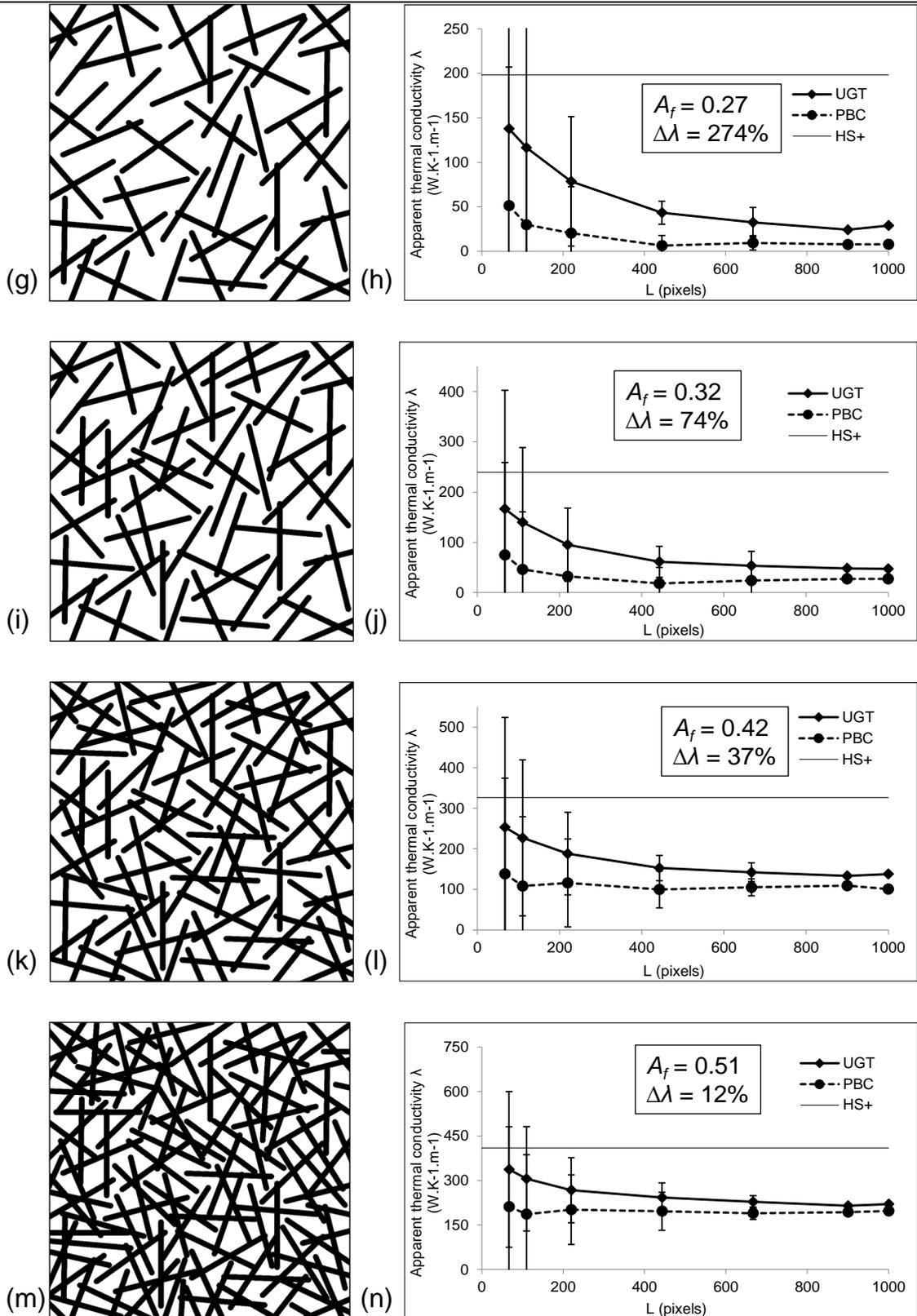
L'homogénéisation numérique appliquée dans ce travail assument un milieu isotrope. Le calcul des modules élastiques et isotropes comme le k et le μ est susceptible d'être erroné si le milieu est anisotrope. La diminution de l'erreur s'expliquerait par le fait que cet effet d'anisotropie diminue avec plus de fibres. Quand le nombre de fibres orientées aléatoirement dans le milieu augmente, la percolation de ces fibres courtes se fait dans plusieurs directions. Avec assez de fibres, aucune direction n'est privilégiée et la convergence des propriétés apparentes est obtenue comme ce qui est observé dans le cas du CFCA_{0,71} et CFCA_{0,81}. On observe ensuite si cet effet de percolation sur les propriétés mécaniques est présent dans le cas des propriétés thermiques.

II.5.1.2 Propriétés thermiques

Dans le cas de la conductivité thermique apparentes moyennes $\overline{\lambda_{app}}$ des composites CFCA, les tendances similaires sont observées dans la Figure II-15. Pour les fractions surfaciques A_f de 0,11 et 0,17, les composites CFCA produisent des propriétés convergentes. Or, des propriétés divergentes avec une erreur maximum de 369% sont observées au seuil de percolation p , c'est-à-dire sur le composite CFCA_{0,23}. Ensuite, les composites CFCA continuent à produire des propriétés divergentes jusqu'à atteindre la convergence à la fraction surfacique A_f de 0,61. Bien que les tendances soient similaires, l'effet de la percolation est observé plus tôt

que dans le cas des propriétés mécaniques. La même hypothèse de la préférence directionnelle est assumée dans ce cas thermique pour expliquer les erreurs élevées autour du seuil p . La corrélation entre la percolation et l'erreur relative maximale dans le cas des propriétés mécaniques est effectuée en observant la distribution de la contrainte équivalente de von Mises dans les microstructures du CFCA. Dans ce cas thermique, nous employons la même stratégie en observant la distribution de la conductivité thermique dans les microstructures.





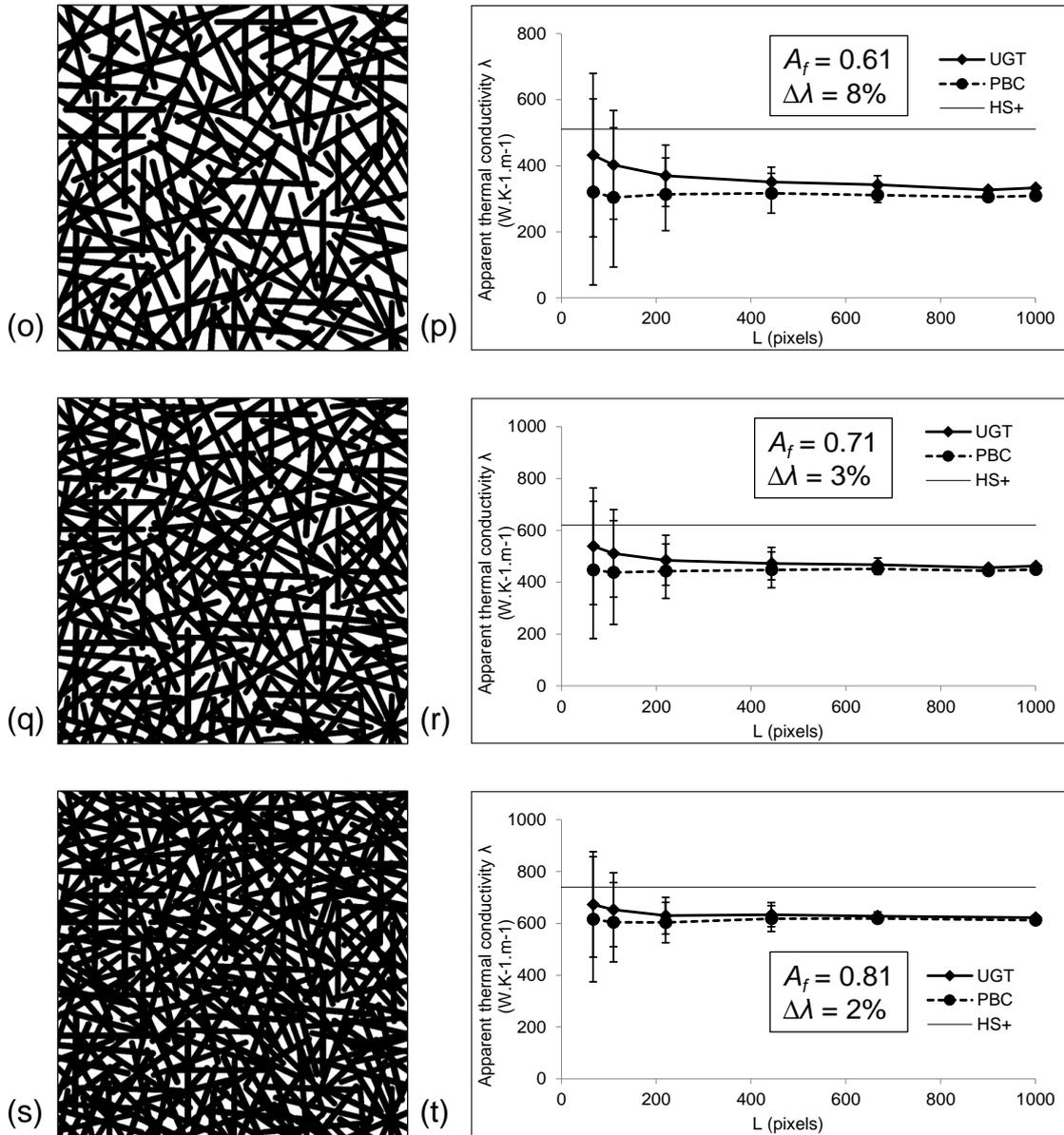
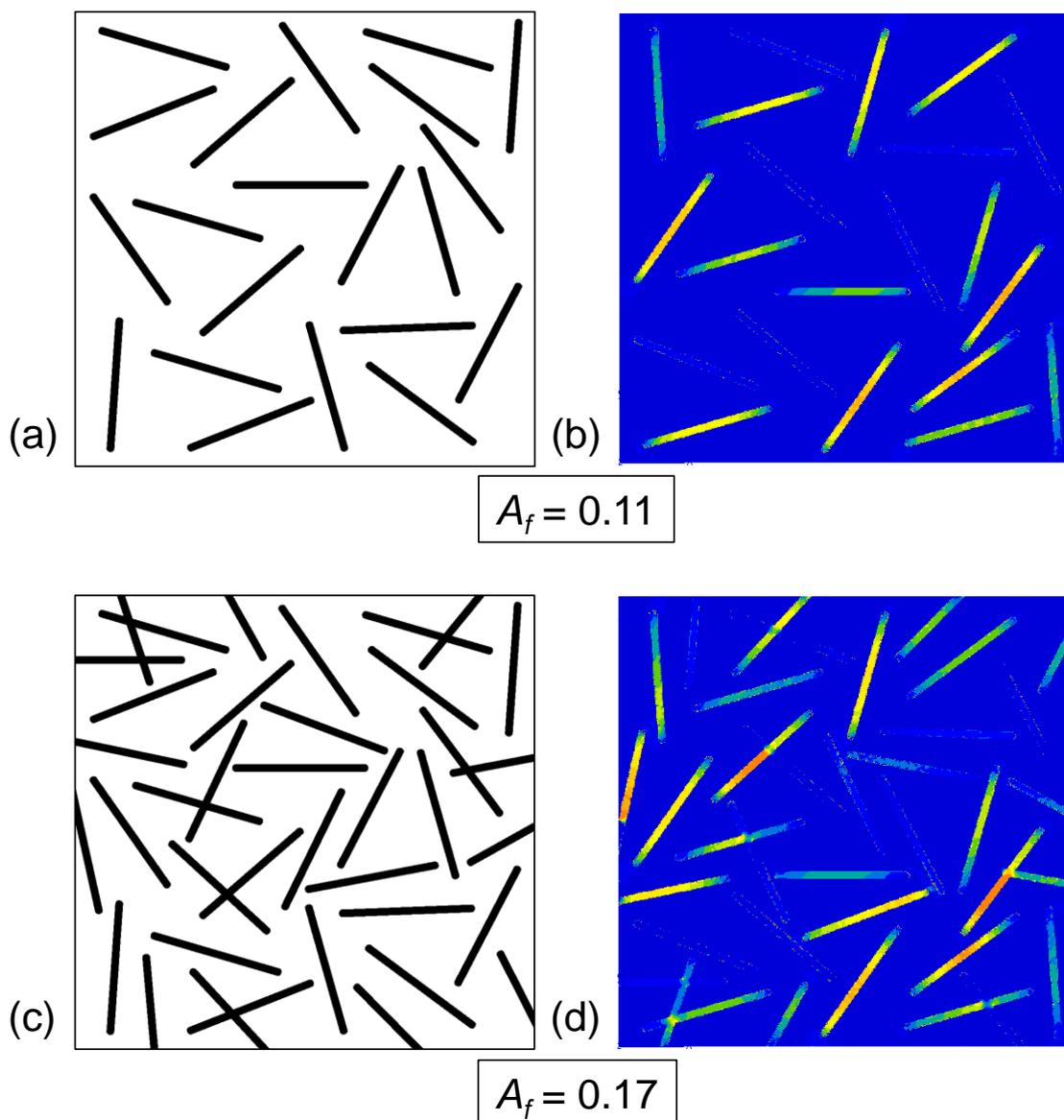
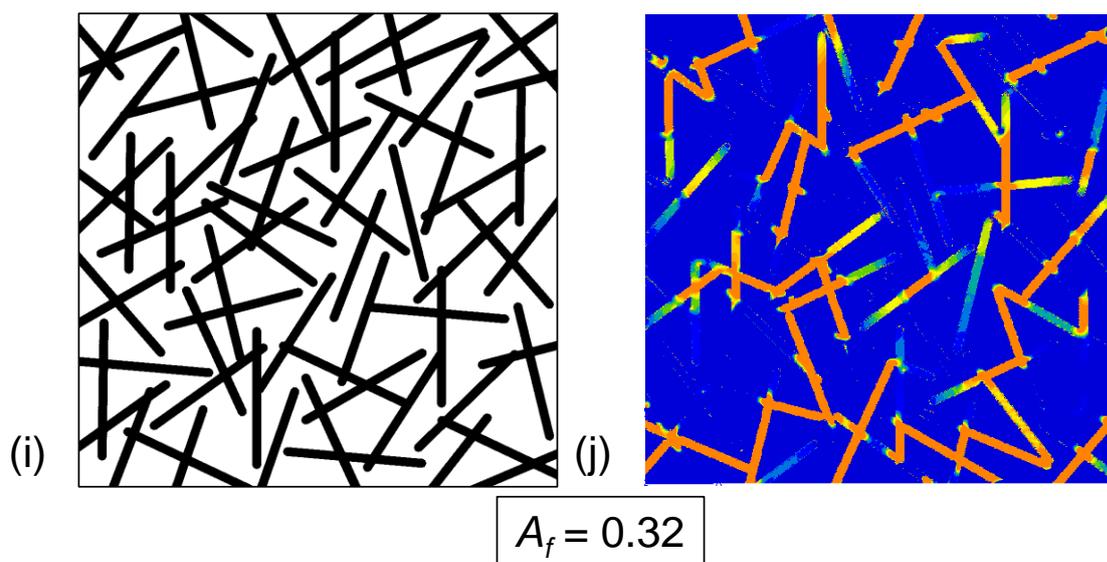
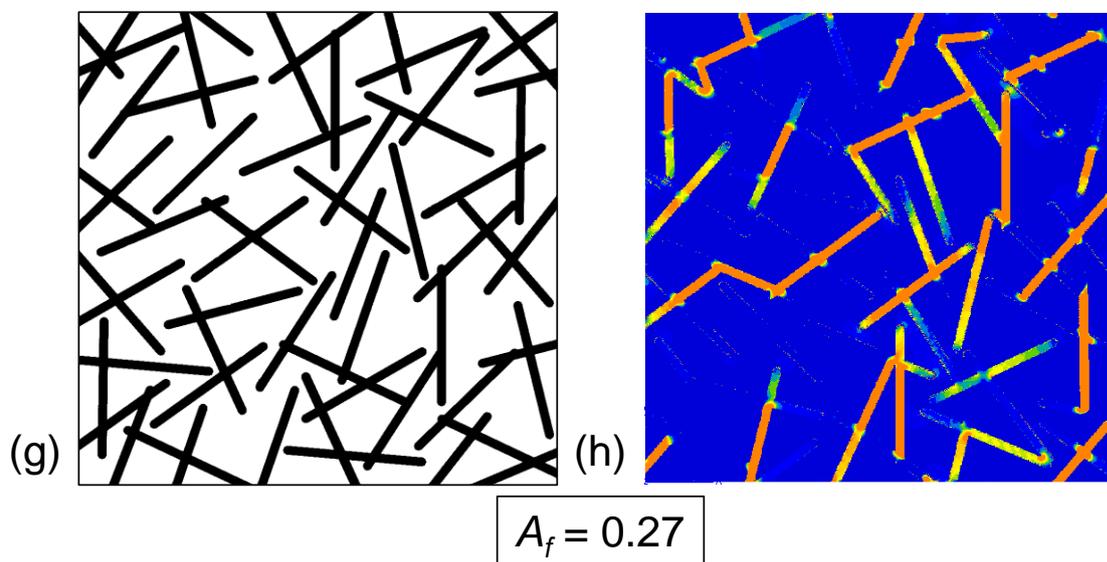
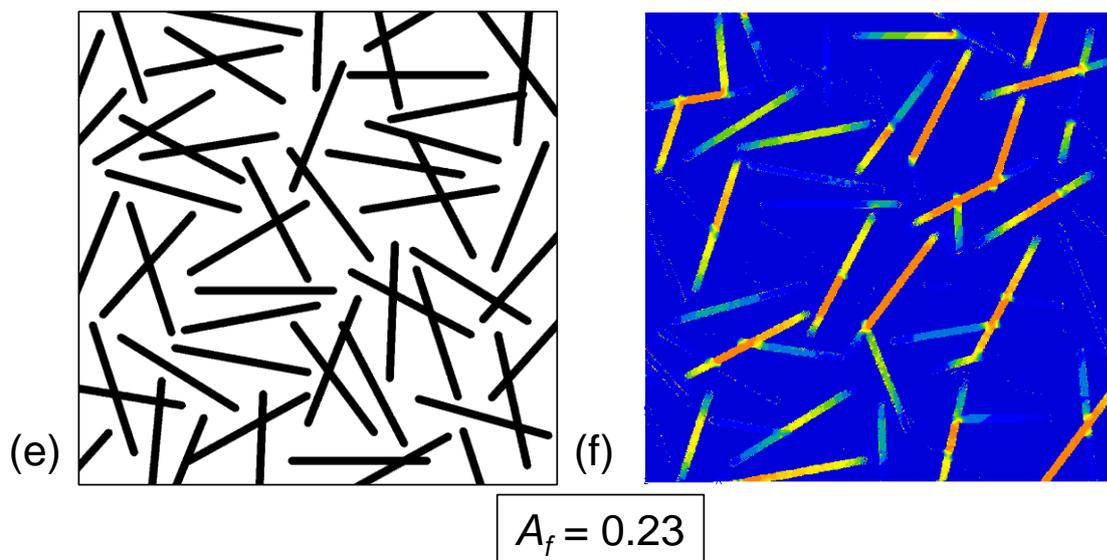


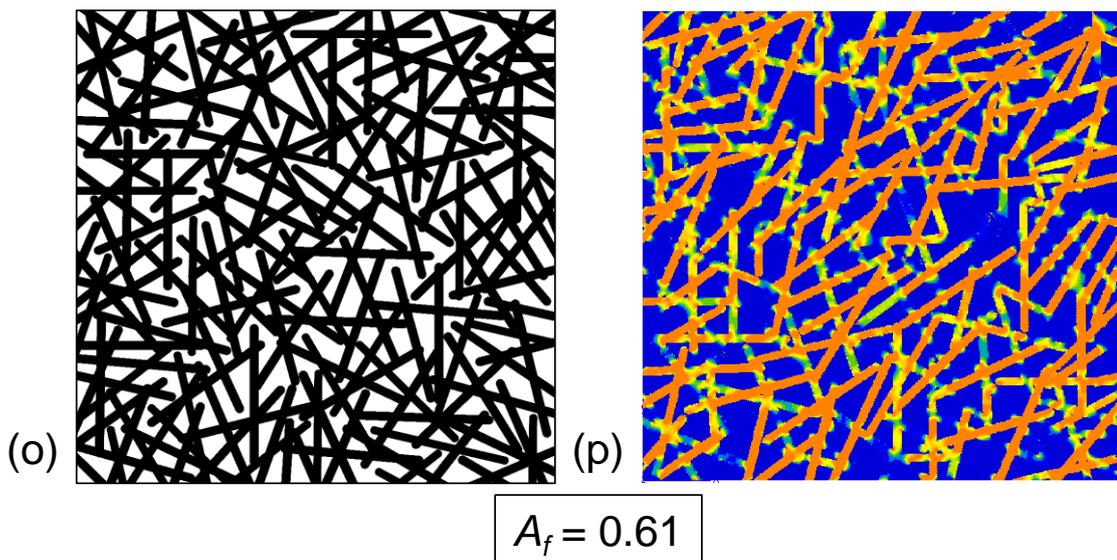
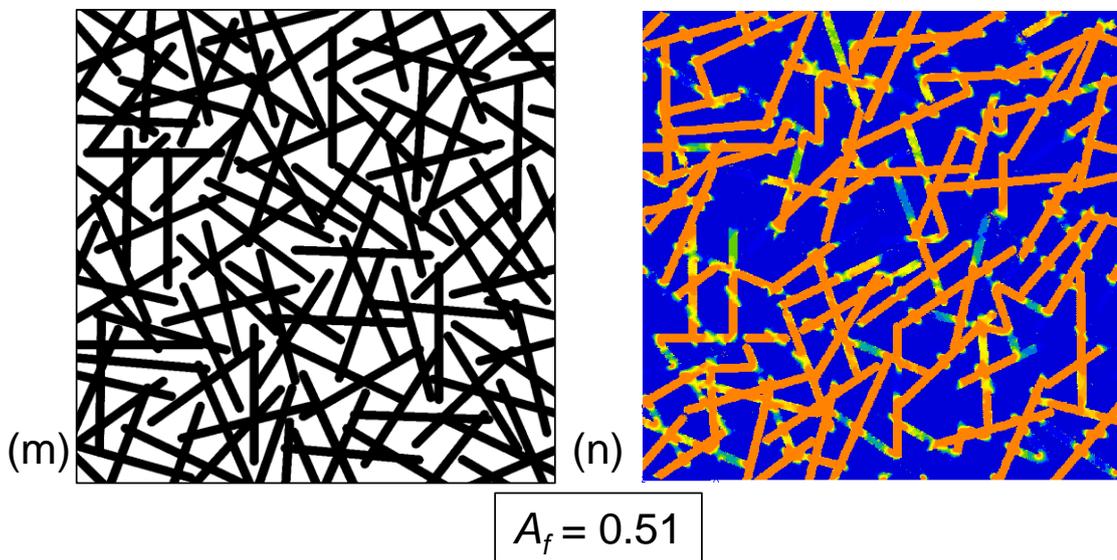
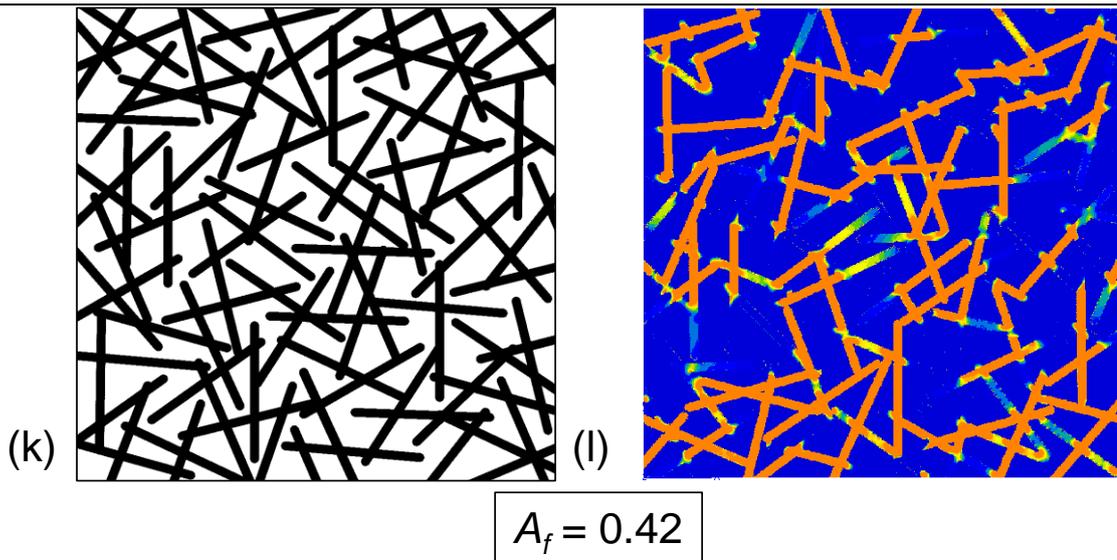
Figure II-15 (a – t) Microstructures du CFCA et la conductivité thermique λ moyenne apparente en fonction de la longueur de côté L

La distribution de la conductivité dans les microstructures des différents composites CFCA est montrée par la Figure II-16. Dans le cas de la fraction surfacique A_f de 0,23 où on atteint l'erreur relative maximum de 369%, la percolation des fibres n'est pas remarquée dans la Figure II-16 (f). Il se peut que les propriétés thermiques et mécaniques répondent différemment aux effets de la percolation des fibres. La convergence des propriétés thermiques est obtenue à la fraction surfacique A_f de 0,61 qui est plus petite que celle dans le cas des propriétés mécaniques. Néanmoins, on observe toujours l'effet de la percolation des fibres sur

la convergence des propriétés apparentes du composite CFCA. Selon le Tableau II-4, les plus grandes erreurs relatives se trouvent toujours aux voisinages du seuil de percolation p .







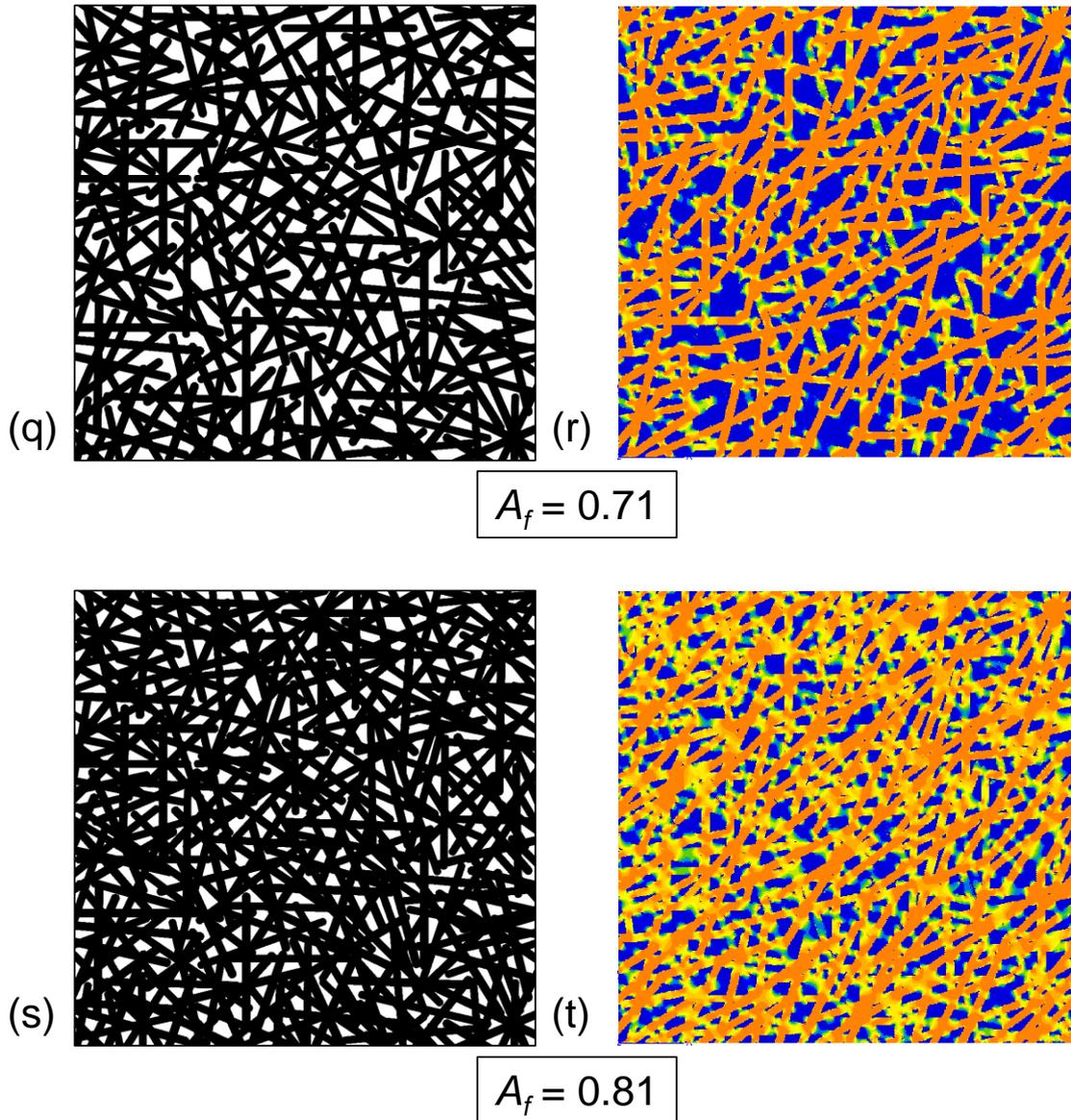


Figure II-16 (a - t) Microstructures du CFCA et la distribution de la conductivité thermique

| | | | | | | | | | | |
|--------------------------------------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| A_f | 0,11 | 0,17 | 0,23 | 0,27 | 0,32 | 0,42 | 0,51 | 0,61 | 0,71 | 0,81 |
| $\overline{\Delta\lambda_{app}}$ (%) | 3 | 71 | 369 | 274 | 74 | 37 | 12 | 8 | 3 | 2 |

Tableau II-4 Erreurs relatives de la conductivité thermique apparente moyenne en fonction de la fraction surfacique A_f

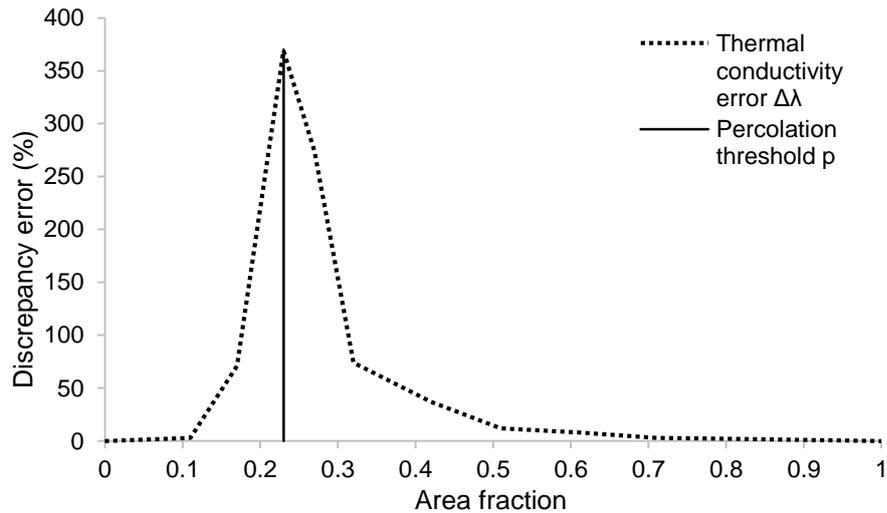


Figure II-17 Evolution de l'erreur de la conductivité thermique en fonction de la fraction surfacique

Puisque l'introduction de la percolation a provoqué des erreurs importantes dans le CFCA, il serait intéressant de voir si cet effet est toujours présent dans le cas du composite avec des fibres longues CFLA qui peut être considéré comme un cas extrême de percolation avec les fibres de longueur infinie.

II.5.2 Composite renforcé par des Fibres Longues Aléatoires

Pour distinguer le cas du composite renforcé par des fibres longues CFLA de celui des fibres courtes CFCA, les fibres du CFLA sont continues avec une longueur infinie et sont orientées aléatoirement. La même technique de génération d'image est utilisée ici mais seul le diamètre d de 15 pixels est imposé sur les fibres alors que la longueur l n'est pas définie. De cette manière, les fibres générées dans ce cas sont d'une longueur infinie. Les fibres sont imprégnées dans une image de 1000^2 pixels et avec 100 fibres générées, nous obtenons un CFLA avec une fraction surfacique A_f de 0,51 (Figure II-18).

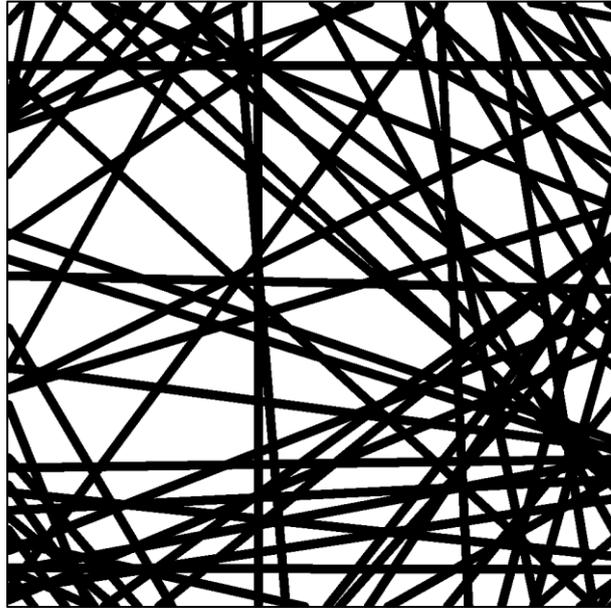


Figure II-18 Microstructures du CFLA à une fraction surfacique A_f de 0,51

Les fibres longues et aléatoires du composite CFLA apportent plusieurs contraintes morphologiques :

- Le rapport de forme infini : Des études sur l'effet du rapport de forme sur les propriétés effectives des composites ont déjà été menées par Kari *et al.* (2007), Lu *et al.* (2014), Tian *et al.* (2014), Qian *et al.* (2012) et Moussaddy *et al.* (2013). Mais, ils ont gardé une longueur de fibres assez courte et discontinue. Les fibres du CFLA sont des fibres continues et aléatoires.
- L'absence de la périodicité du matériau : Selon Gitman *et al.* (2007), la périodicité d'un matériau est définie par un matériau qui ne subit pas d'effet de la paroi. Autrement dit, la partie du renfort qui sort de la paroi doit apparaître à la paroi opposée. La périodicité est facilement réalisée dans le cas des renforts discontinus. Or, les fibres continues et aléatoires du CFLA rendent cette périodicité impossible.
- La superposition des fibres : Puisque l'étude est effectuée en 2D et les fibres aléatoires sont d'une longueur infinie, la superposition des fibres est inévitable même à basse fraction surfacique A_f . Or, nos calculs sont élastiques linéaires et le contact entre les fibres signifie simplement une continuité de la phase. Ainsi, aucun frottement entre les fibres n'est considéré. Ces points de contact peuvent créer des concentrations de contraintes. Néanmoins, elles

n'influencent pas nos calculs car l'homogénéisation numérique se fait à l'échelle macroscopique.

II.5.2.1 Propriétés mécaniques et thermiques

Les propriétés mécaniques et thermiques du composite CFLA montrent les tendances similaires, donc elles seront présentées ensembles dans cette section. Les résultats sont détaillés dans le Tableau II-5 et illustrés dans la Figure II-19. Les résultats ont montré que les propriétés apparentes calculées avec différentes conditions aux limites sont loin l'une de l'autre même à la plus grande taille de l'échantillon S . Les erreurs relatives sont $\Delta \overline{k_{app}} = 42\%$ pour le module de compression, $\Delta \overline{\mu_{app}} = 38\%$ pour le module de cisaillement et $\Delta \overline{\lambda_{app}} = 31\%$ pour la conductivité thermique. En plus, dans les deux cas mécaniques et thermiques, les propriétés apparentes moyennes restent quasiment constantes de la plus petite taille de l'échantillon S jusqu'à la plus grande. Par conséquent, elles sont quasi-parallèles et ne convergeront pas. Sans la convergence, les propriétés calculées ne sont pas effectives et la microstructure du CFLA n'est pas un VER.

Quant à l'intervalle de confiance, il est le plus grand au plus petit S et diminue lorsque S augmente. Le petit intervalle au plus grand S signifie la stabilité des propriétés apparentes calculées, c'est-à-dire que les résultats sont moins dispersés. Les propriétés apparentes moyennes calculées avec des conditions aux limites de type Dirichlet sont toujours supérieures à celle de type périodique.

| | KUBC/UGT | PBC | $\Delta \overline{Z_{app}}$ (%) |
|-----------------------------------|--------------|--------------|---------------------------------|
| $\overline{k_{app}}$ (GPa) | 374 ± 45 | 264 ± 27 | 42 |
| $\overline{\mu_{app}}$ (GPa) | 188 ± 21 | 136 ± 17 | 38 |
| $\overline{\lambda_{app}}$ (W/mK) | 370 ± 62 | 283 ± 30 | 31 |

Tableau II-5 Propriétés mécaniques et thermiques moyennes apparentes du CFLA au plus grand S et l'erreur relative entre les différentes conditions aux limites

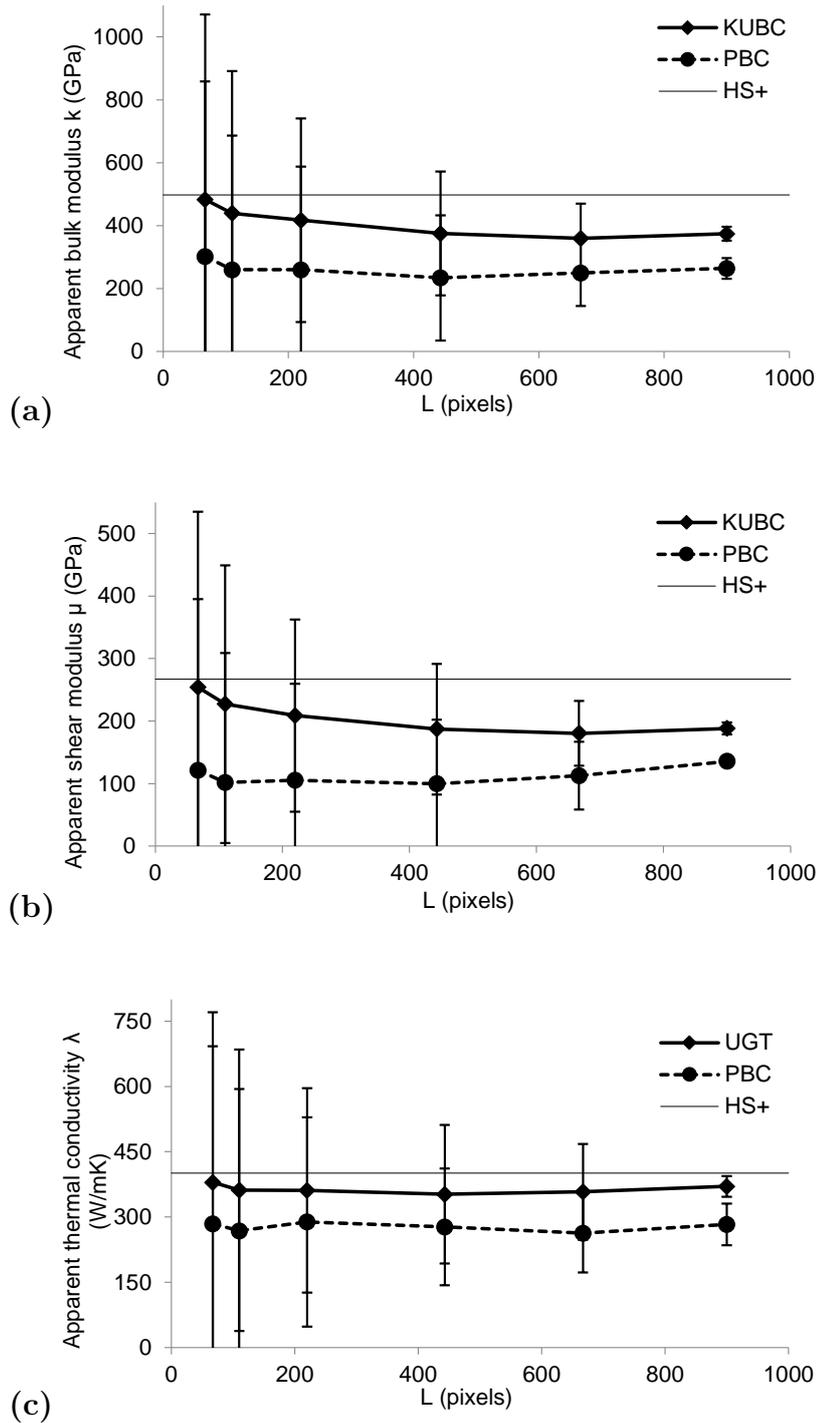


Figure II-19 (a) Module de compression k , (b) Module de cisaillement μ et (c) conductivité thermiques λ moyens apparents du composite CFLA en fonction de la longueur de côté L

Une comparaison avec le CFCA_{0,51} qui a la même fraction surfacique A_f que le CFLA est effectuée. Les propriétés apparentes moyennes du CFCA_{0,51} sont bien inférieures alors que celles du CFLA sont assez proches de la borne HS^+ . Ce serait

dû aux différentes morphologies des fibres. Puisque les fibres du CFLA sont continues et que chaque fibre touche les bords de la microstructure, la charge appliquée sur les bords est subie par toutes les fibres. Dans le cas du CFCA_{0,51}, seules les fibres courtes percolées subissent le chargement sur les bords. Ceci expliquerait les propriétés inférieures du CFCA_{0,51} comparées à celles du CFLA. Cette observation met en évidence également l'effet de la longueur sur les composites dans notre étude.

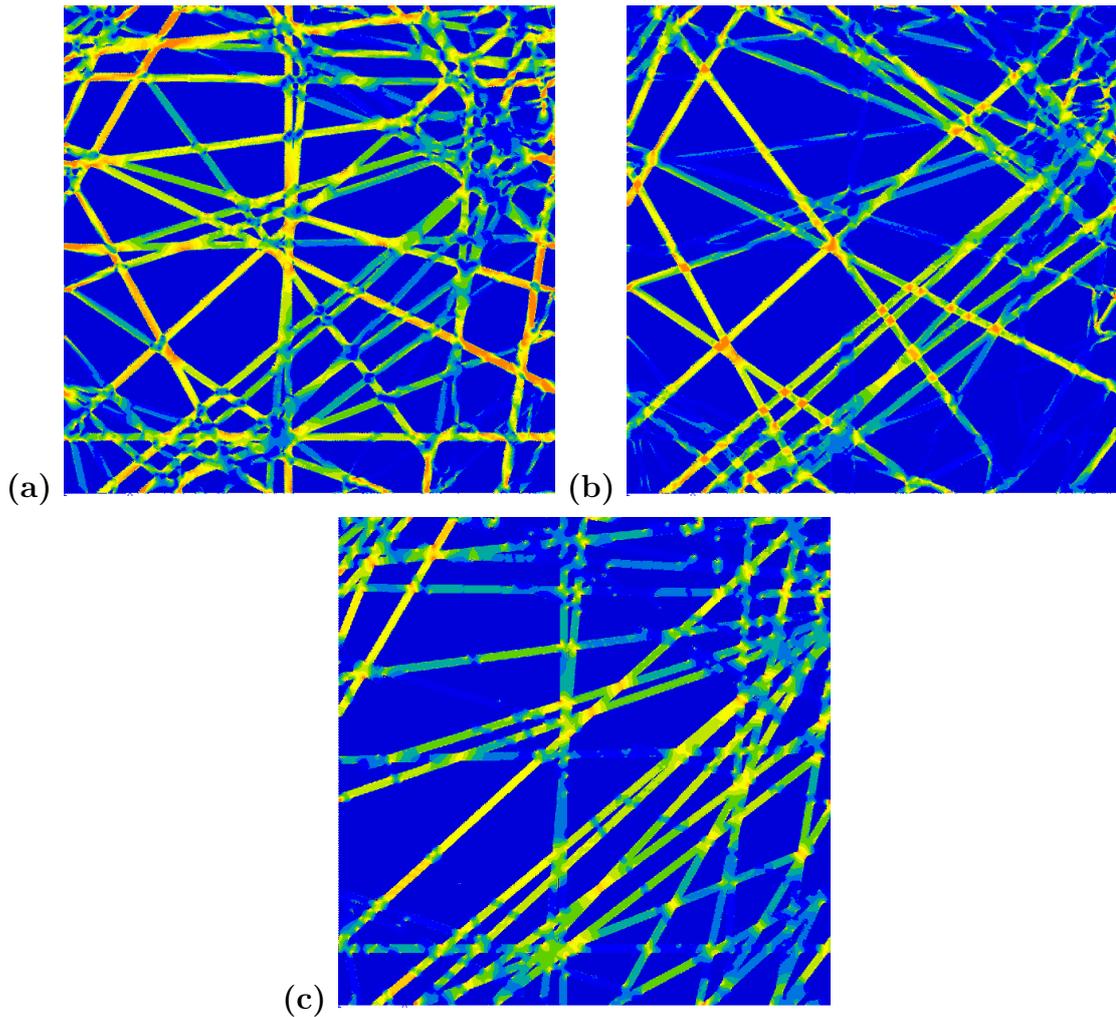


Figure II-20 Distribution de la contrainte équivalente de von Mises après le calcul du module de (a) compression et (b) cisaillement et (c) la distribution de la conductivité thermique dans la microstructure du CFLA

La Figure II-20 montre la distribution de (a – b) la contrainte de von Mises et de (c) la conductivité thermique dans la microstructure du CFLA. On observe que l'effet de la percolation des fibres est moins évident que dans le cas du composite

à fibres courtes CFCA. Par exemple, pour les calculs du module de compression k , toutes les fibres du CFLA sont sollicitées et ne montrent pas une claire préférence directionnelle. Une légère préférence directionnelle peut être déduite dans le cas du module de cisaillement μ et de la conductivité thermique λ . Or, une conclusion définitive ne peut pas se faire sans vérification par d'autres approches.

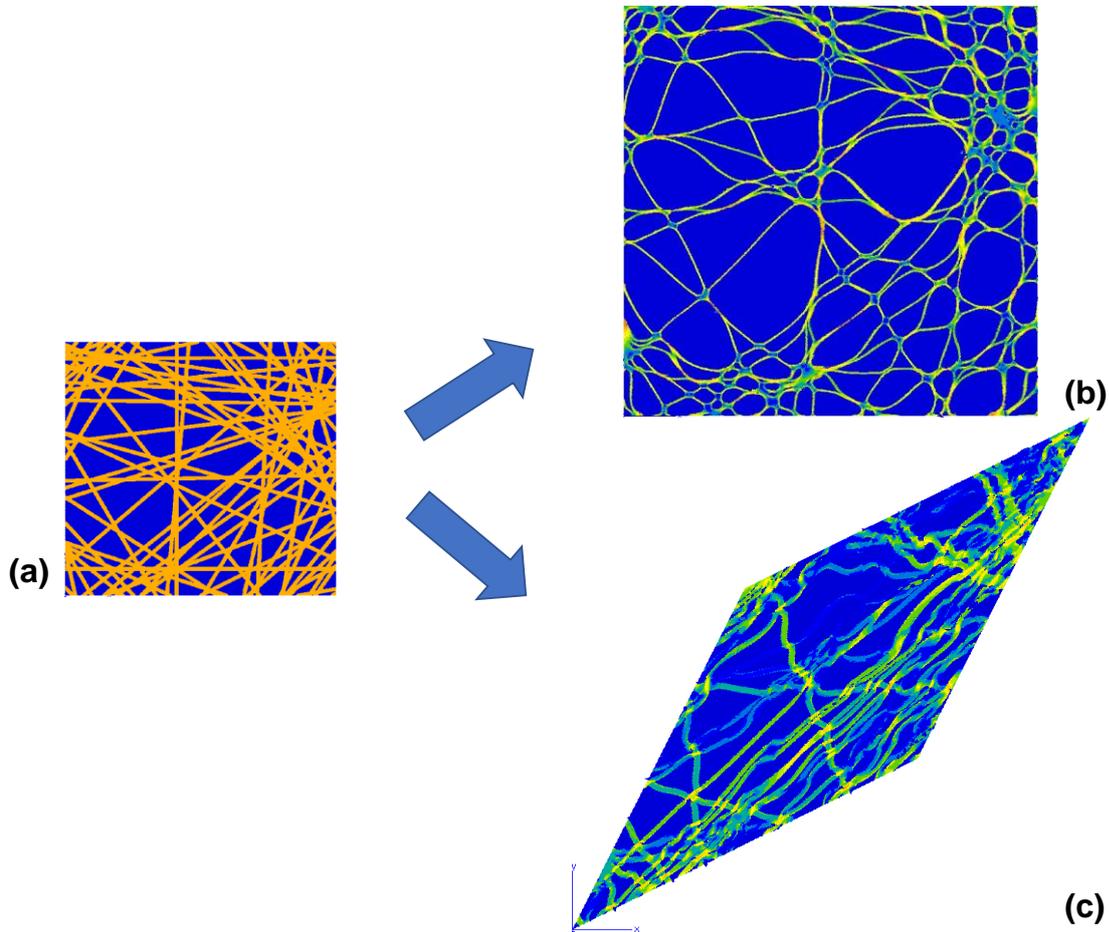


Figure II-21 (a) Microstructure du CFCA et ses déformées après les calculs du module de (b) compression et de (c) cisaillement

Il apparaît que les propriétés apparentes moyennes divergentes dans le cas du CFCA légèrement percolé s'étendent aussi au cas de percolation extrême du CFLA. Pour le CFCA légèrement percolé, les propriétés divergentes seraient causées par l'anisotropie créée par une ou deux longues chaînes de fibres. Mais, le CFLA ont des fibres dans toutes les directions. En principe, des préférences directionnelles auraient disparu. Pour vérifier la présence d'anisotropie dans le CFLA, des études plus profondes sur sa morphologie et sa résistance mécanique

sont effectuées. Deux approches sont employées : la mesure de la covariance de l'image macroscopique et le calcul de son tenseur de rigidité.

II.5.2.2 Covariance et arrangement spatial

La mesure de la covariance pour assurer la représentativité d'un matériau hétérogène est employée par plusieurs études antérieures comme Kanit *et al.* (2003, 2006) et El Moumen *et al.* (2013, 2015b). Avec la covariance, des données importantes concernant la microstructure comme la dispersion des fibres et sa fraction surfacique peuvent être obtenues. Selon Matheron (1975), la covariance est une analyse de la probabilité que les points x et $x + h$ appartiennent à la même phase X du matériau hétérogène. Cette covariance C est décrite par l'équation suivante :

$$C(x, x + h) = P \ x \in X, (x + h) \in X \quad \text{Eq. (II.43)}$$

A la distance initiale $h = 0$, la covariance C est maximale et correspond à la fraction surfacique des fibres A_f . Plus h augmente, plus la covariance C diminue. Dans le cas où $h \rightarrow \infty$, la covariance C atteint une valeur asymptotique qui est égale à A_f^2 . La courbe de covariance C du composite CFLA en fonction de la distance h , ou simplement appelé le covariogramme, est illustrée dans la Figure II-22. Le vecteur h se translate dans les directions de x , y , et les directions transversales de xy et $-xy$.

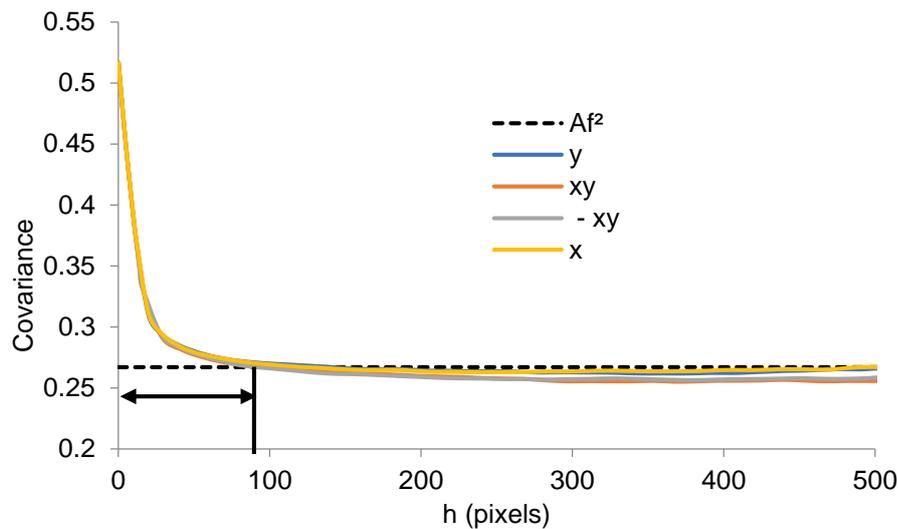


Figure II-22 Covariogramme du CFLA dans les deux directions x et y

Dans la Figure II-22, on observe que la covariance $C(0) = 0,513$ quand $h = 0$, ce qui confirme l'hypothèse précédente. La première intersection avec la valeur asymptotique de A^2 a eu lieu quand $h = 90$ pixels pour toutes les directions. Cette égalité montre que la microstructure du CFLA est isotrope. Cette distance de h à l'intersection s'appelle aussi la longueur de corrélation de la microstructure. Plus cette longueur est grande, plus l'image de l'échantillon doit être grande pour représenter la microstructure. Dans tous les cas, l'étude de la covariance a montré que le composite CFLA est morphologiquement isotrope.

II.5.2.3 Tenseur de rigidité

Afin de vérifier l'isotropie de la microstructure du CFLA, nous calculons ici sa matrice de rigidité \mathcal{C} . Selon la loi de Hooke généralisée pour les matériaux élastiques linéaires, la contrainte macroscopique $\underline{\underline{\Sigma}}$, la déformation macroscopique $\underline{\underline{E}}$ et la matrice de rigidité \mathcal{C} sont reliées par l'équation suivante :

$$\underline{\underline{\Sigma}} = \mathcal{C} : \underline{\underline{E}} \quad \text{Eq. (II.44)}$$

Dans un problème 2D, les tenseurs d'ordre 4 et 2 sont simplifiés ainsi :

$$\begin{bmatrix} \Sigma_1 \\ \Sigma_2 \\ \Sigma_6 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{16} \\ C_{12} & C_{22} & C_{26} \\ C_{16} & C_{26} & C_{66} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_1 \\ E_2 \\ E_6 \end{bmatrix} \quad \text{Eq. (II.45)}$$

Pour trouver les composants de \mathcal{C} , il faut calculer la résistance mécanique du CFLA dans chaque direction. Par exemple, les éléments de C_{1j} sont calculés en appliquant une déformation macroscopique constante dans la direction 1 :

$$\underline{\underline{E}} = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} \quad \text{Eq. (II.46)}$$

Ainsi, trois composants de \mathcal{C} sont obtenus. Ce processus est répété dans les autres directions avec deux conditions aux limites différentes (KUBC et PBC) pour chaque échantillon S du CFLA. Nous obtenons ensuite les matrices de rigidité

apparentes \mathcal{C}^{app} de KUBC et PBC. Les résultats des calculs sont montrés sous forme matricielle :

$$\mathcal{C}_{KUBC}^{app} = \begin{bmatrix} 672 \pm 48 & 188 \pm 18 & 10 \pm 15 \\ 188 \pm 18 & 424 \pm 60 & 22 \pm 14 \\ 10 \pm 15 & 22 \pm 14 & 185 \pm 15 \end{bmatrix} \quad \text{Eq. (II.47)}$$

$$\mathcal{C}_{PBC}^{app} = \begin{bmatrix} 515 \pm 34 & 113 \pm 12 & 8 \pm 12 \\ 113 \pm 12 & 283 \pm 80 & 21 \pm 12 \\ 8 \pm 12 & 21 \pm 12 & 132 \pm 10 \end{bmatrix} \quad \text{Eq. (II.48)}$$

Les composants C_{13}^{app} et C_{23}^{app} sont petits comparés aux autres composants dans les matrices (>4%) et sont considérés zéro. Le premier signe d'anisotropie est observé où les composants dans les direction 11 et 22 ne sont pas égaux $C_{11}^{app} \neq C_{22}^{app}$ pour les deux cas de KUBC et PBC. Néanmoins, il existe un moyen plus précis de calculer l'anisotropie. Zener (1948) a développé l'indice d'anisotropie a consacré à l'étude d'isotropie des matériaux :

$$a = \frac{2C_{66}}{C_{11} - C_{12}} \quad \text{Eq. (II.49)}$$

Nous avons trouvé que les indices d'anisotropie sont de $a_{KUBC} = 0,76$ et $a_{PBC} = 0,66$, et ils divergent du cas isotrope ($a = 1$) de 24% et 34% respectivement. Donc, le composite CFLA a montré une réponse mécanique anisotrope. Demirci *et al.* (2012) ont étudié des fibres longues non-tissées orientées aléatoirement qui ressemblent à notre composite CFLA. Ils ont fait une analyse d'image sur les fibres et ont trouvé que les fibres ont tendance à privilégier une direction. En fait, l'orientation aléatoire des fibres longues et continues ne garantit pas de distribution homogène des fibres. La possibilité d'avoir la même résistance mécanique sur chaque côté de l'image est faible si on considère le caractère aléatoire des positions et orientations des fibres continues. L'hypothèse qui dit que les fibres distribuées et orientées aléatoirement conduisent au comportement isotrope n'est peut-être pas applicable au CFLA.

Néanmoins, il est incertain que ces observations et conclusions restent valides pour des échelles plus élevées. Même sans la convergence des propriétés moyennes apparentes, Dirrenberger *et al.* (2014) ont estimé que le VER des fibres de Poisson en 3D existe mais il est très large. Ceci pourrait être vrai pour les composites CFLA et CFCA aux échelles plus grandes. Or, à l'échelle de cette étude, les propriétés moyennes apparentes du CFLA et du CFCA restent divergentes et ne sont pas effectives. Sans les propriétés effectives, le VER ne peut pas être calculé.

II.5.3 Effets du contraste

Pour les deux cas de fibres courtes CFCA et de fibres longues CFLA, nous avons étudié un grand contraste de 2000 entre les propriétés des fibres et de la matrice. Dans des applications réelles, nous rencontrons rarement un contraste aussi grand, surtout dans le cas des biocomposites. Pour les biocomposites dans notre travail, le plus grand contraste entre les propriétés mécaniques du chanvre et du PET ne dépasse pas 100. Ce contraste est encore plus petit dans le cas des propriétés thermiques où il reste inférieur à 10. Nous abordons ce sujet plus profondément dans les Chapitres III et IV.

Il faut donc étudier des contrastes plus petits pour avoir une vue relative à nos biocomposites. Nous reprenons le cas du composite CFCA_{0,27} où l'erreur maximum des propriétés mécaniques apparentes est observée. Nous appliquons la même méthode d'homogénéisation en lui attribuant des contrastes de 1000, 100, 50 et 10 pour observer l'effet du contraste sur l'erreur relative. Les résultats des calculs sont illustrés dans la Figure II-23.

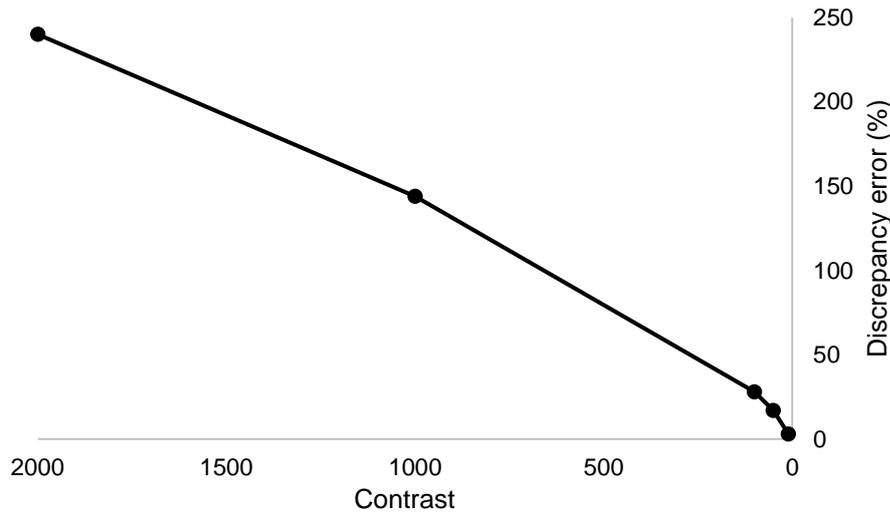


Figure II-23 Evolution de l'erreur relative en fonction du contraste entre les propriétés

Effectivement, l'erreur relative diminue de façon quasiment linéaire en fonction du contraste. L'erreur est seulement de 28% quand le contraste atteint 100. Dans notre cas où le contraste est inférieur à 100, les propriétés de nos biocomposites ont moins de risque de présenter des résultats erronés avec des erreurs aussi élevées ce qui est observé dans ce chapitre. Il est à noter aussi que la géométrie des fibres dans la suite de l'étude sont différentes du CFCA et du CFLA. Or, il est toujours judicieux de vérifier la convergence des propriétés de nos biocomposites pour assurer que les microstructures générées sont des VER et que les propriétés calculées sont effectives.

II.6. Conclusion

Ce chapitre a exploré et détaillé les outils de l'homogénéisation numérique utilisés dans les travaux de la thèse. Nous avons appliqué cette méthode sur des composites à fibres courtes et longues afin d'observer l'influence de la taille des fibres sur les propriétés mécaniques et thermiques des composites. Les renforts naturels étant des fibres de longueurs très variées, cette étude de l'influence de la taille des fibres est nécessaire.

Le composite renforcé par des fibres courtes aléatoires (CFCA) est étudié en faisant varier sa fraction surfacique et en introduisant la notion de la percolation.

A basse fraction surfacique, les propriétés moyennes apparentes du CFCA convergent comme prévu. Or, l'écart entre les résultats obtenus par les deux conditions aux limites s'agrandit autour du seuil de percolation avec une erreur maximale de 240% dans le cas mécanique et de 369% dans le cas thermique. Sans la convergence, les propriétés calculées ne sont pas effectives et donc la microstructure n'est pas un VER. Le phénomène est expliqué par la préférence directionnelle créée par la percolation des fibres qui rend le CFCA anisotrope.

Le composite renforcé par des fibres longues aléatoires (CFLA) peut être considéré comme un cas extrême de percolation avec des fibres de longueur infinie. Similairement au cas de CFCA percolé, les propriétés moyennes apparentes ne convergent pas et restent quasiment parallèles pour toutes les tailles. L'erreur varie entre 31% et 42% pour les cas mécanique et thermique. Ces propriétés apparentes moyennes ne sont pas effectives et la microstructure du CFLA n'est pas un VER. L'étude sur la covariance a montré que la microstructure du CFLA est morphologiquement isotrope. Par contre, les calculs du tenseur de rigidité ont montré une réponse mécanique anisotrope, similaire au composite CFCA percolé. L'hypothèse indiquant que les fibres distribuées et orientées aléatoirement conduisent au comportement isotrope n'est peut-être pas applicable au composite CFLA.

Effectivement, il existe des matériaux hétérogènes avec une distribution homogène de renforts qui ne possèdent pas de propriétés effectives. Dans ce travail, nous avons trouvé les deux caractéristiques morphologiques à l'origine de ce problème : les fibres continues aléatoires et les fibres courtes percolées. Dirrenberger *et al.* (2014) qui ont étudié les fibres de Poisson en 3D n'ont pas obtenu de convergence et ont conclu que le VER est immense. A l'échelle de cette étude et avec le grand contraste des propriétés, aucune convergence n'est observée dans les cas du CFCA et CFLA. Néanmoins, nous avons observé que la divergence des propriétés diminue avec le contraste. En ce qui concerne les biocomposites qui seront étudiés dans les prochains chapitres et qui possèdent des contrastes relativement faibles, cet effet de percolation n'apparaîtrait pas. Or, des vérifications du VER seront toujours effectuées afin d'assurer que les calculs sont effectifs.

**Chapitre III : Etude des propriétés
mécaniques des biocomposites à base de
fibres de chanvre et de particules de
bois**

Sommaire

| | |
|---|-----|
| Chapitre III : Etude des propriétés mécaniques des biocomposites à base de fibres de chanvre et de particules de bois | 99 |
| III.1. Introduction..... | 101 |
| III.2. Données expérimentales..... | 101 |
| III.2.1 HDPE-particules de bois..... | 101 |
| III.2.2 PET-fibres de chanvre | 105 |
| III.2.3 Analyses des données expérimentales | 107 |
| III.3. Homogénéisation numérique | 110 |
| III.3.1 Génération des modèles 3D..... | 110 |
| III.3.2 Maillage des modèles 3D..... | 115 |
| III.3.3 Conditions des calculs..... | 118 |
| III.3.4 Propriétés des renforts..... | 119 |
| III.4. Résultats et discussions | 120 |
| III.4.1 HDPE-particules de bois..... | 120 |
| III.4.2 PET-fibres de chanvre | 123 |
| III.4.3 Etude paramétrique | 125 |
| III.4.4 Orientation des fibres | 129 |
| III.4.5 Interphase | 134 |
| III.4.6 Cristallisation..... | 140 |
| III.5. Conclusion | 144 |

III.1. Introduction

Ce chapitre vise à explorer les propriétés mécaniques des biocomposites et les différents facteurs qui les influencent. Deux biocomposites avec différents types de renforts naturels et thermoplastiques sont étudiés. Le premier est un polyéthylène à haute densité HDPE renforcé par des particules de bois et le second est un polyéthylène téréphtalate PET renforcé par des fibres de chanvre. Cette étude examine leurs propriétés mécaniques élastiques. La différence principale entre ces deux biocomposites est la morphologie des renforts : particules de bois et fibres de chanvre. Les données expérimentales sont fournies par les études précédentes menées par Godard *et al.* (2008) pour le HDPE-particules de bois et Talla *et al.* (2013) pour le PET-fibres de chanvre. L'homogénéisation numérique est appliquée sur des modèles 3D afin d'évaluer les propriétés élastiques effectives des biocomposites en tenant compte des propriétés et de la morphologie de chacune des phases. La modélisation numérique est validée par une confrontation avec les données expérimentales.

III.2. Données expérimentales

III.2.1 HDPE-particules de bois

Le premier composite est un HDPE renforcé de particules de bois. La matrice thermoplastique est mélangée avec l'agent couplant polyéthylène greffé au maléique anhydride (PE-g-MA) pour une meilleure adhésion aux particules de bois. La quantité de PE-g-MA est fixée à 3% de la masse totale du composite.

Les particules tamisées sont un mélange de plusieurs espèces de bois dont 65% est de l'épinette blanche (*Picea Glauca*), 20% est de l'épinette noire (*Picea Mariana*) et 15% est du sapin baumier (*Abies Balsamea*). La densité apparente est de 170 kg/m³ alors qu'une mesure avec un pycnomètre à l'hélium (Accupic modèle 1330) a montré une densité de 1480 kg/m³. Cette dernière est plus élevée due à l'omission des micropores dans les particules par la mesure. La densité de 1480 kg/m³ est choisie sur l'hypothèse que les micropores et les lumens sont remplis par la matrice. Les dimensions moyennes des particules de bois sont obtenues à l'aide

de l'analyse d'image (Visilog 6.3) sur plus de 280 particules et elles sont détaillées dans le Tableau III-1.

| Aire (mm ²) | Axe long (mm) | Axe court (mm) | Rapport de forme |
|----------------------------|------------------|-------------------|---------------------|
| 0,1154 | 0,57 | 0,30 | 1,97 |

Tableau III-1 Dimensions moyennes des particules de bois

Les composites sont préparés dans le malaxeur Haake Rheomix 600 avec des rotors de type roller à une vitesse angulaire de 60 tr/min, une température de 170°C et un temps de mélange de 4 minutes. Cette température est choisie pour assurer qu'elle ne dépasse pas la température de dégradation des particules de bois et du HDPE pendant le malaxage. Cinq fractions massiques (*wt%*) de bois ont été préparées : 20, 30, 40, 50 et 60 *wt%*. Les éprouvettes pour l'essai de traction sont moulées par compression pendant 4 minutes à une charge de 20 MPa et une température de 150°C. Elles sont rectangulaires : longueur = 125 mm, largeur = 13,8 mm et épaisseur = 3,65 mm, montré par la Figure III-1. Un essai thermogravimétrique, effectué sur un échantillon avec 60 *wt%* de particules de bois dans un four à 170°C, a montré une perte de masse de seulement 0.2% après 30 à 40 minutes. Ceci montre que les températures appliquées pendant le malaxage et le moulage par compression n'ont pas dégradé les particules de bois.



Figure III-1 Eprouvette du biocomposite HDPE-particules de bois

Les cinq types de biocomposite HDPE-particules de bois ont été testées à une vitesse de traction de 3 mm/min dans des conditions ambiantes, c'est-à-dire autour de 22°C et 40% d'humidité relative. Les essais de traction ont permis d'évaluer les propriétés mécaniques du biocomposite en fonction des différents pourcentages de particules de bois. Le Tableau III-2 donne les valeurs du module

de Young E , la limite élastique R_e , la résistance à la traction R_m et la déformation à la rupture ε_R .

On note une nette augmentation de la valeur de E pour le pourcentage de bois de 20 *wt%* de bois. Cette augmentation de E est de 69% par rapport au HDPE pur. Elle est suivie d'une faible progression pour les pourcentages entre 30 et 60%. Cette augmentation stable pourrait s'expliquer par le fait que le biocomposite devient plus fragile à cause des contacts entre les particules. En effet, dans le cas des pourcentages de fibres élevés qui sont mélangées aléatoirement dans la matrice, les contacts entre particules sont inévitables. Les résultats montrent que la limite élastique R_e est peu affectée par la présence des particules de bois. Tandis que la valeur de la résistance maximale R_m diminue sensiblement avec l'augmentation du pourcentage des particules. La déformation à la rupture ε_R chute brusquement après l'ajout de particules de bois.

| <i>wt</i> (%) | E (MPa) | R_e (MPa) | R_m (MPa) | ε_R (%) |
|---------------|------------|--------------|--------------|---------------------|
| 0 | 929 ± 33 | 12,48 ± 1,22 | 23,56 ± 2,10 | 108,3 ± 11,2 |
| 20 | 1573 ± 41 | 11,20 ± 0,64 | 23,08 ± 1,62 | 5,47 ± 2,20 |
| 30 | 1642 ± 60 | 11,51 ± 0,44 | 24,04 ± 0,66 | 5,06 ± 1,44 |
| 40 | 1763 ± 77 | 12,92 ± 0,71 | 20,39 ± 0,86 | 2,99 ± 1,35 |
| 50 | 1757 ± 104 | 13,59 ± 0,78 | 18,02 ± 0,95 | 1,76 ± 0,34 |
| 60 | 1897 ± 87 | 12,00 ± 1,86 | 17,55 ± 2,25 | 1,59 ± 0,42 |

Tableau III-2 Propriétés mécaniques des biocomposites HDPE-particules de bois selon Godard et al. (2008)

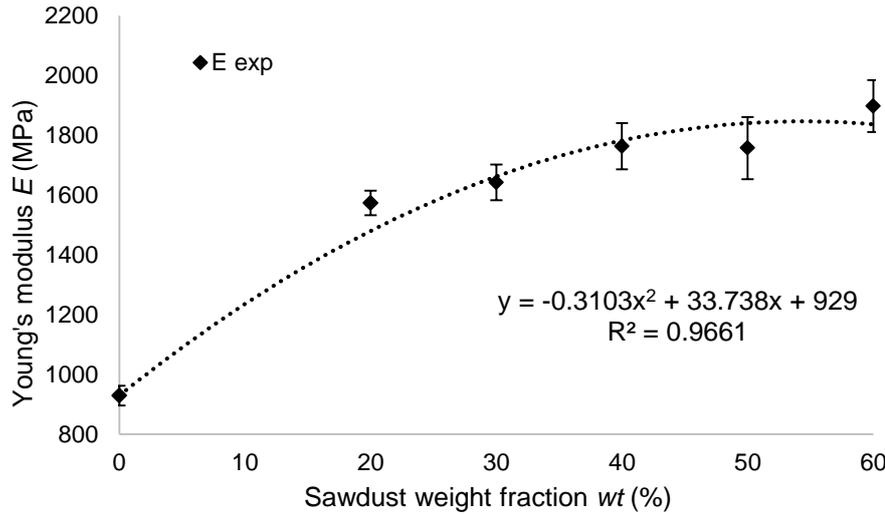


Figure III-2 Module de Young du biocomposite HDPE-bois en fonction de la fraction massique des particules de bois et la droite de tendance

Une droite de tendance est tracée sur la Figure III-2 à partir des données expérimentales du biocomposite HDPE-particules de bois. Une droite passant par le module de Young du polymère HDPE se décrit par une équation quadratique :

$$E_c = 3374wt + E_m - 3103wt^2 \quad \text{Eq. (III.1)}$$

Le coefficient de détermination R^2 est de 0,97 pour cette droite de tendance. Elle décrit parfaitement l'augmentation du module de Young qui stagne après 20 $wt\%$ de bois. Selon Godard *et al.* (2008), les contacts entre particules seraient la raison derrière l'augmentation stable. Ces contacts empêchent l'obtention d'une meilleure progression linéaire du module de Young des biocomposites.

L'équation quadratique se sépare en deux parties. La première est linéaire avec $3374wt + E_m$ et la deuxième que l'on appelle $\gamma = 3103wt^2$ est un facteur de fragilité apportée par le contact des renforts. Le facteur γ augmente avec le taux de renfort, en parallèle avec le nombre de contact entre les renforts. Cette équation quadratique explique l'effet des contacts entre les renforts et permet d'estimer plus précisément le module de Young du biocomposite HDPE-particules de bois.

III.2.2 PET-fibres de chanvre

Le second biocomposite étudié est un PET renforcé par des fibres de chanvre. La matrice thermoplastique a une température de fusion élevée d'environ 250°C. Cette température dépasse bien la température de dégradation thermique des fibres naturelles qui est d'environ 200°C. Afin de la faire descendre et d'assurer un bon mélange entre le PET et les fibres de chanvre, le thermoplastique polycaprolactone (PCL) qui a une température de fusion de 60°C est introduit dans le mélange.

Les fibres de chanvre ont une longueur et un diamètre moyens de 50 mm et 20-25 μm respectivement. Elles sont traitées pour une meilleure stabilité thermique, qui est un préalable pour éviter toute dégradation pendant le malaxage. Le traitement a été effectué avec une solution d'hydroxyde de sodium (NaOH).

Le biocomposite est préparé dans un malaxeur Haake Rheomix 600 à une température de 240°C et une vitesse de rotation de 60 tr/min. Quatre pourcentages de fibres de chanvre sont formulés : 5, 10, 15, et 20 $\text{wt}\%$. Les éprouvettes sont mises en forme par injection à 250°C. Les éprouvettes pour les essais de traction obtenues sont montrées par la Figure III-3.



Figure III-3 Eprouvettes du biocomposite PET-fibres de chanvre

Les propriétés mécaniques du biocomposite sont listées dans le Tableau III-3. On note qu'à seulement 5 $\text{wt}\%$ de fibres de chanvre, le module de Young E du composite augmente de 76% comparé au PET pur. Après, il diminue légèrement avant d'augmenter d'une manière stable qui est d'environ 10% à chaque ajout de fibres. Du fait que les fibres sont longues, les contacts entre les fibres sont inévitables, même à basse fraction massique $\text{wt}\%$. C'est à cause de ces contacts que le composite se fragilise et la valeur de E augmente de façon assez modérée. Selon

Talla *et al.* (2013), il est très difficile de malaxer un PET avec plus de 20 *wt%* de fibres de chanvre. Tandis que la déformation à la rupture ε_R chute brusquement de 40% à 2,6% pour 5 *wt%* de fibres de chanvre. Globalement, on note que les évolutions du module élastique et de la déformation à la rupture sont similaires pour les deux biocomposites à particules de bois et à fibres de chanvre.

| <i>wt</i> (%) | <i>E</i> (MPa) | ε_R (%) |
|---------------|----------------|---------------------|
| 0 | 889 ± 22 | > 40 |
| 5 | 1553 ± 0,1 | 2,6 ± 0,7 |
| 10 | 1509 ± 0,0 | 3,7 ± 0,8 |
| 15 | 1638 ± 0,5 | 2,5 ± 0,8 |
| 20 | 1853 ± 0,0 | 3,3 ± 0,7 |

Tableau III-3 Propriétés mécaniques des biocomposites PET-fibres de chanvre selon Talla *et al.* (2017)

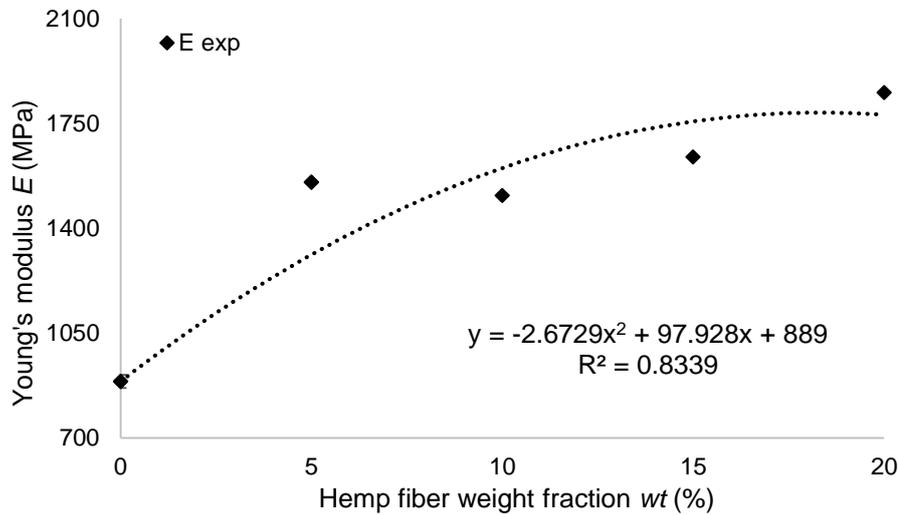


Figure III-4 Module de Young du biocomposite PET-chanvre en fonction de la fraction massique des fibres de chanvre selon Talla *et al.* (2017)

La même stratégie est employée dans l'interprétation des données expérimentales du biocomposite PET-fibres de chanvre. La droite quadratique

passant par le module de Young du polymère PET est décrite par l'équation suivante :

$$E_c = 9793wt + E_m - 26729wt^2 \quad \text{Eq. (III.2)}$$

Soit le coefficient de détermination $R^2 = 0,83$ et le facteur de fragilité apporté par le contact des renforts $\gamma = 26729wt^2$. Comme le cas du HDPE-particules de bois, les contacts entre particules empêchent l'obtention d'une meilleure progression linéaire du module de Young. L'équation quadratique permet de décrire et d'estimer le module de Young du biocomposite PET-fibres de chanvre.

III.2.3 Analyses des données expérimentales

Dans cette partie, nous considérons que le module de Young des biocomposites augmente selon une équation quadratique dû à la fragilité apportée par les contacts fibres/fibres. Pour estimer le module de Young des renforts, nous introduisons une loi de mélanges modifiée qui est développée par Karam (1991) qui tient compte des contacts entre les renforts pour des cas de composites à fibres unidirectionnelles :

$$E_c = E_m(1 - V_f) + E_f\beta V_{eff} \quad \text{Eq. (III.3)}$$

$$\text{soit } V_{eff} = V_f(1 - \psi^2 V_f^2) \quad \text{Eq. (III.4)}$$

Avec E_m et E_f les modules de Young de la matrice et des fibres, V_f la fraction volumique des fibres, β le facteur de correction pour un cas de fibres aléatoires égal à 0,375, V_{eff} la fraction volumique effective des fibres et ψ le facteur de la probabilité d'interaction des fibres. Le paramètre V_{eff} est toujours inférieur à la fraction volumique réelle V_f des fibres. Le paramètre V_{eff} est une expression qui réduit l'efficacité des fibres à rigidifier le composite lors de la présence des contacts fibres/fibres. Il est à noter que le modèle utilise la fraction volumique au lieu de la fraction massique. La fraction volumique est calculée en faisant intervenir la densité de la matrice ρ_m et des renforts ρ_f dans l'équation suivante :

$$V_f = \frac{wt}{wt + (1 - wt)\frac{\rho_f}{\rho_m}} \quad \text{Eq. (III.5)}$$

Pour le biocomposite HDPE-particules de bois, les densités ont été mesurées à 1480 kg/m^3 pour les particules de bois et 950 kg/m^3 pour le HDPE. Les fractions massiques de 20, 30, 40, et 50 *wt%* se traduisent par les fractions volumiques de 0,14, 0,22, 0,30, 0,39 et 0,50. Dans le cas du biocomposite PET-fibres de chanvre, les densités n'ont pas été mesurées. Les densités du PET et des fibres de chanvre sont dans le même ordre de grandeur, donc elles sont considérées égales. Ce sujet est démontré par des références bibliographiques qui sont détaillées dans la section III.3.1.2. Des densités identiques signifient que la fraction massique *wt* n'a pas besoin d'être convertie en fraction volumique V_f .

Nous confrontons ensuite ce modèle de Karam (1991) avec les équations quadratiques (Eq. (III.1) et Eq. (III.2)) des deux biocomposites afin de déterminer le facteur ψ et le module de Young des fibres E_f . Le fittage de ces derniers est montré par les Figure III-5 et Figure III-6. Nous montrons qu'il y a une bonne concordance entre le modèle et les données expérimentales. Les deux paramètres correspondant au fittage sont détaillés dans le Tableau III-4.

| Paramètres | Bois | Chanvre |
|--------------------|-------|---------|
| Facteur ψ | 1,25 | 3,1 |
| Module E_f (MPa) | 12000 | 23000 |

Tableau III-4 Paramètres obtenus par le fittage

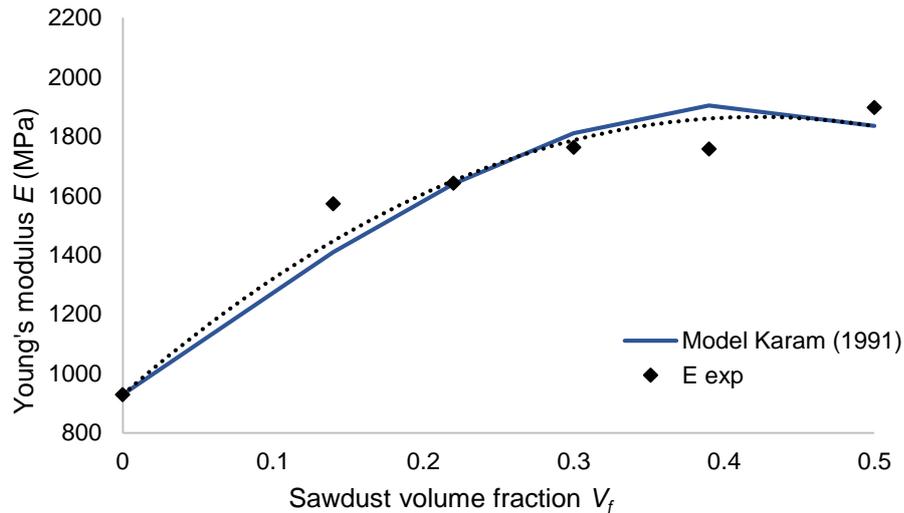


Figure III-5 Fittage du modèle de Karam (1991) et les données expérimentales du HDPE-particules de bois

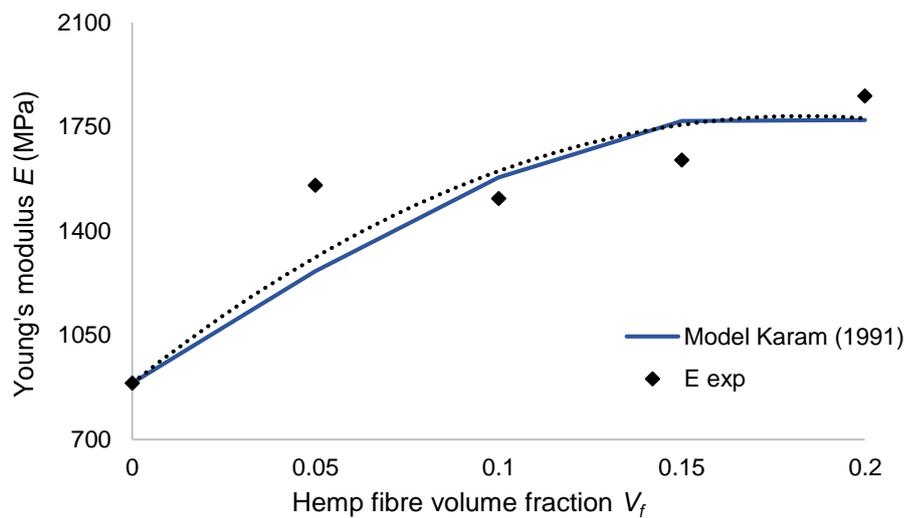


Figure III-6 Fittage du modèle de Karam (1991) et les données expérimentales du PET-fibres de chanvre

Nous constatons que le paramètre ψ pour les fibres de chanvre est plus que le double de celui des particules de bois. Ce fait met en évidence le grand nombre de contact fibres/fibres dans le cas des fibres longues du chanvre. Ces contacts apportent par la suite plus de fragilité au biocomposite PET-fibres de chanvre. A partir du modèle, nous pouvons également estimer les modules de Young des fibres E_f . Pour les particules de bois, le module de 12000 MPa est légèrement plus élevé que dans la littérature alors que le module de 23000 MPa pour les fibres de chanvre correspond aux valeurs dans la littérature.

Effectivement, la fragilité apportée par les contacts fibres/fibres est démontrée par la fraction volumique effective V_{eff} et le facteur ψ . Or, il existe toujours une erreur considérable au plus petit pourcentage de fibres. Cette valeur est de 10% pour le HDPE-particules de bois et de 19% pour le PET-fibres de chanvre. La vérification de ces propriétés est effectuée par l'homogénéisation numérique dans la suite de l'étude.

III.3. Homogénéisation numérique

L'homogénéisation numérique est appliquée pour déterminer les propriétés mécaniques effectives des composites HDPE-particules de bois et PET-fibres de chanvre. Dans cette étude, nous proposons l'homogénéisation numérique des modèles 3D des biocomposites pour déterminer leurs propriétés élastiques effectives. Les résultats numériques sont comparés aux résultats expérimentaux pour la validation des calculs. Le principe de l'homogénéisation est similaire à celui dans le Chapitre II où on commence par la génération des échantillons numériques, suivi par le maillage et finalement les calculs. Différents paramètres sont variés afin d'étudier leurs influences sur les propriétés mécaniques des deux biocomposites.

III.3.1 Génération des modèles 3D

Les échantillons 3D sont générés par DIGIMAT FE, un logiciel polyvalent permettant de générer différents types de microstructures. Les particules de bois et les fibres de chanvre sont orientées et positionnées aléatoirement dans la matrice. La différence principale entre ces deux renforts est le rapport de forme. Pour assurer que les modèles 3D générés sont des VER, des vérifications sur leurs propriétés apparentes sont nécessaires.

III.3.1.1 HDPE-particules de bois

La morphologie des fibres de bois est définie par le Tableau III-1 grâce à l'analyse d'images, avec un rapport de forme de 2. En se basant sur une particule sphérique, la définition du rapport de forme de 2 étire la particule et génère une forme ellipsoïdale (Figure III-7). Les particules ellipsoïdales sont orientées et positionnées aléatoirement dans la matrice. Puisque le pourcentage de bois est assez

élevé, des contacts entre particules sont pris en compte. Pour rester cohérent, tous les modèles sont générés avec des contacts entre particules, même pour les faibles pourcentages où le contact pourrait être évité. Des agrégats peuvent se former mais ils n'influencent pas l'homogénéisation numérique car les calculs sont effectués à l'échelle macroscopique.

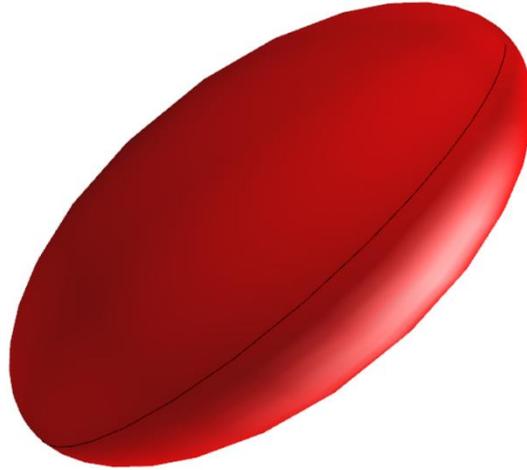


Figure III-7 Modèle numérique d'une particule de bois

Cinq modèles de 20, 30, 40, 50 et 60 *wt%* de particules de bois sont générés. Dans les modèles numériques 3D, la fraction massique *wt%* doit être convertie en fraction volumique V_f . Cette conversion nécessite la densité ρ de chaque matériau qui est de 950 kg/m³ pour le HDPE et 1480 kg/m³ pour les particules de bois. Avec l'Eq. (III.5), nous obtenons alors des valeurs de V_f de 0,14, 0,22, 0,30, 0,39 et 0,50 correspondant aux échantillons expérimentaux. Les différentes microstructures générées sont illustrées par la Figure III-8. On note une bonne dispersion des particules dans la matrice et les agrégats sont seulement visibles dans le cas de pourcentages de particules élevés.

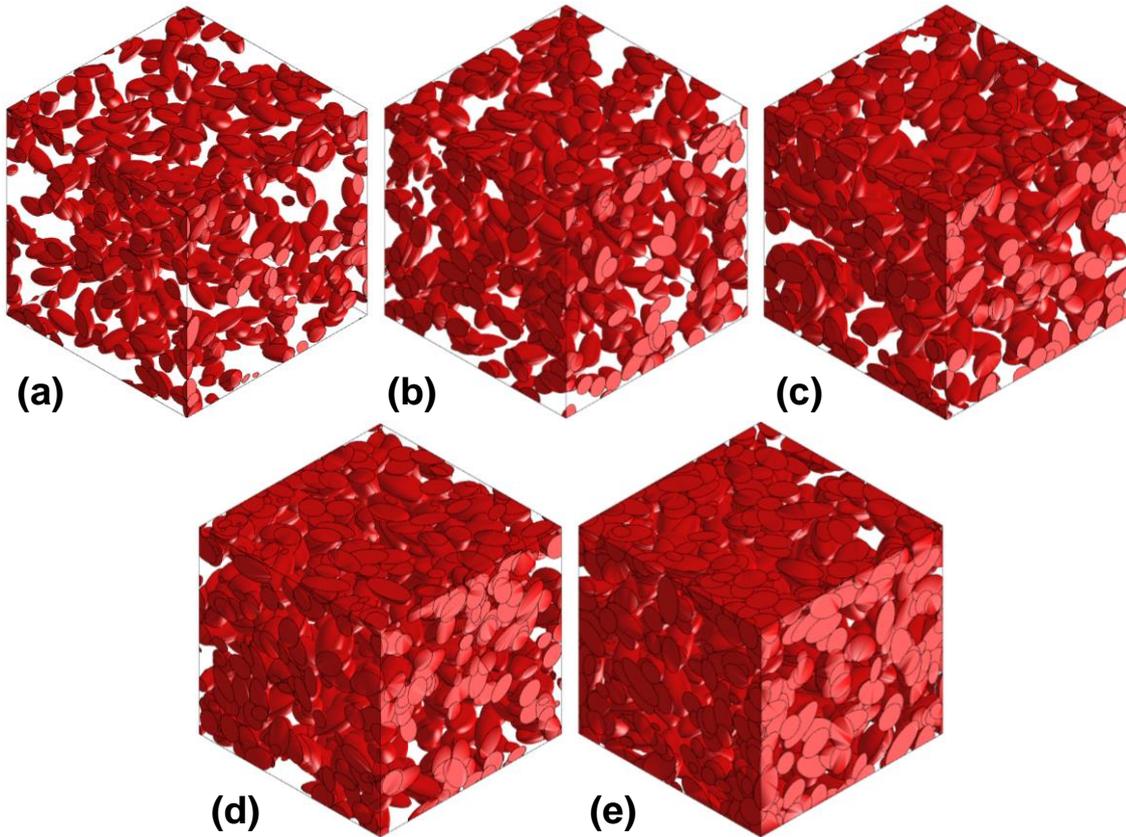


Figure III-8 Microstructures du biocomposite HDPE-particules de bois avec $V_f =$
 (a) 0,14 (b) 0,22 (c) 0,30 (d) 0,39 et (e) 0,50

III.3.1.2 PET-fibres de chanvre

Contrairement aux particules de bois, la morphologie des fibres de chanvre n'a pas été déterminée expérimentalement. Les dimensions moyennes des fibres avant le mélange avec le PET sont 50 mm en longueur et 20-25 μm en diamètre, c'est-à-dire que le rapport de forme est de plus de 2000. Néanmoins, le composite est élaboré par malaxage et moulage par injection. Ces procédés, qui nécessitent des températures et forces de cisaillement élevées, génèrent une réduction importante de la longueur des fibres. Malheureusement, l'étude sur la longueur des fibres après ces procédés n'a pas pu être réalisée. La longueur et le diamètre des fibres seront estimés à partir des mesures faites par d'autres études antérieures.

Peltola *et al.* (2011) ont étudié la distribution de la longueur des fibres de chanvre après un malaxage avec une matrice d'acétate d'amidon. Ils ont trouvé que la longueur des fibres initialement de 12 mm a été réduite à une longueur finale de

0,54 mm. Le diamètre des fibres subit également une réduction considérable, de 0,46 mm à 13 μm . Ces dimensions se traduisent par un rapport de forme de 42 en moyenne. Herrera-Franco et Valadez-González (2005) ont observé une diminution de rapport de forme de 72 à 20 quand les fibres de sisal sont mélangées avec du HDPE. Beckermann and Pickering (2009) ont noté un rapport de forme de 26 pour un biocomposite de PP-fibres de chanvre alors que Keller (2003) ont trouvé une valeur de 23. Quant à Bourmaud and Baley (2007, 2009), ils ont détecté un rapport inférieur d'environ 10 à 11. Pour notre étude, un rapport de forme de 20 est considéré raisonnable pour représenter les fibres après le malaxage et l'injection avec le PET. Contrairement aux particules de bois, les fibres de chanvre générées sont d'une forme cylindrique. Dans le cas des grands rapports de forme, la forme ellipsoïdale n'est pas recommandée car ils créent des extrémités pointues. Ceci posera problème lors du maillage de la microstructure avec des éléments cubiques où la discrétisation ne se fera pas correctement. La Figure III-9 montre la morphologie d'une fibre de chanvre cylindrique avec un rapport de forme de 20.

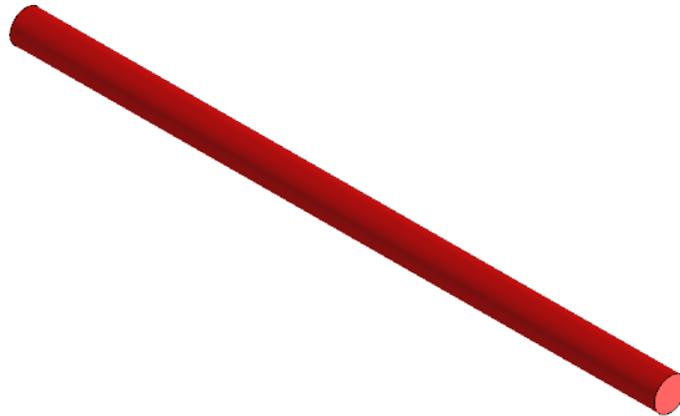


Figure III-9 Modèle numérique d'une fibre de chanvre

Quatre échantillons correspondant aux fractions massiques de 5, 10, 15, et 20 *wt%* de l'étude expérimentale sont générés. Les valeurs de densité ρ précises du PET et des fibres de chanvre n'ont pas été mesurées dans la partie expérimentale. Donc, elles sont issues des résultats obtenus dans la littérature. Le Tableau III-5 liste les différentes densités du PET et des fibres de chanvre ainsi que leurs références.

| Matériau | Densité (kg/m ³) | Références |
|-------------------|------------------------------|-------------------------------|
| PET | 1380 | Oromiehie and Meldrum (1998) |
| | 1300 | Cobbs et Burton (1953) |
| | 1340 | Madsen <i>et al.</i> (2007) |
| | 1330 | Michaels <i>et al.</i> (1963) |
| Fibres de chanvre | 860 | Oza <i>et al.</i> (2011) |
| | 1248 | Lu and Oza (2013) |
| | 1070 | Bodros <i>et al.</i> (2007) |
| | 1140 | Dhakal <i>et al.</i> (2007) |
| | 1200 | Suardana <i>et al.</i> (2011) |
| | 1580 | Thygesen <i>et al.</i> (2007) |

Tableau III-5 Densités du PET et des fibres de chanvre

Puisque les densités ρ du PET et des fibres de chanvre sont dans le même ordre de grandeur, une valeur de 1300 kg/m³ est attribuée aux deux matériaux dans cette étude. Dans ce cas, aucune conversion de la fraction massique w_t en fraction volumique V_f n'est nécessaire. Nous obtenons alors des valeurs de V_f de 0,05, 0,10, 0,15 et 0,20. Les fibres de chanvre cylindriques avec un rapport de forme de 20 sont orientées et positionnées aléatoirement dans la matrice. Les microstructures du biocomposite PET-fibres de chanvre sont montrées par la Figure III-10. D'une première vue, les fibres de chanvre semblent moins dispersées que les particules de bois. Dû à la nature aléatoire de ces fibres longues, les agrégats sont plus visibles avec des zones qui ne sont pas remplies par les fibres. La validité des microstructures numériques est nécessaire pour ce biocomposite et elle est faite dans la Section III.3.3.

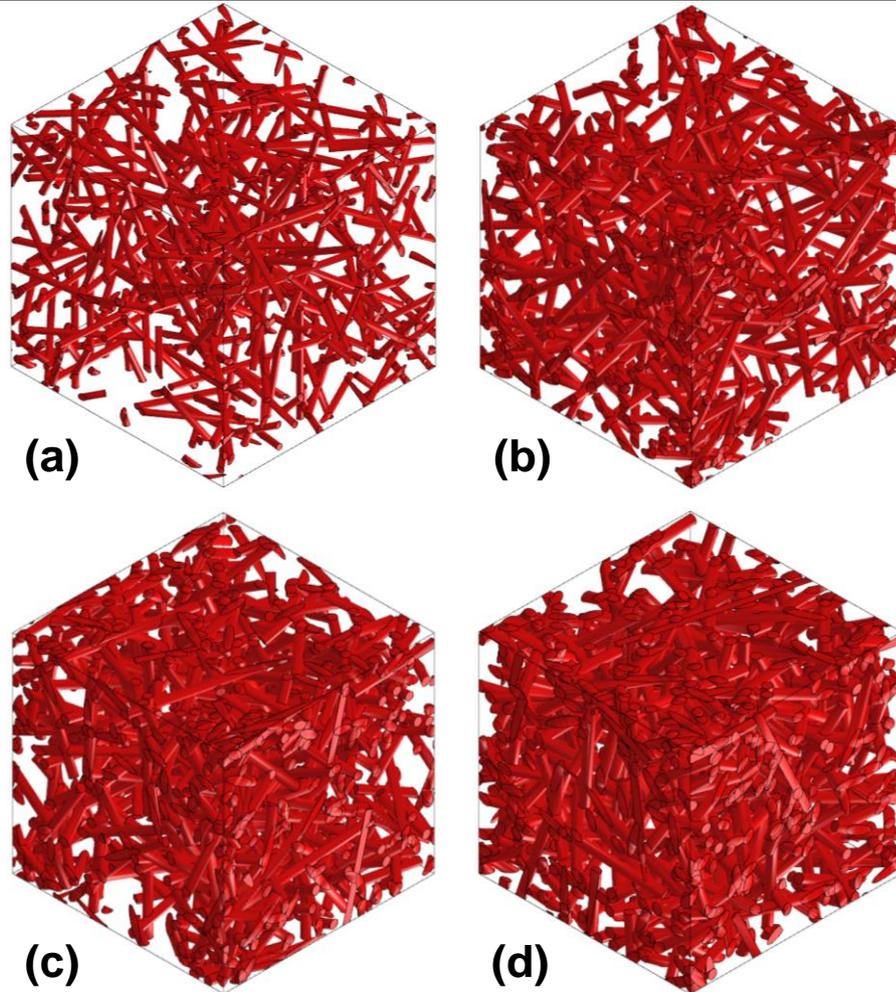


Figure III-10 Microstructures du biocomposite PET-fibres de chanvre avec $V_f =$
(a) 0,05 (b) 0,10 (c) 0,15 et (d) 0,20

III.3.2 Maillage des modèles 3D

Le maillage voxel composé d'éléments finis cubiques est sélectionné pour cette étude. Avec cette technique, un petit nombre d'éléments suffit pour déterminer les propriétés effectives d'un matériau hétérogène. Les éléments cubiques assurent aussi que le nombre de nœuds est identique sur toutes les faces du VER, ce qui est une caractéristique importante pour appliquer les conditions aux limites périodiques. La Figure III-11 (a) montre le maillage voxel sur la microstructure du biocomposite HDPE-particules de bois alors que la Figure III-11 (b) montre seulement les particules qui sont maillées dans la microstructure.

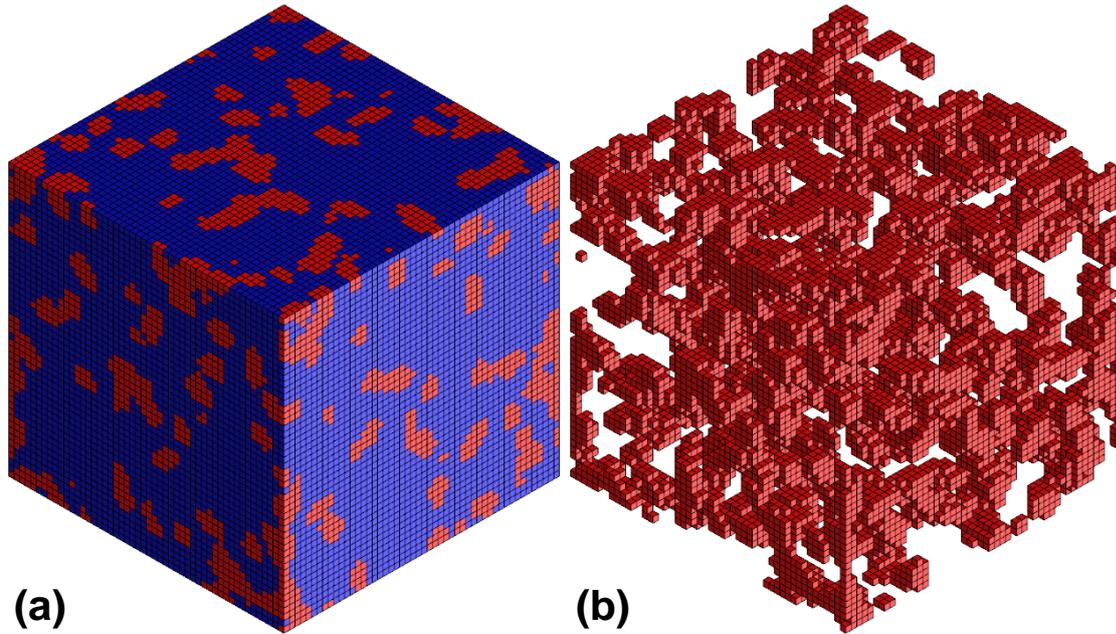


Figure III-11 Maillage voxel sur le biocomposite HDPE-particules de bois (a) avec et (b) sans la matrice

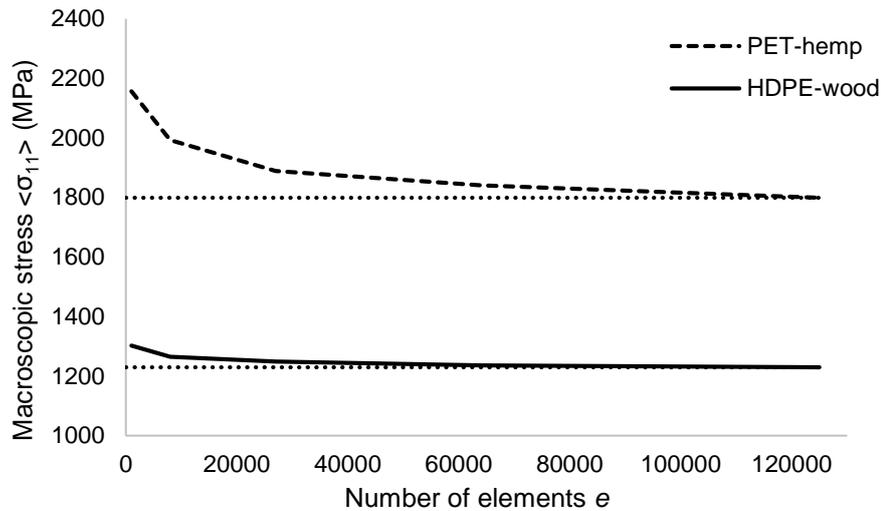


Figure III-12 Contrainte macroscopique $\langle \sigma_{11} \rangle$ du biocomposite HDPE-particules de bois et PET-fibres de chanvre en fonction du nombre d'éléments e

Pour déterminer le nombre d'éléments e optimal, une étude de densité de maillage est réalisée. Dans ce cas, une traction simple est appliquée sur la microstructure maillée. La contrainte macroscopique $\langle \sigma_{11} \rangle$ dans la direction de x est calculée en faisant varier le nombre d'éléments. Plusieurs configurations de maillage ont été testées en augmentant le nombre d'éléments à chaque fois. La Figure III-12

illustre l'évolution de la contrainte macroscopique $\langle \sigma_{11} \rangle$ en fonction du nombre d'éléments e , pour les microstructures correspondant aux deux biocomposites étudiés. Dans le cas du biocomposite HDPE-particules de bois, la valeur de $\langle \sigma_{11} \rangle$ tend à se stabiliser à partir de 27000 éléments (soit 30^3 éléments). Néanmoins, cette étude prévoit de faire varier le contraste entre propriétés et le nombre de particules. Ainsi, le maillage le plus dense avec un nombre d'éléments e de 50^3 éléments est sélectionné pour le biocomposite HDPE-particules de bois. Le même raisonnement est appliqué pour le biocomposite PET-fibres de chanvre. Dans la Figure III-13 et la Figure III-14, on remarque les éléments cubiques qui discrétisent les particules et les fibres. Il est à noter que le rapport de forme et la fraction volumique ne varie pas des valeurs imposées même si le maillage apparaît grossier.

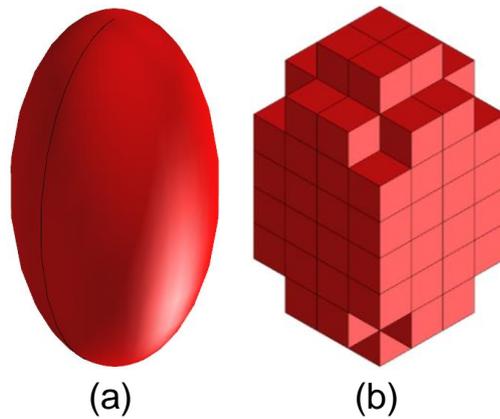


Figure III-13 (a) Zoom sur une particule de bois et (b) la particule maillée

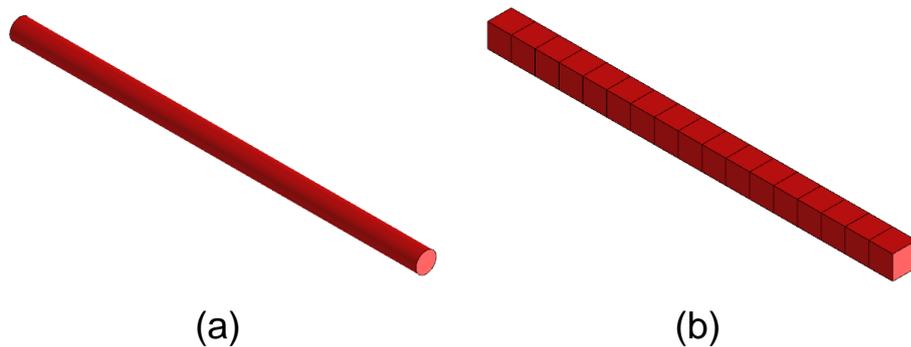


Figure III-14 (a) Zoom sur une fibre de chanvre et (b) la fibre maillée

III.3.3 Conditions des calculs

Les calculs effectués dans cette étude sont élastiques linéaires. Pour obtenir le module de Young des biocomposites, les propriétés calculées par l'homogénéisation sont le module de compression k et de cisaillement μ . Ces modules élastiques en 3D sont obtenus en appliquant les tenseurs de déformation $\underline{\underline{E}}$ de cette manière :

$$\underline{\underline{E}}_k = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}, \quad \underline{\underline{E}}_\mu = \begin{bmatrix} 0 & 1/2 & 0 \\ 1/2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad \text{Eq. (III.6)}$$

Ensuite, les modules effectifs k_{eff} et μ_{eff} sont calculés par ces équations :

$$k_{eff} = \text{trace} \langle \underline{\underline{\sigma}} \rangle / 9 \quad \text{Eq. (III.7)}$$

$$\mu_{eff} = \langle \sigma_{12} \rangle \quad \text{Eq. (III.8)}$$

A partir de ces modules effectifs, le module de Young effectif E_{eff} est obtenu par la relation suivante :

$$E_{eff} = \frac{9k_{eff}\mu_{eff}}{3k_{eff} + \mu_{eff}} \quad \text{Eq. (III.9)}$$

Pour obtenir des calculs précis, les microstructures 3D générées doivent satisfaire les conditions d'un Volume Élémentaire Représentatif (VER). Autrement dit, les microstructures doivent être assez grandes et contenir assez d'hétérogénéités pour que les calculs effectués avec différentes conditions aux limites génèrent les mêmes résultats. Pour ce faire, nous avons fait varier le nombre de fibres N dans le modèle 3D et avons calculé les modules k et μ avec les conditions aux limites KUBC et PBC. Un grand contraste de 100 entre les propriétés des phases est imposé. La différence entre les deux calculs ou l'erreur relative doit rester inférieure à 10% pour que le modèle soit considéré comme un VER. L'erreur relative est obtenue par cette équation, avec Z la propriété calculée :

$$\Delta Z(\%) = 100 \times \frac{Z_{KUBC} - Z_{PBC}}{Z_{PBC}} \quad \text{Eq. (III.10)}$$

Les résultats des calculs sont détaillés dans le Tableau III-6 pour les deux biocomposites concernés. Dans les deux cas, l'erreur Δk présente de bonnes valeurs dès le plus petit nombre de fibres N . Le fait que le module k soit une moyenne des contraintes dans les trois directions a possiblement contribué aux petites erreurs. Quant à l'erreur $\Delta\mu$, elle est grande quand le nombre de fibres N est petit et diminue quand N augmente. Contrairement au module k , le module μ est susceptible d'être influencé par les directions des fibres. L'erreur $\Delta\mu$ dans le cas des particules de bois est acceptable avec une erreur minimum de 6%. Or, l'effet de direction est plus prononcé dans le cas des fibres de chanvre. On note une erreur minimum de 10% qui est déjà à la limite imposée. Or, on a étudié ici des paramètres extrêmes avec un grand contraste et une fraction volumique V_f maximum pour les deux biocomposites. La suite de l'étude qui concerne des contrastes plus modérés ne posera aucun problème de convergence. En conclusion, N de 300 est choisi pour les deux biocomposites afin d'obtenir les résultats les plus précis.

| | N | 30 | 50 | 10 | 200 | 300 |
|--------------------|-----------------|-------|-------|-------|-------|-------|
| <i>HDPE-bois</i> | Δk (%) | 1,15 | 1,58 | 1,20 | 1,03 | 1,06 |
| | $\Delta\mu$ (%) | 9,91 | 10,51 | 7,14 | 7,45 | 5,85 |
| <i>PET-chanvre</i> | Δk (%) | 4,34 | 3,22 | 3,28 | 3,18 | 3,04 |
| | $\Delta\mu$ (%) | 14,18 | 10,35 | 10,31 | 10,09 | 11,08 |

Tableau III-6 Evolution des erreurs relatives en fonction du nombre de particules

Dans la suite des calculs, seules les conditions aux limites de PBC seront utilisées.

III.3.4 Propriétés des renforts

Les propriétés de chaque phase du biocomposite (particules de bois, fibres de chanvre, PET, HDPE) sont nécessaires pour les calculs numériques. Dans notre cas, il s'agit des propriétés élastiques, à savoir le module de Young E et le coefficient de Poisson ν . Dans cette étude, les valeurs de ces propriétés mécaniques sont issues

des résultats obtenus dans des travaux antérieures. Les propriétés des thermoplastiques PET et HDPE sont obtenues à partir des données expérimentales. Le Tableau III-7 liste les propriétés mécaniques choisies pour chaque phase des biocomposites étudiés dans ce travail. Le coefficient de Poisson est fixé à 0,3 pour les deux types de renfort alors qu'il est fixé à 0,4 pour les polymères. Dans un premier temps, nous considérons le plus petit module de Young des renforts E_f pour l'homogénéisation numérique.

| E_f de bois | | E_f de chanvre | |
|---------------|----------------------------|------------------|---------------------------------|
| 6 GPa | Record (1914) | 15 GPa | Placet (2009) |
| 8,1 GPa | | 25 GPa | Beckermann and Pickering (2008) |
| 10 GPa | Green <i>et al.</i> (1999) | 45 GPa | Bourmaud and Baley (2009) |
| 11,1 GPa | | 70 GPa | Wambua <i>et al.</i> (2003) |

Tableau III-7 Différentes propriétés des particules de bois et des fibres de chanvre

III.4. Résultats et discussions

III.4.1 HDPE-particules de bois

Les résultats de l'essai de traction et de l'homogénéisation numérique ainsi que les erreurs relatives entre les deux approches sont listés dans le Tableau III-8. L'approche numérique E_{num} semble assez loin des résultats expérimentaux E_{exp} . L'erreur relative ΔE minimum est de 6% alors que son maximum est de 26%. Les calculs numériques sous-estiment la rigidité du composite au début et la surestiment quand le pourcentage de bois augmente. Sur la Figure III-15 qui montre l'évolution de E_{num} en fonction de la fraction volumique V_f , on observe que l'erreur minimum est atteinte quand $V_f = 0,30$. Ceci montre une mauvaise cohérence entre les résultats expérimentaux et numériques. Il est à noter aussi que la progression de la valeur de E_{exp} n'est pas la même que celle de E_{num} . Les résultats numériques augmentent linéairement avec le pourcentage de particules alors que les résultats

expérimentaux augmentent selon une fonction quadratique. La fragilité apportée par les contacts fibres/fibres ne peut pas être simulée numériquement dans ce cas élastique statique. Ceci explique la faible cohérence entre les résultats numériques E_{num} et expérimentaux E_{exp} .

| wt (%) | V_f | E_{exp} (MPa) | E_{num} (MPa) | ΔE (%) |
|----------|-------|-----------------|-----------------|----------------|
| 0 | 0 | 929 | 929 | 0 |
| 20 | 0,14 | 1573 | 1210 | 23 |
| 30 | 0,22 | 1642 | 1391 | 15 |
| 40 | 0,30 | 1763 | 1650 | 6 |
| 50 | 0,39 | 1757 | 1994 | 14 |
| 60 | 0,50 | 1897 | 2399 | 26 |

Tableau III-8 Comparaison des résultats expérimentaux et numériques du biocomposite HDPE-particules de bois

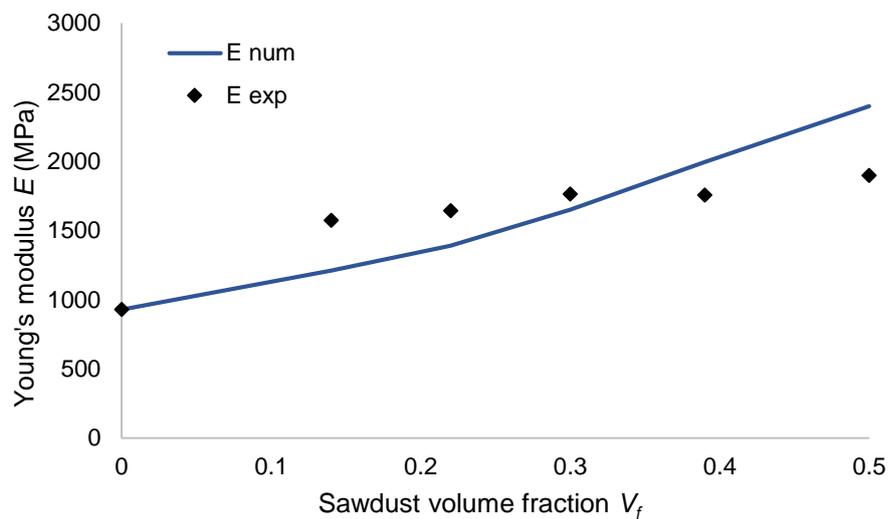


Figure III-15 Module de Young E du composite HDPE-particules de bois en fonction de la fraction volumique du bois V_f

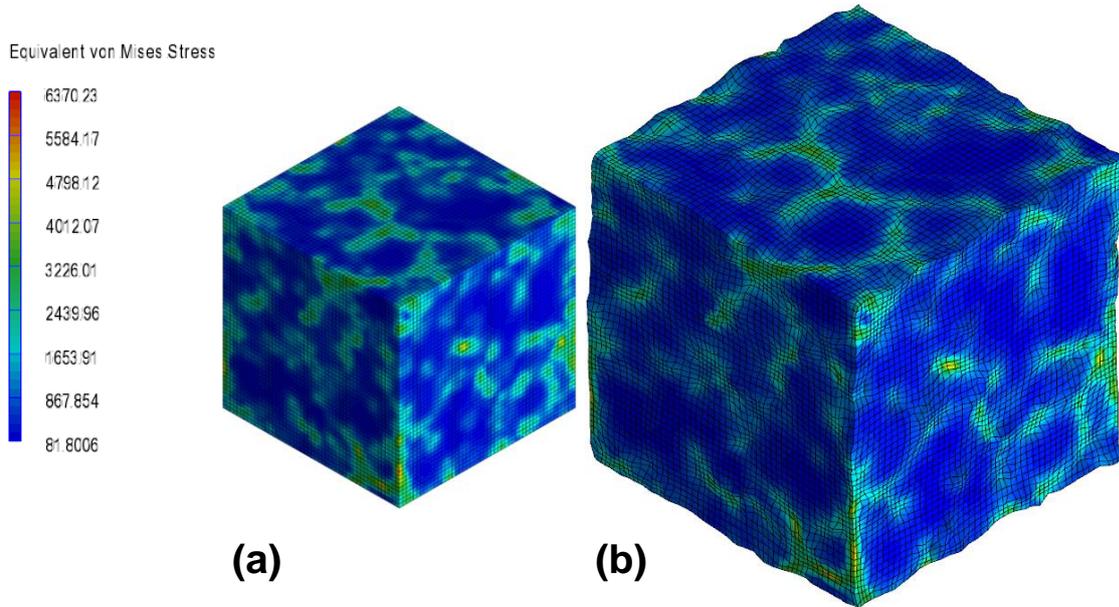


Figure III-16 (a) Microstructure du HDPE-bois et (b) sa déformée après les calculs du module de compression k

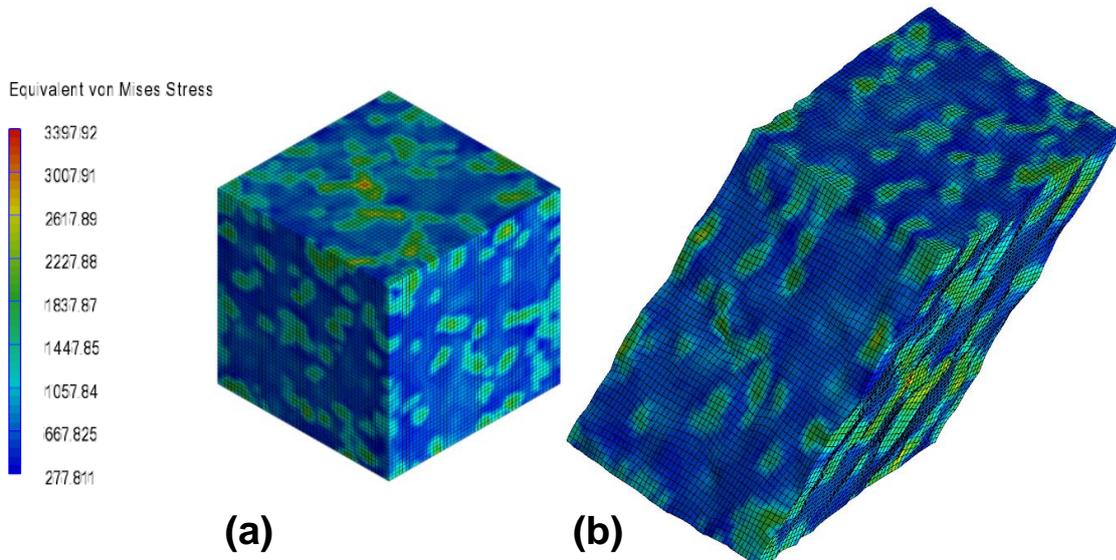


Figure III-17 (a) Microstructure du HDPE-bois et (b) sa déformée après les calculs du module de cisaillement μ

La Figure III-16 et la Figure III-17 montrent la distribution des contraintes équivalentes de von Mises dans la microstructure après les calculs de module de compression k et de cisaillement μ . Effectivement, les contraintes sont plus élevées sur les renforts, signifiant que les sollicitations sont portées par les particules de bois. Les déformées ont montré que la microstructure se dilate selon les trois

directions après les calculs du module k et elle est cisailée après les calculs du module μ .

Pour se rapprocher de la réalité, les résultats numériques E_{num} devraient converger avec les résultats expérimentaux E_{exp} à basse fraction volumique V_f où les contacts fibres/fibres sont au minimum. Cette convergence pourrait être obtenue en faisant varier les propriétés des particules de bois.

III.4.2 PET-fibres de chanvre

| wt (%) | V_f | E_{exp} (MPa) | E_{num} (MPa) | ΔE (%) |
|----------|-------|-----------------|-----------------|----------------|
| 0 | 0 | 889 | 889 | 0 |
| 5 | 0,05 | 1553 | 1080 | 30 |
| 10 | 0,10 | 1509 | 1308 | 13 |
| 15 | 0,15 | 1638 | 1599 | 2 |
| 20 | 0,20 | 1853 | 1847 | 0 |

Tableau III-9 Comparaison des résultats expérimentaux et numériques du composite PET-fibres de chanvre

Le Tableau III-9 détaille les résultats des essais expérimentaux et des calculs numériques ainsi que les erreurs relatives. L'homogénéisation numérique sur le biocomposite PET-fibres de chanvre a montré une augmentation de la valeur de E_{num} plus stable sur toute la fraction volumique V_f , contrairement aux résultats expérimentaux E_{exp} . Ceci a donné suite à une forte erreur relative ΔE à basse V_f , où on observe un maximum de 30%. Ensuite, l'erreur ΔE diminue jusqu'à ce que la valeur de E_{num} se converge vers celle de E_{exp} quand la fraction volumique V_f atteint 0,20. Dans ce cas, les résultats numériques E_{num} sont seulement cohérent aux résultats expérimentaux E_{exp} à haute V_f . Sur la Figure III-18, on observe plus clairement la divergence entre les deux approches. De même que le cas du HDPE-particules de bois, le module de Young expérimental E_{exp} du biocomposite PET-

fibres de chanvre suit une fonction quadratique. La progression des résultats numériques E_{num} est linéaire et ne simule pas la fragilité causée par les contacts fibres/fibres. La convergence qui devrait se faire à basse fraction volumique n'a pas eu lieu. Ces observations sont similaires que l'homogénéisation numérique sur le biocomposite HDPE-particules de bois. Puisque les propriétés mécaniques des fibres de chanvre sont également inconnues, une étude paramétrique faisant varier le module de Young des fibres E_f est effectuée.

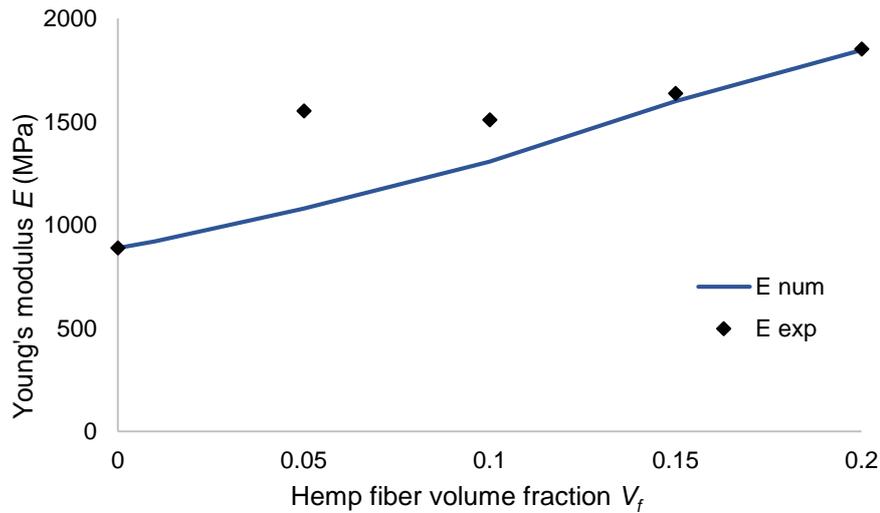


Figure III-18 Module de Young E du composite PET-fibres de chanvre en fonction de la fraction volumique du bois V_f

Les mêmes observations sur les contraintes équivalentes de von Mises sont montrées par la Figure III-19 et la Figure III-20 dans le cas du biocomposite PET-fibres de chanvre. Les sollicitations sont toujours portées par les fibres qui possèdent une meilleure rigidité que le PET. Les déformées après les calculs des deux modules sont identiques à celles du biocomposite HDPE-particules de bois.

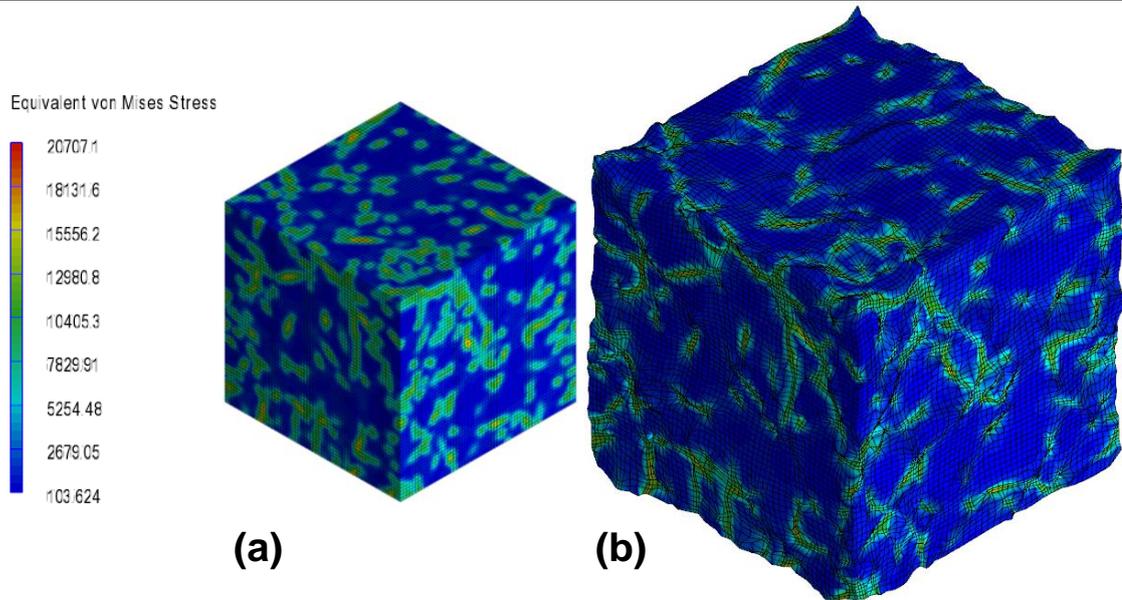


Figure III-19 Contrainte équivalente de von Mises sur la (a) microstructure du PET-chanvre et (b) sa déformée après les calculs du module de compression k

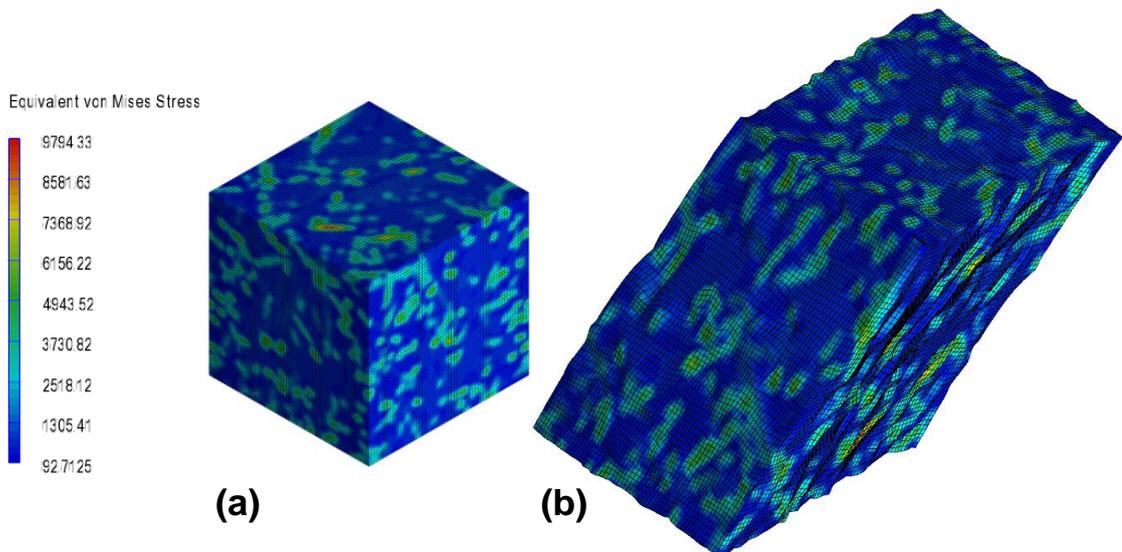


Figure III-20 Contrainte équivalente de von Mises sur la (a) microstructure du PET-chanvre et (b) sa déformée après les calculs du module de cisaillement μ

III.4.3 Etude paramétrique

Dans cette partie, nous proposons une étude paramétrique pour évaluer la variabilité du module de Young des fibres E_f en fonction de ses différentes valeurs issues des travaux antérieurs. Nous observons l'effet de cette variation sur les propriétés mécaniques des deux biocomposites. Le Tableau III-7 dans la Section

III.3.4 donne les huit valeurs de E_f retenues pour cette étude : de 6 à 11,1 GPa pour les particules de bois et de 15 à 70 GPa pour les fibres de chanvre.

| V_f | ΔE (%) | | | |
|-------|----------------|-----------------|----------------|----------------|
| | $E_f = 6$ GPa | $E_f = 8,1$ GPa | $E_f = 10$ GPa | $E_f = 11$ GPa |
| 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| 0,14 | 23 | 20 | 18 | 17 |
| 0,22 | 15 | 10 | 7 | 5 |
| 0,30 | 6 | 2 | 9 | 12 |
| 0,39 | 14 | 29 | 41 | 47 |
| 0,50 | 26 | 48 | 65 | 74 |

Tableau III-10 Erreurs relatives entre le calcul numérique avec différents E_f et les données expérimentales du biocomposite HDPE-particules de bois

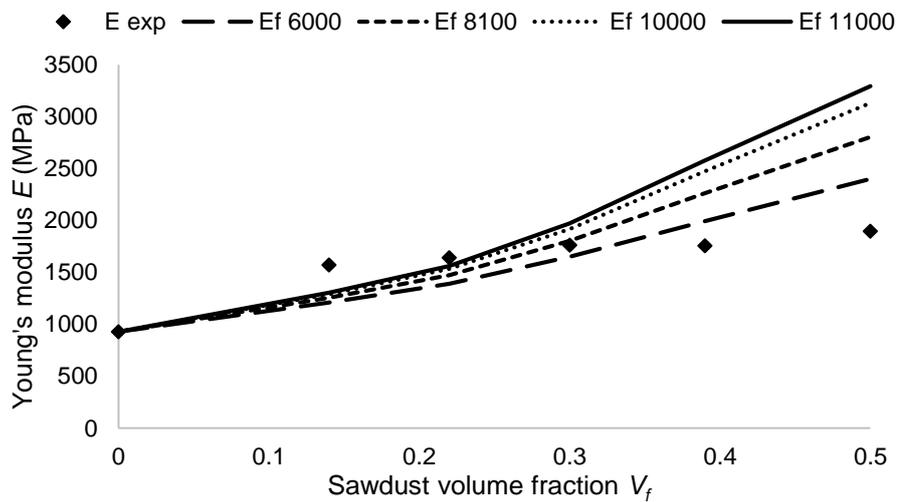


Figure III-21 Progression de E_{num} du biocomposite HDPE-particules de bois calculés avec différents E_f

Pour mieux analyser les résultats numériques obtenus des différentes valeurs de E_f , seules les erreurs relatives ΔE entre les résultats numériques E_{num} et

expérimentaux E_{exp} sont listées dans le Tableau III-10 et le Tableau III-11. La représentation graphique des résultats est illustrée dans la Figure III-21 et Figure III-22. Pour les deux biocomposites, la variation du module E_f réduit peu l'écart entre les valeurs de E_{num} et de E_{exp} à basse fraction volumique V_f . Or, on observe une convergence pour d'autres valeurs de V_f . Néanmoins, une convergence totale n'est pas obtenue. La progression des résultats numériques n'est toujours pas la même que celle des résultats expérimentaux. En comparant les différentes erreurs relatives ΔE obtenues, la valeur de E_f qui donne les meilleurs résultats est celle de 6 GPa pour le HDPE-particules de bois et de 15 GPa pour le PET-fibres de chanvre. Il apparaît que la convergence à basse fraction volumique V_f qui représente mieux la réalité n'est pas obtenue en faisant varier le module de Young des renforts E_f . En fait, les valeurs expérimentales E_{exp} sont toujours supérieures quel que soit la valeur de E_f . Il est possible que ce module de Young élevé dans les deux biocomposites soit contribué par d'autres facteurs à la fois physiques et possiblement chimiques.

| | ΔE (%) | | | |
|-------|----------------|----------------|----------------|----------------|
| V_f | $E_f = 15$ GPa | $E_f = 25$ GPa | $E_f = 45$ GPa | $E_f = 70$ GPa |
| 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| 0,05 | 30 | 27 | 21 | 15 |
| 0,10 | 13 | 4 | 11 | 25 |
| 0,15 | 2 | 15 | 43 | 74 |
| 0,20 | 0 | 20 | 53 | 89 |

Tableau III-11 Erreurs relatives entre le calcul numérique avec différents E_f et les données expérimentales du biocomposite PET-fibres de chanvre

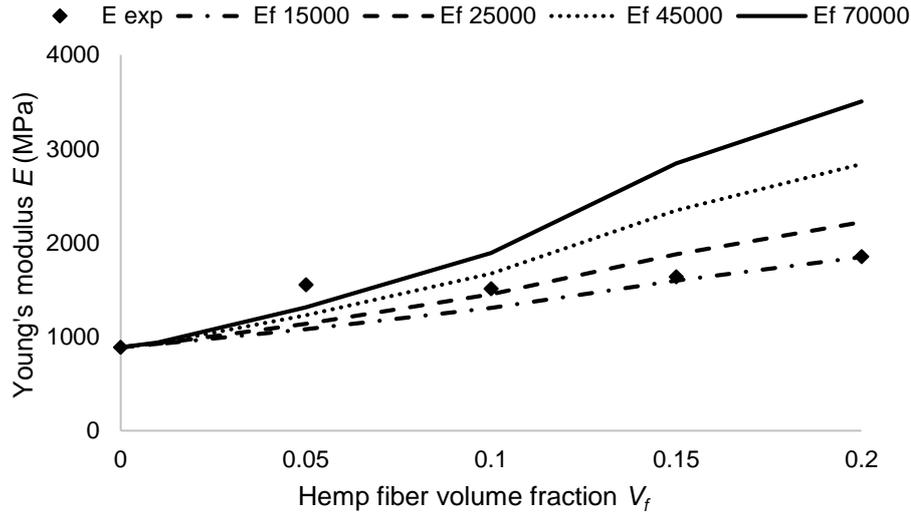


Figure III-22 Progression de E_{num} du biocomposite PET-fibres de chanvre calculés avec différents E_f

L'écart entre les résultats numériques et expérimentaux pourrait être expliqué par plusieurs facteurs. Premièrement, l'orientation des fibres dans la matrice. En effet, le mélange des fibres et de la matrice est réalisé dans un malaxeur qui ensuite extrude le composé. L'extrusion est à priori un procédé qui n'influence pas l'orientation des fibres. Les fibres de chanvre et les particules de bois sont considérées aléatoires à ce stade. Mais, les éprouvettes du biocomposite PET-fibres de chanvre sont fabriquées par injection. Ce procédé influence beaucoup l'orientation des fibres où les fibres suivent la direction de l'écoulement de la matrice. Par conséquent, les fibres naturelles dans cette étude pourraient être orientées dans la direction de la traction au lieu d'être orientées aléatoirement.

Deuxièmement, l'existence de l'interphase sur l'interface matrice/fibres. Cette interphase enveloppe les fibres et possède des propriétés qui sont entre celles des fibres et de la matrice. Pour de grands contrastes, une grande plage de propriétés de l'interphase est possible. Le cas d'une interphase qui est aussi rigide que les renforts serait avantageux au composite et augmenterait sa rigidité. L'épaisseur variable de l'interphase pourrait également influencer les propriétés du composite.

III.4.4 Orientation des fibres

La fabrication des composites influence beaucoup l'orientation des fibres. Les deux biocomposites PET-fibres de chanvre et HDPE-particules de bois sont mélangés dans un malaxeur et ensuite extrudée. Ces deux procédés assurent un bon mélange et une orientation aléatoire des fibres. Ensuite, les éprouvettes pour l'essai de traction sont élaborées par deux types de procédés. Les éprouvettes du biocomposite HDPE-particules de bois sont préparées par thermocompression alors que celles du biocomposite PET-fibres de chanvre sont préparées par injection. Dans un premier temps, le procédé d'injection fond les pastilles et ensuite pousse le composé vers le moule. Cette force conduit les fibres à suivre la direction de l'écoulement du polymère fondu. Ce phénomène est expliqué en détail par Vincent *et al.* (1988) et Trevelyan et Mason (1951). Dans le cas des fibres naturelles, des études antérieures par Ausias *et al.* (2013) et Peltola *et al.* (2011) ont montré la distribution d'orientation des fibres causée par le procédé d'injection. Les différentes orientations des fibres causées par le procédé d'injection sont montrées par la Figure III-23.

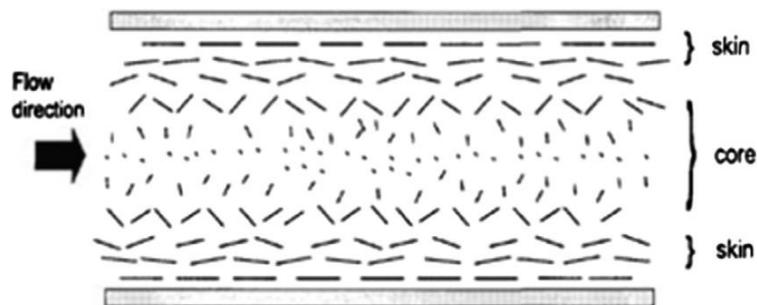


Figure III-23 Différentes orientation des fibres dans un composite injecté selon Ho *et al.* (2012)

Les fibres naturelles sont toutefois plus souples que les fibres synthétiques comme les fibres de verre. Elles sont susceptibles de se tordre pendant le malaxage et l'injection. Peltola *et al.* (2011) ont observé les fibres de chanvre et de lin qui sont majoritairement orientées selon la direction de l'injection. Effectivement, les fibres sont tordues. Pour déterminer l'orientation de chaque fibre, ils ont mesuré le rapport de forme des fibres. Un rapport de forme plus élevé signifie la direction de la fibre. Ce rapport de forme n'est pas le vrai rapport de forme des fibres mais un

moyen pour déterminer la direction privilégiée par les fibres qui sont tordues dans tous les sens. Ce phénomène pourrait expliquer le comportement de nos biocomposites PET-fibres de chanvre injectés. Pour observer l'effet de l'orientation des fibres sur les propriétés mécaniques du biocomposite, les fibres dans cette partie de notre étude sont alignées pour tous les pourcentages de fibres.

La même méthode de génération de modèle 3D avec DIGIMAT FE est utilisée ici. Les dimensions des fibres sont gardées identiques aux cas précédents. Pour cette étude, les fibres sont considérées parfaitement alignées. On peut observer plus facilement l'effet du rapport de forme sur les propriétés mécaniques lorsque les fibres sont alignées. Ces nouveaux modèles sont générés selon les mêmes V_f que le cas précédent. Les modules de Young des fibres E_f sont également variés selon le Tableau III-7. La Figure III-24 montre les deux biocomposites avec des renforts complètement alignés.

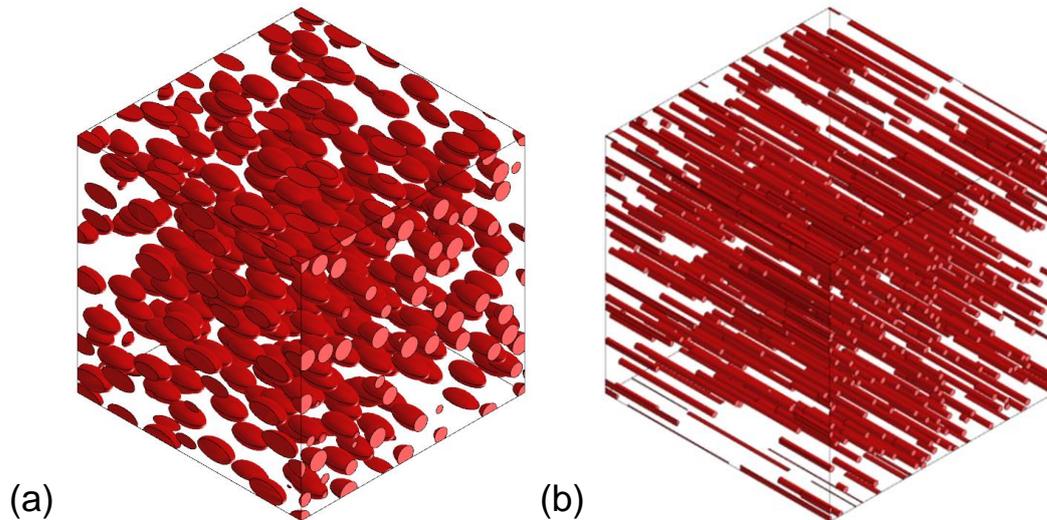


Figure III-24 (a) Particules de bois et (b) fibres de chanvre parfaitement alignées

Comme le cas précédent, seule les erreurs relatives ΔE sont affichées dans le Tableau III-12 et le Tableau III-13 pour une meilleure interprétation des résultats des calculs. A première vue, les calculs numériques semblent très loin de résultats expérimentaux avec l'erreur ΔE allant jusqu'à plus de 400%. Or, les résultats les plus intéressants se trouvent à basse fraction volumique V_f . Pour les deux biocomposites, la convergence est obtenue même pour les petits contrastes des propriétés. Avec l'alignement des fibres, l'erreur ΔE à la plus petite V_f ont été réduite à un minimum de 10% pour le HDPE-particules de bois et 3% pour le PET-

fibres de chanvre. Effectivement, on observe une meilleure cohérence entre les résultats numériques E_{num} et expérimentaux E_{exp} dans le cas des fibres alignées à basse fraction volumique V_f . Or, cette cohérence disparaît quand V_f augmente. On observe une erreur ΔE maximum de 109% et 448% pour le HDPE-particules de bois et PET-fibres de chanvre respectivement.

| V_f | ΔE (%) | | | |
|-------|-----------------------|-------------------------|------------------------|------------------------|
| | $E_f = 6 \text{ GPa}$ | $E_f = 8,1 \text{ GPa}$ | $E_f = 10 \text{ GPa}$ | $E_f = 11 \text{ GPa}$ |
| 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| 0,14 | 18 | 14 | 11 | 10 |
| 0,22 | 8 | 0 | 5 | 8 |
| 0,30 | 3 | 15 | 24 | 28 |
| 0,39 | 26 | 47 | 64 | 72 |
| 0,50 | 42 | 72 | 96 | 109 |

Tableau III-12 Erreurs relatives entre le calcul numérique et les données expérimentales du biocomposite HDPE-particules de bois alignées

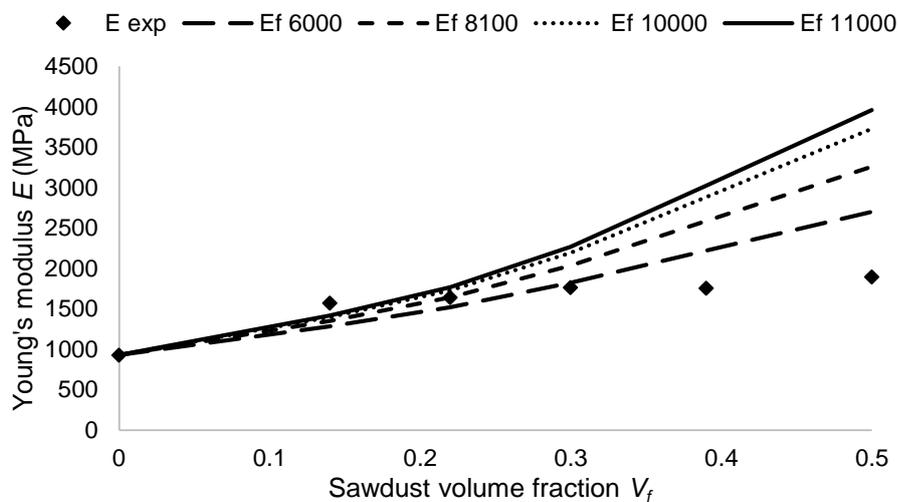


Figure III-25 Progression de E_{num} du biocomposite HDPE-particules de bois aligné

Le grand rapport de forme des fibres de chanvre a apporté une meilleure rigidité au biocomposite lorsqu'elles sont alignées. Une augmentation nette est observée en comparant la Figure III-26 et la Figure III-22. Cet effet de rapport de forme est moins prononcé dans le cas des particules de bois. Le rapport de forme de 2 augmente peu le module de Young du biocomposite. Effectivement, l'effet de rapport de forme est observé dans cette partie.

| V_f | ΔE (%) | | | |
|-------|------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|
| | $E_f = 15 \text{ GPa}$ | $E_f = 25 \text{ GPa}$ | $E_f = 45 \text{ GPa}$ | $E_f = 70 \text{ GPa}$ |
| 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| 0,05 | 3 | 18 | 51 | 82 |
| 0,10 | 40 | 85 | 158 | 232 |
| 0,15 | 66 | 129 | 235 | 344 |
| 0,20 | 81 | 160 | 299 | 448 |

Tableau III-13 Erreurs relatives entre le calcul numérique et les données expérimentales du biocomposite PET-fibres de chanvre alignées

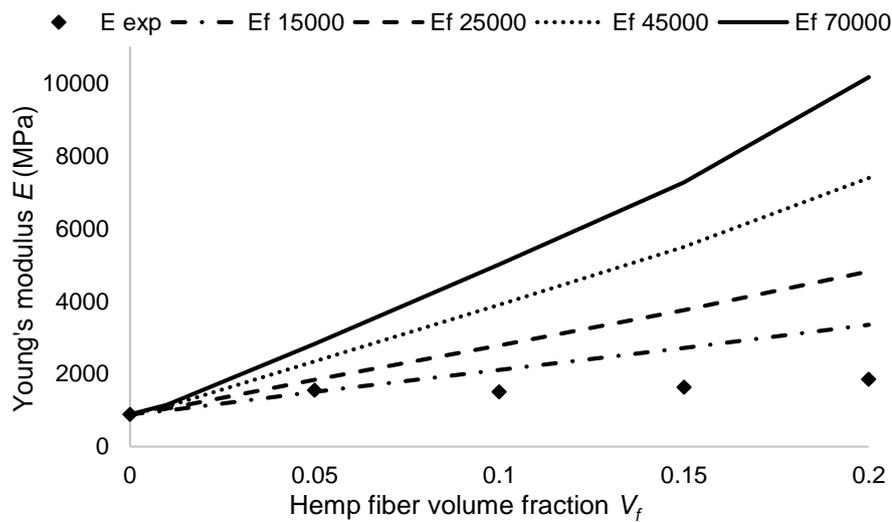


Figure III-26 Progression de E_{num} du biocomposite PET-fibres de chanvre alignées

Cette étude considère un cas extrême où toutes les fibres sont alignées. En réalité, il existe une distribution de l'orientation des fibres où seulement une partie des fibres est alignée selon la direction de l'injection. Considérons les propriétés des fibres alignées le seuil maximum et celle des fibres aléatoires le seuil minimum. Avec une fonction de distribution d'orientation des fibres bien définie, les propriétés du biocomposite figurent entre ces deux extrémités. La convergence entre les résultats expérimentaux et numériques des biocomposites HDPE-particules de bois et PET-fibres de chanvre pourrait être obtenue ainsi. Or, l'étude expérimentale sur l'orientation des fibres dans notre cas n'a pas été réalisée. Effectivement, l'orientation des fibres causée par l'injection expliquerait le problème de convergence observé au début de l'étude.

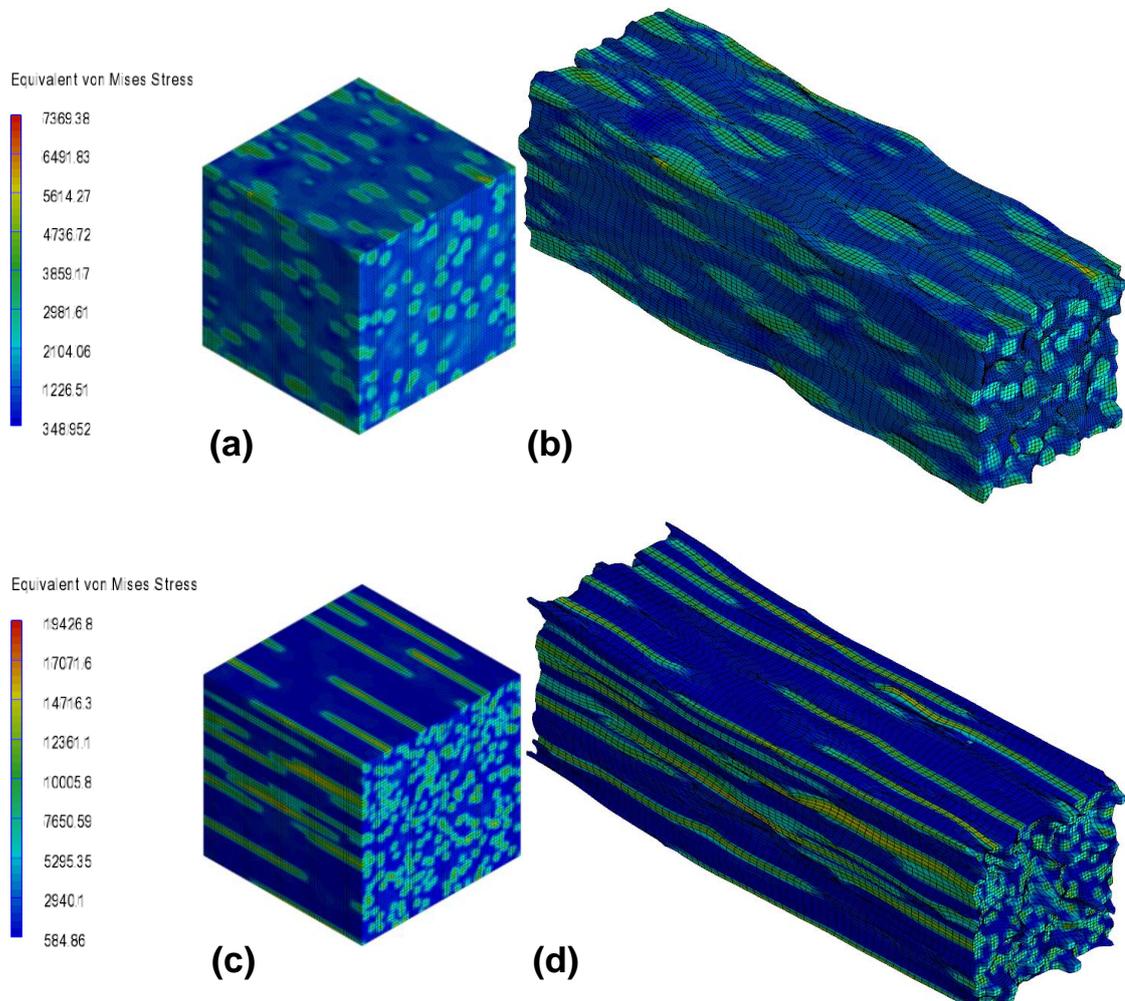


Figure III-27 Contrainte équivalente de von Mises sur les (a et c) microstructures et (b et d) leurs déformées après l'essai de traction

Les biocomposites dans ce cas des fibres alignées sont anisotropes et la recherche de leurs modules de Young se réalise en appliquant des essais de traction selon la direction des fibres. La Figure III-27 montre les contraintes équivalentes de von Mises sur les deux types de biocomposites. Les chargements sont portés par les renforts où on observe la majorité des contraintes. Leurs déformées sont des élongations selon la direction de traction.

III.4.5 Interphase

L'interphase est une région de transition entre les renforts et la matrice variant des nanomètres jusqu'aux microns. Cette région possède des propriétés mécaniques et physiques qui sont différentes de celles de la matrice et des renforts. Elle joue un rôle important dans la transmission des chargements qui influencent ainsi les propriétés mécaniques globales du composite. L'interphase est formée par des réactions et liaisons chimiques entre les renforts et la matrice et également par l'agent de couplage. Il est concevable que la nature de l'interphase varie selon les cas spécifiques des composites et ne suive pas une règle générale.

Selon Kim et Mai (2006), l'interphase qui est proprement manipulée peut améliorer de façon significative la rigidité et la résistance mécanique d'un composite. Williams *et al.* (1990) ont étudié la région qui entoure une fibre de carbone dans une matrice d'époxy. L'interphase dans ce composite est 250 nm en épaisseur et ils ont observé une interphase plus molle que la matrice. De ce fait, les propriétés mécaniques globales du composite ont diminué. Par contre, le composite résiste mieux à la rupture. Cette observation est confirmée par Piggott (1989) qui a remarqué que le composite rompt plus facilement quand l'interphase est plus rigide que le polymère.

Les biocomposites dans cette partie de l'étude ont des renforts positionnés et orientés aléatoirement dans la matrice avec les mêmes fractions volumiques V_f que précédemment. Cette fois ci, on inclut l'interphase qui enrobe chaque fibre dans les composites. Il faut alors déterminer l'épaisseur de l'interphase. Lee *et al.* (2007) ont évalué les propriétés de l'interphase d'un biocomposite de PP-fibres de cellulose par les essais de nanoindentation. La zone de transition de propriétés détectée par l'essai est d'environ 1 μm pour des fibres de diamètre de 12 μm . Nair *et al.* (2010)

qui ont étudié le même biocomposite ont trouvé des épaisseurs différentes selon l'agent de couplage. L'épaisseur de l'interphase est d'environ 80 nm en absence d'agent de couplage mais elle augmente jusqu'à 150 nm avec 10% de MAPP. Pour cette étude, nous avons décidé d'imposer une interphase qui a une épaisseur uniforme de 10% des dimensions des particules. Cette épaisseur est comparable à celle trouvée par Lee *et al.* (2007). Un exemple de microstructure du biocomposite HDPE-particules de bois est illustré dans la Figure III-28 avec l'interphase représenté en bleu.

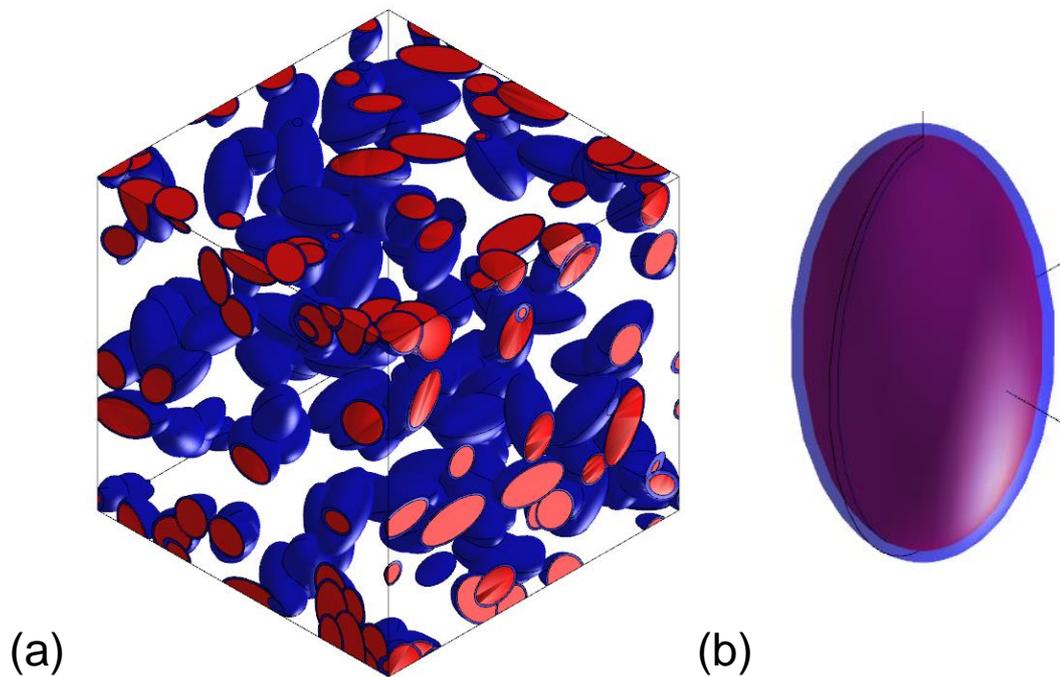


Figure III-28 (a) Microstructure du biocomposite HDPE-particules de bois avec l'interphase et (b) un zoom sur une particule de bois enrobée de l'interphase

L'interphase étant une zone de transition entre les fibres et la matrice, elle n'a pas de propriétés constantes sur toute son épaisseur. Pour simplifier l'étude, les propriétés de l'interphase sont fixées à la médiane entre celles des fibres et de la matrice. Les propriétés de l'interphase varient alors selon celles des fibres. Les erreurs relatives ΔE entre les résultats numériques E_{num} et expérimentaux E_{exp} sont détaillés dans le Tableau III-14 et le Tableau III-15. L'évolution de la valeur de E_{num} en fonction de V_f sont illustrées dans la Figure III-29 et la Figure III-30.

| V_f | ΔE (%) | | | |
|-------|----------------|-----------------|----------------|----------------|
| | $E_f = 6$ GPa | $E_f = 8,1$ GPa | $E_f = 10$ GPa | $E_f = 11$ GPa |
| 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| 0,14 | 23 | 20 | 18 | 17 |
| 0,22 | 15 | 9 | 5 | 4 |
| 0,30 | 6 | 3 | 10 | 13 |
| 0,39 | 13 | 27 | 38 | 44 |
| 0,50 | 53 | 86 | 114 | 128 |

Tableau III-14 Erreurs relatives entre le calcul numérique et les données expérimentales du composite HDPE-particules de bois avec interphase

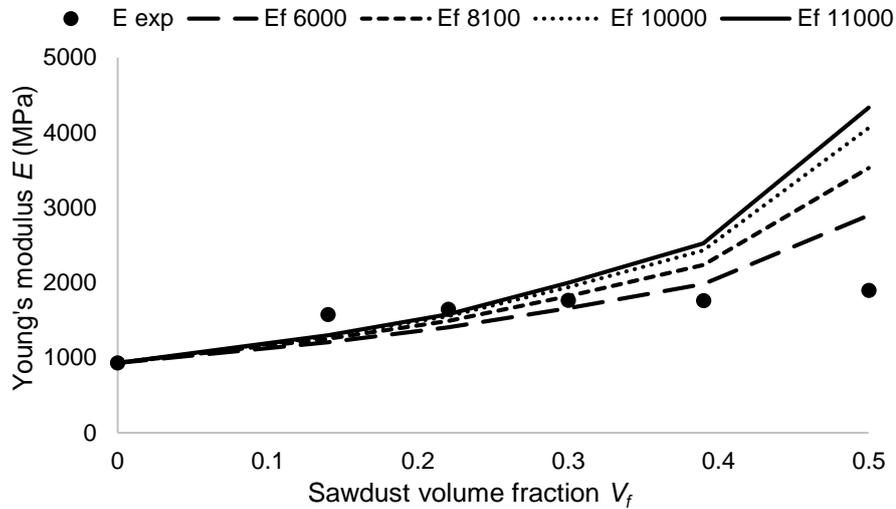


Figure III-29 Module de Young de HDPE-particules de bois avec interphase

On observe ici qu'il y a seulement une légère augmentation des valeurs de E_{num} comparée aux biocomposites sans interphase. Par conséquent, la cohérence entre les résultats numériques E_{num} et expérimentaux E_{exp} ne s'est pas améliorée. Les erreurs ΔE pour les basses fractions volumiques V_f restent aussi élevées que les cas sans interphase. Comparé au cas des fibres alignées, la contribution de

l'interphase à l'augmentation de la rigidité du biocomposite est minime. L'interphase, étant située sur l'interface fibre/matrice, améliore la liaison interfaciale entre la matrice et les fibres. Son efficacité apparait lors d'une étude de la résistance interfaciale. Dans un cas de propriétés élastiques des biocomposites isotropes renforcés par des fibres aléatoires, l'effet de l'interphase est dominé par sa fraction volumique. L'interphase est fine et son pourcentage dépend de celui des fibres. Pour les basses fractions volumiques des fibres V_f , le pourcentage de l'interphase est minuscule comparé aux autres phases dans le composite. Dans la Figure III-29, on remarque une amélioration notable des résultats numériques E_{num} seulement pour les V_f élevées, confirmant que l'effet de l'interphase dans cette étude est dominé par sa fraction volumique. Néanmoins, il existe toujours une amélioration de la cohérence entre les résultats numériques E_{num} et expérimentaux E_{exp} , aussi petite soit-elle. Donc, l'effet de l'interphase sur les propriétés mécaniques des biocomposites est toujours considéré dans cette étude.

| | ΔE (%) | | | |
|-------|----------------|----------------|----------------|----------------|
| V_f | $E_f = 15$ GPa | $E_f = 25$ GPa | $E_f = 45$ GPa | $E_f = 70$ GPa |
| 0 | 0 | 0 | 0 | 0 |
| 0,05 | 29 | 25 | 20 | 14 |
| 0,10 | 8 | 5 | 24 | 45 |
| 0,15 | 5 | 25 | 59 | 95 |
| 0,20 | 12 | 40 | 87 | 139 |

Tableau III-15 Erreurs relatives entre le calcul numérique et les données expérimentales du composite PET-fibres de chanvre avec interphase

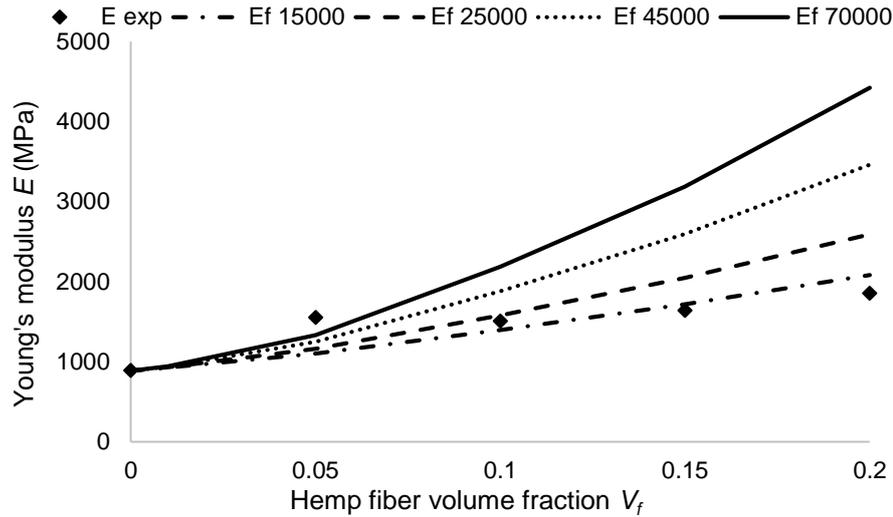


Figure III-30 Module de Young de PET-fibres de chanvre avec interphase

La Figure III-31 montre les contraintes équivalentes de von Mises entre les microstructures avec et sans interphase. La Figure III-31 (a) et (b) sont le biocomposite HDPE-particules de bois alors que (c) et (d) sont le PET-fibres de chanvre. Ces images sont celles après les sollicitations pour les calculs du module de compression k . Les différences entre les microstructures avec et sans interphase ne sont pas si évidentes sauf pour les valeurs de contrainte maximale. Il apparaît que l'interphase dans cette étude est trop fine pour donner une indication visuelle de son influence sur les propriétés mécaniques des biocomposites. La Figure III-32 montre une comparaison plus détaillée entre les cas sans et avec interphase. En effet, les deux cas ont une zone de transition entre les fibres et la matrice indiquée par la couleur bleu ciel. Une distinction entre cette zone de transition et l'interphase n'est pas claire. L'effet de l'interphase dans cette étude n'est pas observé sur la distribution des contraintes équivalentes de von Mises dans la microstructure. Néanmoins, il peut être observé sur les propriétés macroscopiques des biocomposites montrées par la Figure III-29 et la Figure III-30.

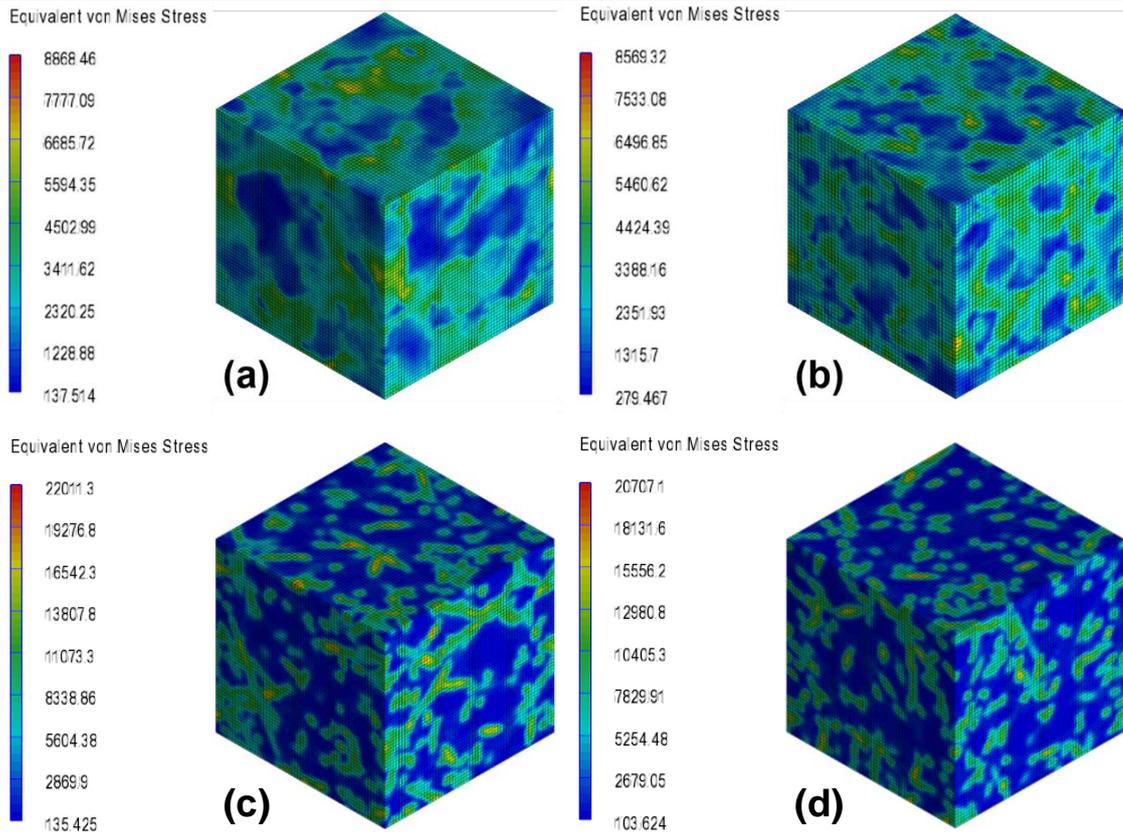


Figure III-31 Contrainte équivalente de von Mises sur les microstructures (a et c) avec interphase et (b et d) sans interphase

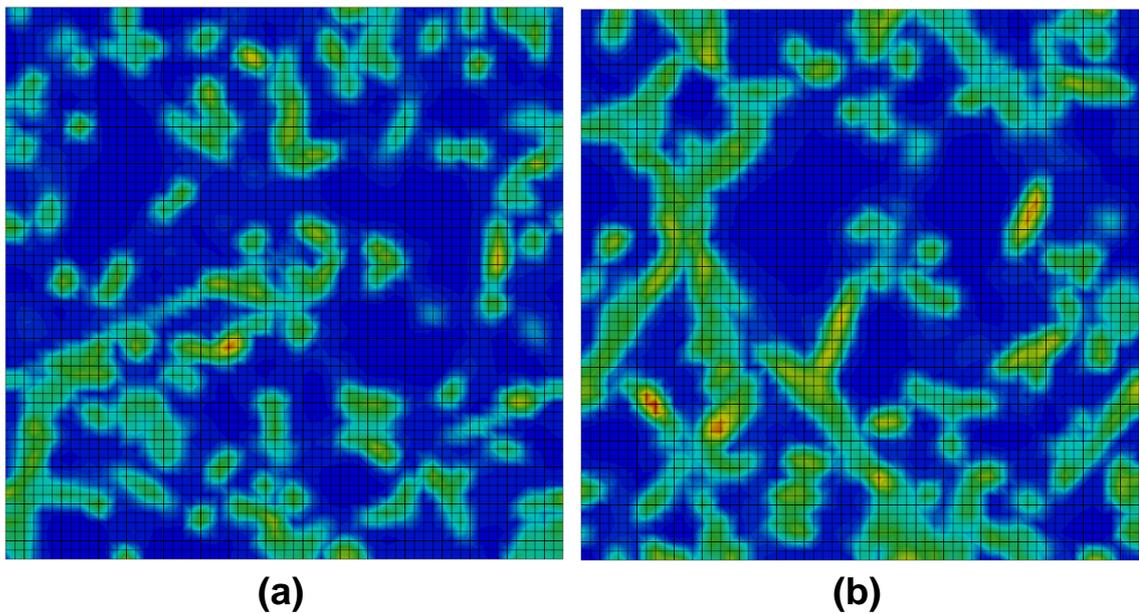


Figure III-32 Comparaison entre les fibres de chanvre (a) sans et (b) avec interphase

III.4.6 Cristallisation

Lors de l'ajout des fibres, le polymère subit une transformation physique et chimique en son milieu. Ce phénomène s'appelle la cristallisation. Les thermoplastiques sont des polymères semi cristallin qui se composent d'une phase amorphe et d'une phase cristalline. La cristallinité des HDPE et PET se trouvent à environ 60 à 70%. Quand les renforts sont introduits, ils induisent la cristallisation. Une observation par MEB dans la Figure III-33 montre que la fibre de chanvre est entourée par la phase cristalline.

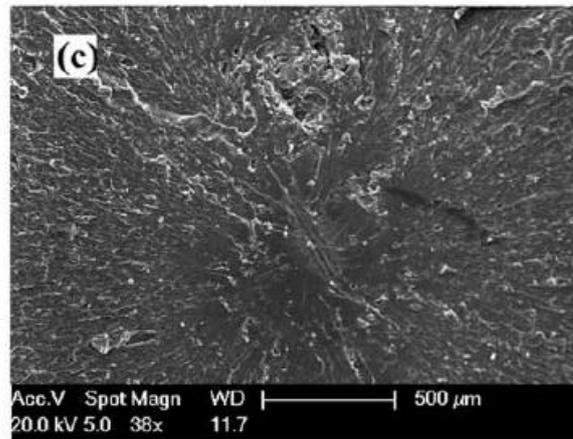


Figure III-33 Cristallisation autour de la fibre. Image extraite de Talla et al. (2013)

La phase cristalline est celle qui rend le polymère plus rigide. Vu que la zone cristalline autour de la fibre est assez large, on pourrait imaginer que la majorité de la matrice s'est transformée en phase cristalline avec seulement une petite quantité de fibres. Cette hypothèse est soutenue par le fait que la déformation à la rupture du PET chute de 40% à seulement 5% quand 5 *wt%* de fibres de chanvre sont ajoutées, pareillement pour celle du HDPE qui chute de 108% à 5% avec 20 *wt%* de particules de bois. La Figure III-34 extraite de Pickering et al. (2011) montre la phase cristalline autour de la fibre ainsi qu'au milieu de la matrice. Le fait que les cristaux sont présents aléatoirement dans la matrice et non seulement autour des fibres, on ne peut pas se limiter dans une étude d'interphase. Dans ce cas, il est plus judicieux alors de considérer que les propriétés de la matrice se sont transformées lors de l'ajout des renforts.

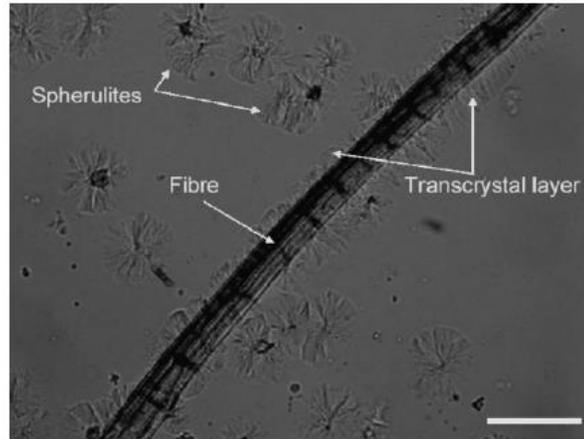


Figure III-34 Phase cristalline dans un composite PLA-fibres de chanvre. Image extraite de Pickering et al. (2011)

Le taux de cristallinité dans un polymère ou dans un biocomposite peut être mesuré par un essai de calorimétrie différentielle à balayage (DSC). Or, il est difficile de déterminer les propriétés de la phase cristalline et de la phase amorphe. D'un point de vue analytique et numérique, il est plus pratique d'analyser les courbes des données expérimentales. Partant de l'hypothèse que les propriétés des matrices sont modifiées lors de l'ajout des renforts, le module de Young des polymères est omis dans cette partie de l'étude. En traçant une droite de tendance pour les deux biocomposites (Figure III-35 et Figure III-36), nous remarquons que l'augmentation du module de Young des biocomposites est linéaire.

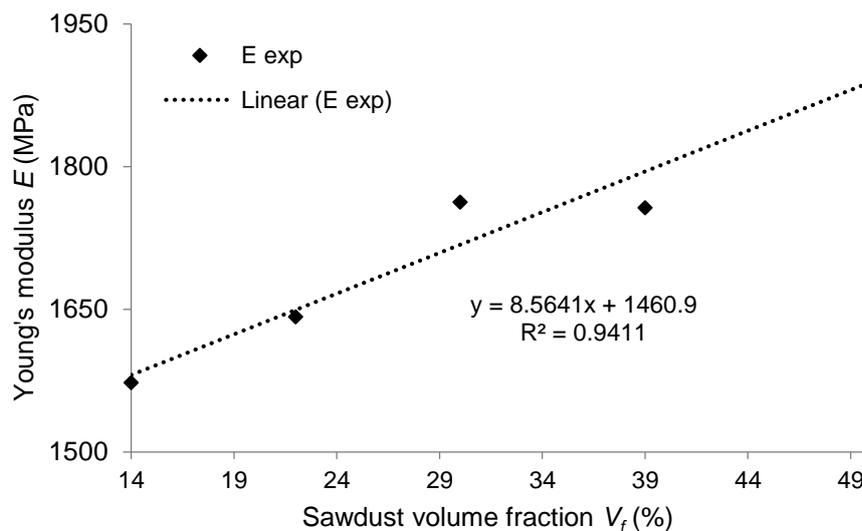


Figure III-35 Module de Young expérimental de HDPE-particules de bois sans celui du HDPE

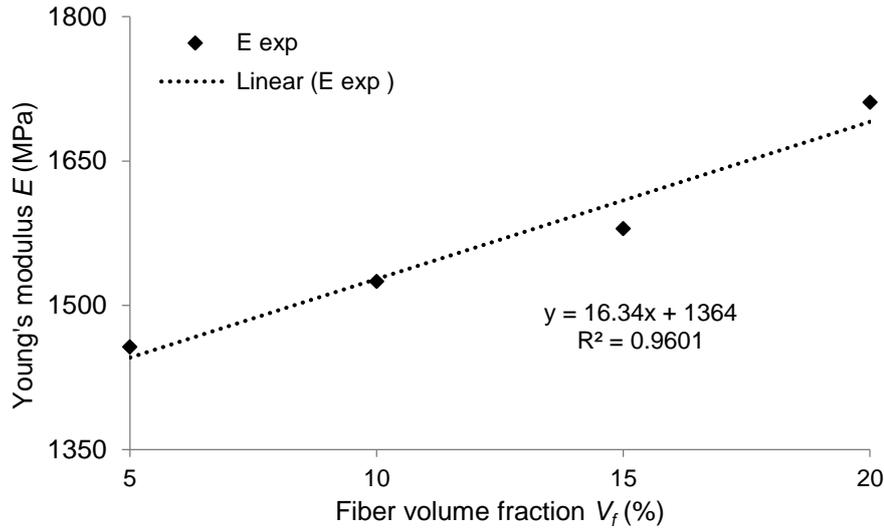


Figure III-36 Module de Young expérimental de PET-fibres de chanvre sans celui du PET

Les équations des droites de tendance pour le HDPE-particules de bois et PET-fibres de chanvre sont respectivement :

$$E_c = 8,564V_f + 1461 \quad \text{Eq. (III.11)}$$

$$E_c = 16,34V_f + 1364 \quad \text{Eq. (III.12)}$$

A partir de ces équations, nous en déduisons que les nouveaux modules de Young du HDPE et du PET sont respectivement 1461 MPa et 1364 MPa. Comparés aux modules de Young mesurés par traction, ces modules de Young « ajustés » pour inclure la cristallisation dans les biocomposites sont environ 60% plus élevés. Avec cette augmentation linéaire, il est aussi possible d'estimer le module de Young des renforts E_f à l'aide de la loi de mélange modifiée décrite par l'équation suivante :

$$E_c = E_m(1 - V_f) + E_f V_f \beta \quad \text{Eq. (III.13)}$$

Soit β le facteur de correction pour un cas de fibres aléatoires égal à 0,375. Cette équation est confrontée avec les équations Eq. (III.11) et Eq. (III.12) pour obtenir les valeurs de E_f . Les particules de bois ont une rigidité de 6179 MPa alors que celle des fibres de chanvre est de 7995 MPa. Nous constatons que ces valeurs sont inférieures à celles dans la Section III.2.3. Cette diminution de rigidité s'explique par la fragilité apportée par les contacts entre renforts. L'augmentation

de la rigidité de la matrice causée par la cristallisation et la diminution de rigidité des renforts seraient la meilleure description de la progression du module de Young de ces deux biocomposites.

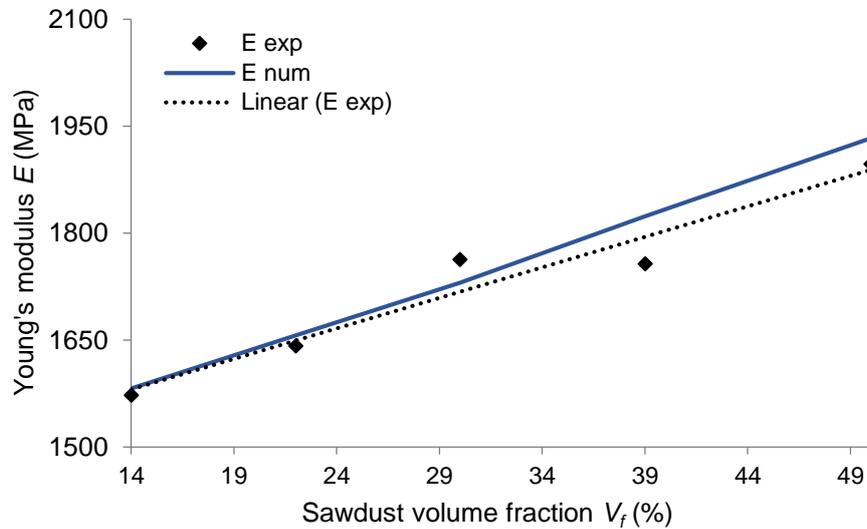


Figure III-37 Module de Young de HDPE-particules de bois avec propriétés de HDPE ajustées

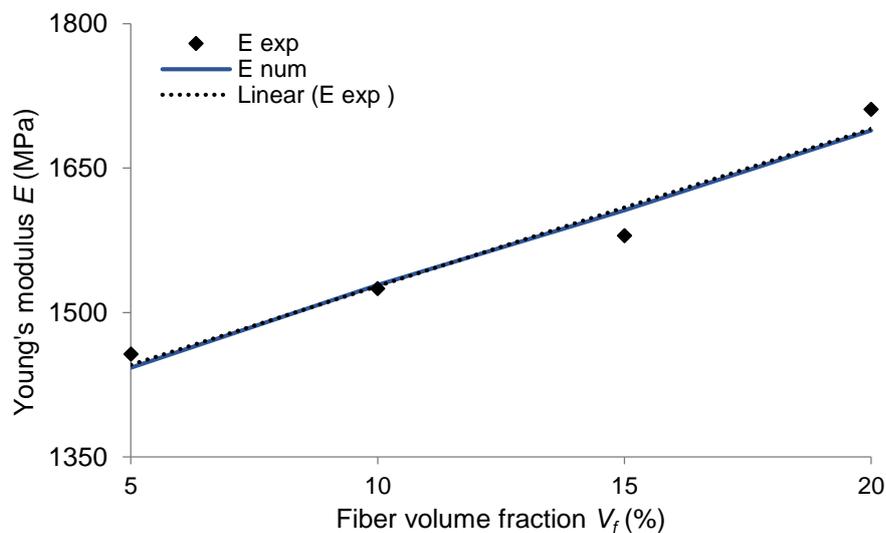


Figure III-38 Module de Young de PET-fibres de chanvre avec propriétés de PET ajustées

Ces nouvelles propriétés ajustées sont appliquées dans l'homogénéisation numérique et les résultats des calculs sont illustrés dans les Figure III-37 et Figure III-38. Cette méthode a montré la meilleure cohérence entre E_{num} et E_{exp} avec une erreur maximale de 4%. Effectivement, pour les cas de biocomposites avec des

progressions de module de Young non linéaire tels que les nôtres, une approche différente des analyses habituelles est nécessaire pour décrire la cristallisation de la matrice. Il a fallu séparer les propriétés des polymères vierges et des biocomposites car les polymères ont subi un changement physique lors de l'ajout des renforts.

III.5. Conclusion

L'étude numérique sur les propriétés mécaniques des biocomposites HDPE-particules de bois et PET-fibres de chanvre a permis une étude profonde sur beaucoup d'aspects de l'élaboration des biocomposites. Les résultats expérimentaux des deux biocomposites ont présenté des tendances moins usuelles. Les données expérimentales suivent une progression quadratique qui prend en compte la fragilité apportée par des contacts fibres/fibres. Une première étude numérique a montré une mauvaise cohérence entre les résultats numériques et expérimentaux, surtout à basse fraction volumique des fibres. A ce pourcentage de fibres, la fragilité causée par les contacts fibres/fibres est minimale et les propriétés des biocomposites devraient coïncider avec les calculs numériques. Or, les résultats expérimentaux sont bien supérieurs aux résultats numériques. Nous avons conduit une recherche de divers facteurs qui peuvent expliquer ce phénomène. Il existe 3 facteurs principaux qui expliquent une forte augmentation du module de Young des biocomposites à bas pourcentages de fibres :

- Propriétés variables des fibres
- Orientation des fibres
- Interphase

L'incorporation de ces facteurs dans les calculs numériques a rapproché petit à petit le grand écart entre les résultats numériques et expérimentaux. Même si une cohérence totale n'est pas obtenue, ils peuvent expliquer la forte augmentation du module de Young des biocomposites. Ces paramètres mettent en évidence des difficultés rencontrées pendant la formulation des biocomposites. Un mélange entre les renforts végétaux et les matrices polymériques pourrait présenter des résultats inattendus. Il se peut que tous les 3 facteurs ci-dessus soient présents en même temps dans les biocomposites, ce qui permettrait de converger les résultats des

différentes approches. Or, ceci nécessite des analyses expérimentales supplémentaires. Le fait que nous ne pouvons pas simuler numériquement la fragilité causée par les contacts fibres/fibres dans une étude statique et élastique linéaire a également rendu la convergence des propriétés plus difficile.

Nous avons utilisé une autre approche analytique pour essayer de décrire le comportement élastique des biocomposites. Des évidences ont montré que les propriétés des matrices polymères ont été modifiées lors de l'ajout des renforts qui induit la cristallisation. Des nouvelles propriétés de matrice et de renfort ont été tirées de cette analyse. L'homogénéisation numérique avec ces propriétés ajustées a produit des résultats cohérents avec les données expérimentales avec seulement 4% d'erreur maximale. Cette méthode « simpliste » s'avère le meilleur moyen de déterminer les modules de Young effectifs des biocomposites HDPE-particules de bois et PET-fibres de chanvre lorsqu'il y a tant de variables inconnus (propriétés et orientation des renforts, interphase, cristallisation).

**Chapitre IV : Etude des propriétés
thermiques des biocomposites à base de
fibres de chanvre et de particules de
bois**

Sommaire

| | |
|---|-----|
| Chapitre IV : Etude des propriétés thermiques des biocomposites à base de fibres de chanvre et de particules de bois..... | 146 |
| IV.1. Introduction..... | 148 |
| IV.2. Méthode de Flash..... | 148 |
| IV.2.1 Théorie de l'analyse de Flash..... | 149 |
| IV.3. Homogénéisation numérique..... | 154 |
| IV.3.1 Génération des images..... | 154 |
| IV.3.2 Maillage des images..... | 156 |
| IV.3.3 Conditions des calculs..... | 158 |
| IV.3.4 Propriétés des renforts naturels..... | 160 |
| IV.4. Méthode analytique..... | 161 |
| IV.4.1 Modèle auto-cohérent de Bruggeman..... | 161 |
| IV.4.2 Modèle de Halpin-Tsai..... | 161 |
| IV.4.3 Bornes de Hashin-Shtrikman..... | 162 |
| IV.5. Résultats et discussions..... | 163 |
| IV.5.1 HDPE-particules de bois..... | 163 |
| IV.5.2 PET-fibres de chanvre..... | 171 |
| IV.6. Conclusion..... | 174 |

IV.1. Introduction

Dans cette partie, nous nous intéressons à la détermination des propriétés thermiques, plus particulièrement la diffusivité et la conductivité thermique d'un biocomposite HDPE-particules de bois. Il est important d'identifier ces deux propriétés surtout pour des applications de thermoformage et d'isolation thermique. La recherche des propriétés thermiques est effectuée par approches expérimentale, numérique et analytique. La méthode de Flash qui est basée sur le chauffage des échantillons par émission de laser est choisie pour déterminer la diffusivité thermique du composite HDPE-particules de bois. Les données expérimentales obtenues servent ensuite comme référence pour les calculs numérique et analytique.

L'homogénéisation numérique appliquée ici se base sur les calculs par éléments finis sur des échantillons pixelisés comme des images générées virtuellement ou obtenues par microscopie. Le modèle auto-cohérent de Bruggeman est sélectionné pour estimer analytiquement la conductivité thermique des composites avec des renforts particuliers comme le HDPE-particules de bois. La comparaison des trois approches ci-dessus permettra de trouver les propriétés thermiques effectives du composite HDPE-particules de bois. Une étude numérique et analytique est aussi prévue pour le biocomposite PET-fibres de chanvre.

IV.2. Méthode de Flash

La méthode de Flash permet de déterminer la diffusivité thermique d'un matériau. Elle se base sur le chauffage d'un échantillon cylindrique par une lampe à flash ou laser en un temps assez court que la perte de chaleur est gardée au minimum. La petite augmentation de température causé par le flash signifie aussi que les propriétés physiques du matériau ne varient pas pendant l'analyse, un atout important pour des matériaux qui sont sensibles à la température.

La source est un laser à diode qui permet une distribution uniforme de l'impulsion lumineuse sur l'échantillon. L'installation complète de l'analyse est listée ci-dessous :

- Un laser à diode avec une longueur d'onde de 808 nm et 20 W de puissance

- Une photodiode qui détermine l'origine du temps
- Un détecteur infrarouge et une lentille convergente qui détecte la réponse de température sur la face arrière de l'échantillon
- Une enceinte thermostatée
- Un oscilloscope
- Un générateur à courant continu

Le détecteur infrarouge est sensible et il est nécessaire de le protéger avec un filtre passe bande qui laisse passer seulement les longueurs d'onde qu'on veut détecter. L'échantillon est placé dans une enceinte thermostatée pour assurer une température constante pendant l'analyse. Cette enceinte permet également la mesure des propriétés thermiques à des températures différentes. Une pompe y est reliée pour créer le vide et donc empêcher la perte de chaleur par radiation. Le montage expérimental pour l'analyse de Flash est illustré par la Figure IV-1.

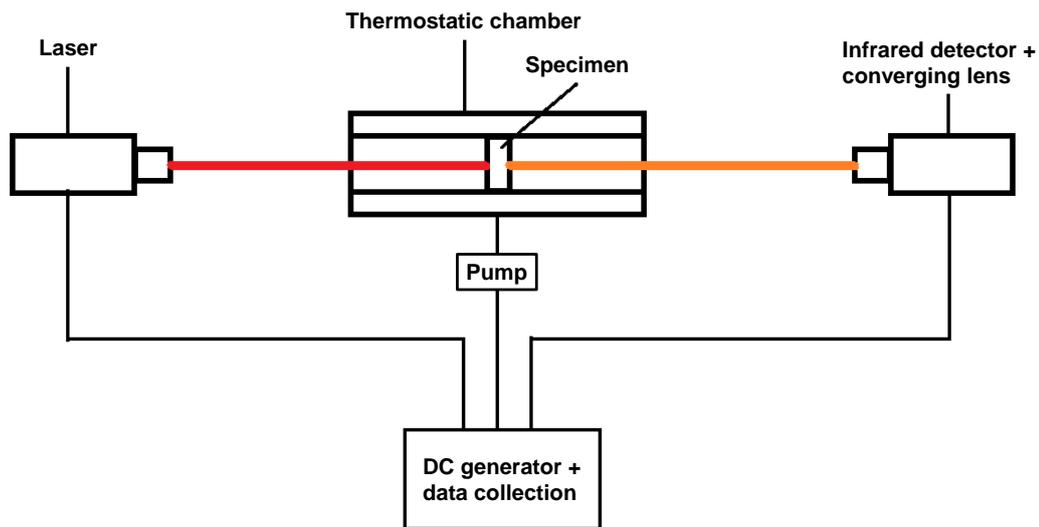


Figure IV-1 Montage expérimental de l'analyse de Flash

IV.2.1 Théorie de l'analyse de Flash

Les échantillons sont considérés avoir une épaisseur constante L et thermiquement isolés. Un flux d'énergie uniforme Q est émis sur la face avant ($x = 0$) et se propage vers la face arrière ($x = L$) de l'échantillon. Le rapport entre la température maximale sur la face arrière T_{max} et la température instantanée T est donné par $V = T/T_{max}$. Il s'exprime également par cette équation :

$$V = 1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n \exp(-n^2 \omega) \quad \text{Eq. (IV-1)}$$

Soit ω un paramètre sans dimension relié à la diffusivité thermique α , le temps t et l'épaisseur L de cette manière : $\omega = \pi^2 \alpha t / L^2$. A la fin de l'analyse, V est tracé en fonction de ω . Deux équations permettent de déterminer α , premièrement :

$$\alpha = \frac{1,38L^2}{\pi^2 t_{1/2}} \quad \text{Eq. (IV-2)}$$

Soit $t_{1/2}$ le temps nécessaire pour que la face arrière atteigne $T_{max} / 2$ et deuxièmement :

$$\alpha = \frac{0,48L^2}{\pi^2 t_x} \quad \text{Eq. (IV-3)}$$

Soit t_x est le temps nécessaire pour que l'extrapolation de la partie linéaire de la courbe intersecte l'axe horizontal. Ces équations sont seulement valides si l'analyse est réalisée dans des conditions parfaitement adiabatiques. Par contre, les imperfections comme perte de chaleur ne peuvent pas être négligées pendant l'expérience. Quelques auteurs comme Cape et Lehman (1963), Clark III et Taylor (1975) et Cowan (1961), (1963) ont développé des modèles mathématiques qui permettent de rectifier les problèmes de conductions thermiques dans les échantillons. Après l'obtention de α , la conductivité thermique λ peut être calculée avec une équation qui relie la densité ρ , la capacité thermique C_p et α :

$$\lambda = \alpha \rho C_p \quad \text{Eq. (IV-4)}$$

IV.2.1.1 Résultats expérimentaux

Les caractéristiques et la composition des biocomposites ont été détaillées dans le Chapitre III. La seule différence se situe au niveau des éprouvettes qui sont cylindriques : 25 mm en diamètre et 4 mm en épaisseur. Elles ont été élaborées par thermocompression sous une charge de 20 MPa à 150°C pendant 4 minutes. L'éprouvette obtenue est montré par la Figure IV-2. Deux échantillons avec 30 et 60 wt% de bois ont été produits et testés expérimentalement.



Figure IV-2 Eprouvette cylindrique du biocomposite HDPE-particules de bois

Les résultats expérimentaux obtenus par l'analyse de Flash sont montrés dans la Figure IV-3 et après l'interprétation de ces données, les propriétés thermiques du composite HDPE-particules de bois sont listées dans le Tableau IV-1. D'après cette analyse de Flash, la conductivité thermique λ du HDPE est de 0,6 W/mK, qui est cohérent aux valeurs dans la littérature. Choy *et al.* (1978) a mesuré une valeur de 0,545 W/mK alors que Patankar et Kranov (2010) a trouvé une valeur de 0,52 W/mK. L'analyse de Flash dans cette étude est efficace et fournit des résultats fiables. Ils peuvent servir comme référence pour les calculs numériques qui seront effectués dans cette étude.

On observe que la diffusivité thermique α diminue quand le pourcentage de bois augmente. Ceci montre que les particules de bois baissent la diffusion de chaleur dans le composite. Par conséquent, la conductivité thermique λ du composite diminue également après l'ajout des particules de bois. Les mêmes observations sont notées par Mangal *et al.* (2003) et Idicula *et al.* (2006). Leurs composites renforcés de fibres d'ananas, bananes et sisal ont subi une diminution de λ quand le nombre de fibres augmente. Ces résultats sont typiques des renforts naturels comme le bois qui possèdent une basse conductivité thermique λ . Dans la Figure IV-4, la diffusivité et la conductivité thermique des échantillons diminuent de façon linéaire. A 60 *wt%* de bois, la valeur de λ du biocomposite a diminué de 46% comparé à celle du HDPE pur. En projetant la pente linéaire, la λ du biocomposite peut encore diminuer si le pourcentage de particules de bois augmente.

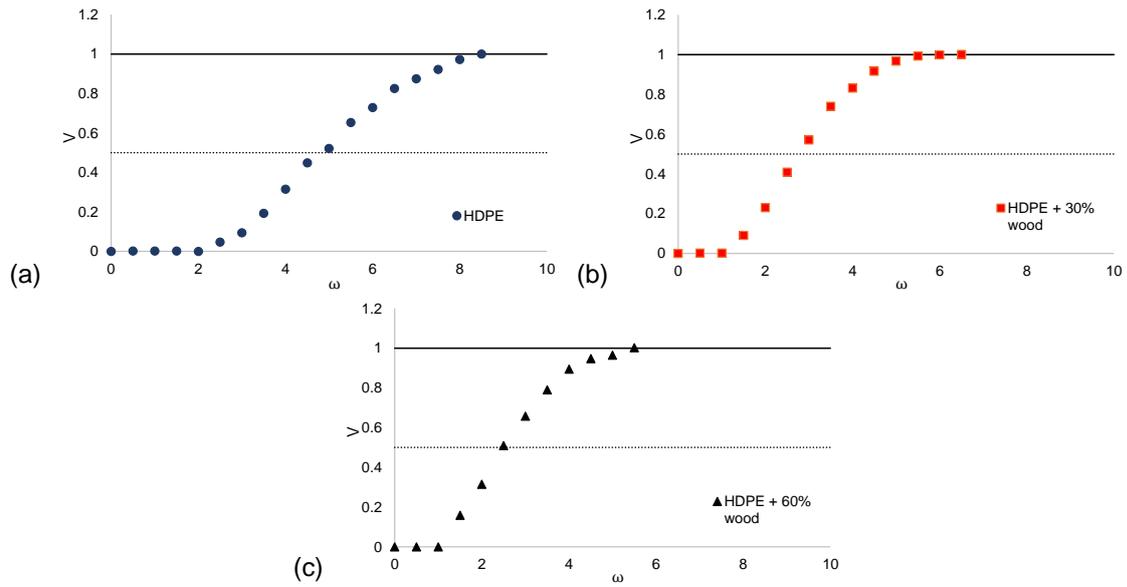


Figure IV-3 Résultats expérimentaux de (a) HDPE, (b) 30 wt% et (c) 60 wt% de particules de bois

| wt (%) | α (m ² /s) | λ (W/mK) |
|--------|------------------------------|------------------|
| 0 | $3,51 \cdot 10^{-7}$ | 0,600 |
| 30 | $2,70 \cdot 10^{-7}$ | 0,465 |
| 60 | $1,87 \cdot 10^{-7}$ | 0,326 |

Tableau IV-1 Diffusivité et conductivité thermique expérimentales

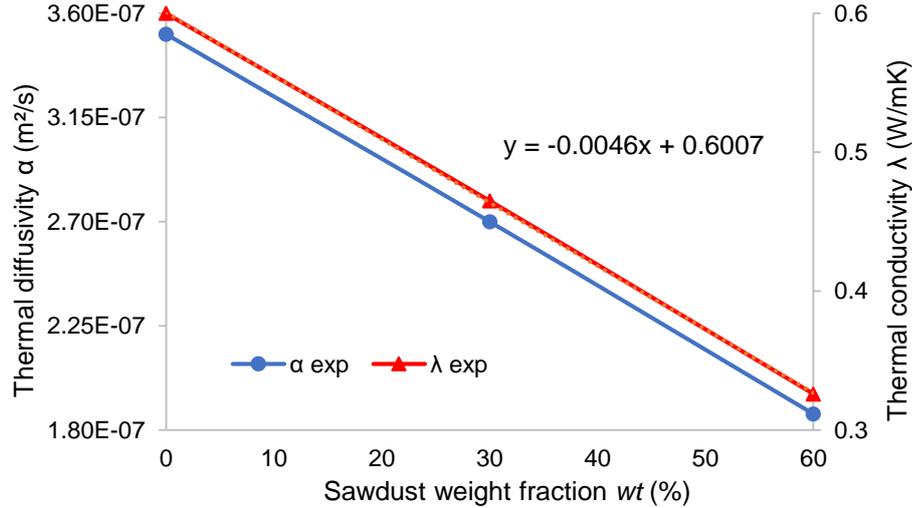


Figure IV-4 Evolution de la diffusivité et de la conductivité thermique en fonction de la fraction massique de particules de bois

La tendance linéaire de la conductivité thermique du biocomposite λ_c observée dans la Figure IV-4 est décrite par l'équation suivante :

$$\lambda_c = 0,6 - 0,46wt \quad \text{Eq. (IV-5)}$$

En substituant la fraction massique wt par la fraction volumique V_f , une nouvelle droite linéaire est décrite par :

$$\lambda_c = 0,6 - 0,56V_f \quad \text{Eq. (IV-6)}$$

L'équation ci-dessus est mise en équivalence avec la loi de mélanges pour extraire les propriétés de chaque phase du biocomposite :

$$\lambda_m - 0,46V_f = \lambda_m(1 - V_f) + \lambda_f V_f \beta \quad \text{Eq. (IV-7)}$$

Soit λ_m et λ_f la conductivité thermique de la matrice et des renforts alors que β est le facteur de correction pour un cas de fibres aléatoires égal à 0,375. A partir de cette relation, on peut en déduire que la conductivité thermique des particules de bois λ_f est de 0,37 W/mK. Or, il est optimiste d'assumer que cette relation linéaire est vraie avec seulement trois échantillons expérimentaux différents. Il est possible que les propriétés thermiques du biocomposite avec différents pourcentages de bois ne se trouvent pas sur cette droite linéaire. D'où l'intérêt

d'effectuer l'homogénéisation numérique pour déterminer les propriétés thermiques effectives du biocomposite.

IV.3. Homogénéisation numérique

L'homogénéisation numérique est réalisée sur le biocomposite HDPE-particules de bois pour déterminer leurs conductivités thermiques effectives. Elle est effectuée sur des images virtuelles générées numériquement. Des échantillons correspondant à 20, 30, 40, 50 et 60 *wt%* de bois sont étudiés pour analyser la tendance de la diminution de la conductivité thermique du biocomposite en fonction du pourcentage de bois.

IV.3.1 Génération des images

IV.3.1.1 HDPE-particules de bois

La méthode de génération des images virtuelles est effectuée selon la procédure détaillée dans le Chapitre II. Le fond des images carrées est blanc avec une taille de 1000^2 pixels. Les fibres sont noires et le diamètre de chaque fibre est fixé à 10 pixels. Pour se conformer au rapport de forme de 2, la longueur des fibres est fixée à 20 pixels. La vérification du VER est effectuée prochainement afin de valider les microstructures générées.

Sur les images 2D, la fraction massique *wt* doit être convertie en fraction surfacique A_f . Pour ce faire, la densité ρ de chaque matériau dans le composite est nécessaire. Comme indiqué dans le Chapitre III, la densité ρ est de 950 kg/m^3 pour le HDPE et de 1480 kg/m^3 pour les particules de bois. Pour cette homogénéisation numérique, cinq échantillons avec 20, 30, 40, 50 et 60 *wt%* de bois seront préparés afin de mieux comprendre l'effet des particules de bois sur le comportement thermique du composite. Les cinq images générées avec des valeurs de A_f de 0,14, 0,22, 0,30, 0,39, et 0,50 sont illustrées dans la Figure IV-5.

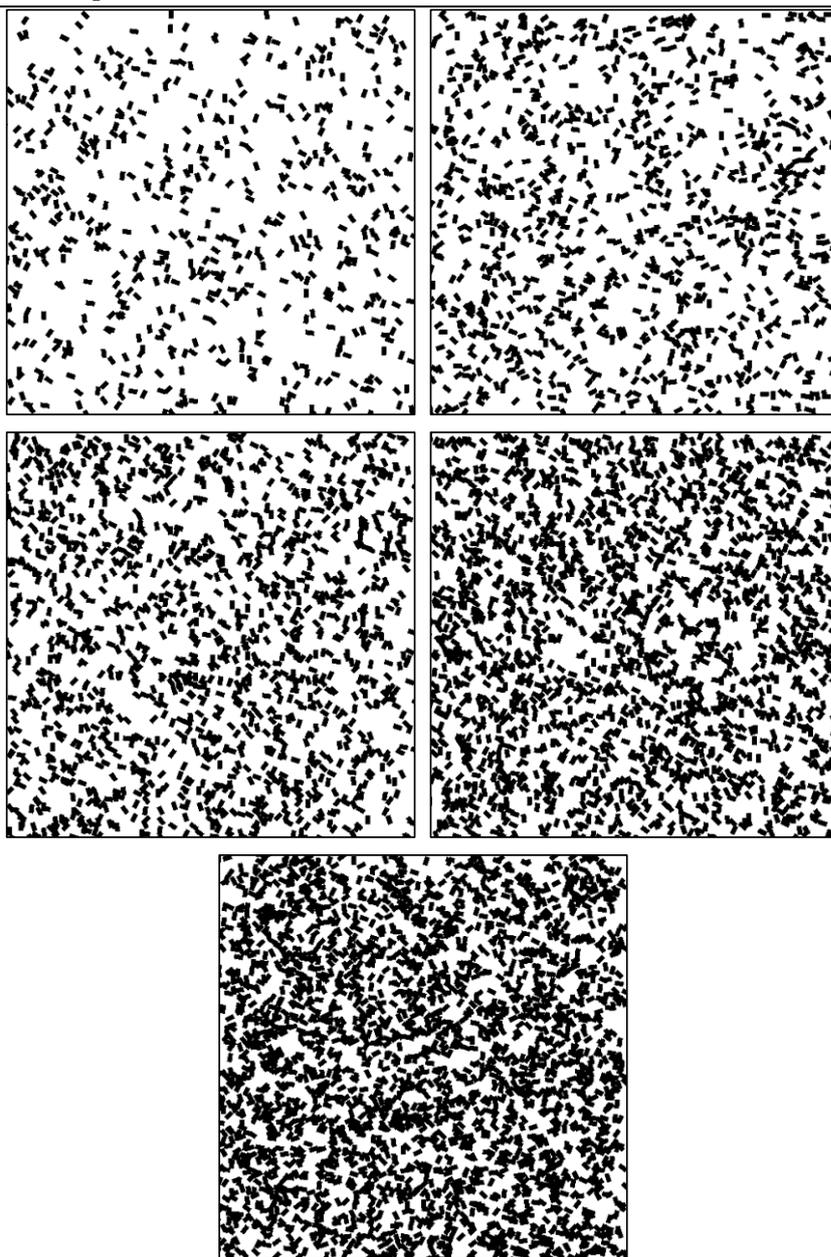


Figure IV-5 Microstructures des composites de HDPE-particules de bois générées virtuellement par ordre croissant de pourcentage de bois $A_f = 0,14, 0,22, 0,30, 0,39$ et $0,50$

IV.3.1.2 PET-fibres de chanvre

La même méthode de génération d'images est utilisée pour le composite PET-fibres de chanvre. Comme ce qui est indiqué dans le Chapitre III, la longueur des fibres n'a pas été mesurée. La littérature indique des longueurs variées pour les fibres de chanvre après le mélange avec les polymères. Nous avons décidé de fixer un rapport de forme de 20 pour nos fibres de chanvre, conformément à l'étude 3D

dans le Chapitre III. Dans une image 2D, la fibre aura une longueur de 200 pixels et un diamètre de 10 pixels. Le PET et les fibres de chanvre ont des densités ρ similaires donc la fraction massique w_f peut être directement convertie en fraction surfacique A_f . Quatre échantillons avec de valeurs de A_f de 0,05, 0,10, 0,15 et 0,20 sont générées. Les quatre microstructures du biocomposite PET-fibres de chanvre générées sont illustrées dans la Figure IV-6.

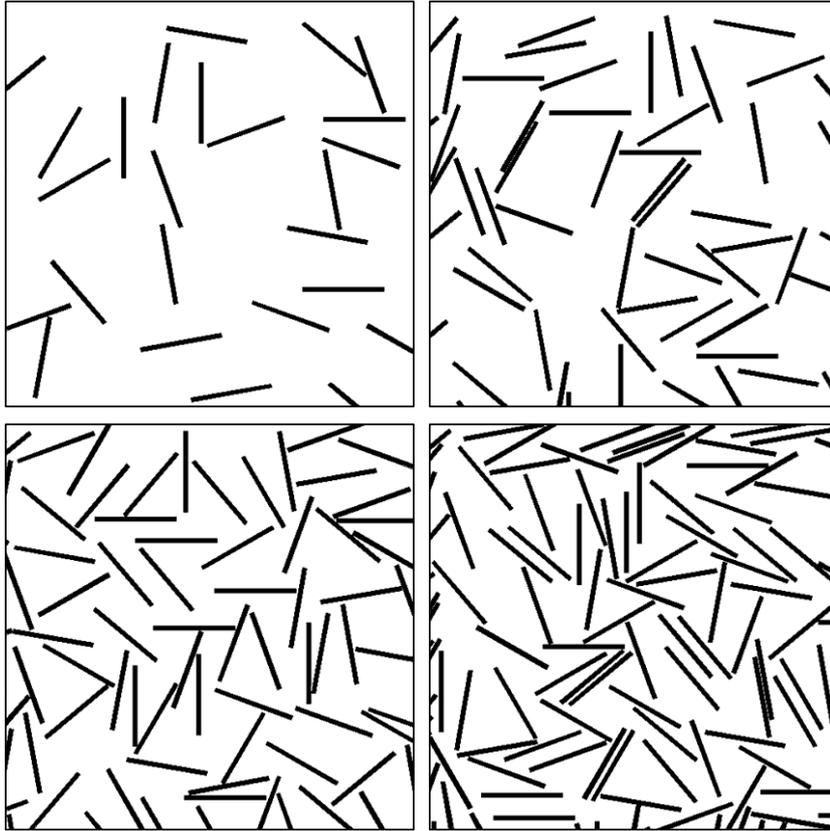


Figure IV-6 Microstructures des composites de PET-fibres de chanvre générées virtuellement par ordre croissant de pourcentage de fibre $A_f = 0,05, 0,10, 0,15, 0,20$

IV.3.2 Maillage des images

Les images précédentes sont maillées selon la même méthode que dans le Chapitre II. L'étude sur la densité de maillage est indispensable pour assurer que les calculs sont précis. Pour ce faire, les microstructures avec A_f de 0,50 pour le HDPE-particules de bois et A_f de 0,20 pour le PET-fibres de chanvre sont maillées avec différents nombres d'éléments finis. Ensuite, un gradient de température lui est appliqué et les conductivités thermiques calculées par chaque configuration de

maillage sont comparées. Un grand contraste de 50 entre les propriétés des deux phases est appliqué pour assurer une bonne densité de maillage, sachant que ce contraste ne dépasse pas 10 dans cette étude. Les résultats des calculs sont détaillés dans le Tableau IV-2 et illustrés dans la Figure IV-7. On observe que la conductivité thermique λ calculée diminue jusqu'à ce qu'elle soit stable et atteigne un seuil qui signifie sa valeur précise. Les résultats du biocomposite HDPE-particules de bois varient plus que le PET-fibres de chanvre dus à son pourcentage de renfort plus élevé. D'après cette observation, le maillage composé de 300^2 éléments finis est choisi. En fait, le maillage de 200^2 éléments finis commence déjà à générer des résultats cohérents pour les deux biocomposites avec moins de 6% de différence que ceux calculés par 250^2 éléments. Néanmoins, le maillage de 300^2 éléments est choisi pour ses calculs plus précis, sachant que le temps de calcul ne varie pas beaucoup que celui du maillage avec 200^2 éléments. Le maillage composé de 300^2 éléments finis impose 3 éléments finis sur 10 pixels de l'image des microstructures. L'exemple d'une image maillée ainsi qu'un zoom est illustré dans la Figure IV-8. Le zoom montre que le maillage est bien dense et que le grand nombre d'éléments finis réduit la possibilité d'avoir plusieurs phases dans le même élément.

| Nombre d'éléments finis e | 20^2 | 50^2 | 100^2 | 200^2 | 250^2 | 300^2 |
|---------------------------------|--------|--------|---------|---------|---------|---------|
| λ (W/mK) du HDPE-bois | 21,40 | 15,15 | 10,35 | 8,13 | 7,66 | 7,28 |
| λ (W/mK) du PET-chanvre | 4,79 | 4,48 | 3,97 | 3,69 | 3,61 | 3,55 |

Tableau IV-2 Résultats de l'étude de la densité du maillage du HDPE-particules de bois

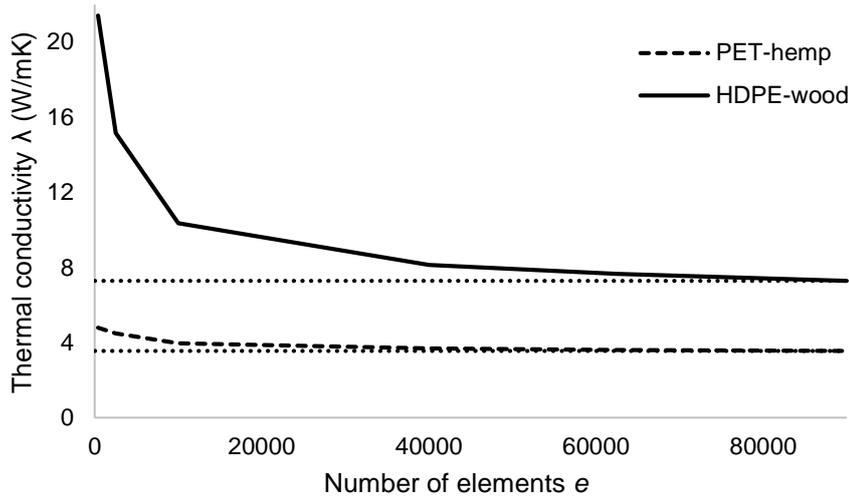


Figure IV-7 Evolution de la conductivité thermique du HDPE-particules de bois en fonction du nombre d'éléments finis

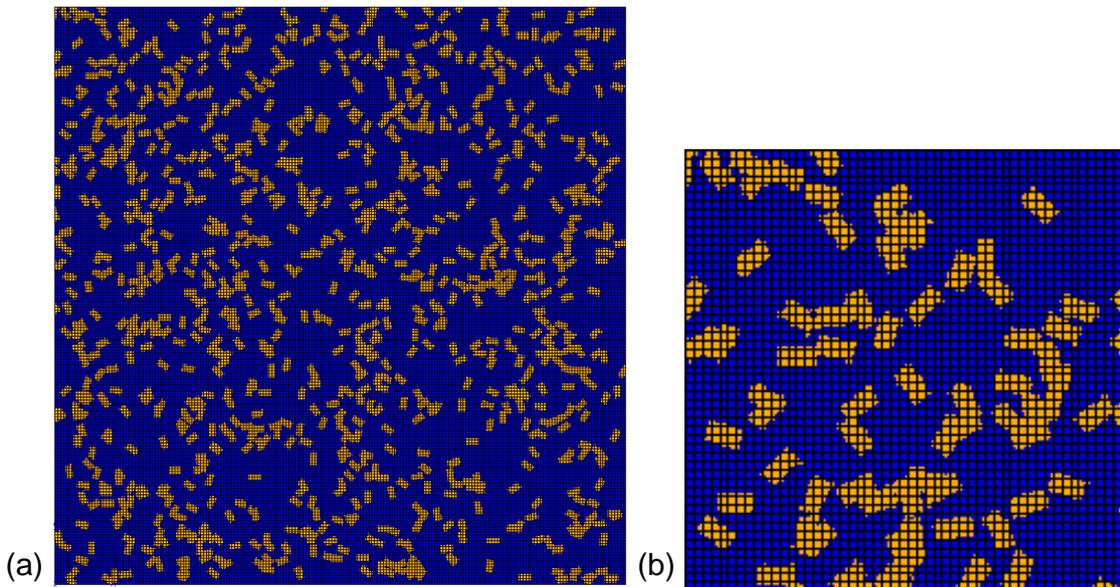


Figure IV-8 (a) Microstructure du HDPE-particules de bois maillée avec 90000 éléments finis carrés et (b) un zoom sur une zone de l'image montrant la précision du maillage

IV.3.3 Conditions des calculs

Les images générées doivent représenter au mieux la microstructure du HDPE-particules de bois dans la réalité. A part la densité du maillage, il existe la notion du Volume Élémentaire Représentatif (VER) qu'on doit respecter pour obtenir les résultats les plus précis lors de l'homogénéisation numérique. Le VER

assure que les calculs effectués avec les deux différentes conditions aux limites donnent les mêmes résultats. En gros, le VER doit être assez grand et contenir assez d'hétérogénéités (nombre de particules) pour éliminer l'effet des conditions aux limites.

Pour ce faire, les microstructures du HDPE-particules de bois du PET-fibres de chanvre avec les plus grandes fractions surfaciques A_f sont étudiées. Un grand contraste de 50 est attribué aux phases du composite et les calculs par éléments finis sont effectués avec deux conditions aux limites différentes, UGT et PBC. Ce cas extrême assure aussi que les images avec les plus petits pourcentages de bois et plus petits contrastes seront également des VER. La différence entre les deux résultats est calculée de cette manière :

$$\Delta\lambda \ \% = \frac{\lambda_{UGT} - \lambda_{PBC}}{\lambda_{PBC}} \times 100 \quad \text{Eq. (IV-8)}$$

L'image est considérée un VER si l'erreur relative $\Delta\lambda$ reste inférieure à 10%. Les résultats des deux microstructures de biocomposites sont détaillés dans le Tableau IV-3. On observe que l'erreur $\Delta\lambda$ est seulement de 6,57% pour le HDPE-particules de bois qui signifie que l'image générée est bien un VER. La même conclusion est déduite pour le biocomposite PET-fibres de chanvre. L'erreur relative est plus élevée à 9,23% à cause des fibres longues. Dans la suite des calculs numériques, le contraste est plus petit et cette erreur diminue aussi. Les microstructures du PET-fibres de chanvre et du HDPE-particules de bois sont tous les deux des VER et la précision des calculs est assurée. Les calculs numériques par la suite utilisent uniquement le PBC.

| | HDPE-particules de bois | PET-fibres de chanvre |
|------------------------|-------------------------|-----------------------|
| λ_{UGT} (W/mK) | 7,28 | 3,55 |
| λ_{PBC} (W/mK) | 6,83 | 3,25 |
| $\Delta\lambda$ (%) | 6,57 | 9,23 |

Tableau IV-3 Résultats de la vérification du VER

IV.3.4 Propriétés des renforts naturels

Pour effectuer l'homogénéisation numérique et analytique, il est nécessaire d'identifier les propriétés de chaque matériau dans les deux biocomposites. Les propriétés thermiques du HDPE sont obtenues à partir de l'analyse de Flash. Cependant, celles des particules de bois restent inconnues. La littérature offre une plage de valeurs pour la conductivité thermique λ de bois. Les particules utilisées dans cette étude est un mélange de plusieurs espèces de bois avec différentes valeurs de λ . Pour assurer un calcul précis, il faut prendre en considération le pourcentage et la conductivité thermique λ de chaque espèce de bois. Les particules de bois se composent de 85% d'épinette blanche et noire qui possède des valeurs de λ de 0,22 à 0,23 W/mK selon Niemz *et al.* (2010) et Sonderegger *et al.* (2011). Le reste des particules est du sapin baumier avec une valeur de λ de 0,05 W/mK selon Incropera et DeWitt (1996) et Lienhard IV et Lienhard V (2011). Après considération des deux conductivités thermiques λ et des deux pourcentages de bois, les propriétés finales des particules de bois et du HDPE choisies sont détaillées dans le Tableau IV-4.

| | HDPE | Bois | PET | Chanvre |
|------------------|------|------|------|---------|
| λ (W/mK) | 0,60 | 0,19 | 0,20 | 0,05 |

Tableau IV-4 Conductivité thermique des matériaux pour l'analyse numérique et analytique

Le PET a également des valeurs assez variées. Selon Lopes et Felisberti (2004), la conductivité thermique λ du PET varie de 0,15 à 0,19 W/mK. Alors que Choy (1977) a mesurée une valeur plus élevée qui est de 0,32 W/mK. Pour cette étude, une valeur intermédiaire de 0,20 W/mK est choisie. D'après Benfratello *et al.* (2013) et Kymäläinen et Sjöberg (2008), la conductivité thermique λ des fibres de chanvre varie de 0,04 à 0,08 W/mK pour plusieurs espèces de chanvre. Selon Le et al. (2014), cette valeur est de 0,048 W/mK. Nous avons décidé de choisir une conductivité thermique λ de 0,05 W/mK pour les fibres de chanvre dans cette étude.

IV.4. Méthode analytique

En plus de l'homogénéisation numérique, la méthode analytique sera aussi comparée aux résultats expérimentaux. Les modèles analytiques sont pratiques pour estimer rapidement les propriétés effectives des milieux hétérogènes. Ils permettent également de vérifier les résultats des calculs numériques.

IV.4.1 Modèle auto-cohérent de Bruggeman

Le modèle auto-cohérent de Bruggeman (1935) a été développé pour déterminer la conductivité thermique d'un milieu infini renforcé par des particules sphériques. Les particules de bois dans cette étude sont assez courtes pour assumer que l'effet de la longueur des fibres est minime et qu'elles peuvent être considérées comme des sphères. Le modèle auto-cohérent de Bruggeman λ_{SC} est décrite par la relation suivante :

$$\lambda_{SC} = \frac{\varphi + \sqrt{\varphi^2 + 4\lambda_f\lambda_m}}{2} \quad \text{Eq. (IV-9)}$$

$$\text{soit } \varphi = \lambda_f \frac{2A_f - 1}{2} + \lambda_m \frac{2A_m - 1}{2} \quad \text{Eq. (IV-10)}$$

Puisque toutes les phases sont traitées de la même manière, l'utilisation de ce modèle pour des grands contrastes n'est pas recommandée. Or, le contraste entre les propriétés des phases des biocomposites dans notre étude est petit. Le modèle étant développé pour des particules sphériques, il sera utilisé pour estimer la conductivité thermique du biocomposite HDPE-particules de bois. Dans le cas des fibres longues de chanvre, ce modèle est utilisé pour mettre en évidence l'efficacité des fibres à diminuer la conductivité thermique du biocomposite comparé aux particules sphériques.

IV.4.2 Modèle de Halpin-Tsai

Pour estimer la conductivité thermique du biocomposite PET-fibres de chanvre, il faut un modèle analytique tenant compte de la longueur des fibres. Le modèle empirique de Halpin et Tsai (1967) est considéré à cet effet. Pour un cas de

la conductivité thermique des microstructures en 2D, le modèle de Halpin-Tsai λ_{HT} est décrit par l'équation suivante :

$$\lambda_{HT} = \lambda_m \left(\frac{1 + \xi \eta A_f}{1 - \eta A_f} \right) \text{ avec } \eta = \frac{\left(\frac{\lambda_f}{\lambda_m} \right) - 1}{\left(\frac{\lambda_f}{\lambda_m} \right) + \xi} \quad \text{Eq. (IV-11)}$$

Soit le paramètre ξ l'influence de la géométrie des fibres sur la conductivité thermique des biocomposites. Ce paramètre nous permettra d'évaluer la capacité des fibres longues à mieux isoler la chaleur dans le milieu du biocomposite PET-fibres de chanvre.

IV.4.3 Bornes de Hashin-Shtrikman

A part les modèles qui servent à estimer les propriétés effectives d'un matériau hétérogène, il existe aussi les bornes analytiques qui assure que les calculs effectués restent logiques. Dans un cas thermique, les bornes du premier ordre sont les bornes de Wiener (1912) qui sont l'équivalent des bornes de Voigt et Reuss. Les bornes du deuxième ordre qui sont utilisées dans cette étude sont les bornes de Hashin et Shtrikman (1962). Elles sont appliquées dans le cas d'un matériau macroscopiquement isotrope composé de n phases isotropes. Puisqu'elles sont plus serrées que les bornes de Wiener, elles sont plus fiables pour déterminer la validité des calculs. Nous rappelons que les bornes supérieur et inférieur de Hashin-Shtrikman pour un cas de composite biphasés en 2D dans ce cas sont les mêmes que celles dans le Chapitre II. Elles sont détaillées par les équations suivantes :

$$\lambda^{HS^-} = \lambda_m + \frac{A_f}{\frac{1}{\lambda_f - \lambda_m} + \frac{A_m}{2\lambda_m}} \quad \text{Eq. (IV-12)}$$

$$\lambda^{HS^+} = \lambda_f + \frac{A_m}{\frac{1}{\lambda_m - \lambda_f} + \frac{A_f}{2\lambda_f}} \quad \text{Eq. (IV-13)}$$

IV.5. Résultats et discussions

La comparaison des résultats se fait à l'aide de l'erreur relative $\Delta\lambda$ avec les résultats expérimentaux agissant comme référence. Les calculs sont considérés effectifs si l'erreur $\Delta\lambda$ reste inférieur à 10%. L'erreur relative $\Delta\lambda$ relie les résultats numériques λ_{num} , analytiques $\lambda_{SC/HT}$ et expérimentaux λ_{exp} par l'équation suivante :

$$\Delta\lambda \text{ \%} = \frac{\lambda_{num/SC} - \lambda_{exp}}{\lambda_{exp}} \times 100 \quad \text{Eq. (IV-14)}$$

Dans le cas du biocomposite PET-fibres de chanvre où il manque les résultats expérimentaux, les résultats numériques seront la référence pour les modèles analytiques :

$$\Delta\lambda \text{ \%} = \frac{\lambda_{SC/HT} - \lambda_{num}}{\lambda_{num}} \times 100 \quad \text{Eq. (IV-15)}$$

IV.5.1 HDPE-particules de bois

Les résultats des approches expérimentale, numérique et analytique sont détaillés dans le Tableau IV-5 et illustrés dans la Figure IV-9. Les résultats analytiques λ_{SC} et numériques λ_{num} restent cohérentes aux résultats expérimentaux λ_{exp} pour toute fraction surfacique A_f avec une erreur $\Delta\lambda$ maximale de 6% qui est inférieur à la limite de 10% imposée. Les calculs analytiques et numériques produisent des conductivités thermiques effectives λ_{eff} du biocomposite HDPE-particules de bois et ces deux méthodes de calculs sont fiables. Le choix des propriétés de bois à partir de la littérature et la prise en compte du pourcentage d'espèces de bois dans les particules s'avèrent pertinents.

La Figure IV-10 montre la distribution de la conductivité thermique dans les biocomposites. La couleur bleue indique une faible conductivité thermique λ alors que l'orange signifie une valeur de λ élevée. Effectivement, les particules sont toutes représentées en bleues et la matrice en jaune/orange. Il est intéressant aussi d'observer les zones autour des particules qui changent de couleur qui indique une diminution de la conductivité thermique λ . Cet effet est plus évident sur la

microstructure avec le plus gros pourcentage de bois où la couleur jaune est à peine observée. En fait, la faible valeur de λ des particules de bois a fait baisser celle λ du HDPE qui les entoure.

| wt (%) | A_f | λ_{exp} (W/mK) | λ_{num} (W/mK) | $\Delta\lambda$ (%) | λ_{SC} (W/mK) | $\Delta\lambda$ (%) |
|----------|-------|------------------------|------------------------|---------------------|-----------------------|---------------------|
| 0 | 0 | 0,600 | 0,600 | 0 | 0,600 | 0 |
| 20 | 0,14 | - | 0,518 | - | 0,516 | - |
| 30 | 0,22 | 0,465 | 0,472 | 2 | 0,471 | 1 |
| 40 | 0,30 | - | 0,435 | - | 0,430 | - |
| 50 | 0,39 | - | 0,392 | - | 0,386 | - |
| 60 | 0,50 | 0,326 | 0,345 | 6 | 0,338 | 4 |

Tableau IV-5 Comparaison de la conductivité thermique du HDPE-particules de bois obtenue par les trois méthodes

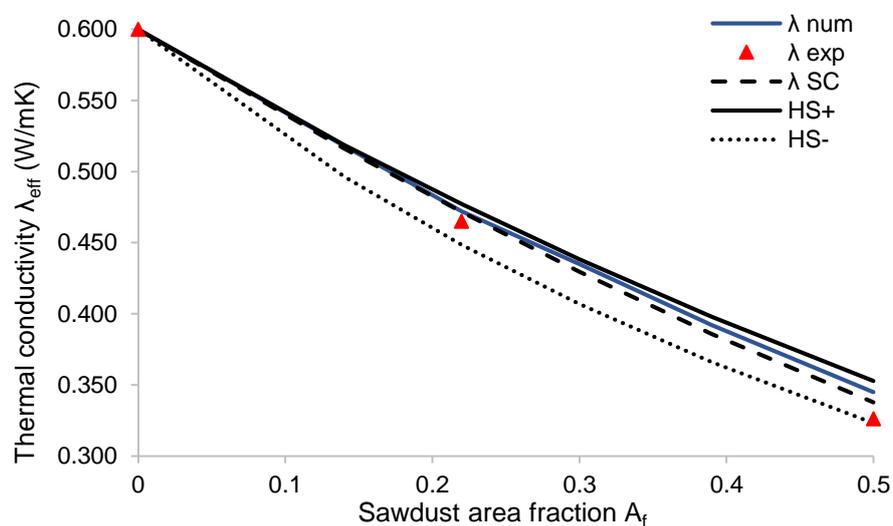


Figure IV-9 Conductivité thermique effective en fonction du pourcentage de particules de bois

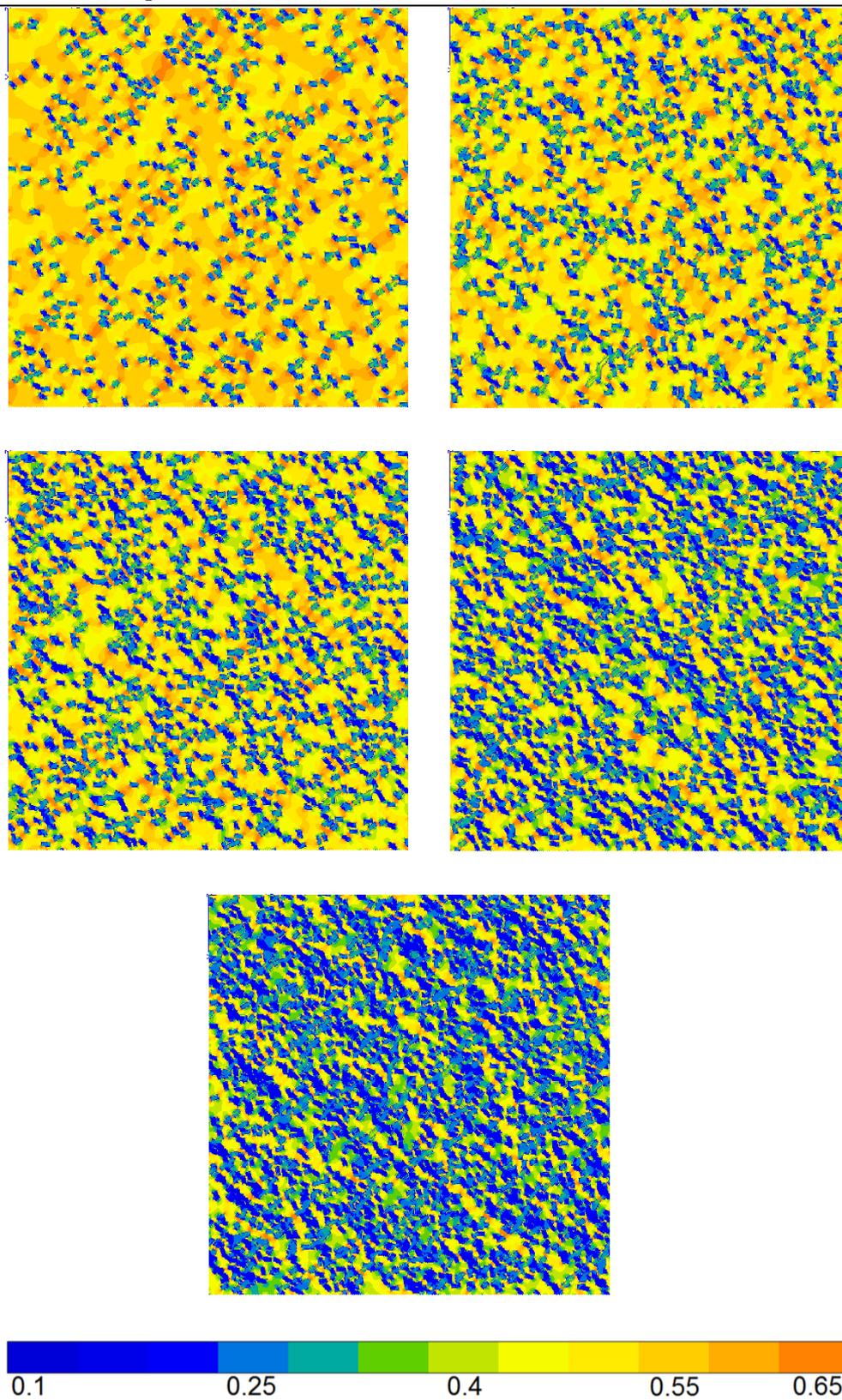


Figure IV-10 Distribution de la conductivité thermique λ sur les microstructures du biocomposite HDPE-particules de bois en ordre croissant de la fraction surfacique du bois A_f

Cependant, on observe également que l'erreur $\Delta\lambda$ augmente avec la fraction surfacique de bois A_f et si A_f continue d'augmenter, les calculs risquent de donner des résultats erronés. Cet écart est plus apparent dans la Figure IV-9 où les calculs numériques λ_{num} surestiment toujours la conductivité thermique expérimentale λ_{exp} du biocomposite. Cette observation pourrait s'expliquer par la morphologie des particules et leur interaction avec la matrice dans les échantillons expérimentaux. Le contact entre les particules et la matrice dans les calculs numériques et analytiques est considéré parfait, donc le transfert de chaleur dans le milieu s'effectue efficacement. Un bon transfert de chaleur conduit à une valeur de conductivité thermique λ plus élevée. En réalité, il est fort possible que des défauts apparaissent sur l'interface particule/matrice. C'est encore plus plausible dans le cas des thermoplastiques qui sont hydrophobes renforcés par des fibres naturelles qui sont hydrophiles. L'ajout de l'agent de couplage aide à réduire l'incompatibilité entre ces deux types de matériaux mais elle ne disparaît pas complètement. Cette incompatibilité favorise la formation des bulles d'air dans le biocomposite.

Madsen *et al.* (2007) ont démontré que la porosité augmente avec le pourcentage de fibres même pour les biocomposites renforcés par des fibres unidirectionnelles. Après un certain pourcentage de fibres, les précautions qu'ils ont pris pendant l'élaboration des biocomposites n'empêchent plus la formation de porosité dans le biocomposite. Il est également possible que dans notre cas, les lumens dans les fibres de bois n'aient pas été remplis par la matrice de HDPE dû à sa viscosité élevée. Selon Siau (1995), le lumen fait partie de 20 à 70% de la section des fibres de bois. C'est-à-dire que la porosité se situe à l'intérieur de nos particules. La présence des bulles d'air qui a une conductivité thermique λ inférieure à celle de bois provoque le biocomposite à devenir plus isolant à la chaleur. Ce serait la raison pourquoi les résultats expérimentaux λ_{exp} sont toujours inférieures aux résultats numériques λ_{num} et analytiques λ_{SC} . Liu *et al.* (2012) qui ont étudié l'effet de la taille du lumen ont déduit aussi que plus le lumen est large, plus la conductivité thermique réduit. Une meilleure cohérence entre les trois approches λ_{num} , λ_{SC} et λ_{exp} est possible avec la considération de la phase poreuse dans le composite HDPE-particules de bois.

IV.5.1.1 Effets de la porosité

L'effet de la porosité sur le composite HDPE-particules de bois est analysé par les approches numérique et analytique. Le pourcentage de la porosité peut être déterminée expérimentalement, mais cette option n'a pas pu se réaliser pour notre biocomposite HDPE-particules de bois. Une procédure rapide pour estimer le pourcentage de porosité est un mélange d'approche analytique et numérique. Nous considérons tout d'abord les résultats numériques obtenus auparavant comme la conductivité thermique d'un milieu homogène équivalent. Tandis que la porosité représente alors des renforts dans le biocomposite. Puisque le modèle de Bruggeman a généré des résultats cohérents, il servira à estimer la fraction surfacique de la porosité A_p dans le biocomposite. Dans Eq. (IV-9), la conductivité thermique de la matrice λ_m est remplacée par celle calculée numériquement λ_{num} alors que λ_f est remplacée par la conductivité thermique de la porosité qui est de 0,024 W/mK selon El Moumen *et al.* (2015).

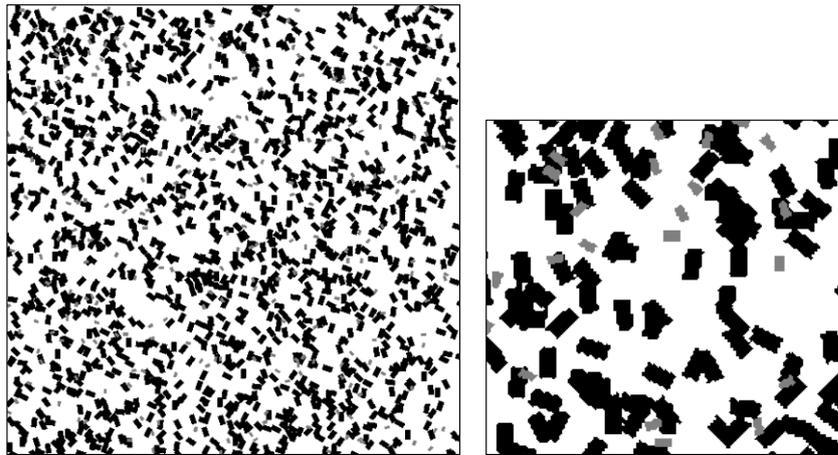


Figure IV-11 Microstructure du composite avec 30 wt% de bois et le zoom montrant les pores distribués aléatoirement

Le calcul a donné la fraction surfacique de la porosité A_p qui est égale à 0,01 et 0,03 pour les cas de la fraction surfacique de bois A_f de 0,22 et 0,50 respectivement. Ces valeurs de A_p sont d'environ 5 à 6% de A_f , donc on peut assumer que cette proportion reste vraie pour les autres pourcentages de fibres. Avec la même méthode de génération des images employé précédemment, la phase poreuse est intégrée dans les échantillons virtuels du biocomposite HDPE-particules de bois dans la Figure IV-5. Nous imposons un autre code de couleur pour la phase poreuse afin de la

différencier des fibres noires. Les pores gris sont considérés deux fois plus petites que les fibres et ils sont distribués aléatoirement dans le composite. Comme le montre la Figure IV-11, la phase poreuse peut se situer soit sur les fibres soit sur la matrice. Ces positions aléatoires servent à imiter la réalité où les bulles d'air ne sont pas seulement présentes dans le lumen mais également dans la matrice et sur l'interface fibre/matrice.

| wt (%) | A_f | λ_{exp} (W/mK) | λ_{num} (W/mK) | $\Delta\lambda$ (%) |
|----------|-------|------------------------|------------------------|---------------------|
| 0 | 0 | 0,600 | 0,600 | 0 |
| 20 | 0,14 | - | 0,510 | - |
| 30 | 0,22 | 0,465 | 0,463 | 0 |
| 40 | 0,30 | - | 0,420 | - |
| 50 | 0,39 | - | 0,376 | - |
| 60 | 0,50 | 0,326 | 0,328 | 1 |

Tableau IV-6 Résultats des calculs numériques avec considération de la phase poreuse

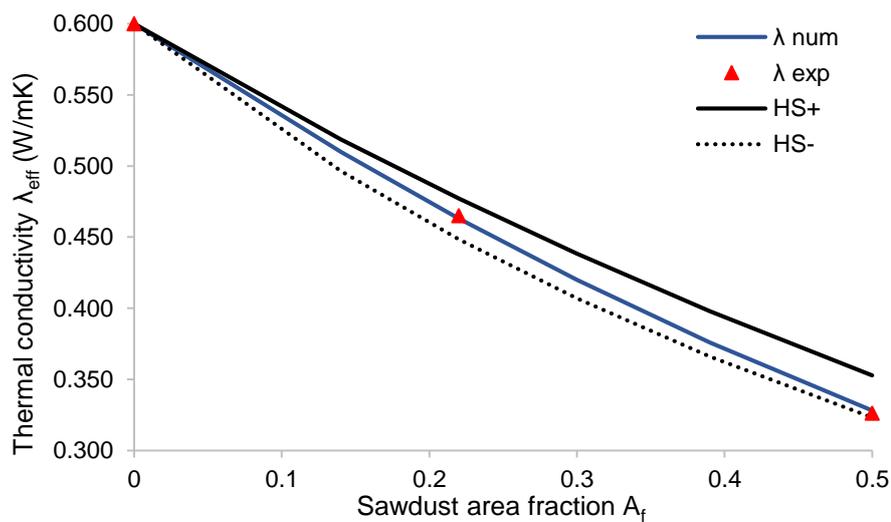


Figure IV-12 Conductivité thermique effective du biocomposite HDPE-particules de bois poreux

La même méthode d'homogénéisation numérique est appliquée et les résultats sont détaillés dans le Tableau IV-6 et illustrés dans la Figure IV-12. La nouvelle λ_{num} est presque identique à λ_{exp} avec seulement 1% d'erreur maximale. Effectivement, la porosité est présente dans le biocomposite HDPE-particules de bois. Le fait que la porosité n'est pas tenu compte dans la section a empêché une meilleure prédiction de la conductivité thermique effective λ_{eff} du biocomposite. Néanmoins, l'existence de la porosité est seulement prise en compte grâce à la divergence observée précédemment. Effectivement, il faut la détermination du pourcentage de la porosité par approche expérimentale afin de pouvoir obtenir la conductivité thermique effective du biocomposite plus précisément. Néanmoins, les méthodes analytique et numérique pour déterminer le taux de porosité employées dans cette étude a présenté des résultats aussi précis.

La fraction surfacique de la porosité A_p de 0,03 dans l'échantillon avec une fraction surfacique de particules A_f de 0,50 est faible comparée à d'autres études sur des matériaux similaires. Prisco (2014) qui a étudié la conductivité thermique des composites de HDPE-particule de bois a noté une fraction volumique de porosité de 9,5% dans un composite avec une fraction massique de 50 *wt%* de bois. Facca *et al.* (2006) ont également trouvé environ 10% de porosité dans leur composite de HDPE renforcé par 60 *wt%* de particules de chêne. Le faible pourcentage de porosité dans nos échantillons serait grâce à deux facteurs. Le premier est un bon mélange des particules de bois dans le HDPE à l'aide de l'agent couplant PE-g-MA. Le deuxième est la précharge appliquée pendant la thermocompression des éprouvettes qui élimine les bulles d'air dans le biocomposite. Ces deux raisonnements sont confirmés par l'observation microscopique d'une section polie du HDPE renforcé par 40 *wt%* de bois effectuée par Godard *et al.* (2008). Ils ont observé des fibres individuelles (sans agglomération) qui sont bien enrobées par la matrice. La porosité qui est présente dans les échantillons n'est probablement pas observée pendant cette analyse par microscopie.

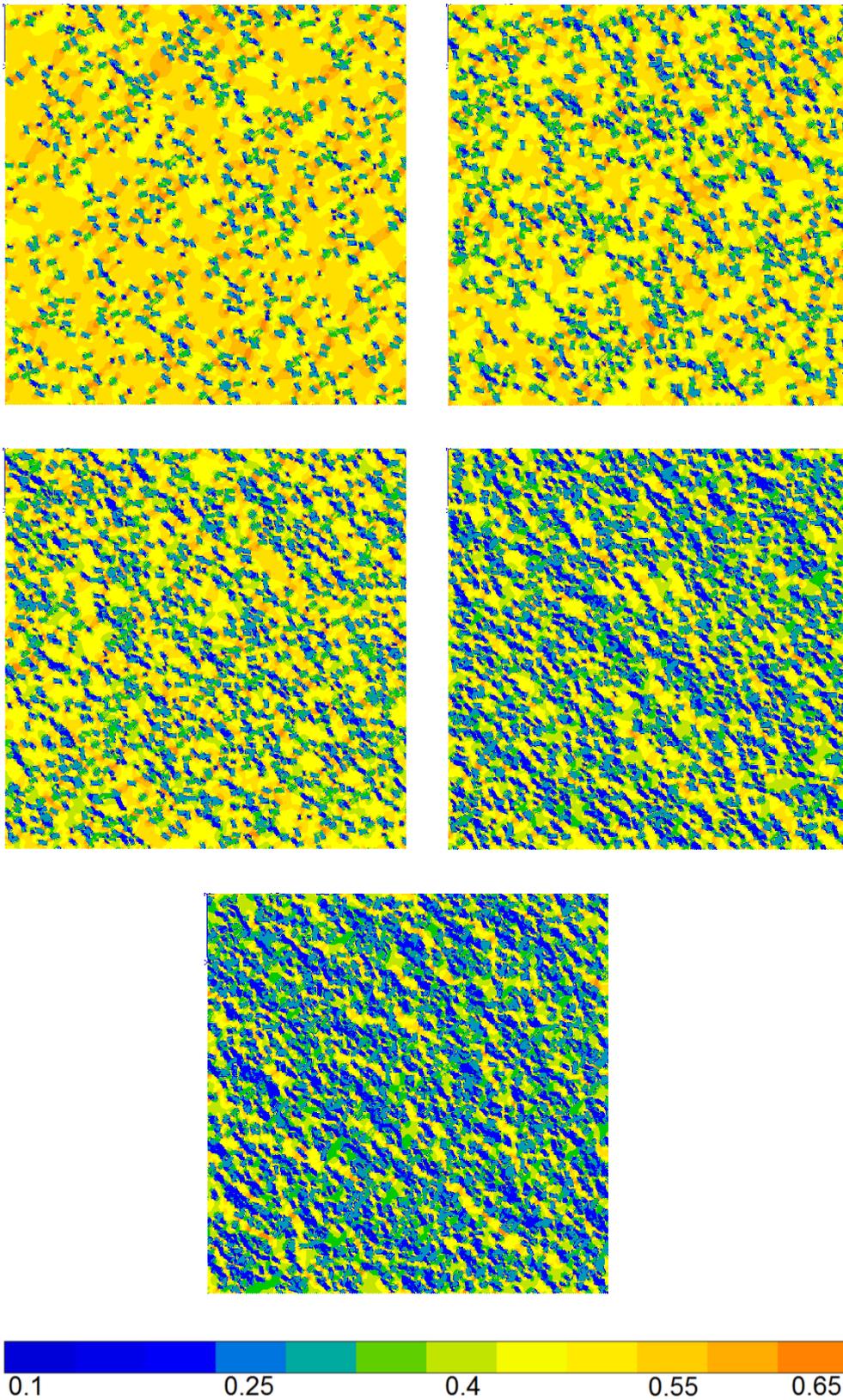


Figure IV-13 Distribution de la conductivité thermique λ sur les microstructures du biocomposite HDPE-particules de bois avec porosité en ordre croissant de la fraction surfacique du bois A_f

La Figure IV-13 montre la distribution de la conductivité thermique λ sur les microstructures du HDPE-particules de bois avec porosité. Les mêmes observations que la Figure IV-10 sont remarquées où il y a une diminution de la conductivité thermique λ autour des particules de bois. La phase poreuse n'est pas si évidente sur ces images due à son petit pourcentage. Une comparaison entre les biocomposites sans pores et avec pores est effectuée dans la Figure IV-14. Pour mieux observer la porosité, les microstructures avec un maximum de pourcentage de bois sont choisies. Effectivement, la porosité a conduit une meilleure diminution de la conductivité thermique dans le biocomposite, montrée par les couleurs vertes dans les zones qui étaient jaunes dans la microstructure sans pores.

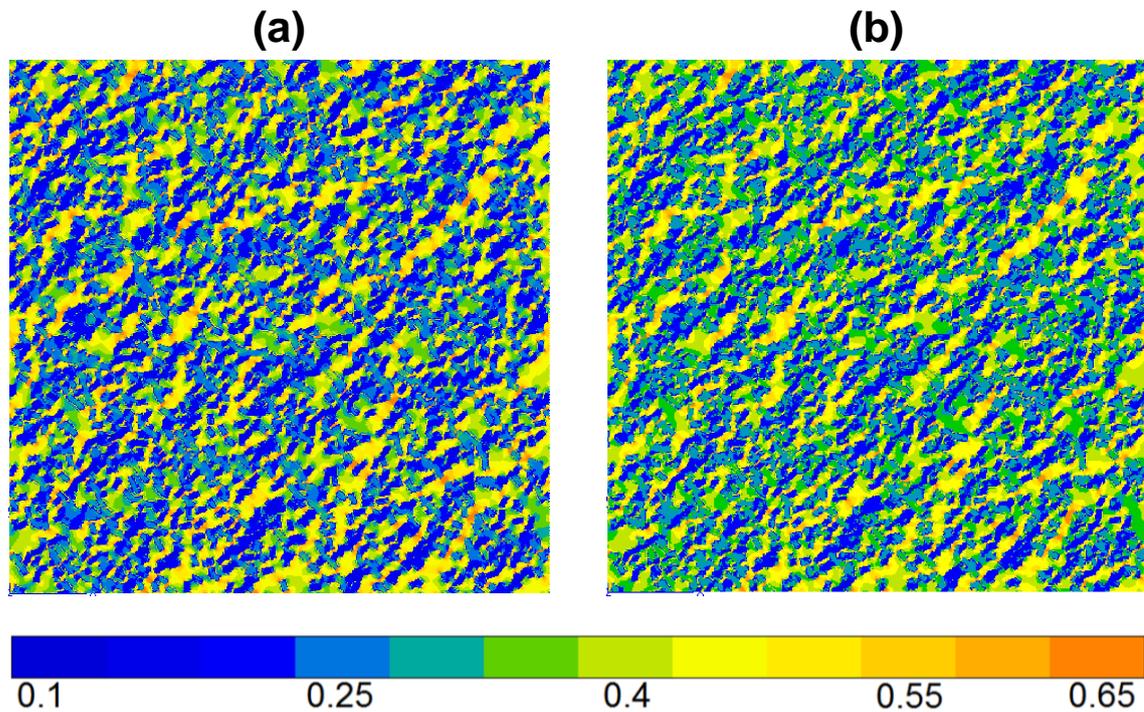


Figure IV-14 Comparaison de la distribution de la conductivité thermique λ entre une microstructure (a) sans pores et (b) avec pores

IV.5.2 PET-fibres de chanvre

D'après le Tableau IV-7 et la Figure IV-15, on observe que les résultats numériques λ_{num} sont toujours inférieurs au modèle de Bruggeman λ_{SC} . Les erreurs ne dépassent pas 3% à cause du petit contraste c entre les propriétés des phases qui est seulement de 4. Or, on observe mieux cet écart sur la courbe dans la Figure

IV-15. Ceci pourrait être expliqué par le fait que les fibres de chanvre sont des fibres longues alors que le modèle auto-cohérent de Bruggeman est réservé pour les renforts particuliers. Grâce à la longueur des fibres de chanvre, elles apportent une meilleure diminution de la conductivité thermique au biocomposite comparé aux particules de bois qui ont un rapport de forme plus petit. Cet effet du rapport de forme précédemment vu dans le cas des propriétés mécaniques est également présent dans ce cas thermique. Avec le modèle de Halpin-Tsai, les valeurs de λ_{HT} coïncident parfaitement avec les résultats numériques λ_{num} . Le paramètre ξ correspondant est égale à 2 dans ce cas thermique. Comparé au cas mécanique, l'effet de la longueur des fibres sur la conductivité thermique du biocomposite PET-fibres de chanvre est moins prononcé. Néanmoins, ce paramètre a permis d'évaluer l'efficacité des fibres longues dans la diminution de la conductivité thermique des biocomposites. A partir des résultats numériques et analytiques détaillés ici, le biocomposite PET-fibres de chanvre montre une isolation thermique prometteuse. Ces résultats pourraient être validés par des essais expérimentaux éventuels.

| wt (%) | A_r | λ_{num} (W/mK) | λ_{SC} (W/mK) | $\Delta\lambda$ (%) | λ_{HT} (W/mK) | $\Delta\lambda$ (%) |
|----------|-------|------------------------|-----------------------|---------------------|-----------------------|---------------------|
| 0 | 0 | 0,200 | 0,200 | 0 | 0,200 | 0 |
| 5 | 0,05 | 0,186 | 0,188 | 1 | 0,186 | 0 |
| 10 | 0,10 | 0,173 | 0,177 | 2 | 0,173 | 0 |
| 15 | 0,15 | 0,161 | 0,165 | 3 | 0,161 | 0 |
| 20 | 0,20 | 0,152 | 0,155 | 2 | 0,150 | 1 |

Tableau IV-7 Comparaison de la conductivité thermique du PET-fibres de chanvre obtenue par les deux méthodes

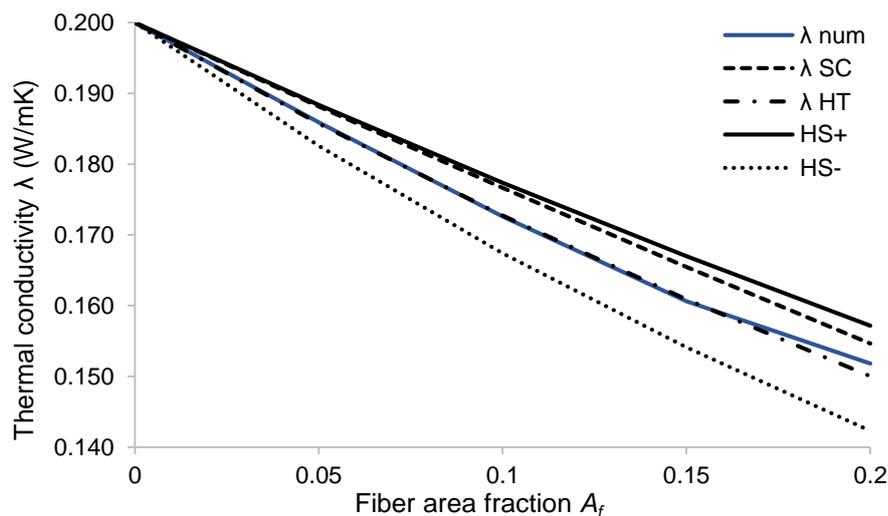


Figure IV-15 Conductivité thermique effective en fonction du pourcentage de fibres de chanvre

La distribution de la conductivité thermique dans les microstructures du biocomposite PET-fibres de chanvre est montrée par la Figure IV-16. On observe que la plupart des fibres sont en bleu et la matrice en orange. Plus le nombre de fibres augmente, plus les zones orange diminuent. Dans les endroits où les fibres sont plus concentrées, les zones autour des fibres changent de couleur de jaune/orange en vert. Ceci signifie que les fibres ont fait diminuer la conductivité thermique de la matrice qui les entoure.

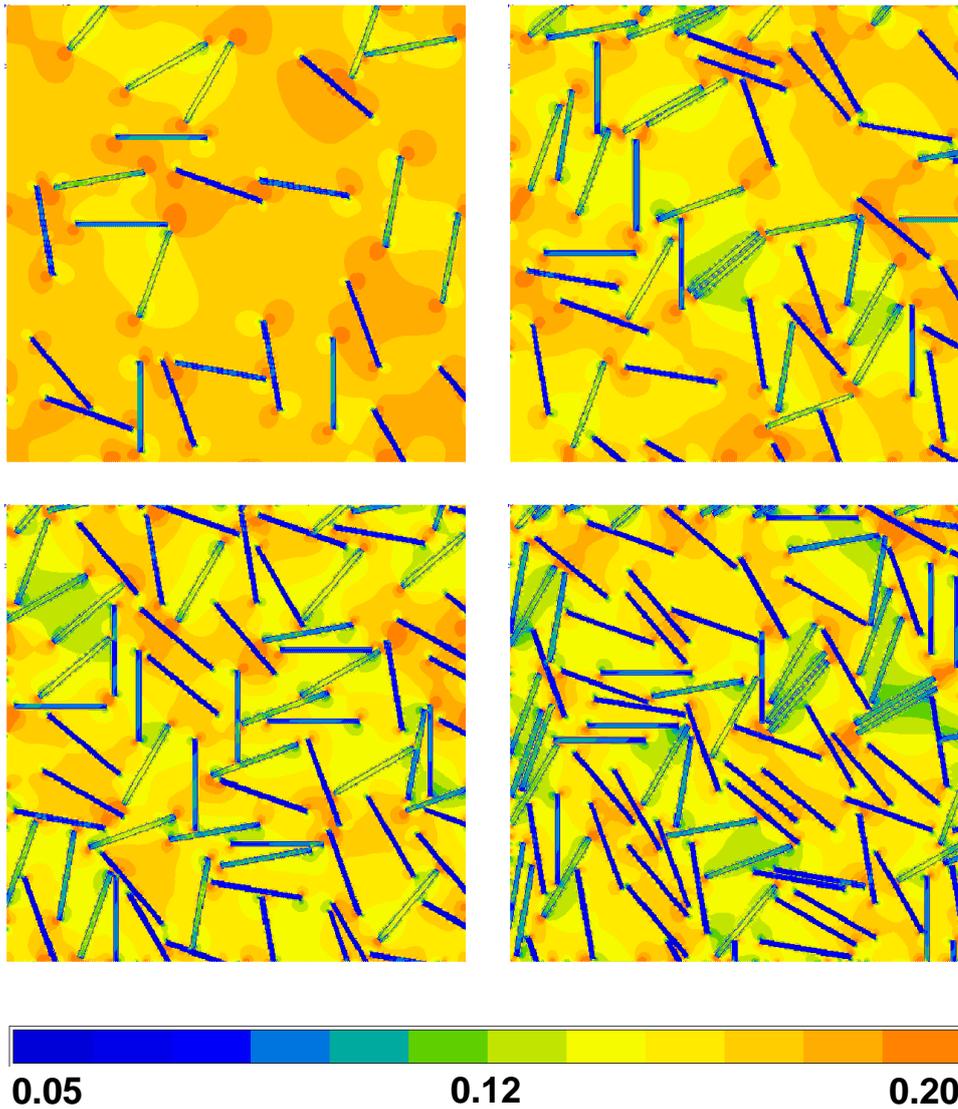


Figure IV-16 Distribution de la conductivité thermique λ sur les microstructures du biocomposite PET-fibres de chanvre en ordre croissant de la fraction surfacique des fibres A_f

IV.6. Conclusion

Les propriétés thermiques des biocomposites HDPE-particules de bois sont étudiées par approches expérimentale, numérique et analytique. L'analyse expérimentale effectuée selon la méthode de Flash a montré une réduction de la diffusivité thermique lorsque le pourcentage de fibres augmente. Par conséquent, la conductivité thermique diminue aussi, avec un maximum de 46% à 60 *wt%* de

particules de bois. L'analyse de Flash employée dans cette étude est fiable et fournit des résultats cohérents avec la littérature.

Les calculs numérique et analytique de Bruggeman sont comparés aux résultats expérimentaux pour déterminer les propriétés effectives du biocomposite. A bas pourcentage de bois, les trois approches sont cohérentes mais ils commencent à se diverger quand le pourcentage de bois augmente. La cause principale serait la présence de porosité dans les échantillons expérimentaux qui rend le composite plus isolant à la chaleur. Cela explique la conductivité thermique expérimentale qui est toujours inférieure à celles des deux autres approches. Une deuxième étape d'homogénéisation prenant en compte la porosité a montré une bonne cohérence aux résultats expérimentaux avec une erreur maximale de 1%. L'homogénéisation numérique s'est avérée un outil fiable et compétent pour déterminer les propriétés effectives du biocomposite HDPE-particules de bois. Elle est aussi assez flexible pour incorporer des défauts comme la porosité dans les calculs.

Les calculs numériques et analytiques sur le biocomposite PET-fibres de chanvre ont montré la même tendance que le biocomposite HDPE-particules de bois. Sa conductivité thermique diminue lorsque le pourcentage des fibres augmente. Or, les fibres de chanvre ont montré une meilleure capacité d'isoler la chaleur grâce à leur rapport de forme plus grand que les particules de bois. L'estimation par le modèle de Bruggeman qui est développé pour les particules sphériques a généré une divergence avec les résultats numériques. Les résultats du modèle de Halpin-Tsai coïncident avec les résultats numériques, présentant un paramètre de géométrie de 2 qui affirme que le grand rapport de forme des fibres de chanvre a joué un bon rôle dans la diminution de la conductivité thermique du biocomposite PET-fibres de chanvre.

**Chapitre V : Thermoformage d'un
coffrage en biocomposite HDPE-
particules de bois**

Sommaire

| | |
|--|-----|
| Chapitre V : Thermoformage d'un coffrage en biocomposite HDPE-particules de bois..... | 176 |
| V.1. Introduction..... | 178 |
| V.2. Modélisation numérique d'un coffrage..... | 179 |
| V.3. Thermoformage du coffrage..... | 182 |
| V.3.1 Caractérisation expérimentale et numérique du comportement viscoélastique du biocomposite HDPE-particules de bois..... | 183 |
| V.3.2 Formulation par la méthode des éléments finis..... | 187 |
| V.3.3 Soufflage libre des biocomposites..... | 193 |
| V.3.4 Thermoformage du coffrage en biocomposite HDPE-particules de bois | 198 |
| V.4. Conclusion..... | 203 |

V.1. Introduction

Ce chapitre concerne une investigation sur l'utilisation des structures biocomposites, de type plastique-bois, pour la fabrication de produits en génie civil à l'aide de thermoformage. Le produit visé par cette investigation est un coffrage. D'ailleurs, la majorité des coffrages sont réalisés à partir des matériaux classiques tels que le bois et l'acier. Pour l'étude numérique de la conception et la mise en forme par thermoformage du coffrage biocomposite, nous exploitons les caractéristiques mécaniques et rhéologiques obtenues au Laboratoire de Bioplasturgie, de l'Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue. La méthodologie utilisée s'articule sur quatre volets :

1. Étude numérique sur la conception et la résistance aux chargements mécaniques du coffrage HDPE-particules de bois en fonction de la concentration massique en renforts (0, 20, 40 et 50 *wt%* de particules de bois). Pour cela, nous avons utilisé les paramètres mécaniques obtenus expérimentalement sur les biocomposites
2. Caractérisation expérimentale et numérique du comportement viscoélastique du composite HDPE-particules de bois en fonction de la concentration massique en renforts (0, 20, 40 et 50 *wt%* de particules de bois) à la température 170°C. À cet effet, nous avons utilisé, d'une part, le modèle viscoélastique intégral de Lodge, et d'autre part, les propriétés rhéologiques relatives aux modules dynamiques de conservation G' et aux modules dynamiques de perte G'' , obtenues par des essais en cisaillement oscillatoires
3. Modélisation numérique de soufflage libre en grandes déformations des structures biocomposites. Deux cas sont concernés par cette étude : HDPE vierge et HDPE chargé de 50 *wt%* de particules de bois. Le modèle de Lodge identifié au volet 2, pour HDPE vierge et renforcé, sont utilisés. L'Objectif de cette étude est d'assurer la qualité de la solution numérique
4. Mise en forme numérique du coffrage biocomposite en fonction de la teneur en bois (0, 20, 40 et 50 *wt%* de particules de bois). Pour l'analyse du contact matériau/moule, nous avons considéré l'hypothèse d'un contact collant.

V.2. Modélisation numérique d'un coffrage

Le coffrage est une pièce servant d'un moule dans lequel est versé le béton. Une fois que le béton a complètement séché, le coffrage est enlevé pour obtenir la forme finale de la structure. Il existe plusieurs types de coffrage dont le traditionnel est fait en bois. Sa fabrication est rapide et économique mais le coffrage en bois n'est pas adapté pour les grandes structures. De plus, il a une courte durée de vie. Désormais, le coffrage en métal est plus utilisé grâce à sa longue durée de vie et sa facilité d'utilisation. Bien que sa production soit plus chère, sa longue durée de vie le rend plus rentable. La Figure V-1 montre des exemples de coffrage en bois et en acier pour des petites structures. Ces types de coffrage sont enlevés après le coulage du béton, mais il existe le coffrage qui reste collé à la structure.

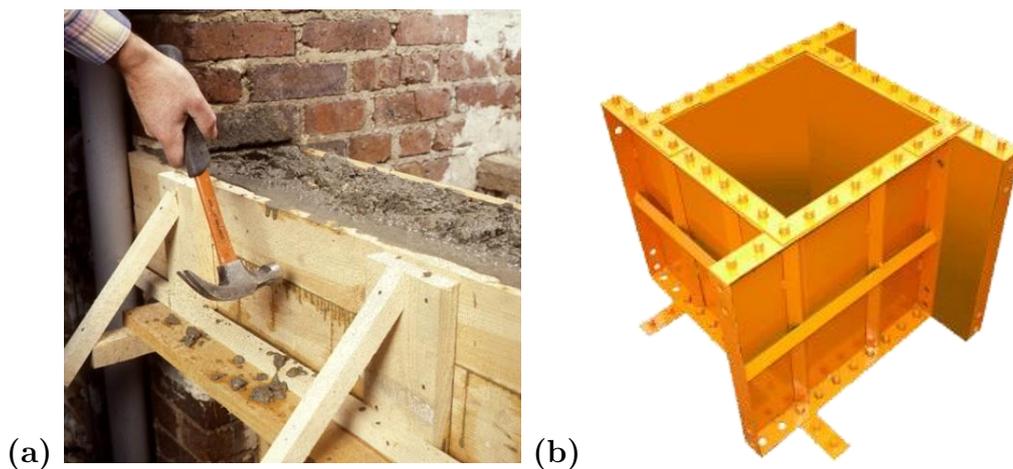


Figure V-1 (a) Coffrage en bois et (b) coffrage en acier

Le coffrage demeure sur la structure même après le durcissement du béton. Il fera partie de la structure et agit comme son support. Le coffrage est souvent utilisé pour les planchers ou plafonds et non les murs. Un exemple de coffrage en acier pour le plancher est montré dans la Figure V-2. Le béton est coulé sur la partie supérieure du coffrage avec les barres d'acier pour former le béton armé qui constitueront le plancher (Figure V-3). Puisque le coffrage fait partie de la structure, il doit soutenir le poids du béton armé ainsi que d'autres charges extérieures

pendant tout au long de la durée de vie du bâtiment. Sa forme concave permet de réduire de la matière et de mieux résister aux chargements verticaux.



Figure V-2 Coffrage en acier pour le plancher

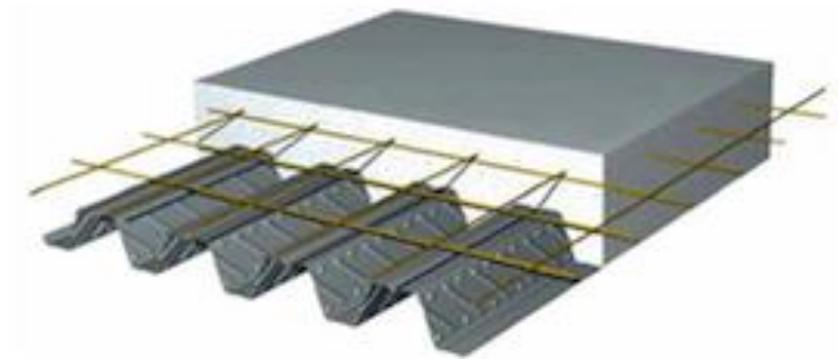


Figure V-3 Coulage du béton et mise en place des barres d'acier

Le coffrage est principalement fabriqué en métal et en bois. La Figure V-4 montre un coffrage en copeaux de bois liés par de la colle. Comparé au coffrage métallique, il est plus léger, plus économique et plus écologique. Par contre, il est moins résistant et est sensible à l'humidité. Pour surmonter ces problèmes, nous introduisons un nouveau matériau qui pourrait remplacer les copeaux de bois. Notre biocomposite de HDPE-particules de bois est un bon candidat grâce aux bonnes propriétés mécaniques et thermiques.



Figure V-4 Coffrage en copeaux de bois

Le biocomposite HDPE-particules de bois possède tous les avantages des copeaux de bois mais il est plus résistant à l'eau car il est constitué principalement du thermoplastique HDPE hydrophobe. Bien que les particules de bois réduisent cette résistance à l'eau, elle est toujours plus résistante que la pièce en copeaux de bois. Le biocomposite est également facile à mettre en forme et la mise en forme est, en théorie, réversible. Les études antérieures par Erchiqui *et al.* (2009) ont montré la possibilité de thermoformer le biocomposite HDPE-particules de bois. Ceci ouvre un nouveau volet dans la production et la mise en forme des coffrages en biocomposites qui ne sont, à nos connaissances, pas encore fabriqués par thermoformage. Le but de cette première étude est de concevoir un coffrage par les outils de conception numérique, et d'analyser la résistance mécanique du coffrage dans des situations réelles pendant sa durée de vie.

La conception finale choisie pour cette étude est illustrée dans la Figure V-5. Le coffrage est d'une forme basique qui est facile à thermoformer mais aussi conçu pour bien résister aux chargements qu'il reçoit pendant son utilisation. L'étude complète sur la conception numérique et la résistance mécanique du coffrage se trouve en Annexe. Dans la suite de l'étude, une simulation numérique du thermoformage du coffrage est effectuée.

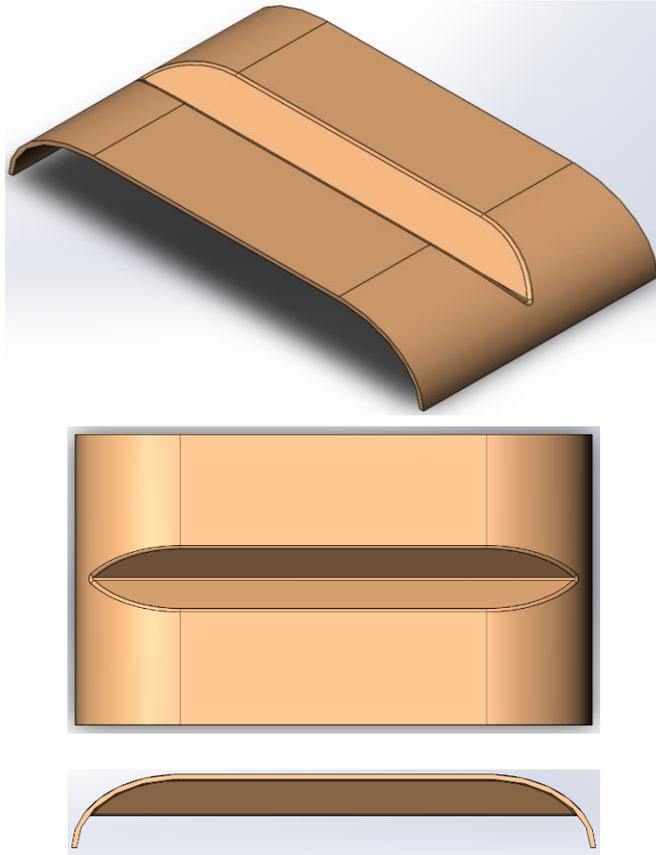


Figure V-5 Conception du coffrage complet

V.3. Thermoformage du coffrage

Dans cette partie, une étude est réalisée sur la mise en forme d'un coffrage biocomposite par thermoformage. Pour cela, une étude est réalisée sur l'effet d'un débit d'air sur les déformations et les contraintes induites dans la pièce thermoformée (coffrage). Pour la modélisation du comportement des biocomposites, nous considérons le modèle viscoélastique intégral de Lodge (Lodge, 1964). Pour la modélisation numérique par élément finis nous avons considéré une approche lagrangienne. Le matériau est supposé isotherme, isotrope et incompressible. En plus, seule la phase de formage est prise en compte dans ce chapitre.

V.3.1 Caractérisation expérimentale et numérique du comportement viscoélastique du biocomposite HDPE-particules de bois

Dans ce travail, nous considérons les données associées à une famille de biocomposites, élaborés à l'Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue au sein du Laboratoire de Bioplasturgie, à base de particules de bois et de HDPE. Pour le volet de modélisation numérique, ces matériaux sont supposés isotropes, homogènes et isothermes. En plus, comme il est souligné dans la littérature, le modèle viscoélastique intégral de Lodge (Erchiqui *et al.* 2005) est approprié pour représenter le comportement des thermoplastiques de type HDPE et HDPE-particules de bois (Erchiqui *et al.* (2005, 2009). En conséquence, ce modèle sera utilisé pour représenter la réponse mécanique de la famille des biocomposites HDPE-Particules de bois.

Le modèle de Lodge (1964) est à la base de la plupart des modèles viscoélastiques intégraux. Selon ce modèle, la connaissance de l'historique des déformations subites par le matériau est essentielle pour déterminer le champ présent des contraintes :

$$\sigma(t) = \int_{-\infty}^t m(t, \tau) C^{-1}(t, \tau) d\tau \quad \text{Eq. (V.1)}$$

Soit m la fonction mémoire donné par :

$$m(t, \tau) = \sum_{k=1}^n \frac{g_k}{\tau_k} \exp\left(-\frac{t-\tau}{\tau_k}\right) \quad \text{Eq. (V.2)}$$

Les paramètres g_k et τ_k représentent respectivement le temps de relaxation et le module de rigidité associé au mode k . Le tenseur des déformations de Finger est représenté par C^t dans l'équation suivante :

$$C^{-1}(t, \tau) = [F^T(t, \tau) \cdot F(t, \tau)]^{-1} \quad \text{Eq. (V.3)}$$

Soit F le tenseur gradient des déformations. Le modèle de Lodge est souvent utilisé pour décrire le comportement incompressible à l'état fluide des polymères thermoplastiques. Toutefois, Erchiqui *et al.* (2005) ont montré qu'il est possible d'utiliser ce modèle pour les matériaux à l'état semi-solide.

Il existe plusieurs approches, qui combinent des données expérimentales et numériques, pour identifier les propriétés rhéologiques de la loi de Lodge. Dans ce travail, nous considérons les données expérimentales issues des tests en cisaillement oscillatoires à faible amplitude, fournies par le Laboratoire de Bioplasturgie de l'Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue, sur une famille de biocomposites de type HDPE-particules de bois. Les modules dynamiques de conservation G' et les modules dynamiques de perte G'' en fonction de la fréquence des oscillations ω pour 0, 20, 40 et 50 *wt%* de bois sont présentés dans la Figure V-6 et la Figure V-7.

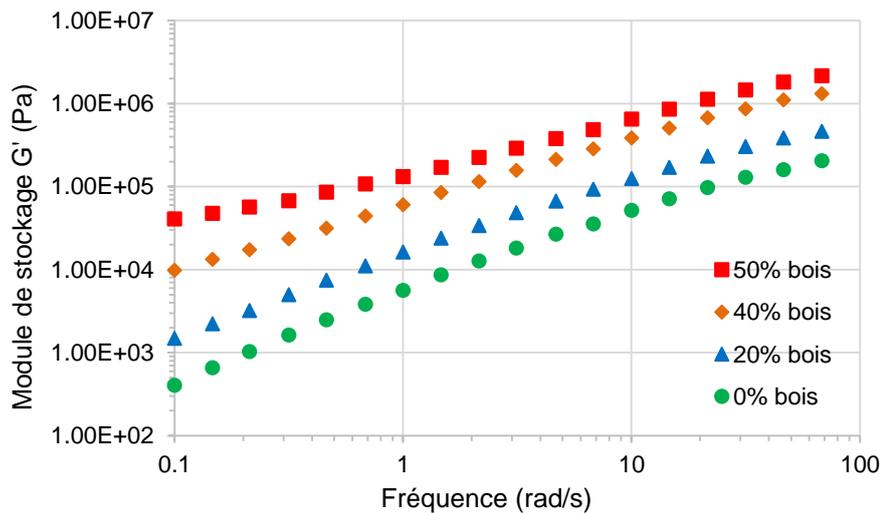


Figure V-6 Modules dynamiques G' mesurés en fonction du teneur en particules de bois

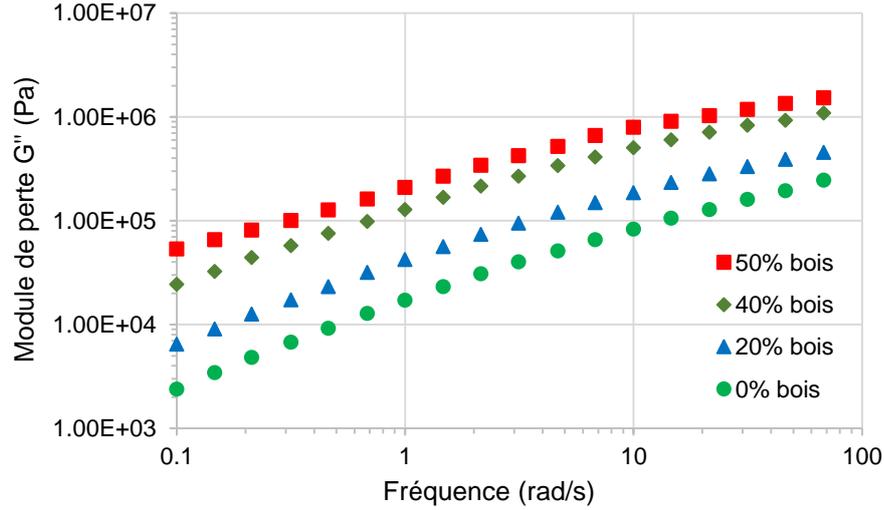


Figure V-7 Modules dynamiques G'' mesurés en fonction du teneur en particules de bois

Pour l'identification du spectre de relaxation pour chaque biocomposite associé au modèle de Lodge, nous utiliserons la méthode de moindre carrée qui minimise la fonction objectif F . Cette méthode est décrite par l'équation suivante :

$$F = \sum_{i=1}^N \left[\frac{G'_{i,\text{exp}} - G'_{i,\text{th}}}{G'_{i,\text{exp}}} \right]^2 + \left[\frac{G''_{i,\text{exp}} - G''_{i,\text{th}}}{G''_{i,\text{exp}}} \right]^2 \quad \text{Eq. (V.4)}$$

Soit N le nombre de points de données expérimentales. Les paramètres $G'_{i,\text{exp}}$ et $G''_{i,\text{exp}}$ représentent les modules dynamiques mesurés alors que $G'_{i,\text{th}}$ et $G''_{i,\text{th}}$ représentent les valeurs théoriques données par les deux formules suivante (Erchiqui *et al.* (2009)) :

$$G'(\omega) = \sum_{i=1}^N \frac{g_i \tau_i \omega^2}{1 + \tau_i^2 \omega^2} \quad \text{et} \quad G''(\omega) = \sum_{i=1}^N \frac{g_i \tau_i \omega}{1 + \tau_i^2 \omega^2} \quad \text{Eq. (V.5)}$$

Les paramètres g_i est la constante de rigidité et τ_i le temps de relaxation associé au mode i . Après l'optimisation de l'erreur associée à la fonction objectif F entre les valeurs expérimentales et théoriques, il est donc possible de caractériser le comportement viscoélastique de Lodge des biocomposites. Les résultats obtenus pour ces paramètres sont donnés dans le Tableau V-1.

| HDPE | | HDPE-20% bois | | HDPE-40% bois | | HDPE-50% bois | |
|----------------|--------------|----------------|--------------|----------------|--------------|----------------|--------------|
| g_k (MPa) | τ_k (s) |
| 0,181 | 0,0006148 | 0,3314 | 0,0006218 | 0,6811 | 0,000734 | 1.1246 | 0,0006693 |
| 0,0635 | 0,006148 | 0,1219 | 0,006218 | 0,2605 | 0,00734 | 0.4343 | 0,006693 |
| 0,0298 | 0,06148 | 0,0655 | 0,06218 | 0,1696 | 0,0734 | 0.2596 | 0,06693 |
| 0,011 | 0,6148 | 0,0302 | 0,6218 | 0,1029 | 0,734 | 0.1249 | 0,6693 |
| 0,0033 | 6,148 | 0,015 | 6,218 | 0,061 | 7,34 | 0.1166 | 6,693 |
| 0,0031 | 61,48 | 0,0109 | 62,18 | 0,0486 | 73,4 | 0.1011 | 66,93 |

Tableau V-1 Modules de rigidité et temps de relaxation des biocomposites à $T=170^{\circ}C$

Sur les Figure V-8 et Figure V-9, nous avons confronté les résultats de l'optimisation avec ceux de l'expérimentation. Nous remarquons une excellente corrélation avec une erreur moyenne qui est inférieure à 1%.

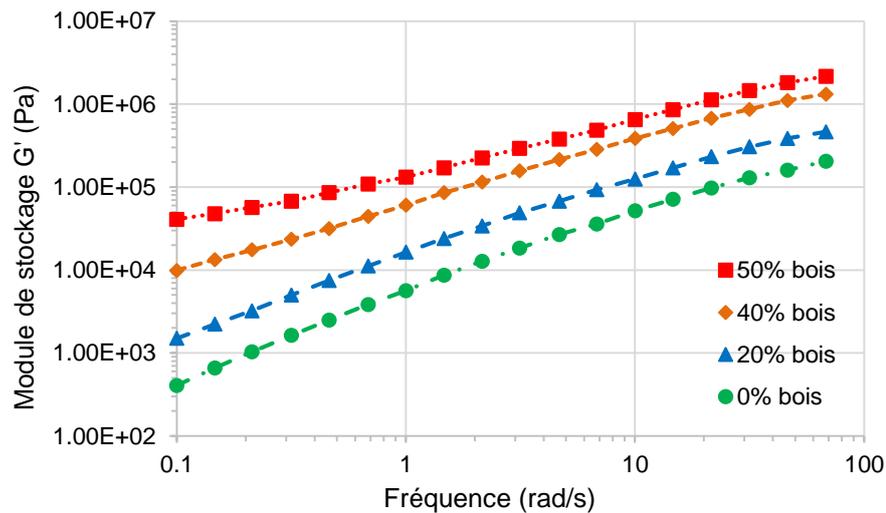


Figure V-8 Résultats de l'optimisation vis-à-vis l'expérimental des modules G' en fonction de teneur en bois

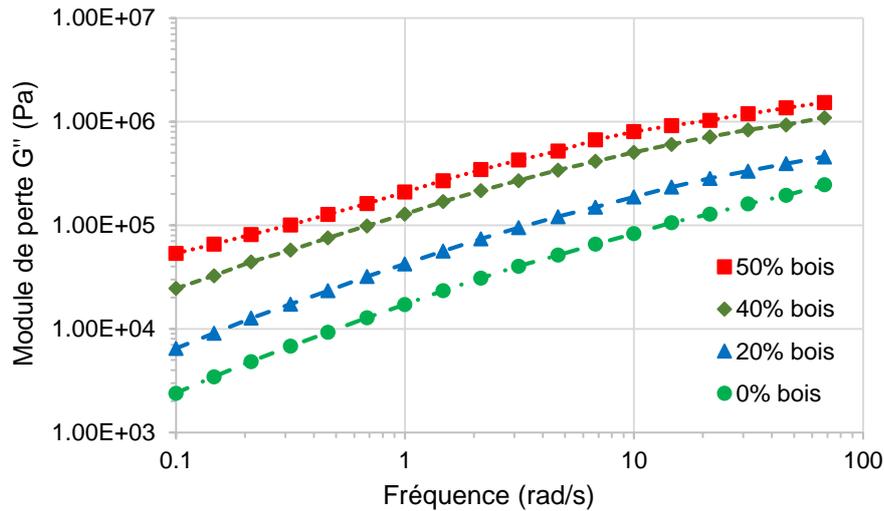


Figure V-9 Résultats de l'optimisation vis-à-vis l'expérimental des modules G'' en fonction de teneur en bois

V.3.2 Formulation par la méthode des éléments finis

Pour l'étude numérique de la mise en forme de coffrage biocomposites par thermoformage, nous considérons, dans un premier temps, l'impact de la charge externe sur les extensions et les contraintes de von Mises en soufflage libre d'une feuille HDPE vierge et renforcé par 50 *wt%* en particule de bois. Ensuite nous considérons le thermoformage du coffrage en biocomposite avec 0, 20, 40 et 50 *wt%* de particules de bois. Pour la charge appliquée, nous considérons l'action d'un débit d'air sur la structure du biocomposite. La charge en pression est calculée à l'aide de l'équation d'état des gaz réels de van der Waals (Moore, 1982). Concernant le volet de la modélisation numérique, nous optons pour la méthode des éléments finis en dynamique explicite non linéaire.

Dans la formulation dynamique explicite de la méthode des éléments finis, deux types de discrétisation sont considérés pour simuler la mise en forme d'une structure mince en thermoformage : spatiale et temporelle. La discrétisation spatiale consiste à subdiviser la feuille thermoplastique en éléments finis. Le principe des travaux virtuels est écrit alors pour chacun de ces éléments et, ensuite, sommé sur l'ensemble des éléments qui forment la feuille (Zienkiewicz et Taylor 2005). Pour la

discrétisation temporelle, à cause de la présence de la force d'inertie, nous considérons la technique des différences finies centrées qui est conditionnellement stable (Dokainish et Subbaraj 1989), souvent utilisée par Erchiqui (2005) et Verron *et al.* (2001). Après l'écriture du principe des travaux virtuels sur chaque élément de la structure, l'introduction des interpolations isoparamétriques des variables cinématiques et la sommation sur l'ensemble des éléments formant la structure, le problème dynamique est réduit alors à un système d'équations différentielles de deuxième ordre sous forme algébrique (Erchiqui *et al.* 2005) qui s'écrit par l'équation suivante :

$$M.\ddot{u} = F_{ext} - F_{int} \quad \text{Eq. (V.6)}$$

Les vecteurs F_{ext} et F_{int} sont respectivement les vecteurs globaux des forces nodales des efforts externes et des efforts internes que subit la structure et M est la matrice de masse associée aux forces d'accélération. Le vecteur \ddot{u} représente le vecteur accélération. Les forces externes représentent les forces de pression appliquées à la surface de la membrane, alors que les forces internes seront calculées en utilisant l'équation constitutive de Lodge dans Eq. (V.1). Soulignons que le vecteur force intérieur est une fonction des composantes de tenseur des contraintes de Piola-Kirchhoff (Erchiqui *et al.* 2005).

En appliquant la méthode de diagonalisation (Lapidus et Pinder 1982) à la matrice masse M et en utilisant le schéma des différences finies centrées à l'accélération \ddot{u} , le problème de Eq. (V.6) est réduit à la forme algébrique suivante :

$$u_i(t + \Delta t) = \frac{\Delta t^2}{M_{ii}^d} (F_i^{ext}(t) - F_i^{int}(t)) + 2u_i(t) - u_i(t - \Delta t) \quad \text{Eq. (V.7)}$$

Soit t le pas de temps et u_i le vecteur de position. Ensuite, il faut ajouter les conditions initiales pour compléter le problème au niveau de la résolution. Pour le problème qui nous intéresse, nous considérons que les vecteurs des déplacements et des vitesses sont nuls au temps initial :

$$u_i(t_0) = 0 \quad \text{et} \quad \dot{u}_i(t_0) = 0 \quad \text{Eq. (V.8)}$$

Remarque : les équations algébriques résultantes de la discrétisation par éléments finis sont résolues à l'aide d'une procédure incrémentale à partir d'une configuration

d'équilibre connue (état initial non déformé). Pour ce faire, on applique un incrément de charge, ensuite on détermine les déplacements qui en résultent. Étant donné que la géométrie de la membrane change au cours de chacune de ces étapes, la matrice de rigidité et les vecteurs charges sont recalculés au cours de chaque itération en utilisant la nouvelle géométrie. Dans ce travail, nous avons utilisé le code académique « ThermoForm » (Erchiqui 2005) pour la simulation numérique. Ce code est basé sur la méthode des éléments finis en dynamique explicite non linéaire (ainsi en quasi-statique), avec discrétisation à la fois de l'espace et du temps.

V.3.2.1 Critère de stabilité de convergence

Le schéma des différences centrées considéré dans ce travail est conditionnellement stable. La condition de stabilité peut être obtenue par la détermination de la plus grande valeur propre du système modal équivalent (Dokainish et Subbaraj 1989). Toutefois, pour les milieux à fortes non linéarités matérielles, le calcul de cette valeur propre s'avère difficile. Pour contourner ce problème, on peut alors utiliser le critère de Courant-Friedrichs (Courant *et al.* 1967) : le pas de temps de calcul Δt doit être inférieur ou égal à un pas de temps critique t_{crit} tel que :

$$\Delta t \leq \Delta t_{crit} \approx h / c \quad \text{Eq. (V.9)}$$

Soit c la vitesse de l'onde élastique dans l'élément fini de grandeur caractéristique h . La relation h/c est le temps nécessaire à l'onde élastique pour traverser l'élément fini.

V.3.2.2 Equation d'état de van de Waals des gaz réels et chargement en pression

Pour la modélisation numérique, nous considérons un chargement en débit de gaz, à partir duquel la pression est calculée. Ceci nous permettra d'explorer la courbe charge-déformation sans se préoccuper du phénomène d'instabilité qu'on rencontre lorsqu'on utilise une charge en pression (Erchiqui 2005). Désignons par V_0 le volume arbitraire initial entouré par la membrane au temps initial t_0 contenant un nombre de moles de gaz n_0 (on suppose dans ce travail que la température de

mise en forme T_{gaz} est constante), par $n(t)$ le nombre de moles de gaz introduit pour le soufflage de membranes thermoplastiques, par $P(t)$ la pression interne et par $V(t)$ le volume additionnel de la bulle à l'instant t . Alors, dans le cas d'un gaz réel qui obéit à l'équation d'état de Van der Waals (Moore 1983) on obtient la relation suivante :

$$\left(P + \frac{an^2}{V^2} \right) (V - nb) = nRT \quad \text{Eq. (V.10)}$$

L'équation Eq. (V.10) décrit le comportement des gaz dans des conditions de température T et de pression P plus étendues que celle des gaz parfaits pour un volume V occupé par n moles. Le terme b représente le volume propre des atomes/molécules d'une mole de gaz et il s'interprète comme un volume exclu et le terme (an^2/V^2) lui permet de prendre en compte l'attraction mutuelle des atomes/molécules composant le gaz réel.

A partir de Eq. (V.10), on déduit la formule suivante pour la charge en pression :

$$\Delta P = P(t) - P_0 = \left[\frac{(n(t) - n_0)RT_{gaz}}{(V(t) + V_0 - (n(t) - n_0)b)} - \frac{(n_0 + n(t))^2 a}{(V_0 + V(t))^2} \right] - \left[\frac{n_0 RT_{gaz}}{V_0 - n_0 b} - \frac{an_0^2}{V_0^2} \right] \quad \text{Eq. (V.11)}$$

Soit P_0 la pression initiale. On constate ainsi que la pression agissant sur la membrane thermoplastique est étroitement liée au volume de gaz et à la température intérieure, via la loi thermodynamique d'état de Van der Waals. La Figure V-10 illustre la charge dynamique en gaz (en moles) utilisée pour la modélisation.

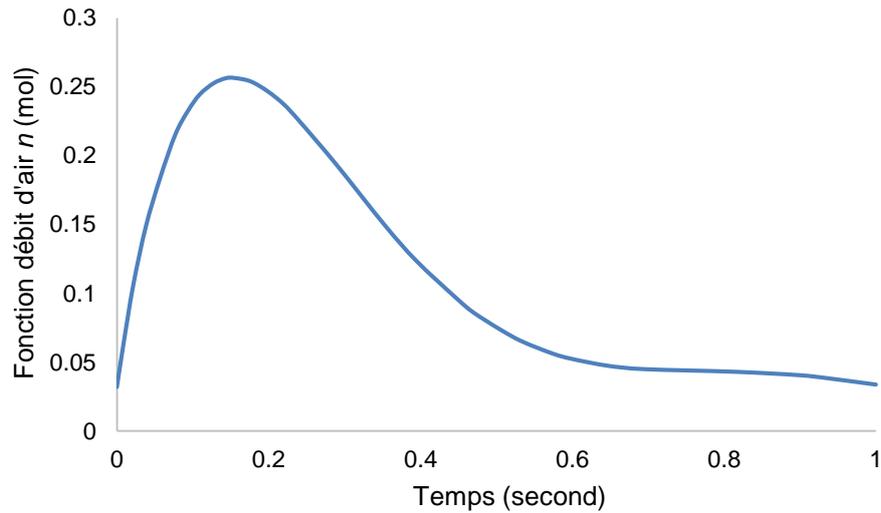


Figure V-10 Fonction débit d'air en fonction du temps

Pour le soufflage libre, nous avons considéré une membrane circulaire de rayon 10,0 cm. L'épaisseur initiale de la feuille dans la configuration non déformée h_0 est de 1,47 mm. La température du matériau est de 170°C et le temps de soufflage est fixé à 1,0 second. Pour la modélisation géométrique, nous avons discrétisé la feuille circulaire en éléments finis triangulaires linéaires (1422 nœuds et 2784 éléments) dont les bords sont fixés (Figure V-11).

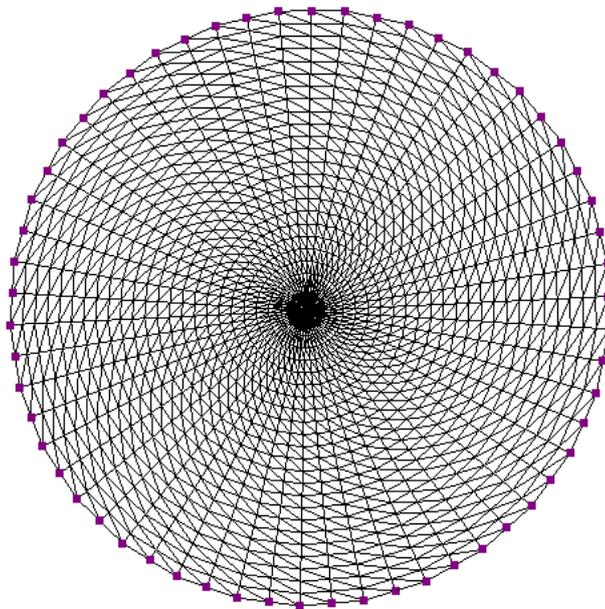


Figure V-11 Maillage de la feuille circulaire avec des éléments triangulaires linéaires

Pour le thermoformage de la feuille biocomposite, à l'aide de moule de coffrage, nous avons considéré un modèle réduit. La membrane rectangulaire réduite est d'une longueur de 17,66 mm et largeur de 10,17 mm. L'épaisseur initiale de la feuille dans la configuration non déformée h_0 est de 2,00 mm et la température du matériau est 170°C. Pour la modélisation géométrique, nous avons discrétisé la feuille rectangulaire en éléments finis triangulaires linéaires (3024 nœuds et 5822 éléments) dont les bords sont fixés tel que schématisé sur la Figure V-12. De même, le moule est discrétisé par des éléments finis triangulaires linéaires (3149 nœuds et 6128 éléments).

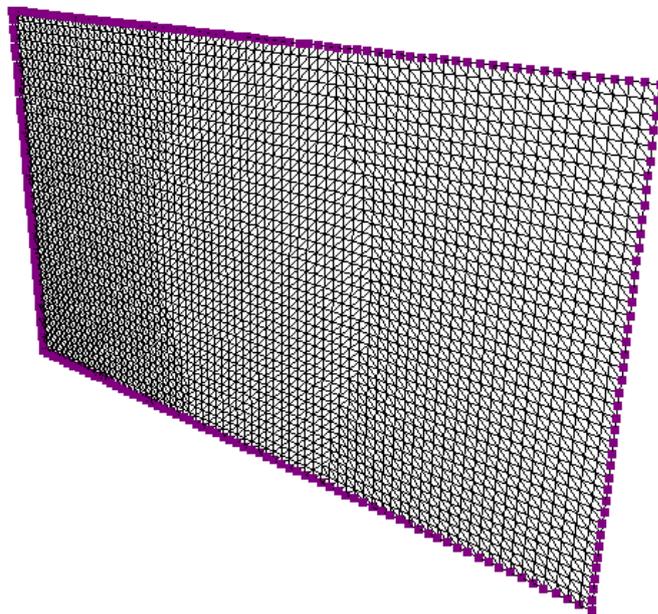


Figure V-12 Maillage de la feuille rectangulaire avec des éléments triangulaires linéaires

Sur la Figure V-13, nous avons représenté les vues interne et externe du moule maillée. Pour la gestion de contact de la préforme et du moule, nous avons considéré l'hypothèse de contact collant, (DeLorenzi et Nied 1991).

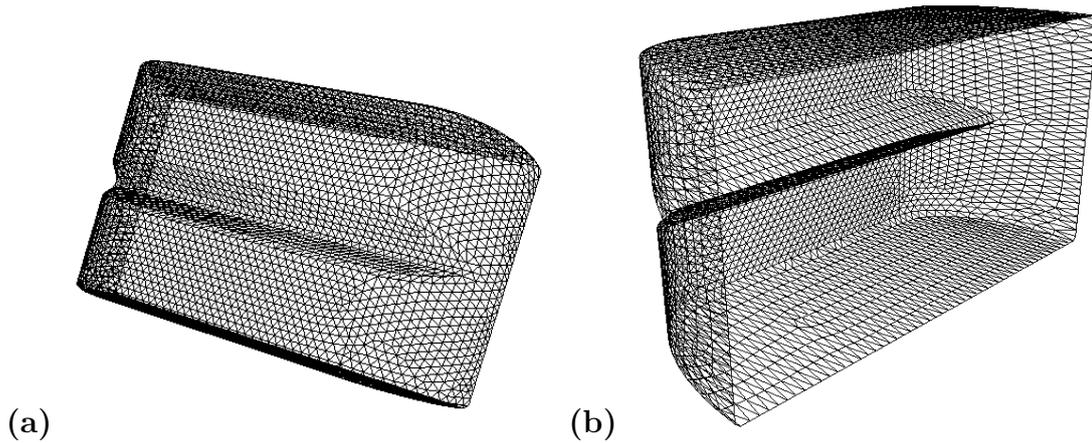


Figure V-13 Vue (a) externe et (b) interne du moule maillé à l'aide d'éléments triangulaires linéaires

V.3.3 Soufflage libre des biocomposites

Pour la modélisation numérique en soufflage libre de la membrane circulaire, nous avons considéré deux cas de matériaux : HDPE vierge et biocomposite HDPE avec 50 *wt%* de particules de bois. Pour le comportement viscoélastique, nous avons considéré les paramètres mécaniques fournis dans le Tableau V-1 pour le modèle de Lodge.

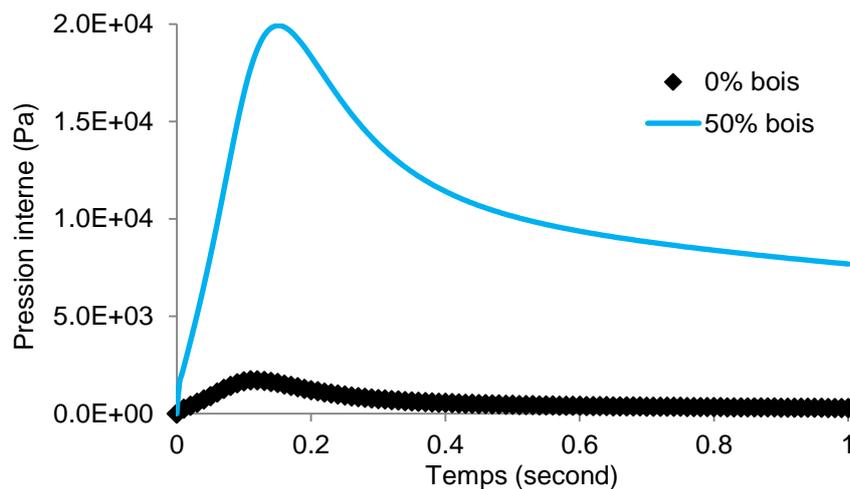


Figure V-14 Évolution de la pression interne en fonction du temps : cas de HDPE vierge et renforcé par 50 *wt%* de particules de bois

La Figure V-14 illustre l'évolution de la pression au cours de soufflage. Nous constatons que la pression interne induite lors de soufflage de la membrane biocomposite nécessite des pressions très élevées comparativement à celle de HDPE vierge. Ceci est dû principalement à la rigidité des particules de bois induite dans la matrice HDPE. À titre comparative avec la matrice vierge, le volume généré par la membrane biocomposite est réduit approximativement de 8% à la fin du cycle de soufflage (Figure V-15). Alors que la pression maximale est passée de 1708 Pa pour la membrane de HDPE à 19910 Pa pour la membrane de biocomposite (Figure V-14) ; soit 11 fois supérieur. Ainsi, nous pouvons supposer que le comportement des biocomposites avec un renforcement de plus de 50 *wt%* de particules de bois rend le biocomposite plus résistant aux déformations. En conséquence, nous pouvons supposer que le comportement de HDPE renforcé, à la température de 170°C, est moins visqueux que celui de HDPE vierge. Dans ces conditions, les procédés de mise en forme par moulage-soufflage et par thermoformage pour les biocomposites seront limités aux formes géométriques simples et moins creuses.

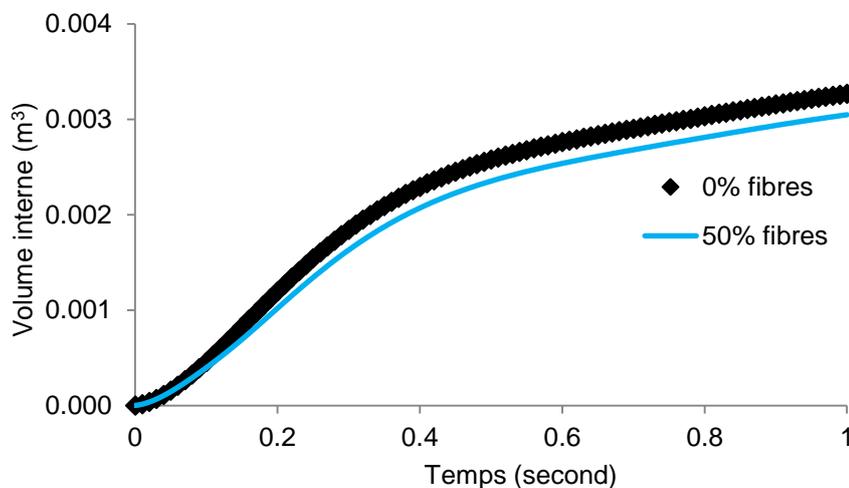


Figure V-15 Évolution du volume interne en fonction du temps : cas de HDPE vierge et renforcé par 50 *wt%* de particules de bois

Dans la Figure V-16, nous avons présenté la variation de la pression interne induite dans la bulle en fonction du volume interne généré pour les deux matériaux. Pour le même volume, le biocomposite nécessite des pressions internes élevées par rapport à la membrane de HDPE. Toutefois, nous remarquons que pour les petites déformations (début de soufflage), les pressions sont similaires pour les deux

matériaux et ils se comportent comme des matériaux élastiques. La pente dans cette zone peut être utilisée pour caractériser le module de Young E .

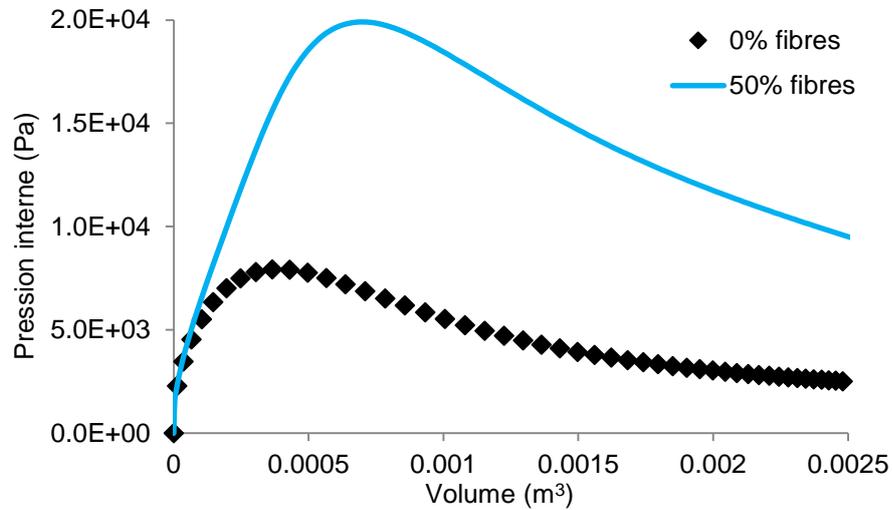


Figure V-16 Pression interne induite en fonction du volume interne généré dans la bulle : cas de HDPE vierge et renforcé par 50 wt% de particules de bois

Les déformations et les contraintes de von Mises sont étroitement liés. Effectivement, comme montré par les Figure V-17 et Figure V-18 (demi-plan de symétrie de la structure), l'effet de rétrécissement dans les membranes déformées est accompagné d'une augmentation des contraintes de von Mises. Par conséquent, en raison des grandes déformations induite par le soufflage, la rupture des matériaux est susceptible de se produire dans les zones caractérisées par des rétrécissements prononcés. La Figure V-19 illustre les extensions circonférentielles (λ_2) induite dans le matériau HDPE vierge et renforcé à la fin de cycle de soufflage. Nous constatons que les extensions, au voisinage de la région centrale de la bulle, peuvent atteindre à des valeurs qui dépassent 450%. La différence entre le cas vierge et renforcé est peu significative : 4,802 pour λ_2 dans le cas de HDPE vierge comparativement à 4,669 dans le cas renforcé.

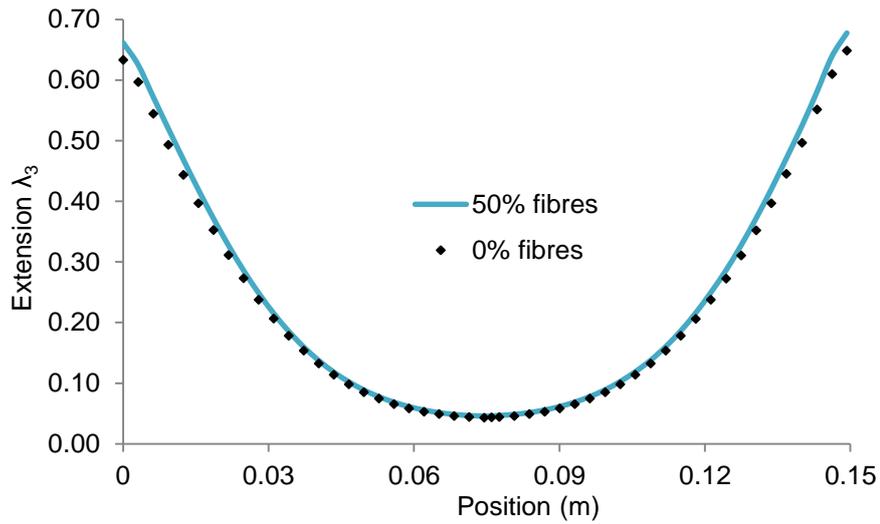


Figure V-17 Extension principale λ_3 induite sur la trace milieu de la structure : cas de HDPE vierge et renforcé par 50 wt% de particules de bois

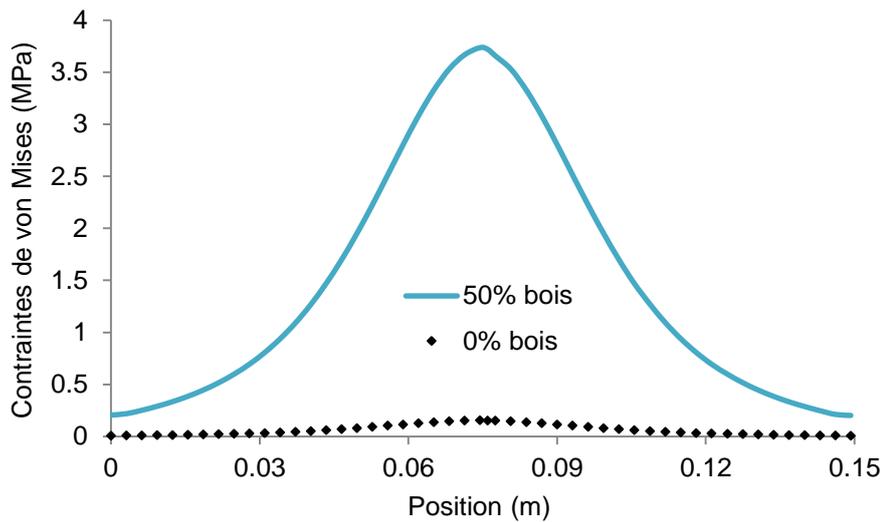


Figure V-18 Contraintes de von Mises induites sur la trace milieu de la structure : cas de HDPE vierge et renforcé par 50 wt% de particules de bois

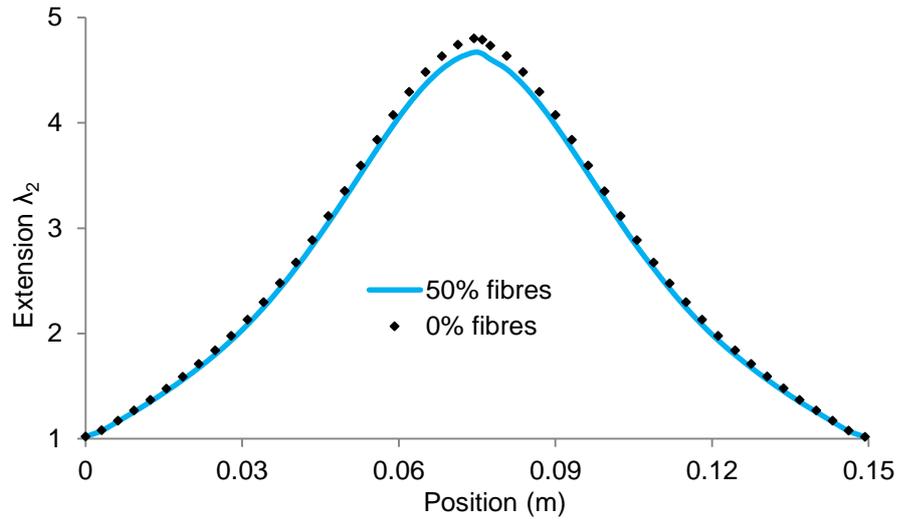


Figure V-19 Extension λ_2 induite sur la trace milieu de la structure à la fin de cycle de soufflage : cas de HDPE vierge et renforcé par 50 wt% de particules de bois

La Figure V-20 illustre la distribution des contraintes de von Mises en fonction des étirements principaux dans le cas de HDPE et de biocomposite HDPE-particule de bois à la fin du cycle de soufflage. La Figure V-21 schématise une vue de la distribution des extensions principales et les contraintes de von Mises induites dans le HDPE vierge et le biocomposite HDPE-particule de bois.

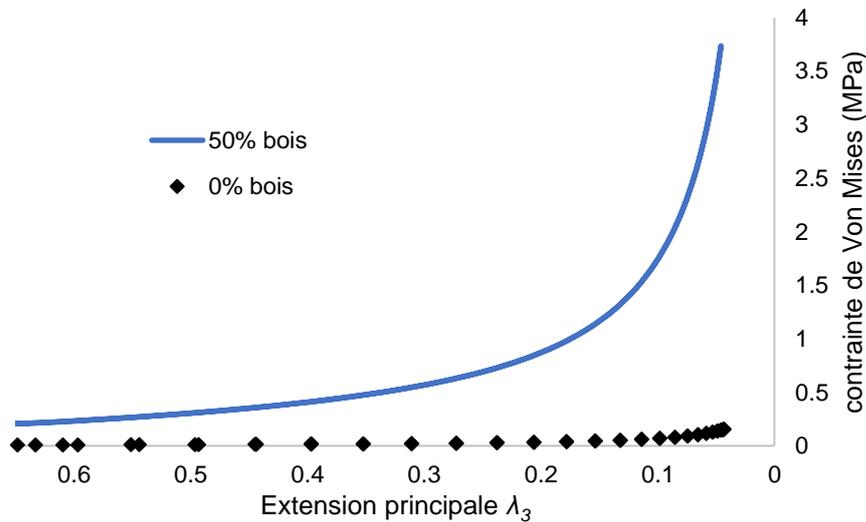


Figure V-20 Extension principale λ_3 induite sur la trace milieu de la structure : cas de HDPE vierge et renforcé par 50 wt% de particules de bois

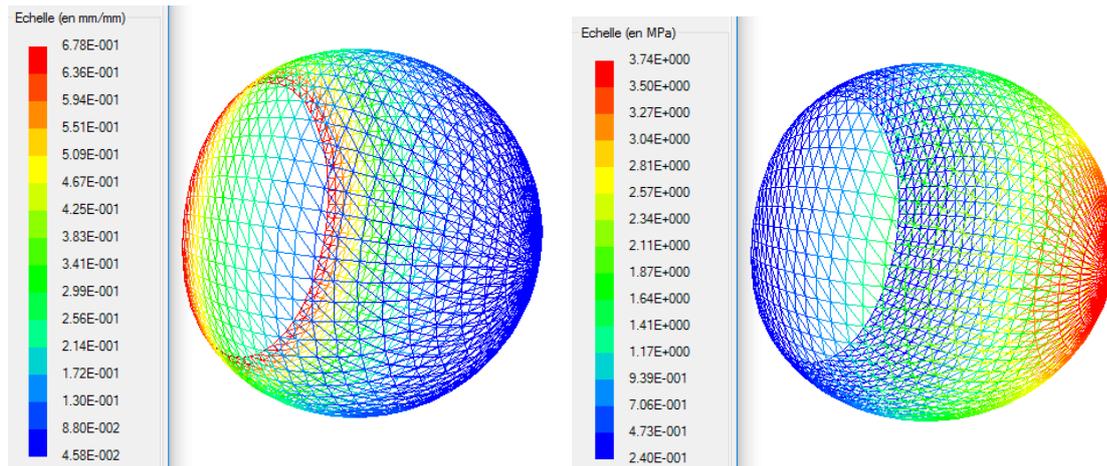


Figure V-21 Vue de la distribution (a) des extensions principales et (b) des contraintes de von Mises induites dans le biocomposite HDPE-50 wt% de bois

Cet exemple en soufflage libre montre l'avantage de l'utilisation de la méthode des éléments finis, basée sur une approche lagrangienne totale, pour étudier la thermoformabilité des biocomposites à base de thermoplastique et de renforts végétaux. En générale, les résultats de cette étude préliminaire montrent que la thermoformabilité des biocomposites dépend, en premier lieu, du pourcentage de particules de bois dans la matrice thermoplastique. En fait, le volume, la pression, les contraintes et les extensions induits dans la membrane, au cours de soufflage, sont en fonction de la proportion de particules de bois dans le biocomposite. L'addition des particules de bois rend le thermoplastique rigide et peu ductile, ce qui rend le soufflage des membranes difficile en thermoformage. En résumé, la mise en forme par thermoformage ou soufflage d'un biocomposite à base de HDPE et un fort teneur en particules de bois est possible pour des géométries simples et peu creuses.

V.3.4 Thermoformage du coffrage en biocomposite HDPE-particules de bois

Pour la modélisation de la mise en forme du coffrage par thermoformage, nous considérons quatre cas de matériaux : HDPE vierge et biocomposite HDPE renforcé par 20, 40 et 50 wt% de particules de bois. Pour le comportement

viscoélastique, nous avons considéré les paramètres mécaniques fournis dans le Tableau V-1 pour le modèle de Lodge.

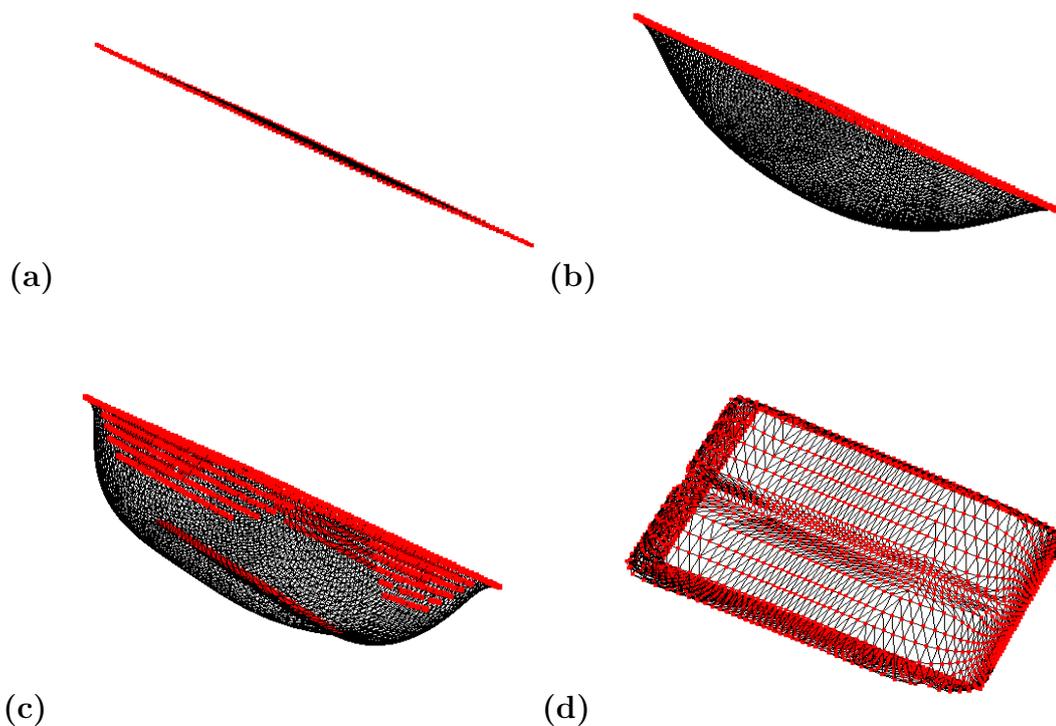


Figure V-22 Vue de l'évolution de la distribution des nœuds de contact avec le moule lors (a) du début, (b - c) intermédiaire et (d) la fin du cycle de formage du coffrage dans le cas de HDPE vierge

La Figure V-22 illustre l'évolution de la distribution des nœuds en contact avec le moule lors du formage. Selon la simulation avec la charge fluidique utilisée dans la Figure V-10, le temps de formage augmente avec le teneur en bois. À titre d'exemple, nous avons 0,05 second dans le cas de HDPE vierge et 0,15 second dans le cas du biocomposite chargé de 50 *wt%* de bois.

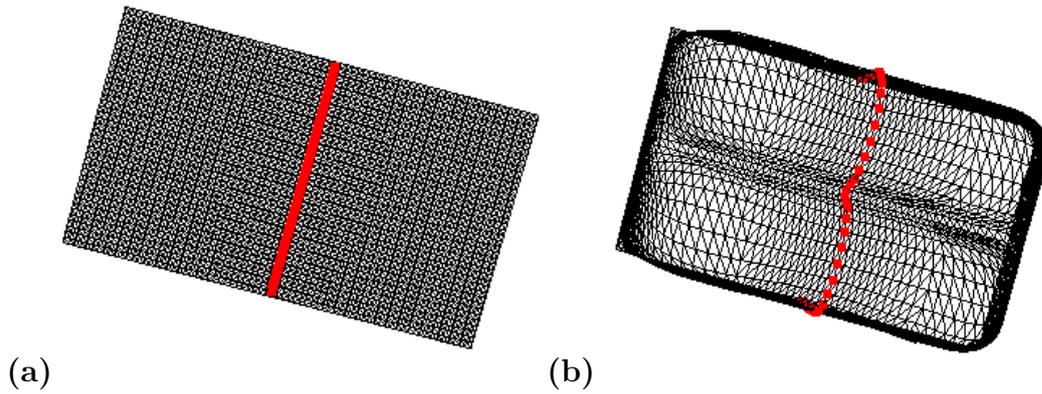


Figure V-23 Nœuds de la trace concernée par l'analyse des extensions et de la contrainte de von Mises induite dans le coffrage au (a) début et (b) à la fin du formage

La Figure V-24 illustre la distribution de l'extension principale λ_3 sur la trace des nœuds (en rouge dans la Figure V-23) du coffrage à la fin du cycle de formage. On remarque que les quatre courbes ont la même allure avec un léger décalage vers le haut dans le cas de HDPE vierge et vers le bas dans les trois cas de HDPE chargé de particule de bois. Ceci est dû principalement à la rigidité des particules de bois induite dans la matrice HDPE. L'extension λ_3 maximale est 0,58 pour le HDPE vierge et 0,51 pour le biocomposite avec 50 wt% de particules de bois.

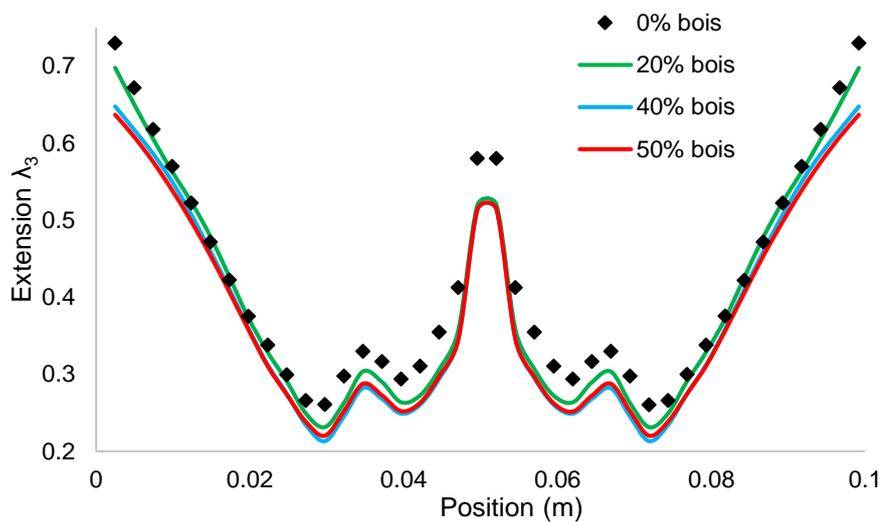


Figure V-24 Extension λ_3 induite sur la trace milieu de la structure à la fin du cycle de formage en fonction de la teneur en particules de bois

Les Figure V-25 et Figure V-26 illustrent les distributions des extensions λ_1 et λ_2 respectivement. Selon ces figures, et en tenant compte de l'incompressibilité des biocomposites, il y a un léger décalage vers le bas dans le cas du HDPE vierge ($\lambda_1 = 1,75$; $\lambda_2 = 0,86$) comparativement à la structure chargée de 50 *wt%* de bois ($\lambda_1 = 1,87$; $\lambda_2 = 1,03$).

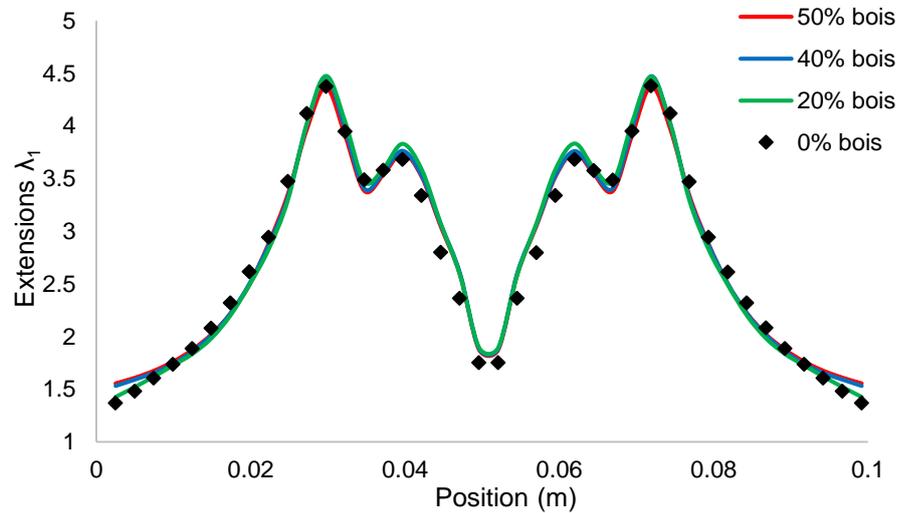


Figure V-25 Extension λ_1 induite sur la trace milieu de la structure à la fin de cycle de formage en fonction de la teneur en particules de bois

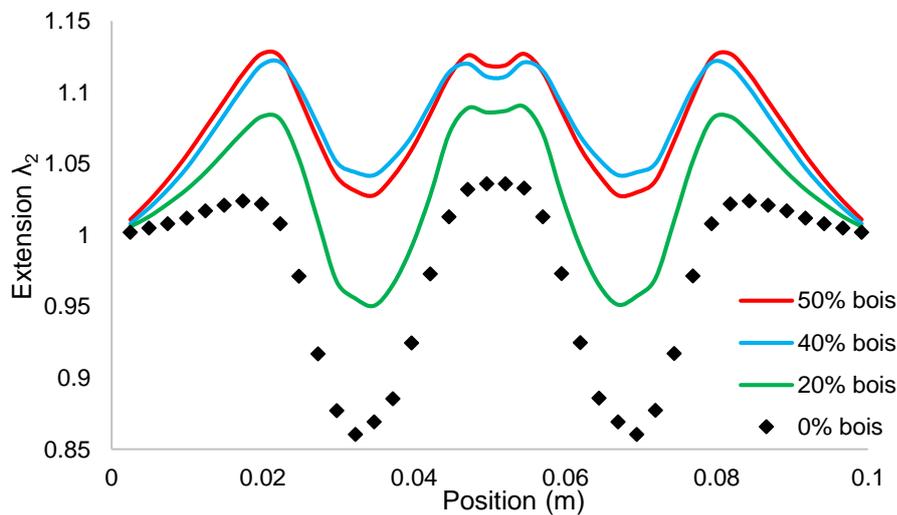


Figure V-26 Extension λ_2 induite sur la trace milieu de la structure à la fin de cycle de formage en fonction de la teneur en particules de bois

Concernant les contraintes de von Mises, elles sont étroitement reliées aux extensions principales ; plus les valeurs de λ_3 sont faibles, plus les contraintes de

von Mises sont importantes. Effectivement, comme montré par la Figure V-27, on constate que ces contraintes augmentent avec la teneur en fibre et plus particulièrement dans les zones aux faibles valeurs de λ_3 . Par conséquent, en raison des grandes déformations induites par la phase de formage, la rupture de ces matériaux est susceptible de se produire dans les zones caractérisées par des rétrécissements prononcés telle que la région centrale de coffrage. Le biocomposite contenant 50 *wt%* de particules de bois a plus de risque de s'endommager lors du formage que pour les autres teneurs de bois. À ce stade, il est souhaitable, dans des études futures, d'effectuer des essais expérimentaux pour confrontation. Toutefois, il est possible de réaliser des produits biocomposites ayant des formes géométriques simples et peu creuses.

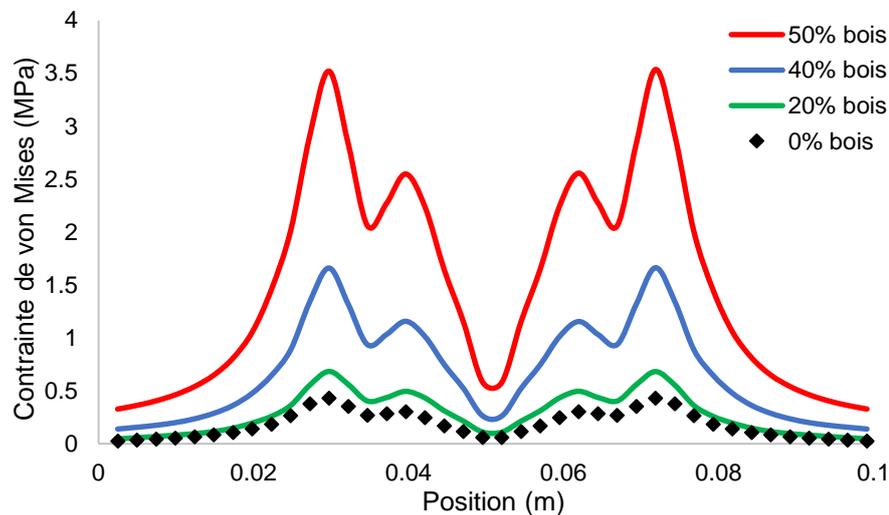


Figure V-27 Contraintes de von Mises induites sur la trace milieu de la structure à la fin de cycle de formage en fonction de la teneur en particules de bois

Nous avons présenté sur la Figure V-28 le travail (pendant 0,7 secondes) que la charge fluide doit effectuer pour la mise en forme du coffrage. On remarque que ce travail augmente avec la teneur en bois. Dans le cas du biocomposite HDPE chargé de 50 *wt%* de particules de bois, ce travail dépasse trois fois celui de HDPE vierge.

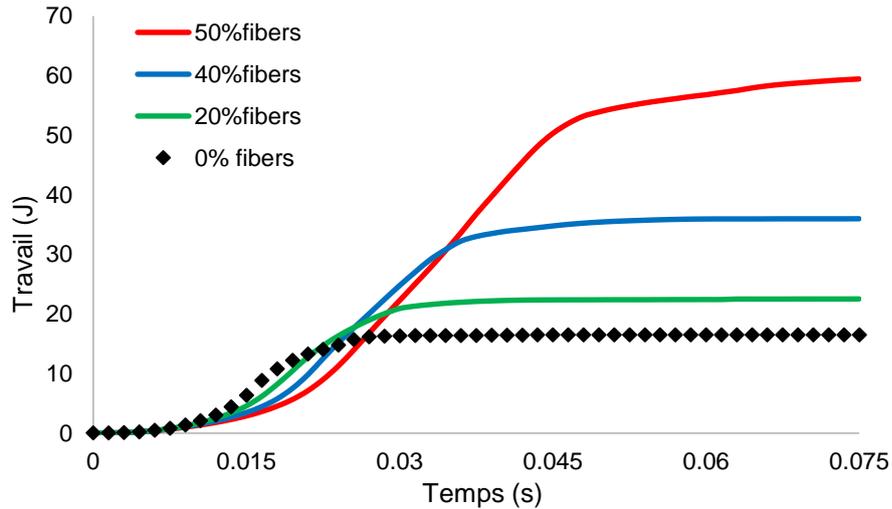


Figure V-28 Travail effectué par la structure à la fin de cycle de formage en fonction de la teneur en particules de bois

V.4. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié la potentialité de la mise en forme de biocomposites, à base d'une matrice thermoplastique (HDPE) et de renforts en particules de bois, pour l'élaboration d'un coffrage de construction. Pour cela, nous avons, d'une part, caractérisé le comportement viscoélastique de ces matériaux à l'aide du modèle viscoélastique intégral de Lodge. Ensuite, nous avons combiné la méthode des éléments finis en grandes déformations avec une charge en débit d'air (selon la loi thermodynamique de van der Waals) pour l'analyse numérique. Les résultats indiquent qu'au cours de la phase de formage, la pression nécessaire à la mise en forme du coffrage dépend considérablement de la proportion de particules de bois dans la structure du biocomposite. Le comportement des biocomposites, ayant des proportions élevées en particules de bois (40% et 50%), devient plus élastique que visqueux, ce qui rend le thermoformage plus difficile. Toutefois, la distribution des épaisseurs à toute fin pratique est indépendante de la concentration massique en renforts ; conclusion similaire avec celle stipulée par DeLorenzi et Nied (1991) et Nied *et al.* (1990). Par contre, la distribution des contraintes est fonction de la teneur en bois. Dans le cas de biocomposite ayant un teneur de 50 *wt%* en particules de bois, les contraintes de von Mises atteignent des valeurs 11 fois

supérieures à celle de HDPE vierge. Ce résultat est attribué essentiellement à la grande rigidité des biocomposites à fort teneurs en bois.

Conclusions Générales

Cette thèse a pour objectif l'étude des propriétés mécaniques et thermiques des biocomposites de HDPE-particules de bois et PET-fibres de chanvre en utilisant des approches expérimentales, numériques et analytiques. Il comprend également l'étude numérique de la mise en forme d'un coffrage en biocomposite par thermoformage.

Nous avons tout d'abord étudié l'influence de la longueur des fibres sur les propriétés effectives d'un matériau biocomposite du fait que les fibres végétales ont des longueurs très variées. Cette partie de l'étude a pour but de vérifier les effets des fibres courtes et longues sur la robustesse de la technique d'homogénéisation numérique utilisée dans notre travail de thèse. A cet effet, nous avons choisi des orientations et des distributions des fibres d'une façon aléatoire, avec un très grand contraste. Le pourcentage des fibres courtes est varié entre 11 et 81%. La convergence entre les propriétés apparentes calculées par deux conditions aux limites différentes est vérifiée afin de déterminer les propriétés effectives des deux types de composites.

Les calculs numériques sur le composite à fibres courtes ont présenté des propriétés mécaniques et thermiques effectives pour des petits pourcentages des fibres. Lorsque la percolation des fibres est atteinte, nous observons une grande erreur de plus de 200% entre les propriétés apparentes des deux conditions aux limites. De plus, ces propriétés apparentes n'ont pas tendance à se converger et ne produisent pas de propriétés effectives. Quand la fraction volumique augmente, cette erreur diminue et la convergence est de nouveau obtenue pour 71% de fibres. Dans le cas des fibres longues, nous rencontrons également la divergence des propriétés mécaniques et thermiques apparentes avec des erreurs variant de 31% à 42%. Des vérifications sont effectuées à l'aide des isovaleurs, de la covariance et des calculs du tenseur de rigidité pour expliquer cette divergence. En fait, les fibres courtes percolées et les fibres longues introduisent une anisotropie dans les composites qui empêche la détermination des propriétés effectives des deux

composites. Or, cet effet est seulement reproduit dans les cas de grands contrastes. Effectivement, la diminution du contraste dans le cas des fibres courtes percolées a montré la diminution de l'erreur. Les biocomposites qui ont des contrastes modérés, tels que ceux dans notre travail, ne sont pas affectés par cette contrainte et les calculs numériques effectués par la suite sont fiables.

La détermination des propriétés mécaniques des biocomposites HDPE-particules de bois et PET-fibres de chanvre est effectuée en confrontant les résultats numériques et expérimentaux. Les essais de traction ont montré que le module de Young des biocomposites augmente avec le pourcentage des renforts d'une façon presque linéaire, ce qui est confirmé par plusieurs résultats de la littérature. Dans notre cas, on note qu'avec seulement 5 *wt%* de chanvre et 20 *wt%* de bois, le module de Young des deux biocomposites a augmenté d'environ 70% comparé aux matrices polymériques, suivi d'une augmentation stable causée par les contacts entre les renforts. En fait, l'incorporation des fibres de bois et de chanvre tend à fragiliser le biocomposite.

Les premiers calculs des microstructures en 3D ont montré des écarts non négligeables avec les résultats expérimentaux, surtout pour les bas pourcentages de renforts. A ce petit pourcentage, les calculs numériques devraient coïncider avec les résultats expérimentaux car les biocomposites sont indépendants des effets extérieurs comme les contacts entre les renforts. La recherche d'une meilleure cohérence entre ces deux approches nous a mené à considérer les paramètres physiques comme la variabilité des propriétés des renforts, l'orientation des renforts, et l'interphase. Les propriétés variables et l'interphase n'ont pas présenté des résultats cohérents entre les deux approches. Or, l'orientation des fibres ont montré des résultats numériques qui sont en accord avec les résultats expérimentaux à bas pourcentages de fibres. Ceci pourrait donner une idée générale sur la morphologie des biocomposites. L'étude des propriétés mécaniques ont démontré également l'effet du rapport de forme des renforts. Effectivement, les fibres de chanvre avec un grand rapport de forme ont apporté une meilleure rigidité au biocomposite PET-fibres de chanvre.

La détermination expérimentale des propriétés thermiques du biocomposite HDPE-particules de bois est réalisée à l'aide d'une analyse par la méthode de Flash.

Les résultats expérimentaux ont mis en évidence l'évolution de la conductivité thermique du biocomposite qui diminue quand le pourcentage des renforts augmente. On note que la conductivité thermique du biocomposite avec 60 *wt%* de bois diminue de 46% par rapport à celle du polymère vierge. La mesure par la méthode de Flash a produit des résultats comparables à ceux dans la littérature.

L'homogénéisation numérique du biocomposite a généré des résultats cohérents aux données expérimentales. Or, une légère différence est observée au plus gros pourcentage de bois. La conductivité thermique expérimentale est inférieure de 6% comparativement à celle calculée numériquement. Une hypothèse de la présence de porosité au sein du biocomposite est considérée pour expliquer cette basse conductivité thermique. L'homogénéisation numérique tenant compte de la troisième phase poreuse a montré une excellente cohérence aux résultats expérimentaux avec une erreur maximale de 1%. Les calculs numériques sur le biocomposite PET-fibres de chanvre ont produit des résultats qui coïncident avec les modèles analytiques et la littérature. Comme le cas des propriétés mécaniques, les fibres longues de chanvre ont montré une meilleure isolation thermique grâce à son rapport de forme.

Cette étude a été axée principalement sur la thermoformabilité des biocomposites chargés des particules de bois avec une matrice HDPE. Nous avons effectué premièrement une analyse numérique de sa résistance mécanique dans des applications réelles. A l'aide des données expérimentales des propriétés mécaniques du biocomposite HDPE-particules de bois, nous avons réussi à concevoir un coffrage qui possède une bonne résistance mécanique tout en ayant une forme simple pour que la pièce soit thermoformable. Ensuite, nous étudions la thermoformabilité du biocomposite HDPE-particules de bois en utilisant des simulations numériques de l'essai de soufflage afin d'observer son comportement pour des grandes déformations. Ces simulations ont montré que le thermoformage du biocomposite est possible pour des géométries simples et peu creuses. Finalement, les simulations numériques du thermoformage en forme du coffrage ont montré que les biocomposites à 40 *wt%* et 50 *wt%* de bois ne sont pas recommandés pour ce procédé du fait de la viscosité élevée et la rigidité apportées par le bois.

Perspectives

Afin de compléter notre étude, des études supplémentaires sont nécessaires pour améliorer la modélisation des biocomposites. Nous pouvons donc envisager trois pistes de recherche :

1. Une étude approfondie de la morphologie des fibres et des particules dans les biocomposites : géométrie, orientations et dispersion. L'analyse par tomographie RX permettra une visualisation en 3D de l'architecture des biocomposites.
2. La détermination des propriétés mécaniques et thermiques effectives des biocomposites par la technique d'homogénéisation numérique doit être effectuée par des images réelles représentant les différentes microstructures.
3. Une étude d'optimisation de la conception du coffrage par thermoformage prenant en compte les chargements mécaniques exercés sur la structure du coffrage. De même, une étude expérimentale du procédé de thermoformage permettra de valider les simulations numériques. A cet effet, une analyse de l'évolution de la résistance mécanique des fibres avec la température est nécessaire.

Annexe

Conception numérique

La conception numérique du coffrage est réalisée avec le logiciel SOLIDWORKS. Notre pièce sera basée sur le coffrage en copeaux de bois montré par la Figure A-1. La conception numérique sera inspirée par ce coffrage mais seules ses dimensions principales comme la hauteur, la largeur, la longueur sont prises en compte. Nous incluons également la rainure qui aide à réduire le fléchissement au milieu de la pièce.



Figure A-1 Différentes vues du coffrage en copeaux de bois

Le coffrage est symétrique donc l'esquisse principale se consiste seulement de la moitié de la pièce. La forme principale du coffrage est un quart d'ellipse suivie par une droite comme montrée dans la Figure A-2. La hauteur de 70 mm et la longueur de 265 mm sont mesurées sur la pièce originale.

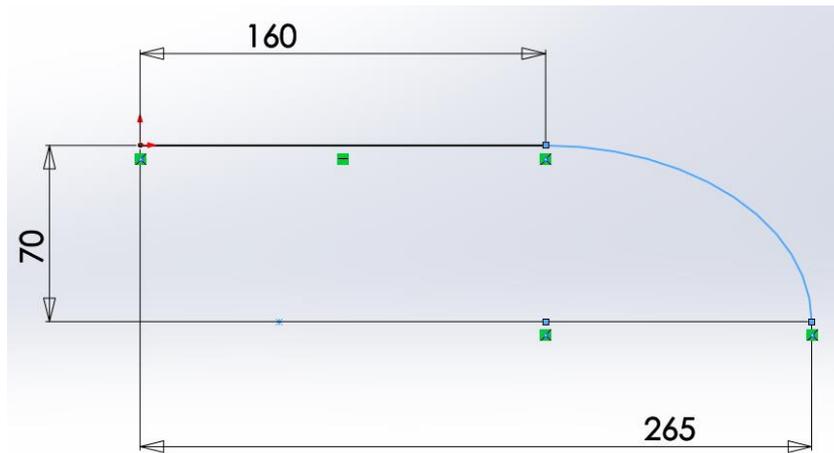


Figure A-2 Esquisse principale du coffrage

Ensuite, l'esquisse est extrudée (Figure A-3) pour obtenir un corps volumique avec une épaisseur de 5 mm.

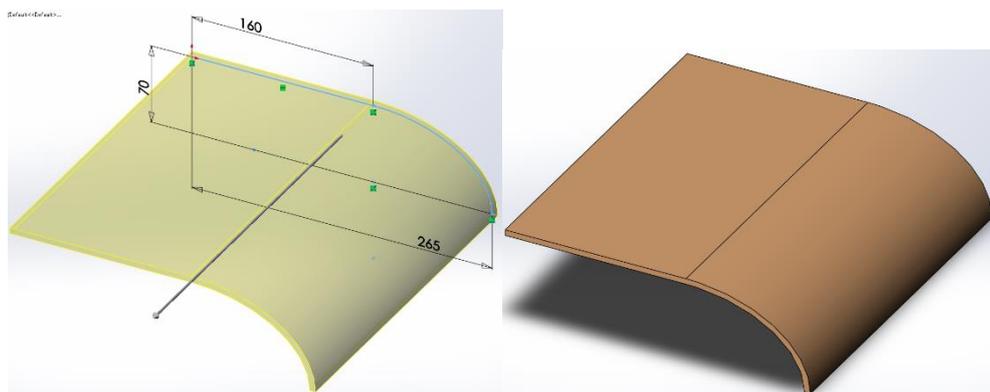


Figure A-3 Génération du corps principal

La rainure pour cette première esquisse est droite sur toute la pièce et n'est pas courbée comme le coffrage réel. Premièrement, un corps solide qui représente la partie basse de la rainure est extrudée (Figure A-4) jusqu'à la prochaine surface qui est la courbure du coffrage.

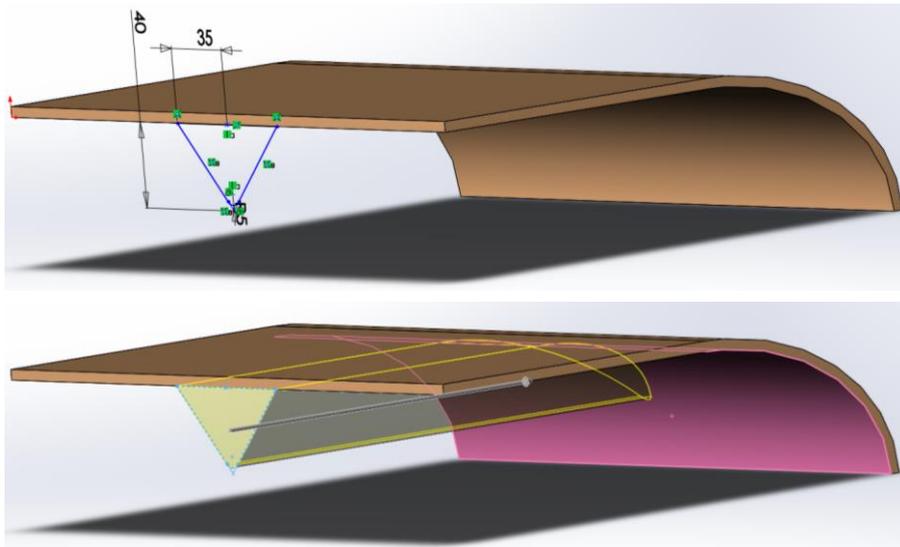


Figure A-4 Extrusion de la rainure

Ensuite, on enlève de la matière sur la partie haute pour finaliser la rainure comme le montre la Figure A-5.

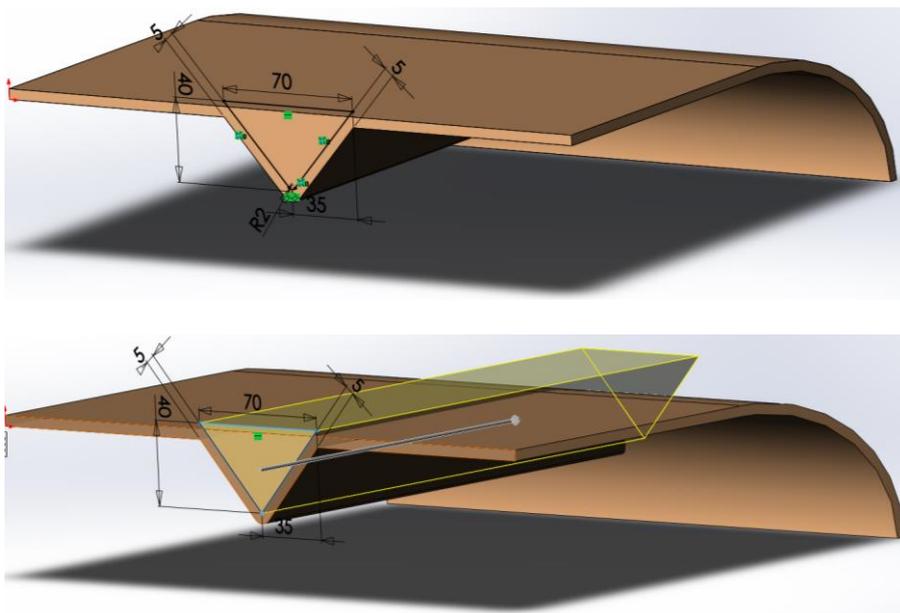


Figure A-5 Enlèvement de la partie haute de la rainure

Les arêtes aux alentours de la rainure doivent être arrondies. Cette étape est importante non seulement pour se rapprocher de la réalité, mais aussi pour réduire les concentrations de contraintes à ces endroits. Un rayon de congé de 5mm est imposé sur toutes les arêtes du coffrage (Figure A-6).

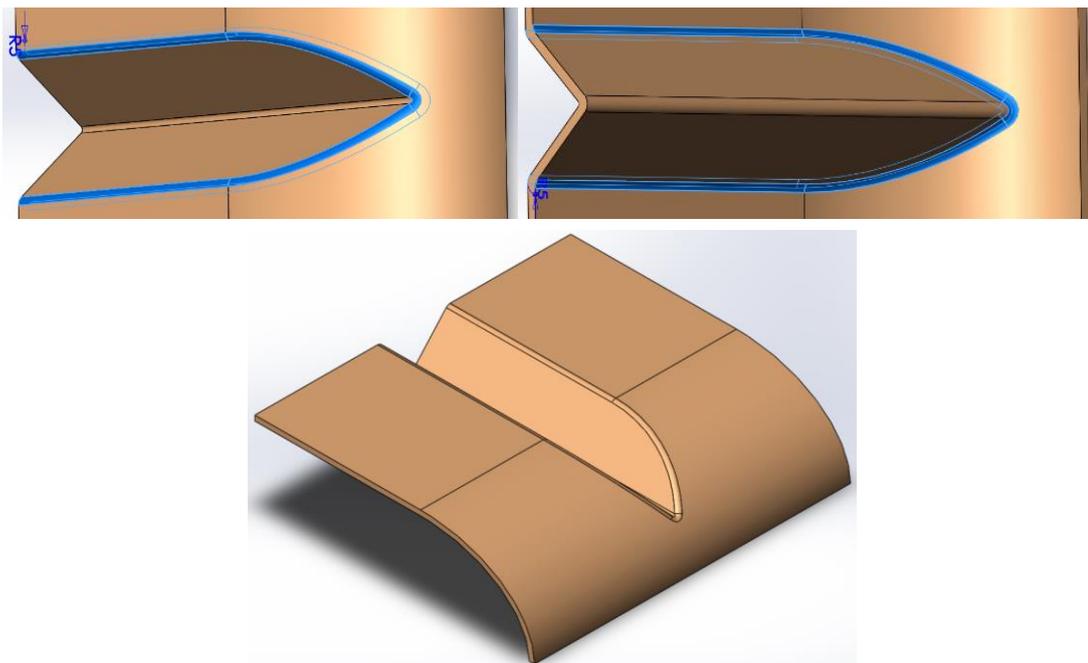


Figure A-6 Congé des arêtes

La moitié symétrique du coffrage est complète, il suffit maintenant de générer l'autre moitié de la pièce (Figure A-7). La pièce complète ainsi que les différentes vues du coffrage se trouve sur la Figure A-8.

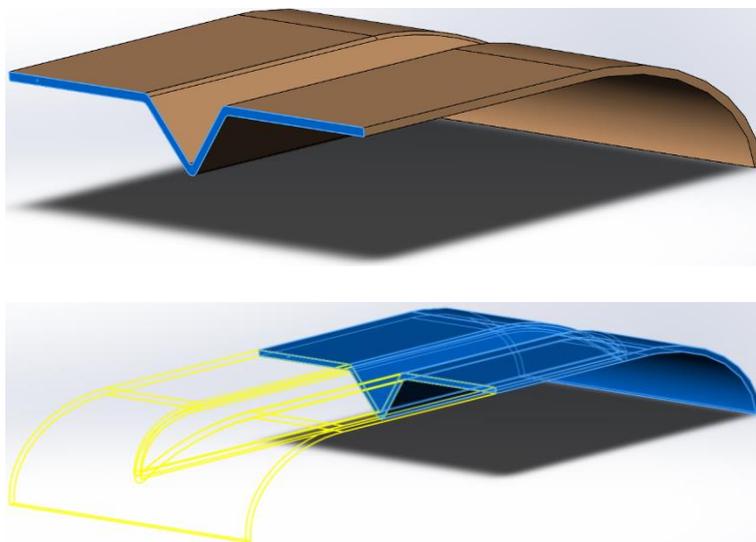


Figure A-7 Génération du corps symétrique

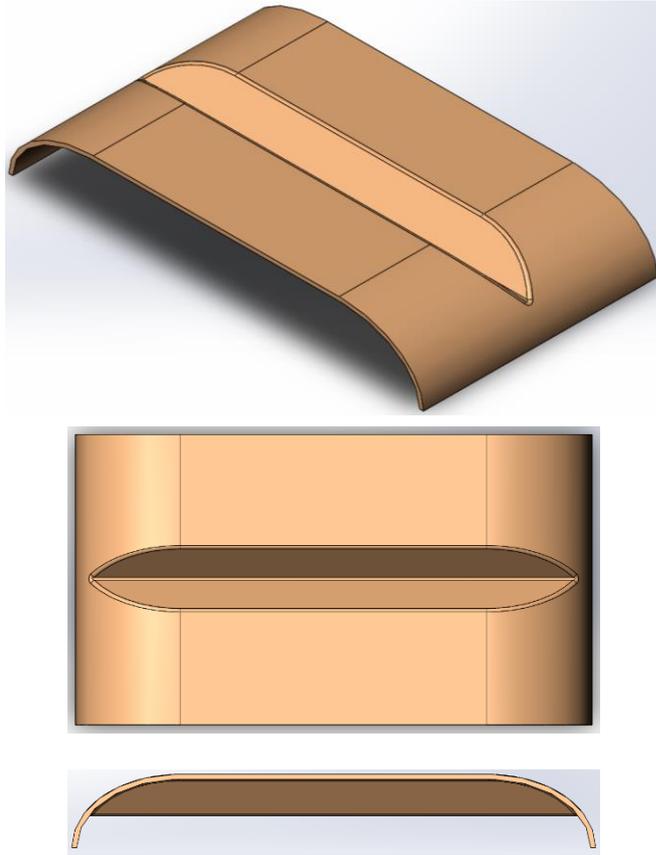


Figure A-8 Coffrage complet

Analyse de la résistance mécanique par méthode des éléments finis

Afin d'assurer que le coffrage conçu précédemment puisse être utilisé en réalité, une analyse de la résistance mécanique du coffrage est nécessaire. Elle est effectuée par la méthode des éléments finis avec le logiciel ANSYS Workbench. Cette analyse permet de simuler les sollicitations que le coffrage subit tout au long de son cycle de vie. La validation par cette analyse est importante pour pouvoir améliorer la conception du coffrage. La majorité des chargements est subie par le coffrage après le coulage du béton. Donc, une étude statique est suffisante pour étudier la résistance mécanique du coffrage.

Définitions des matériaux

La première étape est de définir les matériaux qui seront attribués à la pièce numérique. Les propriétés mécaniques du biocomposite HDPE-particules de bois comme le module de Young, la résistance maximale et la déformation à la rupture

détaillées dans le Chapitre III sont saisies dans la base de données d'ANSYS. La Figure A-9 montre les valeurs qui ont été saisie pour le polymère HDPE.

| Propriétés de Ligne d'arborescence 3 : HDPE | | | | | |
|---|---|-------------------|-------|-------------------------------------|-------------------------------------|
| | A | B | C | D | E |
| 1 | Propriété | Valeur | Unité | <input checked="" type="checkbox"/> | <input checked="" type="checkbox"/> |
| 2 | <input checked="" type="checkbox"/> Elasticité isotrope | | | <input type="checkbox"/> | <input type="checkbox"/> |
| 3 | Dériver de | Module de Youn... | | | |
| 4 | Module de Young | 929 | MPa | <input type="checkbox"/> | <input type="checkbox"/> |
| 5 | Coefficient de Poisson | 0,4 | | | <input type="checkbox"/> |
| 6 | Module de compressibilité | 1,5483E+09 | Pa | | <input type="checkbox"/> |
| 7 | Module de cisaillement | 3,3179E+08 | Pa | | <input type="checkbox"/> |
| 8 | <input checked="" type="checkbox"/> Field Variables | | | | |
| 9 | Température | Oui | | | |
| 10 | Angle de cisaillement | Non | | | |
| 11 | Facteur de dégradation | Non | | | |
| 12 | <input checked="" type="checkbox"/> Limite d'élasticité en traction | 12,48 | MPa | <input type="checkbox"/> | <input type="checkbox"/> |
| 13 | <input checked="" type="checkbox"/> Limite à la rupture en traction | 23,56 | MPa | <input type="checkbox"/> | <input type="checkbox"/> |

Figure A-9 Définition de l'étude et des matériaux

Maillage du coffrage

La pièce est maillée avant d'appliquer les calculs numériques. ANSYS permet de mailler les pièces 3D avec des éléments cubiques et tétraèdres. Nous avons choisi des éléments tétraèdres grâce à sa précision dans des endroits plus complexes au niveau de la rainure. Dans un premier temps, un maillage automatique du maillage est illustré dans la Figure A-10.

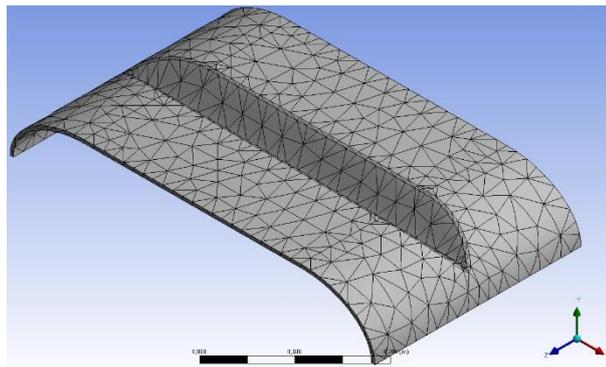


Figure A-10 Maillage automatique du coffrage

Il est possible de faire varier le nombre d'éléments qui discrétise le coffrage. Par exemple, la Figure A-11 montre la différence entre un maillage grossier et raffiné. L'étude de la densité du maillage sera effectuée pour assurer que l'analyse de la résistance mécanique du coffrage est précise et fiable.

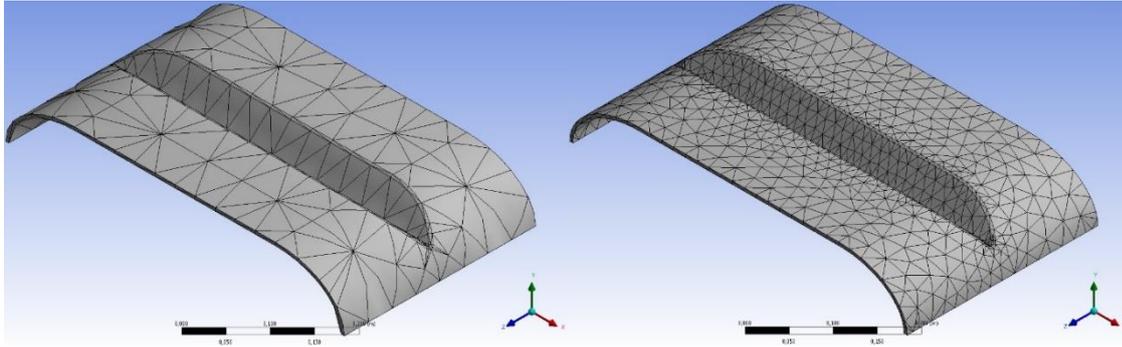


Figure A-11 Maillage grossier et raffiné

Conditions aux limites

Le coffrage est soumis à une charge verticale qui est le poids du béton. Cette charge peut varier selon le volume de béton qui est coulé sur le coffrage. La Figure A-12 est un schéma qui montre l'épaisseur de la dalle sur un coffrage en acier. Une comparaison entre les différents cas d'études a montré que l'épaisseur de 28 cm est la valeur maximale de béton qui est coulé sur les coffrages en acier. Cette épaisseur maximale est attribuée à notre cas de coffrage en biocomposites afin de vérifier les limites de la résistance du coffrage.

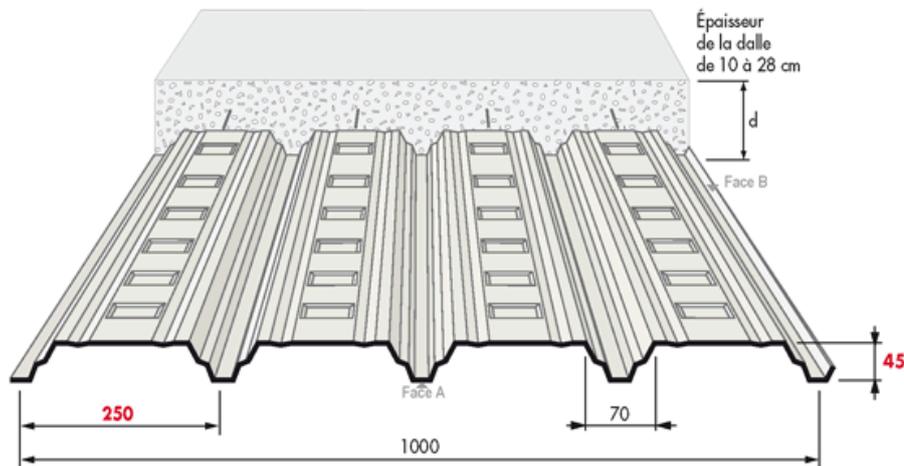


Figure A-12 Epaisseur de la dalle en béton

Le béton coulé sur le coffrage est un parallélépipède qui suit la longueur et la largeur du coffrage avec une épaisseur de 28 cm. Or, le béton occupe seulement la partie supérieure du coffrage comme montré par la Figure A-13. Le volume du béton est de $0,0363 \text{ m}^3$ et sachant que la densité du béton est 2400 kg/m^3 , le poids total du béton qui est exercé sur le coffrage est égal à 87 kg.

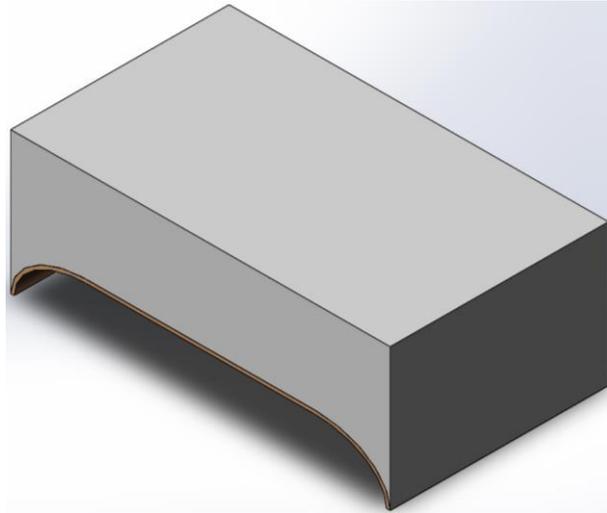


Figure A-13 Volume du béton sur le coffrage

Une fois que le béton est coulé sur le coffrage, il faut considérer les charges extérieures qui sont appliquées sur l'ensemble. Les dimensions du coffrage sont seulement assez grandes pour une personne donc on pourrait dire que le poids d'une personne suffit comme charges extérieures. On peut imaginer des meubles qui sont mis en place sur le plancher mais ils s'étendraient sur plusieurs coffrages et le poids serait réparti ce qui conduit à une charge inférieure que le poids d'une personne. Considérons le poids moyen d'un adulte de 80 kg, le poids total soutenu par le coffrage est de 167 kg. Ce poids sera appliqué sur la partie supérieure du coffrage. Toutes les faces qui sont soumises à ce poids sont colorées en vert dans la Figure A-14. La surface totale est mesurée à 0,198 m². La charge surfacique subie par le coffrage est calculée par l'équation suivante :

$$\frac{\text{Charge (N)}}{\text{Surface (m}^2\text{)}} = \frac{1670N}{0.198\text{m}^2} = 8500Pa \quad \text{Eq. (V.12)}$$

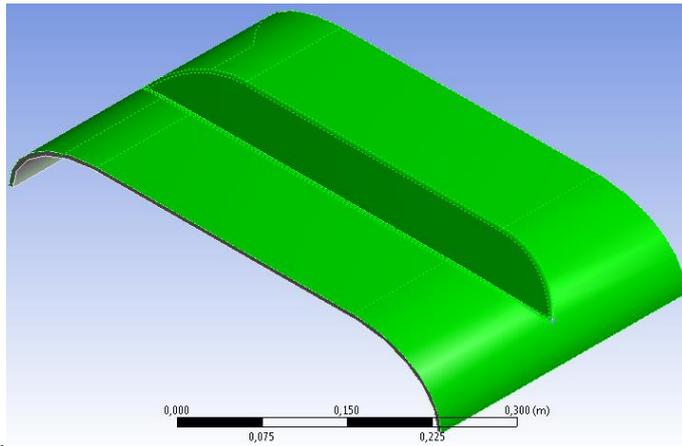


Figure A-14 Application de la charge surfacique sur la face supérieure du coffrage

A part les charges, le coffrage est également soumis à des conditions limites comme l'encastrement et la symétrie de la pièce. En fait, le coffrage conçu dans cette étude est une cellule qui fait partie d'une pièce plus longue. La symétrie se trouve sur sa largeur. Alors que les pieds du coffrage sont encastres. Les faces concernées sont mieux représentées dans La Figure A-15.

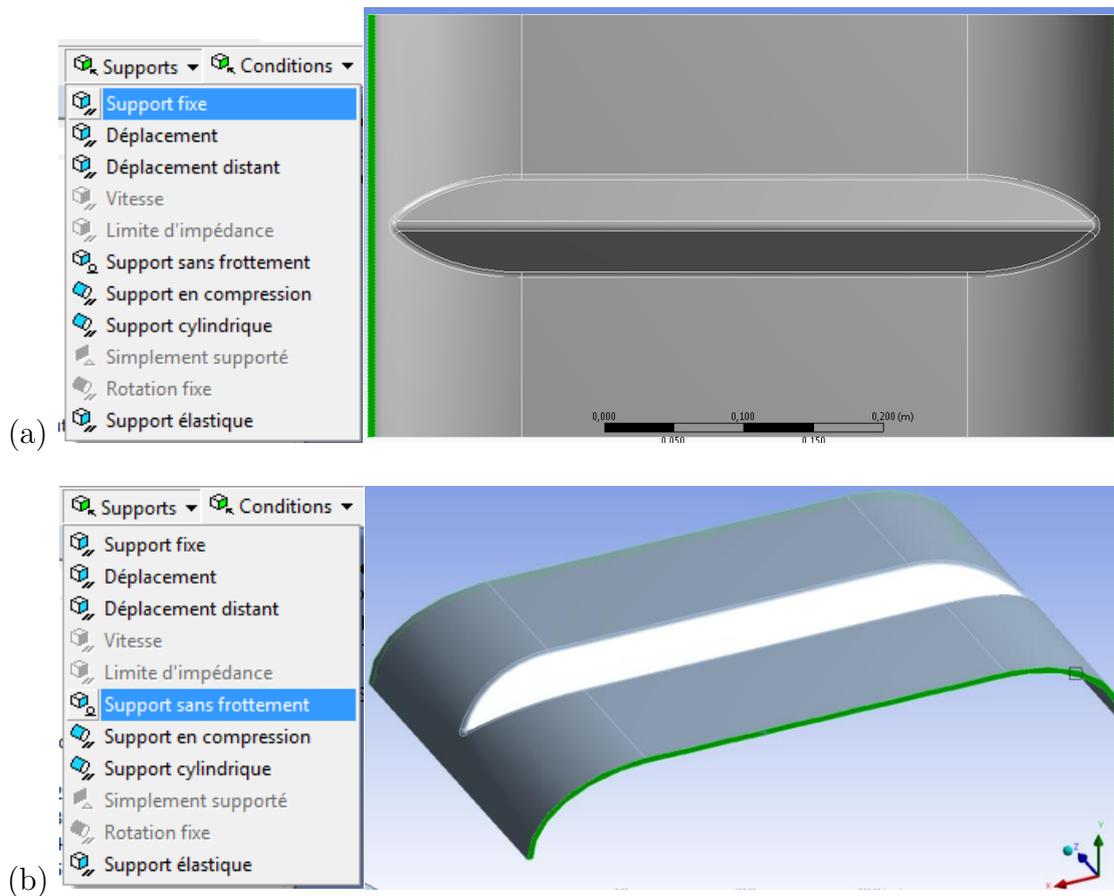


Figure A-15 Encastrement des pieds et (b) définition des faces symétriques

Résultats des calculs

Les paramètres qui sont calculés et comparés pour l'analyse de la résistance mécanique sont le « Déplacement total », la « Déformation équivalente de von Mises » et la « Contrainte équivalente de von Mises ». La validation des résultats est déterminée en prenant en compte les critères de rupture indiqués dans la base de données de matériaux précisées au début de l'étude.

Densité de maillage

Le coffrage est maillé avec différents nombre d'éléments afin de déterminer la bonne densité de maillage pour cette analyse. Le Tableau A-1 et la Figure A-16 montrent les résultats des calculs en fonction du nombre d'éléments dans le maillage. Il semble que pour le déplacement maximal, le maillage avec 11629 éléments finis a montré la convergence. Pour les deux autres cas, des fluctuations sont toujours présentes sur les résultats qui signifie que les maillages ne sont pas encore optimisés.

| Nombre d'éléments | 10607 | 11629 | 12345 |
|--------------------------|--------|--------|--------|
| Déplacement maximal (mm) | 14.02 | 14.053 | 14.055 |
| Déformation maximal (%) | 3.27 | 3.02 | 3.72 |
| Contrainte max (MPa) | 30.352 | 28.086 | 34.592 |

Tableau A-1 Résultat des calculs des différents maillages

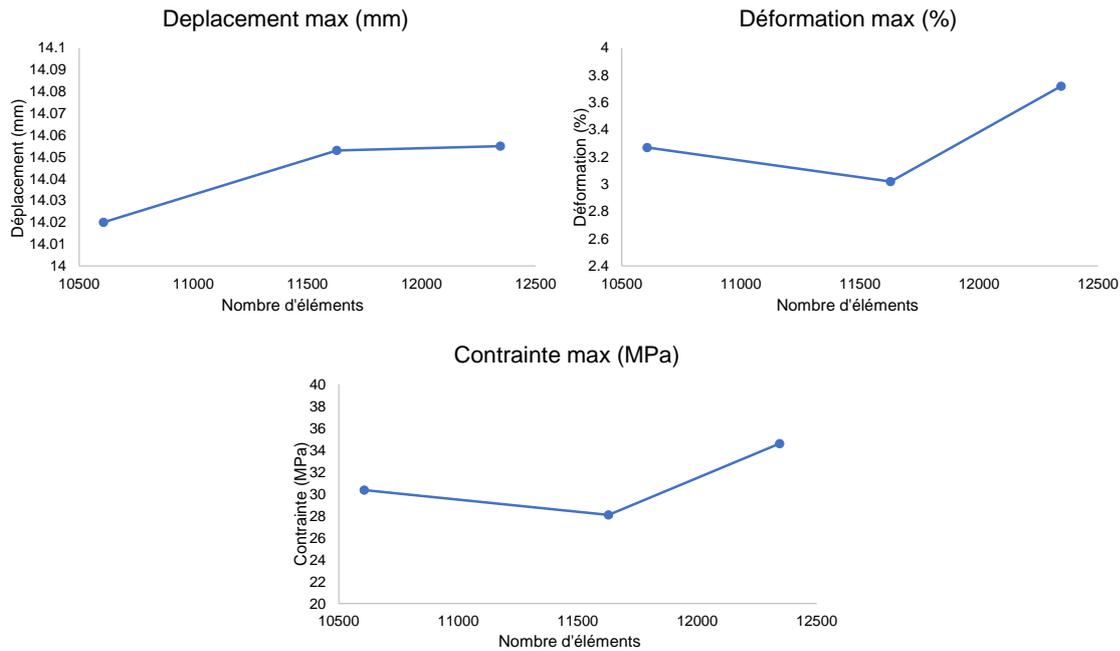


Figure A-16 Evolution des résultats en fonction de la densité du maillage

Puisque le maillage de 11629 éléments donne déjà un résultat précis pour le déplacement, une inspection plus profonde est effectuée dans le cas de contrainte max et déformation max. Dans la Figure A-17 (a), il apparaît que les contours du champ de contrainte sont identiques pour le maillage de 11629 éléments et 12345 éléments. Néanmoins, il existe une concentration de contrainte dans la Figure A-17 (b) qui est l'origine de la fluctuation des résultats.

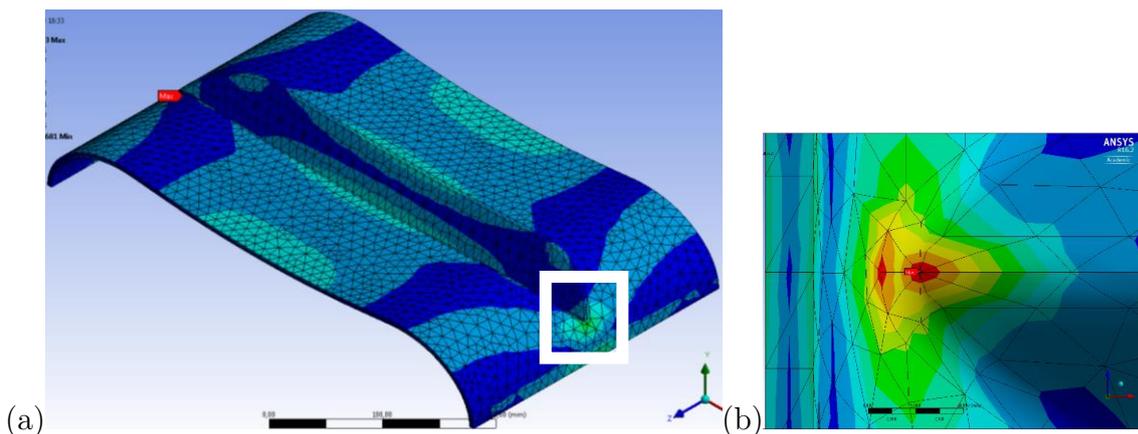


Figure A-17 (a) Contour du champ de contrainte de von Mises et (b) zoom sur la zone de concentration de contrainte

Un raffinement local du maillage sur cet endroit de concentration de contrainte est nécessaire afin d'obtenir des résultats plus précis. La Figure A-18

montre la sélection de la face à raffiner et le raffinement du maillage. Il existe trois niveaux de raffinement et ils seront testés pour une étude de densité de maillage local. Le maillage intermédiaire (11629 éléments) est gardé pour le reste du coffrage.

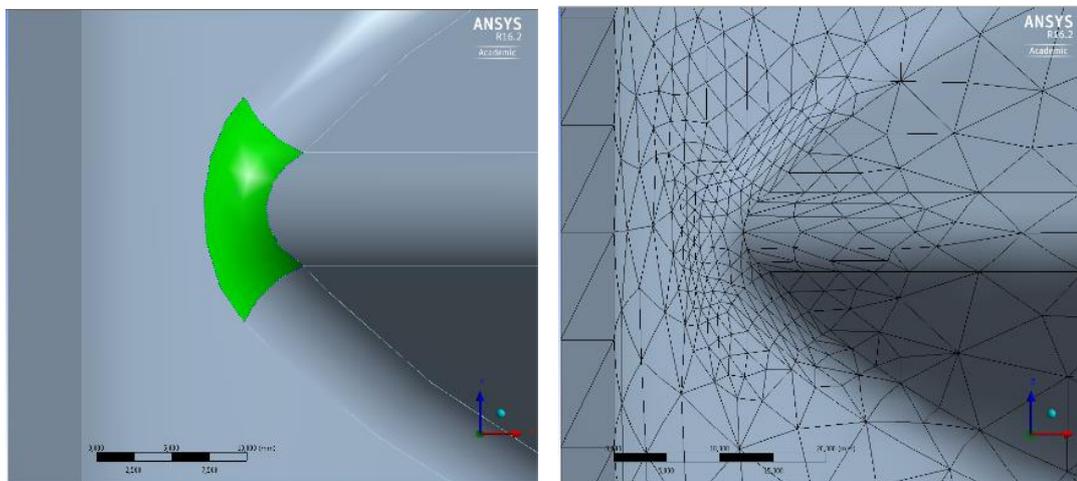


Figure A-18 Raffinement du maillage sur la zone sensible

Les résultats des calculs sont montrés par le Tableau A-2 et la Figure A-19. Le déplacement max varie très peu puisque la convergence est déjà atteinte sans raffinement. Dans le cas des contrainte maximale et déformation maximale, les résultats convergent au raffinement de niveau 2. La différence entre les résultats calculés par le raffinement 2 et 3 est moins de 2% mais le temps de calcul est assez différent. Donc, le raffinement de 2 est choisi pour la suite des calculs numériques.

| Raffinement | 1 | 2 | 3 |
|--------------------------|--------|--------|--------|
| Nombre d'éléments | 15011 | 19177 | 30785 |
| Déplacement maximal (mm) | 14.081 | 14.082 | 14.084 |
| Déformation maximal (%) | 3.33 | 3.14 | 3.09 |
| Contrainte max (MPa) | 30.943 | 29.185 | 28.665 |

Tableau A-2 Résultat des calculs des différents raffinement du maillage

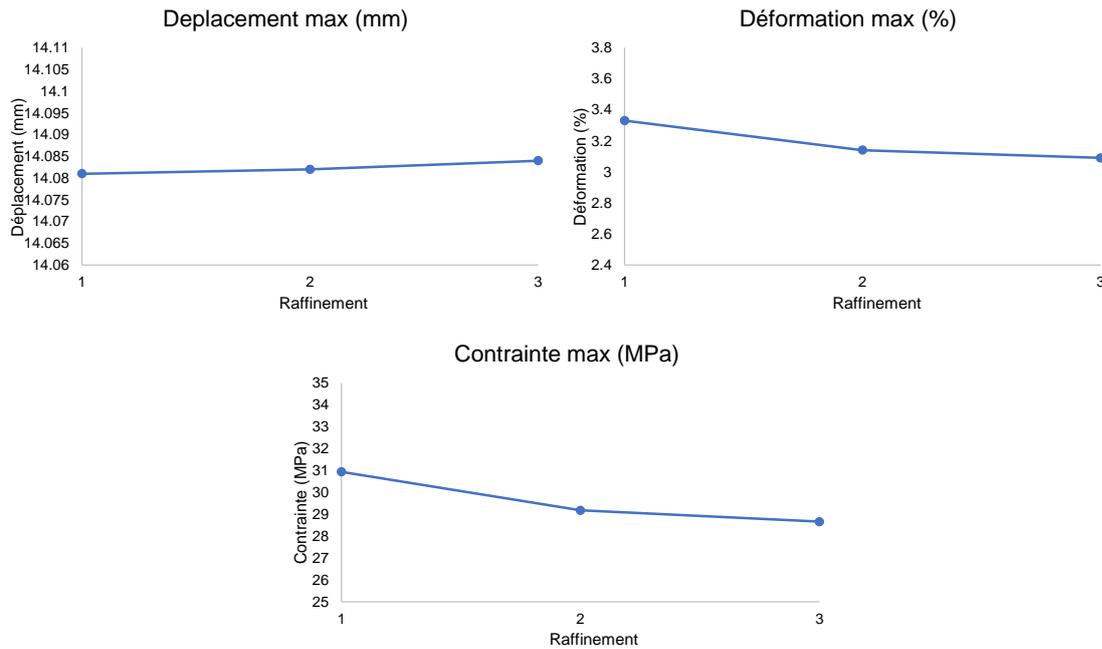


Figure A-19 Evolution des résultats en fonction du raffinement

Résistance mécanique du coffrage

L'analyse de la résistance mécanique du coffrage est effectuée dans cette partie. Les propriétés du biocomposite HDPE avec différents pourcentages de particules de bois sont attribuées au coffrage afin de déterminer le type de biocomposite optimal qui peut être thermoformé en coffrage étudié ici. Le coffrage est considéré rompu si les contraintes maximale et déformations maximale calculées dépassent les critères de rupture précisées au début de l'étude. Pour analyser les résultats de façon plus concrète, il est primordial de calculer le facteur de sécurité f_s . C'est le rapport entre la contrainte/déformation à la rupture et la contrainte/déformation maximale qui est subite par la pièce. Le facteur est donné par l'équation ci-dessous :

$$f_s = \frac{\sigma_R}{\sigma_{max}} = \frac{\varepsilon_R}{\varepsilon_{max}} \rightarrow \text{rupture si } f_s < 1 \quad \text{Eq. (V.13)}$$

Les résultats des calculs sont donnés dans le Tableau A-3. Les paramètres D_{max} , ε_{max} , et σ_{max} signifient déplacement, déformation et contrainte maximale alors que ε_R et σ_R signifient déformation et contrainte à la rupture. Les propriétés calculées qui ne respectent pas le facteur de sécurité f_s sont soulignées en jaune. On observe que le coffrage casse peu importe le pourcentage de bois utilisé dans le

biocomposite. Il résiste en déformation mais il subit trop de contrainte, indiqué par le facteur de sécurité f_s inférieur à 1 souligné en jaune. La contrainte maximale dans la Figure A-20 se trouvent toujours aux sites de concentration de contrainte vu précédemment. Il faut corriger la conception pour éliminer cette partie problématique du coffrage.

| wt% bois | 0 | 20 | 30 | 40 | 50 | 60 |
|----------------------|--------|--------|--------|-------|--------|-------|
| D_{max} (mm) | 14,082 | 8,429 | 8,126 | 7,614 | 7,684 | 7,156 |
| ϵ_{max} (%) | 3,14 | 1,84 | 1,76 | 1,64 | 1,64 | 1,51 |
| ϵ_R (%) | 108,3 | 5,47 | 5,06 | 2,99 | 1,76 | 1,59 |
| f_s | 34,49 | 2,97 | 2,88 | 1,82 | 1,07 | 1,05 |
| σ_{max} (MPa) | 29,185 | 29,015 | 28,935 | 28,86 | 28,788 | 28,72 |
| σ_R (MPa) | 23,56 | 23,08 | 24,04 | 20,39 | 18,02 | 17,55 |
| f_s | 0,81 | 0,80 | 0,83 | 0,71 | 0,63 | 0,61 |

Tableau A-3 Résultat des calculs de résistance mécanique du coffrage

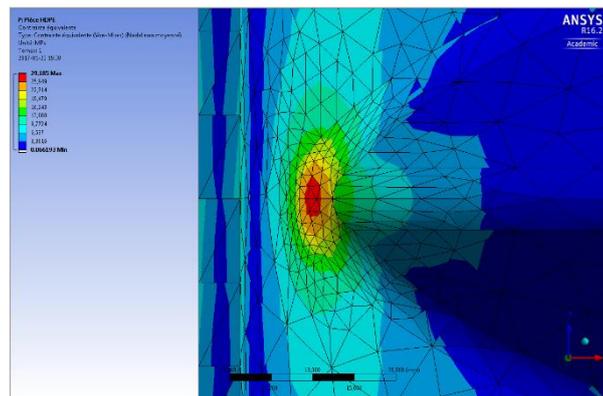


Figure A-20 Site de concentration de contrainte

Correction de la conception

Avant de corriger la conception, il faut d'abord comprendre pourquoi il existe une concentration de contrainte à cet endroit. La contrainte est un rapport entre la charge appliquée sur le corps et la surface affectée :

$$\text{Contrainte (Pa)} = \frac{\text{Charge (N)}}{\text{Surface (m}^2\text{)}} \quad \text{Eq. (V.14)}$$

La concentration de contrainte existe sur cet endroit car une charge élevée est appliquée sur une surface trop petite. La solution à ce problème est d'augmenter la surface dans la zone concernée pour réduire la contrainte subite par le coffrage. Pour ce faire, il suffit de modifier le rayon de congé des arêtes qui était de 5 mm à 10 mm. Les autres congés sont également modifiés pour garder l'homogénéité de la conception sur tout le coffrage. La Figure A-21 montre les différents congés qui sont modifiés.

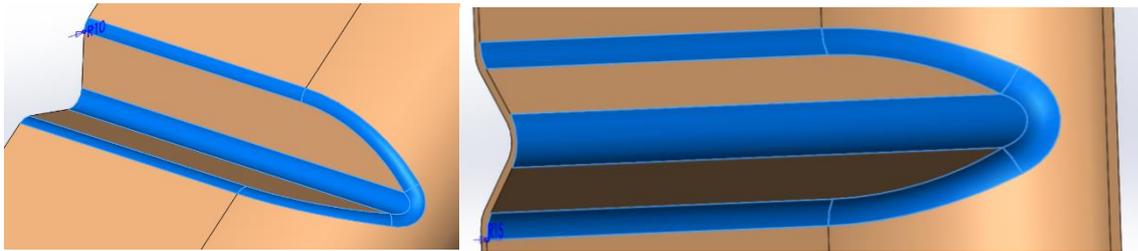


Figure A-21 Modification des congés sur les arêtes du coffrage

D'après le Tableau A-4, la petite modification du coffrage a montré des bons résultats avec seulement le biocomposite à 60% de bois qui a échoué. Cependant, les facteurs de sécurité f_s sont aux voisinages de 1 qui n'est pas une bonne indication pour la résistance mécanique. Même si les chargements appliqués dans l'analyse étaient au maximum, il peut toujours y avoir des imprévus dans la réalité. Dans le cas où le coffrage doit subir des chargements supplémentaires, il risque de se casser. Par contre, on observe qu'avec seulement une petite modification, la résistance mécanique du coffrage s'est beaucoup améliorée. La conception actuelle peut se servir d'une conception de base qui peut être optimisée par la suite.

| <i>wt%</i> bois | 0 | 20 | 30 | 40 | 50 | 60 |
|----------------------|--------|--------|--------|--------|--------|-------|
| D_{max} (mm) | 14,841 | 8,877 | 8,554 | 8,012 | 8,084 | 7,526 |
| ϵ_{max} (%) | 1,96 | 1,14 | 1,09 | 1,01 | 1,01 | 0,94 |
| ϵ_R (%) | 108,3 | 5,47 | 5,06 | 2,99 | 1,76 | 1,59 |
| f_s | 55,26 | 4,80 | 4,64 | 2,96 | 1,74 | 1,69 |
| σ_{max} (MPa) | 18,177 | 18,007 | 17,933 | 17,863 | 17,799 | 17,74 |
| σ_R (MPa) | 23,56 | 23,08 | 24,04 | 20,39 | 18,02 | 17,55 |
| f_s | 1,30 | 1,28 | 1,34 | 1,14 | 1,01 | 0,99 |

Tableau A-4 Résultat des calculs du coffrage modifié

Optimisation de la conception

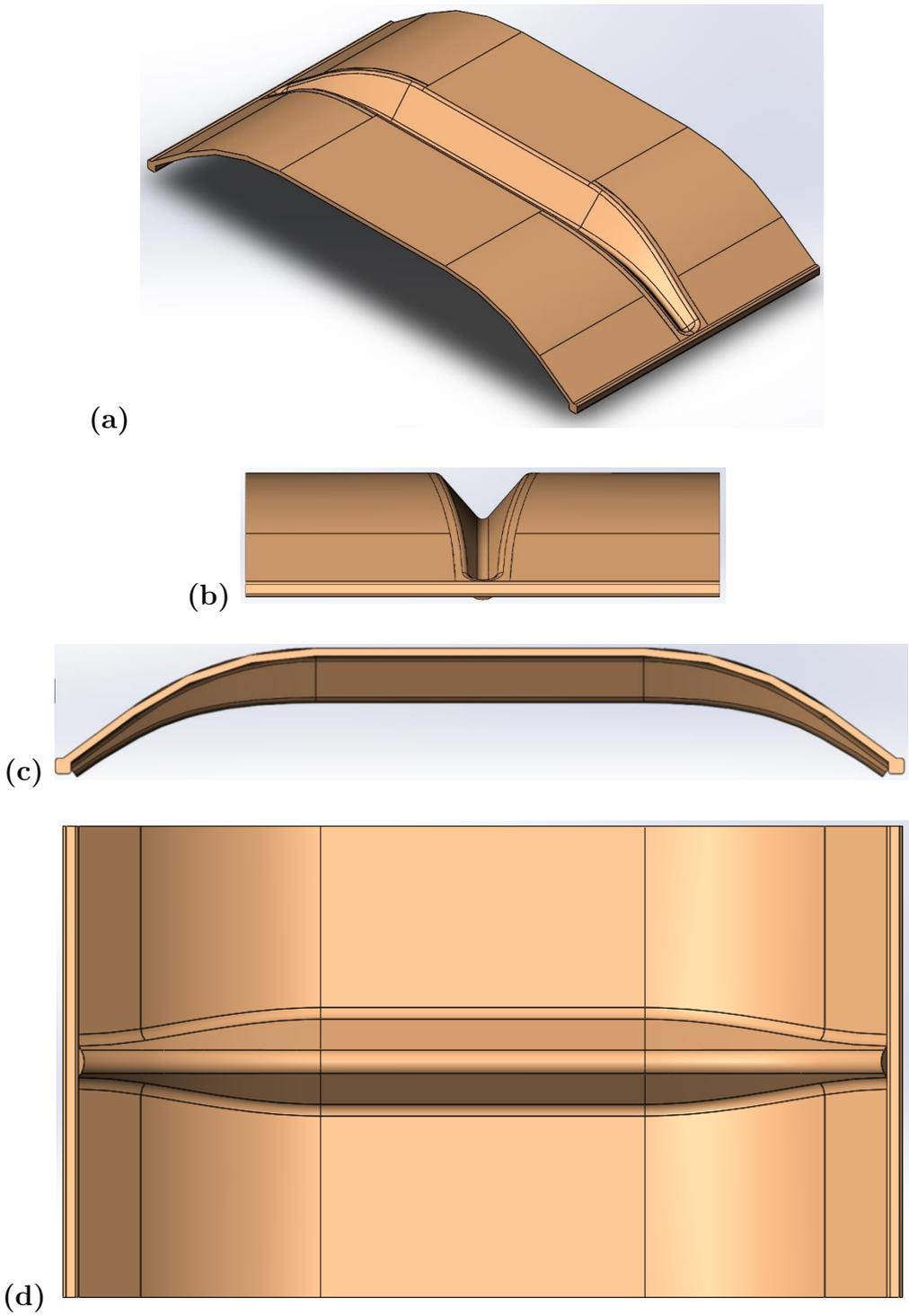
Afin d'optimiser la conception actuelle, plusieurs hypothèses doivent être établies. Le premier réflexe pour augmenter la résistance mécanique est d'augmenter l'épaisseur de la pièce. Or, on vise à fabriquer le coffrage par thermoformage, donc l'épaisseur ne peut pas être trop grande. Il faut augmenter la résistance mécanique du coffrage en modifiant la forme. Sur la Figure A-22, on peut en déduire que la plupart de la pièce est perpendiculaire à la charge appliquée. Cette forme plate est vulnérable au fléchissement. Une forme arrondie résiste mieux à ce type de chargement, par exemple les arcs qui supportent les ponts.

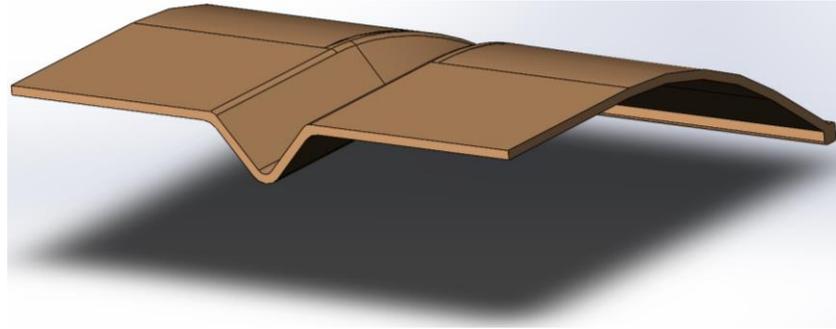


Figure A-22 Vue de face du coffrage

Dans l'intérêt d'optimiser la conception, le coffrage réel dans la Figure A-1 est conçu et est comparé avec la conception actuelle. Les différentes vues du coffrage

optimisé sont illustrées dans la Figure A-23. La différence principale avec la première conception est la rainure qui est courbée et effilée. Cette forme est supposée plus résistante aux chargements perpendiculaires. La même analyse de résistance mécanique est effectuée sur ce coffrage optimisé et les résultats sont donnés dans le Tableau A-5.





(e)

Figure A-23 (a) Vue isométrique (b) vue de droite (c) vue de face (d) vue de dessous et (e) vue de coupe du coffrage optimisé

Effectivement, le coffrage optimisé résiste nettement mieux aux chargements mécaniques avec des facteurs de sécurité aux voisinages de 3. Cette résistance est obtenue grâce aux formes courbées de la rainure. Bien que le coffrage réel soit meilleur, il ne peut pas être fabriqué par thermoformage. En examinant la Figure A-23 (c), la rainure suit la courbure du corps principal et son extrémité dépasse le point le plus bas du coffrage. Il existe aussi des endroits avec des angles aigus. Le coffrage réel en copeaux de bois n'a pas ces contraintes car il est fabriqué par thermocompression. Or, ces formes complexes risquent de casser la feuille du biocomposite pendant le thermoformage.

| wt% bois | 0 | 20 | 30 | 40 | 50 | 60 |
|-------------------------|----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|
| D_{max} (mm) | 7,9607 | 4,7682 | 4,5985 | 4,3106 | 4,3524 | 4,0555 |
| ε_{max} (%) | 0,72 | 0,43 | 0,41 | 0,38 | 0,39 | 0,36 |
| ε_R (%) | 108,3 | 5,47 | 5,06 | 2,99 | 1,76 | 1,59 |
| f_s | 150,42 | 12,72 | 12,34 | 7,87 | 4,51 | 4,42 |
| σ_{max} (MPa) | 6,6986 | 6,7295 | 6,7443 | 6,7588 | 6,7728 | 6,7864 |
| σ_R (MPa) | 23,56 | 23,08 | 24,04 | 20,39 | 18,02 | 17,55 |
| f_s | 3,52 | 3,43 | 3,56 | 3,02 | 2,66 | 2,59 |

Tableau A-5 Résultat des calculs du coffrage optimisé

Pour faire la simulation numérique du thermoformage du coffrage, seule la première conception du coffrage est prise en compte. Même s'il résiste moins que le coffrage optimisé, sa forme est plus simple pour une étude numérique du thermoformage.

Bibliographie

- Agarwal, U.P., 2006. Raman imaging to investigate ultrastructure and composition of plant cell walls: distribution of lignin and cellulose in black spruce wood (*Picea mariana*). *Planta* 224, 1141–1153.
- Agoua, E., Allognon-Houessou, E., Adjovi, E., Togbedji, B., 2013. Thermal conductivity of composites made of wastes of wood and expanded polystyrene. *Constr. Build. Mater.* 41, 557–562.
- Aleksander, I., Morton, H., 1990. An introduction to neural computing. Chapman & Hall London.
- Alexander, H., 1971. The tensile instability of an inflated cylindrical membrane as affected by an axial load. *Int. J. Mech. Sci.* 13, 87–95.
- Angelov, I., Wiedmer, S., Evstatiev, M., Friedrich, K., Mennig, G., 2007. Pultrusion of a flax/polypropylene yarn. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 38, 1431–1438.
- Ausias, G., Bourmaud, A., Coroller, G., Baley, C., 2013. Study of the fibre morphology stability in polypropylene-flax composites. *Polym. Degrad. Stab.* 98, 1216–1224.
- Baghaei, B., Skrifvars, M., Berglin, L., 2013. Manufacture and characterisation of thermoplastic composites made from PLA/hemp co-wrapped hybrid yarn preregs. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 50, 93–101.
- Baghaei, B., Skrifvars, M., Salehi, M., Bashir, T., Rissanen, M., Nousiainen, P., 2014. Novel aligned hemp fibre reinforcement for structural biocomposites: Porosity, water absorption, mechanical performances and viscoelastic behaviour. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 61, 1–12.
- Balberg, I., Anderson, C.H., Alexander, S., Wagner, N., 1984. Excluded volume and its relation to the onset of percolation. *Phys. Rev. B* 30, 3933.
- Baley, C., 2005. Fibres naturelles de renfort pour matériaux composites. *Tech. Ing. Matér. Fonct.* N2.
- Baley, C., 2002. Analysis of the flax fibres tensile behaviour and analysis of the tensile stiffness increase. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 33, 939–948.
- Baley, C., Morvan, C., Grohens, Y., 2005. Influence of the Absorbed Water on the Tensile Strength of Flax Fibers. *Macromol. Symp.* 222, 195–202.

- Baxter, S.C., Robinson, C.T., 2011. Pseudo-percolation: Critical volume fractions and mechanical percolation in polymer nanocomposites. *Compos. Sci. Technol.* 71, 1273–1279.
- Beckermann, G.W., Pickering, K.L., 2009. Engineering and evaluation of hemp fibre reinforced polypropylene composites: Micro-mechanics and strength prediction modelling. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 40, 210–217.
- Beckermann, G.W., Pickering, K.L., 2008. Engineering and evaluation of hemp fibre reinforced polypropylene composites: Fibre treatment and matrix modification. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 39, 979–988.
- Benfratello, S., Capitano, C., Peri, G., Rizzo, G., Scaccianoce, G., Sorrentino, G., 2013. Thermal and structural properties of a hemp–lime biocomposite. *Constr. Build. Mater.* 48, 745–754.
- Bengtsson, M., Gatenholm, P., Oksman, K., 2005. The effect of crosslinking on the properties of polyethylene/wood flour composites. *Compos. Sci. Technol.* 65, 1468–1479.
- Benjeddou, A., Jankovich, E., Hadhri, T., 1993. Determination of the Parameters of Ogden's Law Using Biaxial Data and Levenberg-Marquardt- Fletcher Algorithm. *J. Elastomers Plast.* 25, 224–248.
- Béraudo, C., Fortin, A., Coupez, T., Demay, Y., Vergnes, B., Agassant, J.F., 1998. A finite element method for computing the flow of multi-mode viscoelastic fluids: comparison with experiments. *J. Non-Newton. Fluid Mech.* 75, 1–23.
- Bergström, J.S., Boyce, M.C., 1998. Constitutive modeling of the large strain time-dependent behavior of elastomers. *J. Mech. Phys. Solids* 46, 931–954.
- Berhan, L., Sastry, A.M., 2007. Modeling percolation in high-aspect-ratio fiber systems. II. The effect of waviness on the percolation onset. *Phys. Rev. E* 75.
- Bledzki, A., Gassan, J., 1999. Composites reinforced with cellulose based fibres. *Prog. Polym. Sci.* 24, 221–274.
- Bledzki, A.K., Mamun, A.A., Lucka-Gabor, M., Gutowski, V.S., 2008. The effects of acetylation on properties of flax fibre and its polypropylene composites. *Express Polym. Lett.* 2, 413–422.
- Bledzki, A.K., Reihmane, S., Gassan, J., 1996. Properties and modification methods for vegetable fibers for natural fiber composites. *J. Appl. Polym. Sci.* 59, 1329–1336.

- Bodros, E., Pillin, I., Montrelay, N., Baley, C., 2007. Could biopolymers reinforced by randomly scattered flax fibre be used in structural applications? *Compos. Sci. Technol.* 67, 462–470.
- Bos, H.L., 2004. The potential of flax fibres as reinforcement for composite materials. University Press, Eindhoven.
- Bourmaud, A., Baley, C., 2009. Rigidity analysis of polypropylene/vegetal fibre composites after recycling. *Polym. Degrad. Stab.* 94, 297–305.
- Bourmaud, A., Baley, C., 2007. Investigations on the recycling of hemp and sisal fibre reinforced polypropylene composites. *Polym. Degrad. Stab.* 92, 1034–1045.
- Bourmaud, A., Morvan, C., Baley, C., 2010. Importance of fiber preparation to optimize the surface and mechanical properties of unitary flax fiber. *Ind. Crops Prod.* 32, 662–667.
- Brahim, S.B., Cheikh, R.B., 2007. Influence of fibre orientation and volume fraction on the tensile properties of unidirectional Alfa-polyester composite. *Compos. Sci. Technol.* 67, 140–147.
- Bruggeman, D.A.G., 1935. Calculation of various physics constants in heterogenous substances I Dielectricity constants and conductivity of mixed bodies from isotropic substances. *Ann. Phys.* 24, 636–664.
- Cape, J.A., Lehman, G.W., 1963. Temperature and Finite Pulse-Time Effects in the Flash Method for Measuring Thermal Diffusivity. *J. Appl. Phys.* 34, 1909–1913.
- Carpenter, J.E.P., Miao, M.H., Brorens, P., 2007. Deformation Behaviour of Composites Reinforced with Four Different Linen Flax Yarn Structures. *Adv. Mater. Res.* 29–30, 263–266.
- Carreau, P.J., 1972. Rheological Equations from Molecular Network Theories. *Trans. Soc. Rheol.* 16, 99–127.
- Charlet, K., 2008. Contribution à l'étude de composites unidirectionnels renforcés par des fibres de lin: relation entre la microstructure de la fibre et ses propriétés mécaniques. Université de Caen/Basse-Normandie.
- Charlet, K., Baley, C., Morvan, C., Jernot, J.P., Gomina, M., Bréard, J., 2007. Characteristics of Hermès flax fibres as a function of their location in the stem and properties of the derived unidirectional composites. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 38, 1912–1921.

- Charlet, K., Jernot, J.-P., Breard, J., Gomina, M., 2010. Scattering of morphological and mechanical properties of flax fibres. *Ind. Crops Prod.* 32, 220–224.
- Chevaugeron, N., Verron, E., Peseux, B., 2000. Finite element analysis of non linear transversely isotropic hyperelastic membranes for thermoforming applications, in: *ECOMAS 2000*. Barcelone, Spain.
- Choy, C.L., 1977. Thermal conductivity of polymers. *Polymer* 18, 984–1004.
- Choy, C.L., Luk, W.H., Chen, F.C., 1978. Thermal conductivity of highly oriented polyethylene. *Polymer* 19, 155–162.
- Christensen, R.M., 1980. A Nonlinear Theory of Viscoelasticity for Application to Elastomers. *J. Appl. Mech.* 47, 762.
- Clark III, L.M., Taylor, R.E., 1975. Radiation loss in the flash method for thermal diffusivity. *J. Appl. Phys.* 46, 714–719.
- Cobbs, W.H., Burton, R.L., 1953. Crystallization of polyethylene terephthalate. *J. Polym. Sci.* 10, 275–290.
- Courant, R., Friedrichs, K., Lewy, H., 1967. On the Partial Difference Equations of Mathematical Physics. *IBM J. Res. Dev.* 11, 215–234.
- Cowan, R.D., 1963. Pulse Method of Measuring Thermal Diffusivity at High Temperatures. *J. Appl. Phys.* 34, 926–927.
- Cowan, R.D., 1961. Proposed Method of Measuring Thermal Diffusivity at High Temperatures. *J. Appl. Phys.* 32, 1363–1370.
- Dai, D., Fan, M., 2010. Characteristic and Performance of Elementary Hemp Fibre. *Mater. Sci. Appl.* 01, 336–342.
- Dealy, J.M., Larson, R.G., 2006. Structure and rheology of molten polymers. Hanser Munich 30–39.
- DeLorenzi, H., Nied, H., 1991. Finite element simulation of thermoforming and blow molding. *Prog. Polym. Process.* 1, 117–171.
- Demirci, E., Acar, M., Pourdeyhimi, B., Silberschmidt, V.V., 2012. Computation of mechanical anisotropy in thermally bonded bicomponent fibre nonwovens. *Comput. Mater. Sci.* 52, 157–163.
- Devi, L.U., Bhagawan, S.S., Thomas, S., 1997. Mechanical properties of pineapple leaf fiber-reinforced polyester composites. *J. Appl. Polym. Sci.* 64, 1739–1748.

- Dhakal, H., Zhang, Z., Richardson, M., 2007. Effect of water absorption on the mechanical properties of hemp fibre reinforced unsaturated polyester composites. *Compos. Sci. Technol.* 67, 1674–1683.
- Dicker, M.P.M., Duckworth, P.F., Baker, A.B., Francois, G., Hazzard, M.K., Weaver, P.M., 2014. Green composites: A review of material attributes and complementary applications. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 56, 280–289.
- Dirrenberger, J., Forest, S., Jeulin, D., 2014. Towards gigantic RVE sizes for 3D stochastic fibrous networks. *Int. J. Solids Struct.* 51, 359–376.
- Dokainish, M.A., Subbaraj, K., 1989. A survey of direct time-integration methods in computational structural dynamics—I. Explicit methods. *Comput. Struct.* 32, 1371–1386.
- Drugan, W.J., Willis, J.R., 1996. A micromechanics-based nonlocal constitutive equation and estimates of representative volume element size for elastic composites. *J. Mech. Phys. Solids* 44, 497–524.
- Drzal, L.T., Mohanty, A.K., Misra, M., 2001. Bio-composite materials as alternatives to petroleum-based composites for automotive applications. *Magnesium* 40, 1–3.
- Duval, A., Bourmaud, A., Augier, L., Baley, C., 2011. Influence of the sampling area of the stem on the mechanical properties of hemp fibers. *Mater. Lett.* 65, 797–800.
- El Moumen, A., Kanit, T., Imad, A., El Minor, H., 2015a. Computational thermal conductivity in porous materials using homogenization techniques: Numerical and statistical approaches. *Comput. Mater. Sci.* 97, 148–158.
- El Moumen, A., Kanit, T., Imad, A., El Minor, H., 2015b. Effect of reinforcement shape on physical properties and representative volume element of particles-reinforced composites: Statistical and numerical approaches. *Mech. Mater.* 83, 1–16.
- El Moumen, A., Kanit, T., Imad, A., El Minor, H., 2013. Effect of overlapping inclusions on effective elastic properties of composites. *Mech. Res. Commun.* 53, 24–30.
- Elouaer, A., 2011. Contribution à la compréhension et à la modélisation du comportement mécanique de matériaux composites à renfort en fibres végétales. Reims.
- Erchiqui, F., 2005. Thermodynamic approach of inflation process of K-BKZ polymer sheet with respect to thermoforming. *Polym. Eng. Sci.* 45, 1319–1335.

- Erchiqui, F., Derdouri, A., Gakwaya, A., Verron, E., 2001. Analyse expérimentale et numérique en soufflage libre d'une membrane thermoplastique. *Entropie* 37, 118–125.
- Erchiqui, F., Gakwaya, A., Rachik, M., 2005. Dynamic finite element analysis of nonlinear isotropic hyperelastic and viscoelastic materials for thermoforming applications. *Polym. Eng. Sci.* 45, 125–134.
- Erchiqui, F., Godard, F., Gakwaya, A., Koubaa, A., Vincent, M., Kaddami, H., 2009a. Engineering investigations on the potentiality of the thermoformability of HDPE charged by wood flours in the thermoforming part. *Polym. Eng. Sci.* 49, 1594–1602.
- Erchiqui, F., Godard, F., Koubaa, A., Vincent, M., Kaddami, H., 2009b. Investigation of Relaxation Properties and Potentiality of the Thermoformability of HDPE Charged by Wood Flours. *J. Reinf. Plast. Compos.* 28, 1153–1168.
- Erchiqui, F., Godard, F., Koubaa, A., Vincent, M., Kaddami, H., 2009c. Investigation of Relaxation Properties and Potentiality of the Thermoformability of HDPE Charged by Wood Flours. *J. Reinf. Plast. Compos.* 28, 1153–1168.
- Erchiqui, F., Imad, A., Mouloudi, A., Hsnaoui, F.S., 2010. Caractérisation viscoélastique du comportement d'une membrane thermoplastique et modélisation numérique de thermoformage. *Can. J. Chem. Eng.* 88, 116–125.
- Erchiqui, F., Kandil, N., 2006. Neuronal Networks Approach for Characterization of Softened Polymers. *J. Reinf. Plast. Compos.* 25, 463–473.
- Erchiqui, F., Ozdemir, Z., Souli, M., Ezzaidi, H., Dituba-Ngoma, G., 2011. Neural networks approach for characterisation of viscoelastic polymers. *Can. J. Chem. Eng.* 89, 1303–1310.
- Eyre, D.J., Milton, G.W., 1999. A fast numerical scheme for computing the response of composites using grid refinement. *Eur. Phys. J. Appl. Phys.* 6, 41–47.
- Facca, A.G., Kortschot, M.T., Yan, N., 2006. Predicting the elastic modulus of natural fibre reinforced thermoplastics. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 37, 1660–1671.
- Faruk, O., Bledzki, A.K., Fink, H.-P., Sain, M., 2012. Biocomposites reinforced with natural fibers: 2000–2010. *Prog. Polym. Sci.* 37, 1552–1596.
- Ferry, J.D., 1980. *Viscoelastic Properties of Polymers*. John Wiley & Sons.

- Ghobadnam, M., Mosaddegh, P., Rejani, M.R., Amirabadi, H., Ghaei, A., 2015. Numerical and experimental analysis of HIPS sheets in thermoforming process. *Int. J. Adv. Manuf. Technol.* 76, 1079–1089.
- Gitman, I.M., Askes, H., Sluys, L.J., 2007. Representative volume: Existence and size determination. *Eng. Fract. Mech.* 74, 2518–2534.
- Godard, F., Vincent, M., Agassant, J.-F., Vergnes, B., 2009. Rheological behavior and mechanical properties of sawdust/polyethylene composites. *J. Appl. Polym. Sci.* 112, 2559–2566.
- Godard, F., Vincent, M., Agassant, J.-F., Vergnes, B., 2008. Étude du comportement rhéologique et des propriétés mécaniques de composites sciures de bois-polyéthylène haute densité. *Rhéologie* 13, 9–21.
- Goutianos, S., Peijs, T., Nystrom, B., Skrifvars, M., 2006. Development of Flax Fibre based Textile Reinforcements for Composite Applications. *Appl. Compos. Mater.* 13, 199–215.
- Graupner, N., Müssig, J., 2011. A comparison of the mechanical characteristics of kenaf and lyocell fibre reinforced poly(lactic acid) (PLA) and poly(3-hydroxybutyrate) (PHB) composites. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 42, 2010–2019.
- Green, D.W., Winandy, J.E., Kretschmann, D.E., 1999. Wood handbook: Wood as an engineering material. Gen. Tech. Rep. FPL-GTR-113 US Dep. Agric. For. Serv. For. Prod. Lab. Madison WI.
- Guide to Rheological Nomenclature: Measurements in Ceramic Particulate Systems [WWW Document], n.d. URL <http://ciks.cbt.nist.gov/~garbocz/SP946/node14.htm>
- Gusev, A.A., 1997. Representative volume element size for elastic composites: a numerical study. *J. Mech. Phys. Solids* 45, 1449–1459.
- Halpin, J., Tsai, S., 1967. Environmental factors in composite materials design. US air force technical report. AFML TR 67–423.
- Hashin, Z., Shtrikman, S., 1963. A variational approach to the theory of the elastic behaviour of multiphase materials. *J. Mech. Phys. Solids* 11, 127–140.
- Hashin, Z., Shtrikman, S., 1962. A Variational Approach to the Theory of the Effective Magnetic Permeability of Multiphase Materials. *J. Appl. Phys.* 33, 3125–3131.

- Hearle, J.W.S., 1963. The fine structure of fibers and crystalline polymers. III. Interpretation of the mechanical properties of fibers. *J. Appl. Polym. Sci.* 7, 1207–1223.
- Herrera-Franco, P.J., Valadez-González, A., 2005. A study of the mechanical properties of short natural-fiber reinforced composites. *Compos. Part B Eng.* 36, 597–608.
- Herrmann, A.S., Nickel, J., Riedel, U., 1998. Construction materials based upon biologically renewable resources—from components to finished parts. *Polym. Degrad. Stab., Biodegradable Polymers and Macromolecules* 59, 251–261.
- Hill, R., 1963. Elastic properties of reinforced solids: Some theoretical principles. *J. Mech. Phys. Solids* 11, 357–372.
- Ho, M., Wang, H., Lee, J.-H., Ho, C., Lau, K., Leng, J., Hui, D., 2012. Critical factors on manufacturing processes of natural fibre composites. *Compos. Part B Eng.* 43, 3549–3562.
- Hu, R., Lim, J.-K., 2007. Fabrication and Mechanical Properties of Completely Biodegradable Hemp Fiber Reinforced Polylactic Acid Composites. *J. Compos. Mater.* 41, 1655–1669.
- Huda, M.S., Drzal, L.T., Misra, M., Mohanty, A.K., 2006. Wood-fiber-reinforced poly(lactic acid) composites: Evaluation of the physicomechanical and morphological properties. *J. Appl. Polym. Sci.* 102, 4856–4869.
- Huet, C., 1990. Application of variational concepts to size effects in elastic heterogeneous bodies. *J. Mech. Phys. Solids* 38, 813–841.
- Hughes, M., Carpenter, J., Hill, C., 2007. Deformation and fracture behaviour of flax fibre reinforced thermosetting polymer matrix composites. *J. Mater. Sci.* 42, 2499–2511.
- Ichazo, M.N., Hernández, M., Albano, C., González, J., 2006. Curing and Physical Properties of Natural Rubber/Wood Flour Composites. *Macromol. Symp.* 239, 192–200.
- Idicula, M., Boudenne, A., Umadevi, L., Ibos, L., Candau, Y., Thomas, S., 2006. Thermophysical properties of natural fibre reinforced polyester composites. *Compos. Sci. Technol.* 66, 2719–2725.
- Ilczyszyn, F., 2013. Caractérisation expérimentale et numérique du comportement mécanique des agro-composites renforcés par des fibres de chanvre. Troyes.
- Incropera, F.P., DeWitt, D.P., 1996. Fundamentals of heat and mass transfer.

- Islam, M.S., Pickering, K.L., Foreman, N.J., 2011. Influence of alkali fiber treatment and fiber processing on the mechanical properties of hemp/epoxy composites. *J. Appl. Polym. Sci.* 119, 3696–3707.
- Islam, M.S., Pickering, K.L., Foreman, N.J., 2010. Influence of alkali treatment on the interfacial and physico-mechanical properties of industrial hemp fibre reinforced polylactic acid composites. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 41, 596–603.
- Kanit, T., Forest, S., Galliet, I., Mounoury, V., Jeulin, D., 2003. Determination of the size of the representative volume element for random composites: statistical and numerical approach. *Int. J. Solids Struct.* 40, 3647–3679.
- Kanit, T., N’Guyen, F., Forest, S., Jeulin, D., Reed, M., Singleton, S., 2006. Apparent and effective physical properties of heterogeneous materials: Representativity of samples of two materials from food industry. *Comput. Methods Appl. Mech. Eng.* 195, 3960–3982.
- Karam, G.N., 1991. Effect of fibre volume on tensile properties of real unidirectional fibre-reinforced composites. *Composites* 22, 84–88.
- Kari, S., Berger, H., Gabbert, U., 2007. Numerical evaluation of effective material properties of randomly distributed short cylindrical fibre composites. *Comput. Mater. Sci.* 39, 198–204.
- Keller, A., 2003. Compounding and mechanical properties of biodegradable hemp fibre composites. *Compos. Sci. Technol.* 63, 1307–1316.
- Khayat, R.E., Derdorri, A., Garcia-Réjon, A., 1992. Inflation of an elastic cylindrical membrane: Non-linear deformation and instability. *Int. J. Solids Struct.* 29, 69–87.
- Khayat, R.E., Derdouri, A., 1994. Inflation of hyperelastic cylindrical membranes as applied to blow moulding. Part I. Axisymmetric case. *Int. J. Numer. Methods Eng.* 37, 3773–3791.
- Kim, J.-K., Mai, Y.-W., 2006. Interfaces in Composites, in: Cahn, R.W., Haasen, P., Kramer, E.J. (Eds.), *Materials Science and Technology*. Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim, Germany.
- Kim, S.W., Lee, S.H., Kang, J.S., Kang, K.H., 2006. Thermal Conductivity of Thermoplastics Reinforced with Natural Fibers. *Int. J. Thermophys.* 27, 1873–1881.
- Kochhar, G., Manohar, K., 1997. Use of Coconut Fiber as a Low-Cost Thermal Insulator, in: Graves, R., Zarr, R. (Eds.), *Insulation Materials: Testing and*

- Applications, 3rd Volume. ASTM International, 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959, pp. 283-283–9.
- Kodah, Z.H., Jarrah, M.A., Shanshal, N.S., 1999. Thermal characterization of foam–cane (Quseab) as an insulant material. *Energy Convers. Manag.* 40, 349–367.
- Korjenic, A., Petránek, V., Zach, J., Hroudová, J., 2011. Development and performance evaluation of natural thermal-insulation materials composed of renewable resources. *Energy Build.* 43, 2518–2523.
- Koronis, G., Silva, A., Fontul, M., 2013. Green composites: A review of adequate materials for automotive applications. *Compos. Part B Eng.* 44, 120–127.
- Kymäläinen, H.-R., Sjöberg, A.-M., 2008. Flax and hemp fibres as raw materials for thermal insulations. *Build. Environ.* 43, 1261–1269.
- La Mantia, F., Morreale, M., 2011. Green composites: A brief review. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 42, 579–588.
- Lapidus, L., Pinder, G.F., 1982. *Numerical Solution of Partial Differential Equations in Science and Engineering.* John Wiley & Sons.
- Laroche, D., Erchiqui, F., 1999. Experimental and Theoretical Study of the Thermoformability of Industrial Polymers. *J. Plast. Film Sheeting* 15, 287–296.
- Laroche, D., Erchiqui, F., 1998. *Simulation of materials processing: Theory, methods and applications.* Rotterdam Balkema ISBN 90, 970.
- Larson, R.G., 1988. *Constitutive equations for polymer melts and solutions,* Butterworths series in chemical engineering. Butterworths, Boston.
- Le, A.T., Gacoin, A., Li, A., Mai, T.H., Rebay, M., Delmas, Y., 2014. Experimental investigation on the mechanical performance of starch–hemp composite materials. *Constr. Build. Mater.* 61, 106–113.
- Leclerc, W., Karamian-Surville, P., 2013. Effects of fibre dispersion on the effective elastic properties of 2D overlapping random fibre composites. *Comput. Mater. Sci.* 79, 674–683.
- Lee, S.-H., Wang, S., Pharr, G.M., Xu, H., 2007. Evaluation of interphase properties in a cellulose fiber-reinforced polypropylene composite by nanoindentation and finite element analysis. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 38, 1517–1524.
- Li, H., Sain, D.M.M., 2003. High Stiffness Natural Fiber-Reinforced Hybrid Polypropylene Composites. *Polym.-Plast. Technol. Eng.* 42, 853–862.

- Li, J., Östling, M., 2013. Percolation thresholds of two-dimensional continuum systems of rectangles. *Phys. Rev. E* 88.
- Lienhard IV, J.H., Lienhard V, J.H., 2011. *A heat transfer textbook*, 4th ed. ed. Dover Publications, Mineola, N.Y.
- Liu, K., Takagi, H., Osugi, R., Yang, Z., 2012. Effect of lumen size on the effective transverse thermal conductivity of unidirectional natural fiber composites. *Compos. Sci. Technol.* 72, 633–639.
- Lodge, A., 1964. *Elastic liquids*. Lond. N. Y. 118–120.
- Lopes, C.M.A., Felisberti, M.I., 2004. Thermal conductivity of PET/(LDPE/Al) composites determined by MDSC. *Polym. Test.* 23, 637–643.
- Lu, N., Oza, S., 2013a. A comparative study of the mechanical properties of hemp fiber with virgin and recycled high density polyethylene matrix. *Compos. Part B Eng.* 45, 1651–1656.
- Lu, N., Oza, S., 2013b. Thermal stability and thermo-mechanical properties of hemp-high density polyethylene composites: Effect of two different chemical modifications. *Compos. Part B Eng.* 44, 484–490.
- Lu, Z., Yuan, Z., Liu, Q., 2014. 3D numerical simulation for the elastic properties of random fiber composites with a wide range of fiber aspect ratios. *Comput. Mater. Sci.* 90, 123–129.
- Macosko, C.W., 1994. *Rheology: principles, measurements, and applications*. Wiley-vch.
- Madsen, B., Hoffmeyer, P., Lillholt, H., 2007. Hemp yarn reinforced composites – II. Tensile properties. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 38, 2204–2215.
- Madsen, B., Lillholt, H., 2003. Physical and mechanical properties of unidirectional plant fibre composites—an evaluation of the influence of porosity. *Compos. Sci. Technol.* 63, 1265–1272.
- Madsen, B., Thygesen, A., Lillholt, H., 2007. Plant fibre composites – porosity and volumetric interaction. *Compos. Sci. Technol.* 67, 1584–1600.
- Maiti, S.N., Singh, K., 1986. Influence of wood flour on the mechanical properties of polyethylene. *J. Appl. Polym. Sci.* 32, 4285–4289.
- Mangal, R., Saxena, N.S., Sreekala, M.S., Thomas, S., Singh, K., 2003. Thermal properties of pineapple leaf fiber reinforced composites. *Mater. Sci. Eng. A* 339, 281–285.

- Marquardt, D., 1963. An Algorithm for Least-Squares Estimation of Nonlinear Parameters. *J. Soc. Ind. Appl. Math.* 11, 431–441.
- Matheron, G., 1975. Random sets and integral geometry, Wiley series in probability and mathematical statistics: Probability and mathematical statistics. Wiley.
- Maxwell, J.C., 1873. A Treatise on Electricity and Magnetism, i and ii. Oxford University Press.
- Meissner, J., Raible, T., Stephenson, S.E., 1981. Rotary Clamp in Uniaxial and Biaxial Extensional Rheometry of Polymer Melts. *J. Rheol.* 25, 1–28.
- Michaels, A.S., Vieth, W.R., Barrie, J.A., 1963. Solution of Gases in Polyethylene Terephthalate. *J. Appl. Phys.* 34, 1–12.
- Michel, J.C., Moulinec, H., Suquet, P., 1999. Effective properties of composite materials with periodic microstructure: a computational approach. *Comput. Methods Appl. Mech. Eng.* 172, 109–143.
- Migneault, S., Koubaa, A., Erchiqui, F., Chaala, A., Englund, K., Krause, C., Wolcott, M., 2008. Effect of fiber length on processing and properties of extruded wood-fiber/HDPE composites. *J. Appl. Polym. Sci.* 110, 1085–1092.
- Mohanty, A., Misra, M., Hinrichsen, G., 2000. Biofibres, biodegradable polymers and biocomposites: an overview. *Macromol. Mater. Eng.* 276, 1–24.
- Mooney, M., 1940. A Theory of Large Elastic Deformation. *J. Appl. Phys.* 11, 582–592.
- Moore, W.J., 1983. Basic physical chemistry. Prentice Hall.
- Mori, T., Tanaka, K., 1973. Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions. *Acta Metall.* 21, 571–574.
- Moussaddy, H., Therriault, D., Lévesque, M., 2013. Assessment of existing and introduction of a new and robust efficient definition of the representative volume element. *Int. J. Solids Struct.* 50, 3817–3828.
- Mukherjee, P.S., Satyanarayana, K.G., 1986. Structure and properties of some vegetable fibres. *J. Mater. Sci.* 21, 51–56.
- Murphy, D., Behring, H., Wieland, H., 1997. The use of flax and hemp materials for insulating, in: *Proceedings of Flax and Other Bast Plants Symposium*, Poznan, Poland. pp. 79–84.
- Mwaikambo, L., 2006. Review of the history, properties and application of plant fibres. *Afr. J. Sci. Technol.* 7, 121.

- Myers, G.E., Chahyadi, I.S., Coberly, C.A., Ermer, D.S., 1991. Wood Flour/Polypropylene Composites: Influence of Maleated Polypropylene and Process and Composition Variables on Mechanical Properties. *Int. J. Polym. Mater. Polym. Biomater.* 15, 21–44.
- Nair, S.S., Wang, S., Hurley, D.C., 2010. Nanoscale characterization of natural fibers and their composites using contact-resonance force microscopy. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 41, 624–631.
- Nayak, R., Tarkes, D.P., Satapathy, A., 2010. A computational and experimental investigation on thermal conductivity of particle reinforced epoxy composites. *Comput. Mater. Sci.* 48, 576–581.
- Nguyen, V.-D., Béchet, E., Geuzaine, C., Noels, L., 2012. Imposing periodic boundary condition on arbitrary meshes by polynomial interpolation. *Comput. Mater. Sci.* 55, 390–406.
- Nied, H.F., Taylor, C.A., Delorenzi, H.G., 1990. Three-dimensional finite element simulation of thermoforming. *Polym. Eng. Sci.* 30, 1314–1322.
- Niemz, P., Sonderegger, W., Hering, S., 2010. Thermal conductivity of Norway spruce and European beech in the anatomical directions. *Ann. Wars. Univ. Life Sci. For. Wood Technol.* 72, 66–72.
- Nishioka, A., Takahashi, T., Masubuchi, Y., Takimoto, J., Koyama, K., 2000. Description of uniaxial, biaxial, and planar elongational viscosities of polystyrene melt by the K-BKZ model. *J. Non-Newton. Fluid Mech.* 89, 287–301.
- Ochi, S., 2008. Mechanical properties of kenaf fibers and kenaf/PLA composites. *Mech. Mater.* 40, 446–452.
- Ogden, R.W., 1972. Large Deformation Isotropic Elasticity - On the Correlation of Theory and Experiment for Incompressible Rubberlike Solids. *Proc. R. Soc. Math. Phys. Eng. Sci.* 326, 565–584.
- Oksman, K., 2001. High Quality Flax Fibre Composites Manufactured by the Resin Transfer Moulding Process. *J. Reinf. Plast. Compos.* 20, 621–627.
- Oksman, K., 2000. Mechanical Properties of Natural Fibre Mat Reinforced Thermoplastic. *Appl. Compos. Mater.* 7, 403–414.
- Oksman, K., Wallström, L., Berglund, L., others, 2002. Morphology and mechanical properties of unidirectional sisal-epoxy composites. *J. Appl. Polym. Sci.* 84, 2358–2365.

- Oldroyd, J.G., 1958. Non-Newtonian Effects in Steady Motion of Some Idealized Elastico-Viscous Liquids. *Proc. R. Soc. Math. Phys. Eng. Sci.* 245, 278–297.
- Oromiehie, A., Meldrum, I.G., 1998. Characterization of polyethylene terephthalate and functionalized polypropylene blends by different methods.
- Ostoja-Starzewski, M., 1998. Random field models of heterogeneous materials. *Int. J. Solids Struct.* 35, 2429–2455.
- Oza, S., Wang, R., Lu, N., 2011. Thermal and mechanical properties of recycled high density polyethylene/hemp fiber composites. *Int. J. Appl.* 1.
- Papanastasiou, A.C., Scriven, L.E., Macosko, C.W., 1983. An Integral Constitutive Equation for Mixed Flows: Viscoelastic Characterization. *J. Rheol.* 1978–Present 27, 387–410.
- Patankar, S.N., Kranov, Y.A., 2010. Hollow glass microsphere HDPE composites for low energy sustainability. *Mater. Sci. Eng. A* 527, 1361–1366.
- Peltola, H., Madsen, B., Joffe, R., Nättinen, K., 2011. Experimental Study of Fiber Length and Orientation in Injection Molded Natural Fiber/Starch Acetate Composites. *Adv. Mater. Sci. Eng.* 2011, 1–7.
- Peretto, P., 1984. Collective properties of neural networks: A statistical physics approach. *Biol. Cybern.* 50, 51–62.
- Phillips, S., Baets, J., Lessard, L., Hubert, P., Verpoest, I., 2013. Characterization of flax/epoxy prepregs before and after cure. *J. Reinf. Plast. Compos.* 32, 777–785.
- Pickering, K.L., Efendy, M.G.A., Le, T.M., 2016. A review of recent developments in natural fibre composites and their mechanical performance. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 83, 98–112.
- Pickering, K.L., Sawpan, M.A., Jayaraman, J., Fernyhough, A., 2011. Influence of loading rate, alkali fibre treatment and crystallinity on fracture toughness of random short hemp fibre reinforced polylactide bio-composites. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 42, 1148–1156.
- Piggott, M.R., 1989. Tailored Interphases in Fibre Reinforced Polymers. *MRS Proc.* 170.
- Placet, V., 2009. Characterization of the thermo-mechanical behaviour of Hemp fibres intended for the manufacturing of high performance composites. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 40, 1111–1118.

- Placet, V., Cisse, O., Boubakar, M.L., 2012a. Influence of environmental relative humidity on the tensile and rotational behaviour of hemp fibres. *J. Mater. Sci.* 47, 3435–3446.
- Placet, V., Cissé, O., Lamine Boubakar, M., 2014. Nonlinear tensile behaviour of elementary hemp fibres. Part I: Investigation of the possible origins using repeated progressive loading with in situ microscopic observations. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 56, 319–327.
- Placet, V., Trivaudey, F., Cisse, O., Gucheret-Retel, V., Boubakar, M.L., 2012b. Diameter dependence of the apparent tensile modulus of hemp fibres: A morphological, structural or ultrastructural effect? *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 43, 275–287.
- Prisco, U., 2014. Thermal conductivity of flat-pressed wood plastic composites at different temperatures and filler content. *Sci. Eng. Compos. Mater.* 21.
- Qian, C., Harper, L.T., Turner, T.A., Li, S., Warrior, N.A., 2012. Establishing size effects in discontinuous fibre composites using 2D finite element analysis. *Comput. Mater. Sci.* 64, 106–111.
- Raj, R.G., Kokta, B.V., Daneault, C., 1990. Wood flour as a low-cost reinforcing filler for polyethylene: studies on mechanical properties. *J. Mater. Sci.* 25, 1851–1855.
- Rana, A.K., Mandal, A., Mitra, B.C., Jacobson, R., Rowell, R., Banerjee, A.N., 1998. Short jute fiber-reinforced polypropylene composites: Effect of compatibilizer. *J. Appl. Polym. Sci.* 69, 329–338.
- Record, S.J., 1914. *The mechanical properties of wood.* N. Y.
- Reuss, A., 1929. Berechnung der Fließgrenze von Mischkristallen auf Grund der Plastizitätsbedingung für Einkristalle. *ZAMM - Z. Für Angew. Math. Mech.* 9, 49–58.
- Rodríguez, E., Petrucci, R., Puglia, D., Kenny, J.M., Vázquez, A., 2005. Characterization of Composites Based on Natural and Glass Fibers Obtained by Vacuum Infusion. *J. Compos. Mater.* 39, 265–282.
- Rong, M.Z., Zhang, M.Q., Liu, Y., Yang, G.C., Zeng, H.M., 2001. The effect of fiber treatment on the mechanical properties of unidirectional sisal-reinforced epoxy composites. *Compos. Sci. Technol.* 61, 1437–1447.
- Roussière, F., Baley, C., Godard, G., Burr, D., 2012. Compressive and Tensile Behaviours of PLLA Matrix Composites Reinforced with Randomly Dispersed Flax Fibres. *Appl. Compos. Mater.* 19, 171–188.

- Sab, K., 1992. On the homogenization and the simulation of random materials. *Eur. J. Mech. Solids* 11, 585–607.
- Sain, M., Suhara, P., Law, S., Bouilloux, A., 2005. Interface Modification and Mechanical Properties of Natural Fiber-Polyolefin Composite Products. *J. Reinf. Plast. Compos.* 24, 121–130.
- Siau, J.F., 1995. Wood: Influence of moisture on physical properties. Dept. of Wood Science and Forest Products, Virginia Polytechnic Institute and State University.
- Silva, S.P., Sabino, M.A., Fernandes, E.M., Correlo, V.M., Boesel, L.F., Reis, R.L., 2008. Cork: properties, capabilities and applications. *Int. Mater. Rev.* 53, 256–256.
- Sonderregger, W., Hering, S., Niemz, P., 2011. Thermal behaviour of Norway spruce and European beech in and between the principal anatomical directions. *Holzforschung* 65.
- Souli, M., Erchiqui, F., 2011. Experimental and numerical investigation of instructions for hyperelastic membrane inflation using fluid structure coupling. *Comput. Model. Eng. Sci.* 77, 183–199.
- Stark, N.M., Rowlands, R.E., 2003. Effects of wood fiber characteristics on mechanical properties of wood/polypropylene composites.
- Stewart, R., 2010. Automotive composites offer lighter solutions. *Reinf. Plast.* 54, 22–28.
- Suardana, N.P.G., Piao, Y., Lim, J.K., 2011. Mechanical properties of hemp fibers and hemp/pp composites: effects of chemical surface treatment. *Mater. Phys. Mech.* 11, 1–8.
- Talla, A.F., Mfoumou, E., Jeson, S., Page, J., Erchiqui, F., 2013. Mechanical and structural properties of a novel melt processed PET-hemp composite: Influence of additives and fibers concentration. *J. Reinf. Plast. Compos.* 32, 1526–1533.
- Talla, A.S.F., Erchiqui, F., Kaddami, H., Kocaefe, D., 2015. Investigation of the thermostability of poly(ethylene terephthalate)-hemp fiber composites: Extending natural fiber reinforcements to high-melting thermoplastics. *J. Appl. Polym. Sci.* 132, 42500.
- Talla, A.S.F., Talla, A.S.F., Erchiqui, F., Erchiqui, F., Pagé, J.S.Y., 2017. Poly (ethylene-terephthalate) Reinforced with Hemp Fibers: Elaboration, Characterization, and Potential Applications, in: Thakur, V.K., Thakur,

- M.K., Kessler, M.R. (Eds.), *Handbook of Composites from Renewable Materials*. John Wiley & Sons, Inc., Hoboken, NJ, USA, pp. 43–68.
- Tanner, R.I., 1985. *Engineering Rheology*, volume 14 of Oxford Engineering Science Series. Clarendon Press, Oxford.
- Tazi, M., Erchiqui, F., Godard, F., Kaddami, H., Ajji, A., 2014. Characterization of rheological and thermophysical properties of HDPE–wood composite. *J. Appl. Polym. Sci.* 131, 40495.
- Terada, K., Hori, M., Kyoya, T., Kikuchi, N., 2000. Simulation of the multi-scale convergence in computational homogenization approaches. *Int. J. Solids Struct.* 37, 2285–2311.
- Thermoformage, 2015. . Wikipédia.
- Thien, N.P., Tanner, R.I., 1977. A new constitutive equation derived from network theory. *J. Non-Newton. Fluid Mech.* 2, 353–365.
- Thygesen, A., Thomsen, A.B., Daniel, G., Lilholt, H., 2007. Comparison of composites made from fungal defibrated hemp with composites of traditional hemp yarn. *Ind. Crops Prod.* 25, 147–159.
- Tian, W., Qi, L., Zhou, J., Guan, J., 2014. Effects of the fiber orientation and fiber aspect ratio on the tensile strength of Csf/Mg composites. *Comput. Mater. Sci.* 89, 6–11.
- Treloar, L.R.G., 1944. Stress-strain data for vulcanised rubber under various types of deformation. *Trans. Faraday Soc.* 40, 59.
- Trevelyan, B.J., Mason, S.G., 1951. Particle motions in sheared suspensions. I. Rotations. *J. Colloid Sci.* 6, 354–367.
- Van de Weyenberg, I., Ivens, J., De Coster, A., Kino, B., Baetens, E., Verpoest, I., 2003. Influence of processing and chemical treatment of flax fibres on their composites. *Compos. Sci. Technol., Eco-Composites* 63, 1241–1246.
- Varma, D.S., Varma, M., Varma, I.K., 1986. Thermal behaviour of coir fibres. *Thermochim. Acta* 108, 199–210.
- Verron, E., Khayat, R.E., Derdouri, A., Peseux, B., 1999. Dynamic inflation of hyperelastic spherical membranes. *J. Rheol.* 43, 1083–1097.
- Verron, E., Marckmann, G., PESEUX, B., 2001. Dynamic inflation of non-linear elastic and viscoelastic rubberlike membranes. *Int. J. Numer. Methods Eng.* 50, 1233–1251.

- Vincent, M., Germain, Y., Agassant, J., 1988. Numerical and experimental study of the fiber motion in reinforced thermoplastic flows, in: *Progress and Trends in Rheology II*. Springer, pp. 144–146.
- Voigt, W., 1889. Ueber die Beziehung zwischen den beiden Elasticitätsconstanten isotroper Körper. *Ann. Phys.* 274, 573–587.
- Wambua, P., Ivens, J., Verpoest, I., 2003. Natural fibres: can they replace glass in fibre reinforced plastics? *Compos. Sci. Technol.* 63, 1259–1264.
- White, J.L., Metzner, A.B., 1963. Development of constitutive equations for polymeric melts and solutions. *J. Appl. Polym. Sci.* 7, 1867–1889.
- Wieland, H., Murphy, D.P.L., Behring, H., Jäger, C., Hinrichs, P., Bockisch, F.-J., 2000. Perspektiven für Dämmstoffe aus heimischen nachwachsenden Rohstoffen. *Landtech. – Agric. Eng.* 55, 22–23.
- Wiener, O.H., 1912. Die Theorie des Mischkörpers für das Feld der stationären Strömung. 1. Abhandlung: Die Mittelwertsätze für Kraft, Polarisierung und Energie. BG Teubner.
- Williams, J.G., Donnellan, M.E., James, M.R., Morris, W.L., 1990. Properties of the interphase in organic matrix composites. *Mater. Sci. Eng. A* 126, 305–312.
- Zafeiropoulos, N.E., Baillie, C.A., Matthews, F.L., 2001. A study of transcrystallinity and its effect on the interface in flax fibre reinforced composite materials. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 32, 525–543.
- Zah, R., Hischier, R., Leão, A.L., Braun, I., 2007. Curauá fibers in the automobile industry – a sustainability assessment. *J. Clean. Prod., The Automobile Industry & Sustainability* 15, 1032–1040.
- Zaini, M.J., Fuad, M.Y.A., Ismail, Z., Mansor, M.S., Mustafah, J., 1996. The effect of filler content and size on the mechanical properties of polypropylene/oil palm wood flour composites. *Polym. Int.* 40, 51–55.
- Zampaloni, M., Pourboghra, F., Yankovich, S.A., Rodgers, B.N., Moore, J., Drzal, L.T., Mohanty, A.K., Misra, M., 2007. Kenaf natural fiber reinforced polypropylene composites: A discussion on manufacturing problems and solutions. *Compos. Part Appl. Sci. Manuf.* 38, 1569–1580.
- Zener, C., 1948. *Elasticity and anelasticity of metals*. University of Chicago press.
- Zienkiewicz, O.C., Taylor, R.L., 2005. *The finite element method for solid and structural mechanics*, 6th ed. ed. Elsevier Butterworth-Heinemann, Amsterdam ; Boston.

