Caractérisation et modélisation des propriétés mécaniques des biocomposites à fibres courtes aléatoires

par

Tahar DHAOUADI

MÉMOIRE PRÉSENTÉ À
L'ÉCOLE DE TECHNOLOGIE SUPÉRIEURE
COMME EXIGENCE PARTIELLE À L'OBTENTION DE
LA MAITRISE AVEC MÉMOIRE EN GÉNIE, CONCENTRATION
AÉROSPATIAL
M. Sc. A.

MONTRÉAL, LE 2 OCTOBRE 2018

ÉCOLE DE TECHNOLOGIE SUPÉRIEURE
UNIVERSITÉ DU QUÉBEC

Tahar DHAOUADI, 2018

Cette licence Creative Commons signifie qu'il est permis de diffuser, d'imprimer ou de sauvegarder sur un autre support une partie ou la totalité de cette œuvre à condition de mentionner l'auteur, que ces utilisations soient faites à des fins non commerciales et que le contenu de l'œuvre n'ait pas été modifié.

PRÉSENTATION DU JURY

CE MÉMOIRE A ÉTÉ ÉVALUÉ

PAR UN JURY COMPOSÉ DE :

M. Anh Dung Ngô, directeur de mémoire
Département de génie mécanique à l'École de technologie supérieure

Mme Manjusri Misra, codirectrice de mémoire
Département de l'agriculture végétale à l'université de Guelph

M. Éric David, président du jury
Département de génie mécanique à l'École de technologie supérieure

M. Hakim Bouzid, membre du jury
Département de génie mécanique à l'École de technologie supérieure

IL A FAIT L'OBJET D'UNE SOUTENANCE DEVANT JURY ET PUBLIC

LE 24 SEPTEMBRE 2018

À L'ÉCOLE DE TECHNOLOGIE SUPÉRIEURE

REMERCIEMENTS

Tout d'abord je tiens à remercier mon directeur de recherche, le professeur Anh Dung NGÔ pour la qualité de son encadrement, son encouragement, sa disponibilité et surtout ses précieux conseils.

Je remercie nos partenaires académiques, les professeurs Amar MOHANTY, Manjusri MISRA et Arturo RODRIGUEZ de l'université de Guelph pour leur collaboration et leur support.

J'adresse ensuite mes remerciements à M. Serge PLAMONDON, technicien à l'École de technologie supérieure, et M. Olivier BOUTHOT, technicien à l'École de technologie supérieure, pour le temps qu'ils ont consacré pour me former respectivement sur la machine MTS alliance et le MEB.

Je tiens à remercier la Mission Universitaire de Tunisie en Amérique du Nord (MUTAN) pour son soutien financier.

J'adresse un grand merci à mes parents Mohamed et Semia, mon frère Hamdi, ma sœur Zohra, ma belle-sœur Afef et ma fiancée Amal pour leur soutien moral et leurs encouragements pour l'accomplissement de ce projet.

Enfin, j'adresse mes plus sincères remerciements à mes amis et tous mes proches, particulièrement Anis Ben Dhiab, Aymen Maatki, Hassen Ben Yakhlef et Mohamed Ghazi Amor de m'avoir soutenu et supporté durant ma maitrise.

CARACTÉRISATION ET MODÉLISATION DES PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES DES BIOCOMPOSITES À FIBRES COURTES ALÉATOIRES

Tahar DHAOUADI

RÉSUMÉ

Cette étude consiste à caractériser les propriétés mécaniques en traction, flexion et résistance au choc de trois matériaux biocomposites afin d'évaluer leur aptitude à remplacer des matériaux composites dans des applications automobiles. Les matériaux à caractériser sont constitués de la même matrice (polypropylène (PP) / élastomère polyoléfine (POE), PP/POE [95wt% : 5wt%]) renforcée par trois renforts différents. Les formulations (F1), (F2) et (F3) sont renforcées respectivement par 30wt% de biochar, 30wt% de miscanthus et le troisième renfort est un mélange entre 15wt% de biochar et 15wt% de miscanthus. Pour améliorer l'adhésion entre les renforts et la matrice, 3wt% d'anhydride polypropylène modifié (MAPP) ont été ajoutés aux composites.
Les résultats expérimentaux ont montré que les trois renforts améliorent le module d'Young de la matrice. La formulation (F2) a présenté les meilleures propriétés en traction et en flexion par rapport aux deux autres matériaux. En effet les fibres de miscanthus ont augmenté le module d'Young de la matrice de 107% et la résistance en traction de 10,51%. Ces propriétés en traction sont meilleures que celles du matériau commercialisé RTP 132 UV. Le bicomposite hybride (F3) a aussi augmenté le module d'Young de la matrice de 70% et a maintenu presque la même résistance en traction du PP/POE. Le biocomposite renforcé par le biochar (F1) a amélioré la rigidité de la matrice de 34% mais il a diminué sa résistance de 8%. Par contre, ces renforts ont diminué la résistance au choc de la matrice. En comparant les résultats expérimentaux de l'essai Izod sans entaille des trois biocomposites, la formulation renforcée par le biochar (F1) a présenté la meilleure résilience, mais elle reste toujours loin de celle du matériau commercialisé.

L'homogénéisation numérique par la méthode des éléments finis a permis de prédire les modules d'Young de ces biocomposites aléatoirement renforcés. Le logiciel commercial Digimat® a été utilisé pour générer le volume élémentaire représentatif 3D (VER) et pour calculer les modules d'Young du composite. La taille critique du VER est environ deux fois la longueur de la fibre en utilisant les conditions aux limites périodiques. Les résultats numériques ont montré une bonne concordance avec les résultats expérimentaux des biocomposites de cette étude.

Mots-clés : miscanthus, biochar, homogénéisation numérique, VER.

CHARACTERIZATION AND MODELING OF THE MECHANICAL PROPERTIES OF RANDOM SHORT FIBER BIOCOMPOSITES

Tahar DHAOUADI

ABSTRACT

This study consists in characterizing the mechanical properties in tensile, bending and impact resistance of three biocomposite materials. The materials to be characterized are composed of the same matrix (polypropylene (PP) / polyolefin elastomer (POE), PP / POE [95 wt%: 5 wt%]) reinforced by three different reinforcements. Formulations (F1), (F2) and (F3) are respectively reinforced with 30wt% biochar, 30wt% miscanthus and the third reinforcement is a mixture between 15wt% biochar and 15wt% miscanthus. To improve the adhesion between the reinforcements and the matrix, 3wt% of modified polypropylene anhydride (MAPP) was added to the composites.

Experimental results showed that the three reinforcements improve the Young's modulus of the matrix. Formulation (F2) exhibited the best tensile and flexural properties over the other two materials. In fact, miscanthus fibers increased the Young's modulus of the matrix by 107% and the tensile strength by 10,51%. These tensile properties are better than those of the commercial material RTP 132 UV. The hybrid bicomposite (F3) also increased the Young's modulus of the matrix by 70% and maintained almost the same tensile strength of the PP / POE. Biocomposite reinforced with biochar (F1) improved matrix stiffness by 34% but decreased matrix strength by 8%. By contrast, these reinforcements have decreased the impact resistance of the matrix. Comparing the experimental results of the unnotched Izod impact test of the three biocomposites, the formulation reinforced by biochar (F1) showed the best resilience but still remains far from the resilience of the commercial material.

Numerical homogenization using the finite element method is used to predict the Young's modulus of these randomly reinforced biocomposites. Digimat® commercial software was used to generate the 3D representative volume element (VER) and evaluate the Young's modulus of the composite. The critical size of the VER is about twice the length of the fiber using the periodic boundary conditions. In this study, the numerical results showed a good agreement with the experimental results of the biocomposites.

Keywords: miscanthus, biochar, numerical homogenization, RVE

TABLE DES MATIÈRES

Page

INTRODUCTION 1

CHAPITRE 1 REVUE BIBLIOGRAPHIQUE 5
1.1 Les matériaux biocomposites.....5
1.1.1 Les fibres végétales..... 6
1.1.1.1 Composition chimique des fibres végétales..... 8
1.1.1.2 Les graminées vivaces 10
1.1.1.3 Les biochars 13
1.1.2 Les charges..... 15
1.1.3 Phénomène d'encapsulation 15
1.2 Prédiction des propriétés effectives des matériaux composites à fibres aléatoires.....16
1.2.1 Les modèles semi-empiriques..... 17
1.2.2 L'homogénéisation 19
1.2.3 Le Volume Élémentaire Représentatif VER..... 20
1.2.4 Détermination de la taille d'un VER 21
1.2.5 Les conditions aux limites 25
1.3 Problématique et objectifs de l'étude 28

CHAPITRE 2 MÉTHODOLOGIE EXPÉRIMENTALE.....31
2.1 Les matériaux.....31
2.1.1 Calcul de densité des échantillons 33
2.1.2 Calcul des teneurs en volumes des renforts 34
2.2 Essai de Traction.....35
2.2.1 Machine d'essai 35
2.2.2 Paramètres d'essais..... 36
2.2.3 Exploitation des résultats 37
2.3 Essai de Flexion à trois points 38
2.3.1 Machine d'essai 38
2.3.2 Paramètres d'essai 39
2.3.3 Exploitation des résultats 40
2.4 Essai de Résilience.....41
2.4.1 Machine d'essai 41
2.4.2 Paramètres d'essai 42
2.4.3 Exploitation des résultats 44
2.4.4 Essais préliminaires et résultats 45
2.5 Calcul des propriétés mécanique en traction du mélange PP/POE.....46
2.6 Observation des surfaces de rupture au MEB.....47

CHAPITRE 3 RÉSULTAT ET DISCUSSION 49
3.1 Introduction.....49
3.2 Essai de Traction.....49

3.2.1 La première formulation 52
3.2.2 La deuxième formulation 57
3.2.3 La troisième formulation 59
3.3 Essai de Flexion 61
3.4 Essai d'impact Izod 65
3.5 Comparaison avec le Polypropylène renforcé par le talc 69
3.6 Récapitulation et recommandation 72

CHAPITRE 4 MODÉLISATION DES MODULES D'YOUNG DES MATÉRIAUX COMPOSITES À DISTRIBUTION ALÉATOIRE 75
4.1 Homogénéisation numérique par la méthode des éléments finis 75
4.1.1 Génération des volumes élémentaires 76
4.1.2 Les paramètres d'entrées 81
4.1.2.1 Les propriétés mécaniques des fibres et de la matrice 81
4.1.2.2 Détermination du coefficient de poisson des fibres de switchgrass et de la matrice 82
4.1.3 Le calcul des propriétés apparentes 83
4.1.4 Les conditions aux limites 86
4.1.5 Le maillage 89
4.1.6 Détermination de la taille critique du VER 90
4.1.7 Critère de confiance 91
4.1.8 Critère du départ de l'isotropie 91
4.1.9 La taille du VER 92
4.2 Résultats de la modélisation du biocomposite 30wt%SG+PHBV/PBAT 93
4.2.1 Influence de la distribution des fibres 94
4.2.2 L'influence du rapport d'aspect 96
4.2.3 Étude de sensibilité des paramètres d'entrées 98
4.3 Modélisation des modules d'Young des nouveaux biocomposites 101
4.3.1 La formulation 1 103
4.3.2 La formulation 2 106
4.3.3 La formulation 3 109

CONCLUSION 111

RECOMMANDATIONS 115

ANNEXE I La documentation technique du polypropylène 117

ANNEXE II La documentation technique de l'agent de compatibilité 119

ANNEXE III Documentation technique de l'élastomère (Engage 7487) 121

ANNEXE IV MESURE DES ÉPROUVETTES 123

ANNEXE V Documentation technique du matériau commercialisé RTP 132 UV 129

ANNEXE VI Création d'un volume élémentaire en utilisant Digimat.....131

LISTE DE RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....133

LISTE DES TABLEAUX

Page

Tableau 1.1 La production de biocomposite dans l'Union européenne en 2012 (tonnes) 6

Tableau 1.2 Composition chimique de quelques fibres lignocellulosic 10

Tableau 2.1 Composition des trois formulations 31

Tableau 2.2 Densité des composants des trois biocomposites....34

Tableau 2.3 Les densités des matériaux étudiés 34

Tableau 2.4 Teneur en volume des fibres et des biocharsdans chaque formulation....35

Tableau 2.5 Les dimensions et les tolérances des échantillons 36

Tableau 2.6 Essai de résilience Izod avec entaille....45

Tableau 3.1 Synthèse des résultats de traction 51

Tableau 3.2 Propriétés mécaniques du mélange PP/POE....51

Tableau 3.3 Ampleur théorique de l'encapsulation....54

Tableau 3.4 Résultats de l'essai de flexion à 3 points....62

Tableau 3.5 Synthèse des résultats de l'essai de résilience Izod sans entaille en J/m ...65

Tableau 3.6 Comparaison des propriétés des 3 formulations 72

Tableau 4.1 Les dimensions des fibres de switchgrass....77

Tableau 4.2 Propriétés mécaniques des fibres et de la matrice 81

Tableau 4.3 Coefficient de poissons de PHBV et PBAT 82

Tableau 4.4 Comparaison entre les résultats expérimentaux et numériques pour une distribution en 2D 94

Tableau 4.5 Comparaison entre les résultats expérimentaux et numériques pour une distribution en 3D 96

Tableau 4.6 Longueurs et teneur en masse des fibres....97

Tableau 4.7 Résultats issus du volume avec différents rapports d'aspect.....98

Tableau 4.8 l'effet de la variation des coefficients de poisson de la matrice sur le module d'Young du composite.....99

Tableau 4.9 Effet de la variation du coefficient de poisson de la matrice sur le module d'Young du composite.....100

Tableau 4.10 Effet de la variation du module d'Young des fibres sur le module d'Young du composite.....101

Tableau 4.11 Propriété de la matrice 102

Tableau 4.12 Les propriétés des miscanthus 102

Tableau 4.13 Les propriétés des biochars.....102

Tableau 4.14 Comparaison entre les résultats numériques et expérimentaux de la F1 .105

Tableau 4.15 Les résultats numériques de la F2 avec un maillage tétraédrique.....108

Tableau 4.16 Les résultats numériques de la F3 avec un maillage tétraédrique.....110

LISTE DES FIGURES

Page

Figure 1.1 Les matériaux biocomposites.....5

Figure 1.2 Classification des fibres naturelles.....7

Figure 1.3 Panneau de porte en plastique de chanvre 8

Figure 1.4 Représentation de : a) une fibre; b) d'une fibrille 9

Figure 1.5 Interface fibre-matrice (MEB) : (a) biocomposite avec 30wt% switchgrass; (b) biocomposite avec 30wt% switchgrass + 0,75 phr pMDI.....12

Figure 1.6 Fabrication du biochar 13

Figure 1.7 Encapsulation des particules 16

Figure 1.8 Conditions aux limites de Dirichlet 26

Figure 1.9 Les conditions aux limites Mixtes 27

Figure 1.10 Les conditions aux limites périodiques.....27

Figure 1.11 Module d'incompressibilité d'un composite mosaïque voronoi en fonction de la taille du volume.....28

Figure 2.1 Extrudeuse LEISTRITZ de type MIC27/6L-48D.....32

Figure 2.2 Machine à injection plastique de type Arburg ALLROUNDER 370 S.....33

Figure 2.3 Machine de Traction statique MTS Alliance 35

Figure 2.4 Éprouvette de type IV 36

Figure 2.5 Thermotron 37

Figure 2.6 Machine de flexion 39

Figure 2.7 Dispositif pour essai de flexion trois-points 39

Figure 2.8 Les dimensions de l'éprouvette de l'essai de flexion.....40

Figure 2.9 Testeur d'impact pendulaire 42

Figure 2.10 Les dimensions des échantillons de l'essai de résilience Izod 43

Figure 2.11 TMI coupe échantillon à encoche motorisé 44

Figure 3.1 Courbe contrainte-déformation de la F1 49

Figure 3.2 Courbe contrainte-déformation de la F2 50

Figure 3.3 Courbe contrainte-déformation de la F3 50

Figure 3.4 Les lumens dans la morphologie des biochars-MEB.....54

Figure 3.5 Surface de rupture d'un échantillon de l'essai de traction de la F1, (a): Mauvaise adhésion interfaciale entre le biochar et la matrice. (b): Adhésion interfaciale améliorée grâce au MAPP. 56

Figure 3.6 Surface de rupture d'un échantillon de l'essai de traction de la deuxième formulation.....57

Figure 3.7 Mauvaise adhésion entre les fibres et la matrice 58

Figure 3.8 Des pores au niveau de l'interface.....59

Figure 3.9 Des pores sur la surface de rupture d'un échantillon de l'essai de traction de la F3 60

Figure 3.10 Mauvaise adhésion interfacile.....61

Figure 3.11 Courbe de flexion du mélange PP/POE/MAPP 62

Figure 3.12 Courbe de flexion de la première formulation.....63

Figure 3.13 Courbe de flexion de la deuxième formulation.....63

Figure 3.14 Courbe de flexion de la troisième formulation 64

Figure 3.15 Étude microscopique de la surface de rupture d'un échantillon de PP/POE/MAPP de l'essai d'impact 67

Figure 3.16 Étude microscopique de la surface de rupture d'un échantillon de la F1 de l'essai d'impact.....67

Figure 3.17 Étude microscopique de la surface de rupture d'un échantillon de la F2 de l'essai d'Impact 68

Figure 3.18 Étude microscopique de la surface de rupture d'un échantillon de la F3 de l'essai d'Impact 68

Figure 3.19 Comparaison des propriétés en traction entre les trois formulations et RTP 132 UV 70

Figure 3.20 Comparaison des propriétés en flexion des trois formulations avec le RTP 132 UV 71

Figure 3.21 Résilience des différentes formulations, A: PP/POE/MAPP B: RTP 132 UV, PP+30wt% Talc, C: F1, D: F2, E: F3....71

Figure 3.22 Les trois formulations: F1, F2 et F3....73

Figure 4.1 Homogénéisation numérique par la méthode des éléments finis....75

Figure 4.2 Morphologie des fibres de switchgrass après le procédé de fabrication....77

Figure 4.3 (a) Dispersion 2D, (b) Dispersion 3D....78

Figure 4.4 Paramètres de la géométrie....79

Figure 4.5 Exemple de Géométrie générée par Digimat....80

Figure 4.6 RVE global data....80

Figure 4.7 Informations sur le V.E.R....81

Figure 4.8 Les dimensions du VE....87

Figure 4.9 Évolution des modules d'élasticité E1 et E2 calculés avec trois types de conditions aux limites en fonction de la taille du VE....88

Figure 4.10 Élément tétraédrique à 10 nœuds....89

Figure 4.11 Convergence du maillage....90

Figure 4.12 Erreur relative....92

Figure 4.13 Résultats du critère d'isotropie....93

Figure 4.14 Temps nécessaire pour générer une géométrie à distribution des fibres en 3D....95

Figure 4.15 Géométrie à distribution des fibres en 3D....95

Figure 4.16 Longueurs des fibres de switchgrass avant le procédé de fabrication....97

Figure 4.17 Volume élémentaire avec 3 longueurs des fibres....98

Figure 4.18 Images du biochars prises par le MEB....103

Figure 4.19 Morphologie des biochars 104

Figure 4.20 Volume élémentaire de la Formulation 1 104

Figure 4.21 Maillage: (a) Maillage des fibres, (b) Maillage de la matrice 105

Figure 4.22 Morphologie des fibres de miscanthus 106

Figure 4.23 Volume élémentaire de la Formulation 2 107

Figure 4.24 Les fibres de miscanthus maillées par des éléments tétraédriques 107

Figure 4.25 Les fibres de miscanthus 108

Figure 4.26 Composite hybride F3 109

Figure 4.27 Maillage tétraédrique de la F3 109

LISTE DES ABRÉVIATIONS, SIGLES ET ACRONYMES

ASTM	American Society for Testing and Materials
BDDC	Bioproducts Discovery and Development Centre
EPDM	éthylène-propylène-diène monomère
MAPP	polypropylène anhydride maléique
MAH	Anhydride maléique
MEB	Microscopie Électronique à Balayage
ms	Miscanthus
NFC	Composites à base de fibres naturelles
PBAT	Poly (butylene adipate-co-terephthalate)
PBS	Poly (butylene succinate)
PHBV	Poly (3-hydroxybutyrate-co-3-hydroxyvalerate)
phr	parties pour cent de résine (parts per hundred)
POE	L'élastomère de polyoléfine
pMDI	Polymeric diphenyl methane diisocyanate
PLLA	Poly-(acid-lactic) PLA L9000
PLA	Polylactic acid
PP	Polypropylene
PLA-g-MA	PLA- anhydride maléique greffé
PP-g-MA	PP-anhydride maléique greffé
SG	Switchgrass
VE	Volume Élémentaire
VER	Volume Élémentaire Représentatif

WPC	Composites bois plastique
wt	fraction massique

LISTE DES SYMBOLES ET UNITÉS DE MESURE

SYMBOLES

A (%)	Allongement à la rupture
B	Paramètre de l'interface entre les fibres et la matrice
B	La largeur de l'éprouvette
$\bar{C}$	Tenseur de rigidité arithmétique
$\underline{C}$	Tenseur de rigidité harmonique
C_{ii}	Les composantes de la matrice de rigidité
D	Déplacement vertical du poinçon
$D_Z(V)$	L'écart-type de la propriété élastique à estimer
d	Diamètre des fibres
e	L'épaisseur de l'éprouvette
E	Module d'Young
E_f	Module d'Young des fibres
E_m	Module d'Young de la matrice
E_c	Module d'Young du composite
$E_{mélange}$	Le module d'Young du mélange,
E_e	Le module d'Young de l'élastomère (POE)
E_p	Le module d'Young de la phase résine (PP)
E_{flex}	Module de flexion
E_{11}	Module d'Young longitudinal
E_{22}	Module d'Young transversal
E1	Module d'Young du composite selon l'axe 1
E2	Module d'Young du composite selon l'axe 2

F_m	Force maximale
F1	La première formulation (Matrice +biochar)
F2	La deuxième formulation (Matrice +miscanthus)
F3	La troisième formulation (Matrice +miscanthus+biochar)
$\boldsymbol{K}$	Tenseur de déformation macroscopique
K_e	Le coefficient d'Einstein
L	La distance entre les deux appuis
L	Longueur des fibres
m	Le nombre de mesure effectuée.
N_i	La taille du volume
P	La charge enregistrée
R	Vitesse de déformation en mm/min
S_0	Surface utile initiale
S^E	Le tenseur d'Eshelby.
$(s\%)$	L'écart type relatif
v	Teneur en volume
v_f	Teneur en volume des fibres
v_m	Teneur en volume de la matrice
v_{POE}	Fraction volumique de l'élastomère
V_f	La teneur en volume maximale
ϑ	Coefficient de poisson
ϑ_{PBAT}	Coefficient de poisson du PBAT
ϑ_{PHBV}	Coefficient de poisson du PHBV
$\vartheta_{matrice}$	Coefficient de poisson de la matrice PBAT/PHBV

X	La valeur de la propriété étudiée
$\bar{X}$	La moyenne arithmétique de la propriété étudiée
Z	La valeur moyenne de la propriété élastique à estimer
Z_d	Taux de déformation de la fibre externe
σ	Contrainte
σ(x)	Tenseur de contrainte
σ_m	Résistance à la traction
Σ	Tenseur des contraintes macroscopique
ε_r	Erreur relative
ε_{abs}	Erreur absolue
ε_N	La tolérance donnée
ε	Déformation
ε^*	Déformation libre-contrainte uniforme
ε^c	Le champ de déformation résultant dans l'inclusion
δ_{av}	Erreur de la taille du volume
λ	Paramètre de résistance de l'interface
ρ_c	La densité du composite
ρ_f	La densité de renfort.
ρ_m	La densité de la matrice.
ρ_{PBAT}	La densité de PBAT
$\rho_{matrice}$	La densité de mélange PBAT+PHBV
v_f	La teneur en volume de renfort.
v_m	La teneur en volume de la matrice.
w_f	La teneur en poids de renfort

w_m	La teneur en poids de la matrice
w_{PBAT}	La teneur en poids de PBAT

UNITÉS DE MESURE

mm	Millimètre
µm	micromètre
J/m	Joule par mètre
mm/min	millimètre par minute
g/cm^3	gramme par centimètre cube
wt%	pourcentage massique
MPa	Mégapascal
GPa	Gigapascal

INTRODUCTION

Grâce à leurs bonnes propriétés mécaniques et leur légèreté, les matériaux composites sont considérés comme des matériaux incontournables dans plusieurs domaines tels que l'industrie automobile, aérospatiale, aéronautique, navale et le secteur sportif. Néanmoins, les enjeux environnementaux conduisent à diminuer l'utilisation des matériaux issus des ressources fossiles. De plus le mouvement vers la diminution des gaz à effet de serre et les règlements qui sont imposés afin d'améliorer l'efficacité de l'exploitation de carburants, nécessitent des matériaux plus légers avec une empreinte de carbone plus faible.

Alors, les matériaux composites usuels tendent à être remplacés par des matériaux plus "verts" et plus légers tels que les matériaux biocomposites.

C'est dans cette optique que notre recherche est menée sur l'incorporation du polypropylène (PP) avec des différents renforts végétaux. Ce thermoplastique (PP) mélangé avec le talc est très utilisé dans l'industrie automobile grâce à un bon compromis entre la rigidité et la résistance au choc. Généralement les polypropylènes (PP) sont mélangés avec des élastomères afin d'améliorer la résistance au choc.

L'ajout de ces élastomères entraîne la diminution de la rigidité du polypropylène (PP); ce qui explique l'incorporation de ce thermoplastique par des renforts comme le talc et les fibres de verre. Dans le domaine automobile, les renforts utilisés avec ce thermoplastique sont de ressources minérales ou pétrolières. Plusieurs recherches ont été réalisées afin de trouver des renforts de ressources renouvelables, plus légers et alternatifs aux renforts traditionnels.

Cette recherche se propose de caractériser les propriétés mécaniques en traction, en flexion et de la résistance au choc du polypropylène (PP) mélangé par 5wt% de polyoléfines élastomères (POE) et renforcé par trois types de renforts végétaux à distribution aléatoire:

- La première formulation (F1) est renforcée par 30wt% de biochar issu de la pyrolyse de fibres de miscanthus;
- La deuxième formulation (F2) est renforcée par 30wt% de fibres de Miscanthus (ms);

- La troisième formulation (F3) est renforcée par 15wt% de miscanthus et 15wt% de biochar. Cette technique du biocomposite hybride a été déjà étudiée par (Das, Sarmah, & Bhattacharyya, 2015), en mélangeant le polypropylène avec les fibres de bois et le biochar issu du déchet de bois.

Pour améliorer l'adhésion entre les renforts et la matrice, 3wt% d'anhydride polypropylène modifié (MAPP) a été ajouté aux composites. Ces formulations ont été proposées par le laboratoire BDDC (Bioproducts Discovery and Development Centre) de l'université de Guelph.

Deux objectifs principaux sont avancés dans le cadre de cette étude.
Le premier objectif est de caractériser les propriétés mécaniques à savoir la traction, la flexion et la résistance au choc pour les trois formulations, en vue d'investiguer lequel des trois types de renfort est capable de remplacer le renfort minéral « talc » dans les applications automobiles.
Le deuxième objectif consiste à prédire le module d'Young d'un matériau composite à fibres aléatoires, en utilisant la méthode d'homogénéisation par éléments finis. Ces matériaux sont caractérisés par leur bas prix et leur simplicité de mise en forme, ce qui augmente leur demande dans le marché.
Par conséquent, il est nécessaire de développer un modèle plus réel, afin de prédire les propriétés mécaniques de ce type de matériau et expliquer les phénomènes physiques sans avoir recours à des tests expérimentaux.

Ce mémoire comporte quatre chapitres. Le premier chapitre est consacré à la présentation de la revue bibliographique sur les matériaux biocomposites, les caractéristiques et l'effet des renforts végétaux sur les propriétés mécaniques des composites. Cette partie comporte également une présentation des différentes techniques de prédiction des modules d'Young des matériaux composites à fibres aléatoires. Ensuite, elle se focalise sur la technique d'homogénéisation numérique et la détermination de la taille du volume élémentaire représentatif (VER).

Le deuxième chapitre présente les matériaux à caractériser et développe la méthodologie expérimentale suivie, afin de caractériser les propriétés mécaniques en traction, flexion et résistance au choc des trois matériaux biocomposites.

Le troisième chapitre illustre les résultats des essais expérimentaux et présente une comparaison entre les propriétés mécaniques des biocomposites testés et un matériau commercialisé (constitué principalement par PP+30wt% talc).

Quant au quatrième chapitre, il détaille les différentes étapes suivies pour l'application de la technique d'homogénéisation numérique par la méthode des éléments finis, en vue de prédire les modules d'Young des matériaux biocomposites aléatoirement renforcés. Et enfin, une brève conclusion et quelques recommandations.

CHAPITRE 1

REVUE BIBLIOGRAPHIQUE

1.1 Les matériaux biocomposites

Les matériaux biocomposites sont des matériaux composites constitués de renforts et de résines d'origine animale ou végétale. Il suffit que l'un des composants principaux du matériau composite soit de ressource renouvelable pour que le matériau soit un biocomposite. La figure 1.1 présente les différentes compositions possibles des matériaux biocomposites.

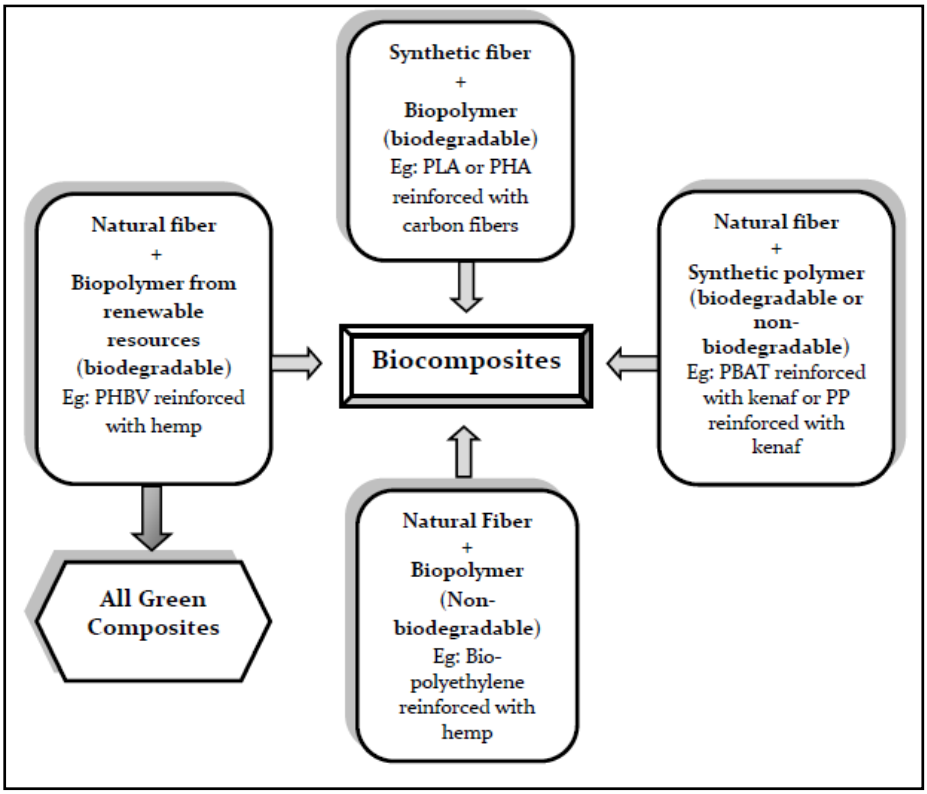


Figure 1.1 Les matériaux biocomposites
Tirée de Nagarajan (2012, p. 12)

Ces matériaux sont entrain de gagner des parts dans le marché du composite car non seulement le prix du pétrole a augmenté et plusieurs règlements ont été imposés afin de recycler les composites synthétiques, mais aussi les propriétés mécaniques spécifiques de ces

biocomposites sont assez importantes. Le tableau 1.1 donne la production de biocomposites dans l'Union européenne en 2012 dans différents domaines. Les biocomposites dans ce tableau sont classés en deux grandes familles : composites bois plastique (WPC) et composites à base de fibres naturelles (NFC).

Tableau 1.1 La production de biocomposite dans l'Union européenne en 2012 (tonnes)

Composites Bois Plastique (WPC)	**260.000**
Platelage (planchers extérieurs)	174.000
Automobile	60.000
Bardage et clôtures	16.000
Applications techniques	5.000
Mobilier	2.500
Biens de consommation	2.500
Composites à base de fibres naturelles (NFC)	92.000
Automobile	90.000
Autres	2.000
Total Biocomposites	352.000
Part de marché biocomposites	15%
Production de composites en Europe, volume total (verre, carbone, WPC et NFC)	2.400.000

1.1.1 Les fibres végétales

Les fibres végétales, ou les fibres cellulosiques sont des fibres naturelles. Elles sont issues de plusieurs sources comme :

- Les graines et les fruits des plantes : noix de coco, coton...;
- Les feuilles et les tiges des plantes : le sisal, le chanvre...;
- Le bois.

La figure 1.2 présente une classification des fibres naturelles. Seules les fibres végétales seront traitées.

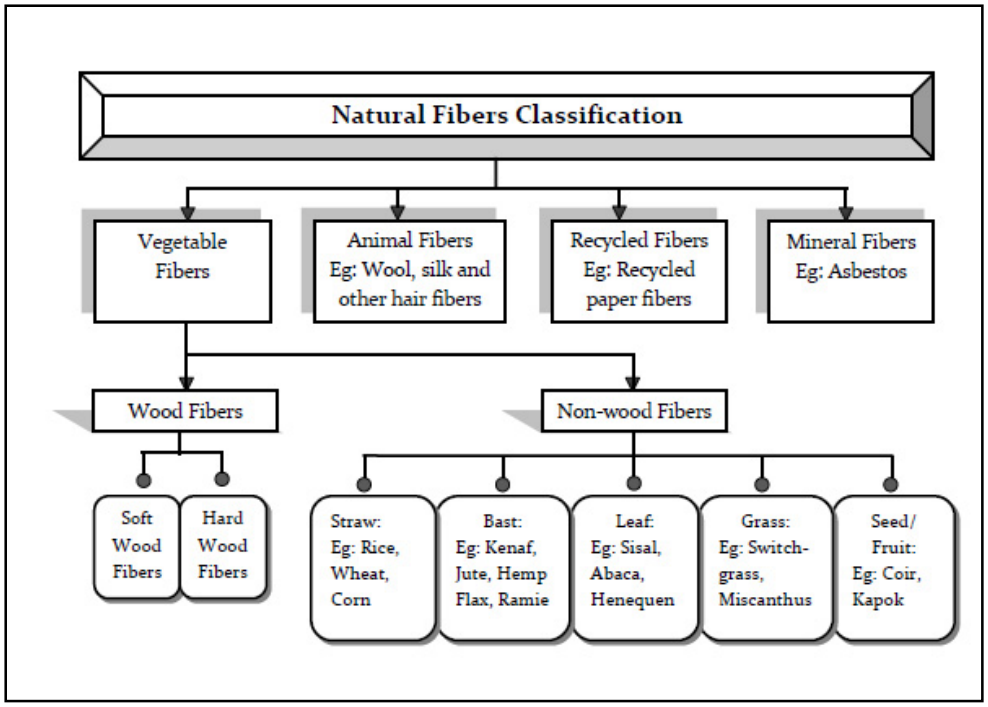


Figure 1.2 Classification des fibres naturelles
Tirée de Nagarajan (2012, p. 7)

Ces renforts naturels présentent plusieurs avantages tels que (Wibowo, 2004):

- ✓ Leur abondance;
- ✓ Leurs ressources renouvelables;
- ✓ Leurs propriétés mécaniques spécifiques importantes;
- ✓ Leur légèreté;
- ✓ Leur prix bas;
- ✓ Leur caractère non abrasif en les comparants avec le verre et la céramique;
- ✓ Leur caractère non toxique, par contre les fibres de verre peuvent entraîner des irritations à la peau et des maladies dans le système respiratoire lorsque leur poussière est respirée;
- ✓ Lors des procédés de fabrication, ils nécessitent moins d'énergie par rapport aux fibres synthétiques;
- ✓ Leur caractère biodégradable.

En tenant compte de la croissance de la conscience des consommateurs concernant l'utilisation des ressources renouvelables, Grand View Research, Inc, (2018) prévoit que le marché des matériaux composites renforcés par les fibres naturelles augmenterait dans les années prochaines. En effet, selon la prévision réalisée par Grand View Research, Inc, le marché des fibres naturelles atteindrait la barre de 10,89 billions USD.

Dans le secteur automobile, ces renforts sont utilisés dans la fabrication de composantes non structurales (figure 1.3) de véhicules, tels que les tablettes arrière, les garnitures de portières ou les habillages de coffre et les dossiers de siège (HO THI, 2008).

Figure 1.3 Panneau de porte en plastique de chanvre
(Tirée de http://hashmuseum.com
/fr/la-plante/chanvre-industriel/plastique-de-chanvre)

1.1.1.1 Composition chimique des fibres végétales

Les constituants des fibres végétales peuvent être divisés en deux parties, les composants de la paroi cellulaire qui déterminent les propriétés physiques des fibres végétales, et les substances extractives qui se trouvent avec une faible quantité et affectent la densité et le taux d'humidité des fibres végétales. La paroi cellulaire est considérée comme étant un matériau composite dont le renfort est constitué de fibres de celluloses, et la matrice par l'hémicellulose et la lignine.

Les substances extractives sont essentiellement la pectine, la cire et l'eau (Bodig et Jayne, 1993).

En général les celluloses représentent le composant principal de la fibre végétale. Une fibre de cellulose est constituée de quelques fibrilles ou cellules. Chaque cellule est composée de 2 parois cellulaires principales : primaire et secondaire (Figure 1.4).

La paroi secondaire est constituée de 3 couches S1, S2 et S3. La couche S2 représente la partie la plus épaisse de la paroi cellulaire. Chaque paroi cellulaire est composée d'une matrice constituée de l'hémicellulose et la lignine renforcée par des microfibrilles de cellulose. Les directions des microfibrilles de ces trois couches sont différentes. La direction des microfibrilles de la couche S2 est presque la même direction que l'axe de la fibre. Par contre, l'orientation des microfibrilles dans les deux autres couches est presque transversale par rapport la direction de la fibre (HO THI, 2008).

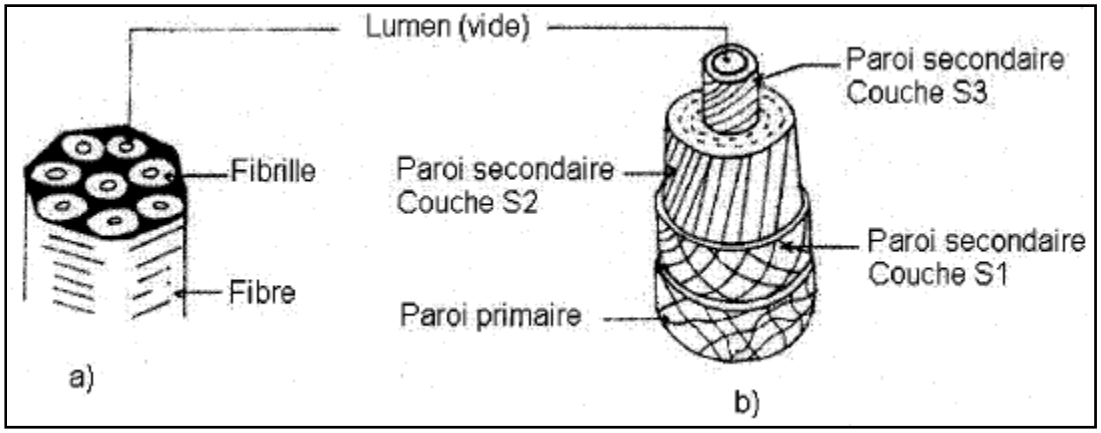


Figure 1.4 Représentation de : a) une fibre; b) d'une fibrille
Tirée de HO THI (2008 p. 10)

Le tableau 1.2 présente la composition chimique de quelques fibres végétales

Tableau 1.2 Composition chimique de quelques fibres lignocellulosic
Tiré de Nagarajan (2012, p. 25)

Fibre	Cellulose (%)	Hémicellulose (%)	Lignine (%)
Switchgrass	37	29	19
Miscanthus	43	24	19
Soy Stalk	33	14	14
Corn Stover	38	26	19
Wheat Straw	38	29	15

1.1.1.2 Les graminées vivaces

Parmi les ressources des fibres cellulosiques, on peut citer les graminées vivaces. Cette ressource a été traitée par plusieurs chercheurs en tant que renfort pour des matrices polymères ou biopolymères (Nagarajan, Misra, & Mohanty, 2013); (Ragoubi et al., 2012).

Parmi ces fibres naturelles, on peut citer :

- Les fibres de switchgrass, appelées aussi "Panicum virgatum". Ces fibres sont issues d'une plante vivace d'origine nord-américaine et sont capables de s'adapter à différentes conditions environnementales. En effet, ces plantes se trouvent aussi à l'Amérique du Sud et même en Afrique. Ces graminées ont présenté un bon rendement avec un faible coût de production en les comparant avec d'autres fibres (Nagarajan, 2012).

  Les switchgrass sont utilisées essentiellement pour produire le 'biofuel' mais plusieurs études ont montré aussi l'aptitude de ces fibres à renforcer les matrices polymères et biopolymères (Nagarajan et al., 2013) (Murdy, Mak, Misra, & Mohanty, 2015) (van den Oever, Elbersen, Keijsers, Gosselink, & De Klerk-Engels, 2003);
- Les fibres de miscanthus sont aussi issues d'une plante vivace qui se trouve à plusieurs endroits dans le monde, l'Afrique, Japan, Polynésie, Chine et dans les zones tropicales et tempérées dans le monde (Nagarajan, 2012). Les fibres de miscanthus sont caractérisées par un bon rendement et un faible coût de production comme les fibres de switchgrass. De plus, ces fibres ont une croissance rapide et une teneur faible en

humidité. Le miscanthus est utilisé en Europe pour générer l'électricité par combustion dans les centrales électriques en Europe (Nagarajan, 2012).

Plusieurs études ont montré que les fibres de miscanthus peuvent être utilisées comme renfort pour les polymères et les biopolymères (Ragoubi et al., 2012) (Muthuraj, Misra, & Mohanty, 2017).

L'abondance de ces graminées, le bon rapport rendement de production prix et la faible densité, rendent les fibres issues des graminées vivaces (comme les fibres de switchgrass et miscanthus) de bons candidats pour remplacer les fibres synthétiques dans les matériaux composites.

Les fibres de miscanthus et de switchgrass ont été utilisées comme renforts avec des matrices polymères et biopolymères. Nagarajan et al (2013) ont étudié l'effet de l'incorporation des fibres de switchgrass, en variant la teneur en poids de 20wt% à 40wt%, avec un biopolymère constitué de la poly (3-hydroxybutyrate-co-3-hydroxyvalerate) (PHBV) et poly (butylene adipate-co-terephthalate) (PBAT), sur les propriétés mécaniques de la matrice. Les résultats ont montré qu'une augmentation de la teneur en volume des fibres sert à augmenter les modules et les résistances en traction et en flexion de la matrice, jusqu'à une teneur en fibre de 30wt% (wt% fraction massique). À partir de ce seuil, ces propriétés commencent à diminuer. Dans la même étude l'utilisation d'un agent de compatibilité, pMDI (Polymeric diphenyl methane diisocyanate), améliore les propriétés du composite. Cette amélioration est due à l'adhésion interfaciale grâce à l'agent de compatibilité (figure 1.5). Les meilleurs résultats ont été trouvés avec 30wt% de switchgrass et 0,75 phr de pMDI.

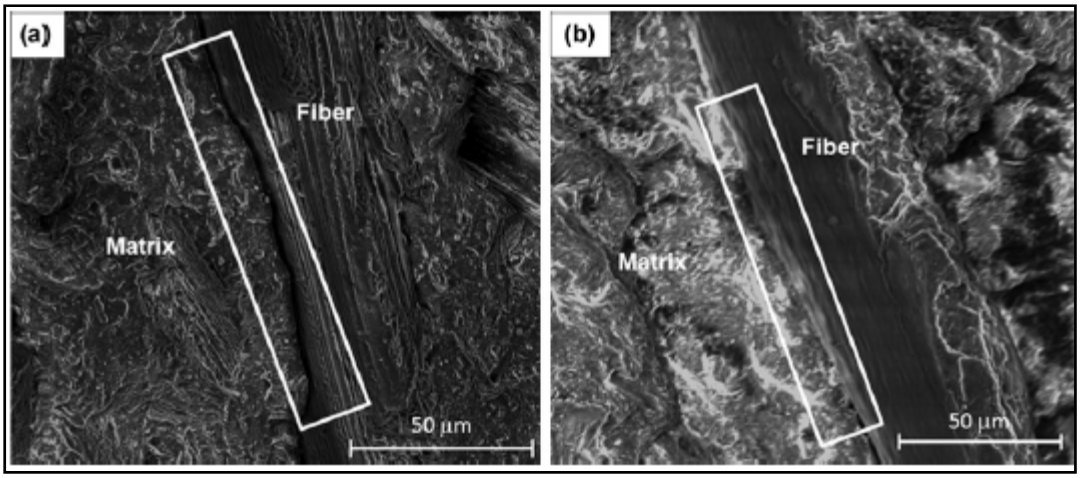


Figure 1.5 Interface fibre-matrice (MEB) : (a) biocomposite avec 30wt% switchgrass; (b) biocomposite avec 30wt% switchgrass + 0,75 phr pMDI
Tirée de Nagarajan et al. (2013)

Les fibres de miscanthus mélangées par le polypropylène (PP) ont été étudiées par plusieurs chercheurs. Bourmaud & Pimbert (2008) (Bourmaud & Pimbert, 2008) ont étudié les propriétés mécaniques des PP et poly-(acid-lactic) PLA L9000 (PLLA) renforcés par les fibres de miscanthus. Les résultats ont montré une augmentation significative des modules d'Young par rapport à ceux des matrices, mais aussi une diminution de la résistance en traction. Cependant, l'utilisation des agents de compatibilité augmente la résistance en traction et le module d'Young. Les agents de compatibilité utilisés sont le PP anhydride maléique greffé (PP-g-MA) pour le mélange PP/miscanthus et PLA-anhydride maléique greffée (PLA-g-MA) pour le mélange PLLA/miscanthus.

La même tendance a été trouvée par Ragoubi et al (Ragoubi et al., 2012) lors de l'étude des propriétés mécaniques des fibres de miscanthus traitées par le traitement de décharge Corona et mélangées par le polylactic acide (PLA) et PP. Les propriétés mécaniques en traction du composite ont augmenté par rapport ceux de la matrice. Le module d'Young du composite augmente de l'ordre de 10% à 20% par rapport au module d'Young de la matrice.
De même, Muthuraj et al (Muthuraj et al., 2017) ont trouvé que les fibres de miscanthus améliorent la rigidité du mélange poly (butylène succinct) PBS/PBAT, mais elles diminuent la résistance à la traction. L'ajout d'un agent de compatibilité anhydride maléique (MAH) d'une

quantité de 5wt% a amélioré le module d'Young, ainsi que la résistance à la traction. Par contre cette dernière reste toujours inférieure à la résistance en traction de la matrice.

En consultant les travaux dans la littérature sur les composites renforcés par des renforts végétaux, toujours l'adhésion interfaciale entre les renforts et la matrice reste un problème de taille (polymère ou biopolymère). Il est partiellement résolu par l'utilisation des agents de compatibilité comme le MAPP et le pMDI ou par le traitement des surfaces des fibres (traitement de décharge Corona).
Néanmoins à partir d'une certaine quantité de ces agents de compatibilité, un effet inverse sur la résistance en traction et en flexion est visualisé. Par contre les modules en traction et en flexion continuent à augmenter (Nagarajan et al., 2013). Alors il faudrait déterminer la quantité optimale de ces agents, afin d'atteindre les propriétés mécaniques les plus élevées possible.

1.1.1.3 Les biochars

Les biochars sont des matériaux carbonés issus généralement de la pyrolyse d'une matière organique d'origine végétale (biomasse) (figure 1.6 Tirée de (Anstey, Vivekanandhan, Rodriguez-Uribe, Misra, & Mohanty, 2016)).

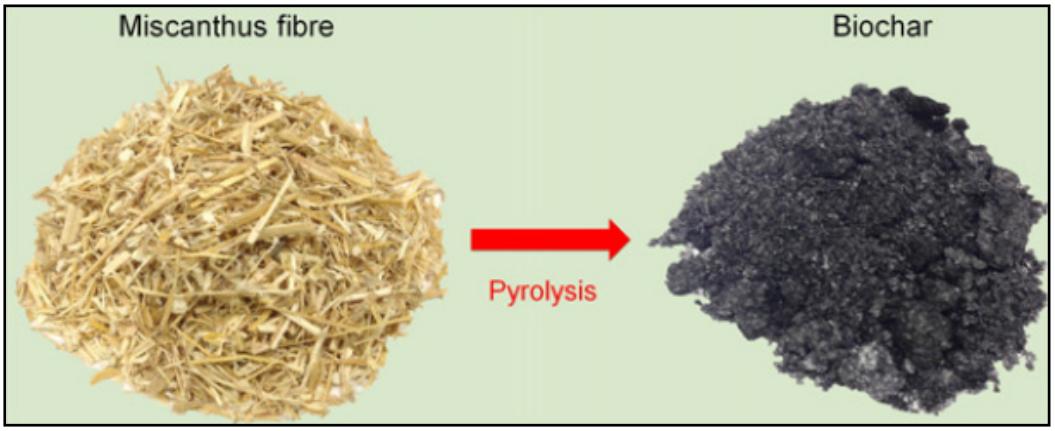


Figure 1.6 Fabrication du biochar
Tirée de Anstey et al., (2016)

Son application traditionnelle est l'amendement du sol. Devant l'augmentation de la demande des matrices polymères renforcées par le carbone, comme les fibres de carbones, les nanotubes de carbone et les graphènes, des études ont été réalisées afin de trouver des matériaux renouvelables et écologiques alternatifs au carbone noir. L'aptitude des biochars à renforcer les matrices polymères a été étudiée. L'intérêt de l'utilisation du biochar comme renfort est non seulement la diminution de l'exploitation des renforts synthétiques issus de ressources fossiles mais aussi sa densité inférieure par rapport à celle des renforts synthétiques.

Pour cela Behazin et al, (2016) ont étudié les propriétés mécaniques et chimiques de trois types de biochar issus du bois, des fibres de miscanthus et de switchgrass. Ils ont trouvé que les biochars issus du bois présentent un module d'élasticité égale à 10,7 GPa presque deux fois plus grand que celui de switchgrass et de miscanthus

Ogunsona et al, (2017) (Ogunsona, Misra, & Mohanty, 2017) ont étudié l'effet de 20wt% de biochar issus de la pyrolyse de miscanthus de différentes tailles sur les propriétés mécaniques de la matrice polyamide 6,10. La rigidité du composite en traction et en flexion augmente respectivement de 50% et 83% par rapport à celle de la matrice grâce à l'ajout des biochars d'une taille inférieure à 500 µm. Avec cette taille de biochar, la résistance en traction du composite est la même que celle de la matrice. Par contre, la résistance en flexion augmente de 61% par rapport à celle de la matrice

Behazin, et al (Behazin, Misra, & Mohanty, 2017a) ont étudié l'incorporation des biochars issus de la pyrolyse des miscanthus avec PP durci par l'élastomère de polyoléfine (POE). Deux types de biochars ont été utilisés. La différence entre les deux est la température de pyrolyse. Behazin et al (2017a) ont trouvé que le biochar fabriqué avec la température de pyrolyse la plus élevée présente une meilleure compatibilité avec le PP durci; ce qui augmente les propriétés du composite. Ce type de biochar a montré aussi un compromis entre rigidité et résistance au choc meilleur que celui du biochar fabriqué sous une température de pyrolyse inférieure. (Behazin et al., 2017a)

En consultant les recherches sur l'aptitude des biochars à renforcer les matrices polymères, plusieurs résultats ont montré que ce type de renforts est capable d'améliorer la rigidité des matrices polymériques. Néanmoins, plusieurs facteurs ont influencé les performances de ces renforts avec les matrices polymères, par exemple les tailles et la température de pyrolyse des biochars. Dans la littérature, il n'y a pas assez de recherches sur l'ampleur de l'influence de chacun de ces paramètres sur les propriétés mécaniques du composite.

1.1.2 Les charges

Le problème majeur que rencontre le renforcement des polymères par les renforts naturels est la mauvaise adhésion entre les deux phases. Cela est dû au comportement hydrophile des fibres (Nagarajan, 2012). Afin d'améliorer l'adhésion entre les renforts végétaux et la matrice, une diminution de l'hydrophilie des fibres est requise. Cette diminution peut être réalisée à travers un traitement chimique de la surface des fibres naturelles ou par l'utilisation des agents de compatibilité. Parmi les agents de compatibilité qui ont été utilisés pour ces fins, on peut citer l'anhydride maléique greffe Polypropylène (MAPP) (Behazin et al., 2017a) (Bourmaud & Pimbert, 2008) , le poly diphenylmethane diisocyanate (pMDI) (Nagarajan et al., 2013).

L'ajout des renforts pour les matrices polymères engendre la diminution de certaines propriétés mécaniques de la matrice comme la résistance à l'impact. Ce phénomène est cité dans plusieurs travaux dans la littérature (Behazin et al., 2017a) et (Ogunsona et al., 2017). Afin d'améliorer la résistance au choc du composite, plusieurs chercheurs ont eu recours à l'utilisation des élastomères avec la matrice. Parmi ces élastomères, on trouve les polyoléfines élastomères (POE) (Behazin, Misra, & Mohanty, 2017b) et l'éthylène-propylène-diène monomère (EPDM) (Ruksakulpiwat, Sridee, Suppakarn & Sutapun, 2009). Cependant, l'utilisation du POE dans les composites diminue la rigidité de la matrice (Behazin et al., 2017b).

1.1.3 Phénomène d'encapsulation

Dans un composite contenant un polymère, un élastomère et un renfort, trois microstructures peuvent être visualisées entre ces trois composants (Jun, Yong, & Yinxi, 2005):

- Une microstructure séparée, où l'élastomère et les renforts sont séparés dans le polymère;
- Une microstructure où les renforts sont encapsulés par l'élastomère ce qui entraîne une interface souple entre les fibres et la matrice;
- Une microstructure mélangée entre renforts séparés et encapsulés par l'élastomère.

Ce mécanisme d'encapsulation a été trouvé dans le travail de Behazin et al (2017b) (Behazin et al., 2017b). Dans ce travail le phénomène est apparu autour des particules des biochars. Il consiste à entourer le biochar par le POE; ce qui empêche l'adhésion et le transfert des charges entre les biochars et la matrice. Ce problème est résolu par l'ajout du MAPP. La figure 1.7 présente l'effet de l'ajout du MAPP sur le phénomène d'encapsulation.

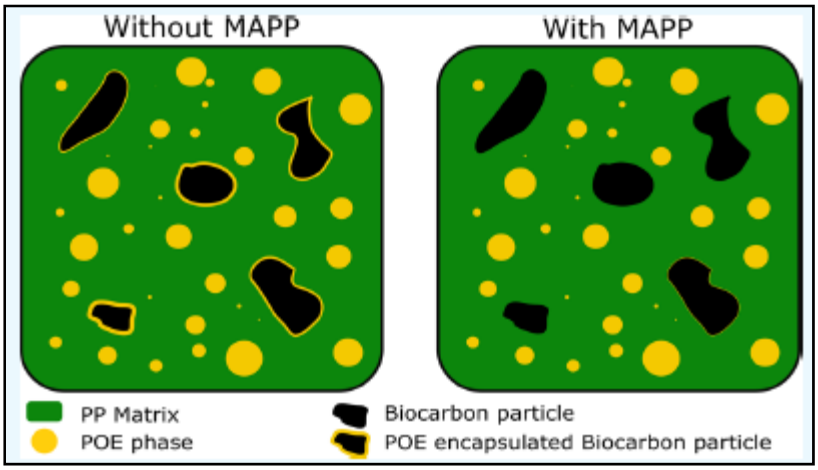


Figure 1.7 Encapsulation des particules
Tirée de Behazin et al. (2017b)

1.2 Prédiction des propriétés effectives des matériaux composites à fibres aléatoires

Le développement des matériaux composites peut s'avérer long et coûteux. Alors la prédiction du comportement mécanique de ces matériaux est appréciée afin de diminuer le temps et le coût des tests expérimentaux. Dans le but de déterminer les propriétés effectives d'un matériau composite à fibres aléatoires, plusieurs méthodes ont été utilisées comme les modèles semi-empiriques, l'homogénéisation analytique et numérique.

1.2.1 Les modèles semi-empiriques

Plusieurs modèles semi-empiriques ont été utilisés pour déterminer les propriétés élastiques des matériaux composites à fibres aléatoires. Parmi ces modèles, la loi de mélange (équation 1.1) utilisée par Muthuraj et al (2017) et Nagarajan et al (2013) pour prédire le module d'Young de ces matériaux (Muthuraj et al., 2017) ; (Nagarajan et al., 2013)

$$E_c = E_f v_f + E_m v_m \tag{1.1}$$

La loi de mélange inverse est donnée par l'équation 1.2 (Muthuraj et al., 2017)

$$E_c = \frac{E_m E_f}{E_m v_f + E_f v_m} \tag{1.2}$$

Le modèle de Hirsch, est présenté par l'équation 1.3 (Muthuraj et al., 2017)

$$E_c = x\left(E_f v_f + E_m v_m\right) + (1 - x)\frac{E_m E_f}{E_m v_f + E_f v_m} \tag{1.3}$$

Avec E_c: Module d'Young du composite.

E_f: Module d'Young des fibres

E_m: Module d'Young de la matrice

v_f: La teneur en volume des fibres

v_m: La teneur en volume de la matrice

x: un paramètre qui décrit le transfert des contraintes entre les fibres et la matrice, il est compris entre 0 et 1.

Dans la littérature, quelques chercheurs ont utilisé le modèle de Tsai-Pagano et Halpin-Tsai pour calculer le module d'Young des matériaux composites à fibres aléatoires (Nagarajan et al., 2013) ; (Muthuraj et al., 2017)

Le modèle de Tsai-Pagano est présenté par l'équation 1.4

$$E_{random} = \frac{3}{8}E_{11} + \frac{5}{8}E_{22} \tag{1.4}$$

E_{11} et E_{22} se calculent en utilisant le modèle de Halpin-Tsai qui est appliqué dans le cas des composites à fibres unidirectionnelles. L'avantage de ce modèle est qu'il tient en compte l'influence du rapport d'aspect des fibres (Longueur des fibres/ diamètres des fibres).

Le module longitudinal E_{11} est calculé par l'équation (1.5)

$$E_{11} = \frac{1 + \zeta_1 \eta_L v_f}{1 - \eta_L v_f} E_m \tag{1.5}$$

avec $\eta_L = \frac{(\frac{E_f}{E_m} - 1)}{(\frac{E_f}{E_m} + \zeta_1)}$ et $\zeta_1 = \frac{2L}{d}$ avec L: longueur des fibres

d: diamètre des fibres.

Le module transversal E_{22} est calculé par l'équation (1.6)

$$E_{22} = \frac{1 + \zeta_2 \eta_T v_f}{1 - \eta_T v_f} E_m \tag{1.6}$$

avec $\eta_T = \frac{(\frac{E_f}{E_m} - 1)}{(\frac{E_f}{E_m} + \zeta_2)}$

ζ_2 : un paramètre lié au degré de renforcement de la matrice par les fibres. Il correspond au paramètre d'ajustement de la courbe qui représente la rigidité transversale normalisée E_{22}/E_m en fonction du rapport de rigidité des constituants E_f/E_m (Halpin & Tsai, 1967).

Ce paramètre est utilisé dans la littérature pour prédire le module d'Young des matériaux composites à fibres aléatoires en utilisant $\zeta_2 = 2$ (Nagarajan et al., 2013), (Muthuraj et al., 2017). L'utilisation de cette valeur avec n'importe quel teneur en volume de fibres n'est pas tout à fait précise, car elle donne un bon ajustement lorsque la teneur en volume des fibres est 55% de fibres circulaires (Halpin & Tsai, 1967).

Les modèles semi-empiriques ne présentent pas des prédictions exactes dans la plupart des cas, puisqu'ils ne prennent pas en considération toutes les informations de la microstructure (les propriétés des phases, leur fraction volumique, la forme et l'orientation des renforts...).
De plus ils ne sont pas des modèles explicatifs des phénomènes physiques.

1.2.2 L'homogénéisation

La méthode d'homogénéisation vise à approximer le comportement macroscopique des matériaux hétérogènes connaissant les propriétés des phases.
Les modèles d'homogénéisation analytiques (comme le Mori-Tanaka, les limites de Hashin-Shtrikman, modèle de Lielens...) sont basés sur le problème d'Eshelby. "Ce problème consiste à considérer une inclusion de forme elliptique intégrée dans un milieu infini. Dans un premier instant, l'inclusion n'est pas soumise à aucune contrainte. Ensuite, elle est soumise à une déformation libre-contrainte uniforme ε^* (comme une déformation thermique par exemple). L'inclusion devient soumise à des contraintes par le milieu qui l'entoure." (Ghossein, 2014)

Selon Eshelby le champ de déformation résultant ε^c dans l'inclusion est uniforme et il est donné par l'équation 1.7 (Ghossein, 2014)

$$\varepsilon^c = S^E : \varepsilon^* \tag{1.7}$$

où S^E est le tenseur d'Eshelby.

Selon M. Ghossein (2014) ce tenseur dépend des propriétés mécaniques du milieu infini, ainsi des propriétés géométriques de l'inclusion. Dans la littérature on trouve des tenseurs d'Eshelby, pour plusieurs formes d'inclusion (Ellipsoïde, sphérique) (Mura, 1987).

M. Ghossein (Ghossein, 2014) a étudié la précision de ces modèles analytiques en vue de déterminer les propriétés effectives des matériaux composites à fibres aléatoires orientées, de forme ellipsoïde. Alors il a attribué à chaque modèle analytique un domaine de validité. Il a trouvé que le modèle de Lielns est le plus précis.

Dans ce travail, M. Ghossein s'est limité aux composites à renforts de types ellipsoïdes ayant une distribution aléatoire et orientée. Une étude doit être réalisée afin d'évaluer la précision de ces modèles d'homogénéisation analytiques, sur des matériaux composites à fibres aléatoires et à différentes formes géométriques (rectangulaire, cylindrique).

Malgré les avantages des modèles analytiques surtout en temps de calcul par rapport l'homogénéisation numérique, cette dernière reste la méthode la plus précise pour la détermination des propriétés effectives. L'homogénéisation numérique est basée sur l'utilisation d'un Volume Élémentaire Représentative (VER). La détermination du VER est fondamentale afin de déterminer les propriétés effectives exactes. Par conséquent, plusieurs méthodes de détermination du VER ont été présentées dans la littérature.

1.2.3 Le Volume Élémentaire Représentatif VER

Les définitions du VER sont diverses dans la littérature. Dans la revue de littérature de M. Moussaddy (Moussaddy, 2013) quelques définitions des VER qui tiennent en compte soit de la morphologie de la microstructure, soit de ses propriétés physiques ont été reportées :

- Le VER est défini comme étant un volume qui représente la morphologie de la microstructure et qui permet de déterminer les propriétés apparentes indépendamment

des conditions aux limites appliquées que ce soient les conditions aux limites de déplacement ou de traction. (Hill, 1963);

- Le VER est défini par un volume qui permet de déterminer les mêmes propriétés effectives du matériau, comme le module d'incompressibilité (Gusev, 1997).

Selon M. Moussady (2013) la définition d'un VER dépend du domaine d'application. Puisque dans le cas d'homogénéisation, le but est de déterminer les propriétés effectives avec précision, plusieurs chercheurs ont adopté la définition de Gusev (1997) comme Kanit et al (Kanit, Forest, Galliet, Mounoury, & Jeulin, 2003), aussi Kari et al (Kari, Berger, & Gabbert 2007b) et Moussaddy (2013) (Moussaddy, 2013)
Les chercheurs ont utilisé des VER avec la petite taille possible afin de gagner non seulement en termes de temps de calcul mais aussi en termes de temps de génération des volumes. Néanmoins, pour un volume fini le VER n'est pas parfaitement atteint avec des petits volumes. Le volume élémentaire (VE) peut être représentatif, mais avec une erreur de tolérance. La méthodologie la plus courante pour déterminer les VER destinés au calcul des propriétés effectives est de définir le VER par plusieurs réalisations de volumes. Cette méthodologie est utilisée dans plusieurs travaux dans la littérature comme (Kanit et al., 2003) et (Moussaddy, 2013).

Par conséquent, en vue de déterminer une définition quantitative du VER plusieurs critères ont été proposés dans la littérature pour déterminer le nombre de réalisations et la taille du VER adéquats.

1.2.4 Détermination de la taille d'un VER

Selon Kanit et al (2003) "En considérant un matériau comme une réalisation d'un ensemble aléatoire ou d'une fonction aléatoire, nous montrerons que l'idée d'existence d'une seule taille VER minimale possible doit être abandonnée." (Kanit et al., 2003)

Ils présentent une méthodologie afin de déterminer la taille d'un volume élémentaire représentatif, dépendant essentiellement d'une précision donnée de calcul des propriétés effectives et d'un nombre de réalisations de volumes. Kanit et al (2003) retournent la représentativité des volumes élémentaires pour une propriété mesurée 'Z' à la valeur moyenne de cette propriété calculée à partir d'un nombre donné de réalisations. Selon Kanit et al (2003), théoriquement, si le VE (volume élémentaire) est représentatif pour la propriété étudiée alors la dispersion entre les valeurs données des différentes réalisations doit disparaître.

Par conséquent, Kanit et al (2003) ont proposé un critère qui prend en considération la valeur moyenne et l'écart type de la propriété à modéliser calculée des différentes réalisations. Le but de ce critère est de déterminer le nombre de réalisations nécessaire à adopter en vue d'assurer une précision donnée. Il est appelé aussi critère de confiance. L'expression de ce critère, sous la forme utilisée par (Harper, Qian, Turner, Li, & Warrior, 2012) et (Zixing, Zeshuai, & Qiang, 2014) est donnée par l'équation 1.8

$$\varepsilon_r = \frac{\varepsilon_{abs}}{Z} \tag{1.8}$$

tel que :

- Z La valeur moyenne de la propriété élastique à estimer;
- ε_r Erreur relative;
- ε_{abs} Erreur absolue.

$$\varepsilon_{abs} = \frac{2 \times D_Z(V)}{\sqrt{n}} \tag{1.9}$$

tel que :

- $D_Z(V)$ représente l'écart-type ;
- n: le nombre de réalisations.

Si la taille d'un volume testée assure le seuil de l'erreur relatif fixé au début, elle est conservée, sinon le VER n'est pas encore atteint et une nouvelle génération du volume est requise. Plus la

taille du volume augmente plus le nombre de réalisations nécessaires pour assurer une certaine précision diminue (Kanit et al., 2003).

Kanit et al (2003) ont trouvé que ce critère permet de déterminer les propriétés effectives d'un matériau en utilisant des VER de petite taille tout en assurant un nombre de réalisations suffisant. Par contre, ils ont trouvé que ce critère ne peut pas être applicable pour les volumes de très petite taille.
Ce critère a été utilisé sous différentes formes par plusieurs chercheurs, afin de déterminer le nombre de réalisations adéquat pour déterminer les propriétés effectives avec une précision donnée (Harper et al., 2012) , (Zixing et al., 2014) et (Moussaddy, 2013) . C'est le seul critère destiné à la détermination du nombre de réalisations.

Moussaddy (2013) a utilisé le critère de confiance pour déterminer le nombre de réalisations et un critère pour déterminer le nombre d'inclusions nécessaires (ou la taille du volume élémentaire) pour que le volume soit représentatif. D'autres critères ont été proposés afin de déterminer le nombre des inclusions nécessaires que doit contenir un volume élémentaire pour qu'il soit représentatif.

Le critère le plus utilisé est le critère de stabilité de la moyenne de la propriété à estimer, pour différentes réalisations, en augmentant la taille du volume. Ce critère a été utilisé par plusieurs travaux dans la littérature (Moussaddy, 2013); (Ghossein, 2014) et (Gitman, Askes, & Sluys, 2007) (équation 1.10)

$$\frac{Z^{(N_2)} - Z^{(N_1)}}{Z^{(N_1)}} \leq \varepsilon_N \tag{1.10}$$

Tel que N_i: représente la taille du volume, $N_2 > N_1$;
Z: représente la valeur moyenne de la propriété effective issue d'un ensemble de réalisation avec la même taille N_i.
ε_N : représente la tolérance donnée.

Moussaddy (2013) a évalué ce critère et a trouvé qu'il ne permet pas de déterminer les propriétés effectives, pour les volumes contenant des inclusions avec un rapport d'aspect (rapport entre la longueur et le diamètre de la fibre) supérieur à 30. Alors, il a proposé un autre critère pour choisir le nombre d'inclusions optimal qui est précis avec tous les valeurs de rapport d'aspect. C'est le critère de variation moyenne, qui est donné par:

$$\bar{C} = \frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n} \widetilde{C}_{\iota} \tag{1.11}$$

$$\underline{C} = (\frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n} \tilde{C}_{i}^{-1})^{-1} \tag{1.12}$$

Avec $\widetilde{C}_{\iota}$: Le tenseur des propriétés élastiques apparentes de la i^{eme} réalisation.

n: Le nombre de réalisations.

$\bar{C}$: La moyenne arithmétique du tenseur de rigidité.

$\underline{C}$: La moyenne harmonique du tenseur de rigidité.

Le module d'incompressibilité correspondant est donné par:

$$\bar{k} = \frac{\bar{C}_{iijj}}{9} \tag{1.13}$$

$$\bar{\bar{k}} = \frac{\underline{C}_{iijj}}{9} \tag{1.14}$$

L'estimation pour la moyenne de la propriété est donnée par :

$$\widehat{k^{n}} = \frac{\overline{k^{n}} + \overline{\overline{k^{n}}}}{2} \tag{1.15}$$

Pour qu'on obtienne le VER, selon Moussaddy (2013) il faut que l'erreur de la taille du volume δ_{av} soit inférieure à la tolérance choisie:

$$\delta_{av} = \left(\frac{\widehat{k^n} - \overline{\overline{k^n}}}{\widehat{k^n}}\right) = \left(\frac{\widehat{k^n} - \overline{k^n}}{\widehat{k^n}}\right) \leq \text{tolérance} \tag{1.16}$$

Ce dernier a évalué plusieurs critères de détermination des VER dans son travail, mais dans son étude il n'a pas tenu compte des teneurs en volumes des fibres. En effet tous les volumes, générés pour l'évaluation de ces critères possèdent une teneur en volume de fibres de l'ordre de 5%.

Pour les matériaux ayant un comportement isotrope transversal, une vérification de l'isotropie du VER est requise. Alors nous trouvons dans la littérature le critère de départ de l'isotropie qui consiste à évaluer le degré de l'isotropie du volume élémentaire. Le critère de départ de l'isotropie est utilisé dans plusieurs travaux dans la littérature avec le critère de confiance, afin de déterminer la taille du VER (Zeshuai & Zixing, 2014) ; (Harper et al., 2012) et (Zixing et al., 2014) . Il est calculé par l'équation suivante:

$$\Delta = \sqrt{({\Delta_1}^2 + {\Delta_2}^2)} \text{ avec } \Delta_1 = \frac{2(C_{11} - C_{22})}{C_{11} + C_{22}} \ ; \ \Delta_2 = \frac{2(C_{11} - C_{12} - 2C_{66})}{C_{11} + C_{22} + 2C_{66}} \tag{1.17}$$

Δ prend la valeur zéro lorsque le matériau est isotrope transversalement.

C_{ii}: Les composantes de la matrice de rigidité

Dans la littérature un seuil de $\Delta < 5\%$ a été considéré acceptable pour considérer le VE représentatif.

1.2.5 Les conditions aux limites

Les conditions aux limites jouent un rôle important lors de la détermination du VER.

En effet, plusieurs travaux ont montré que l'utilisation de certaines conditions aux limites permet d'atteindre le VER plus rapidement que d'autres conditions aux limites.

Les conditions aux limites les plus utilisées pour la détermination des propriétés effectives sont:

- ✓ Les conditions aux limites de Dirichlet: elles sont appelées aussi les conditions aux limites de déformations, car elles sont définies par assujettissement des déplacements sur les surfaces du VE. A titre d'exemple, pour la traction simple; la répartition des conditions aux limites est appliquée sur deux surfaces du volume élémentaire. La première est fixe et l'autre qui lui est opposée subisse le déplacement. Une répartition de déformation constante est imposée sur toute les faces du VE qui ne subissent pas de déplacements.

La figure 1.8 explique les conditions aux limites de Dirichlet (MSC Software Company, 2017)

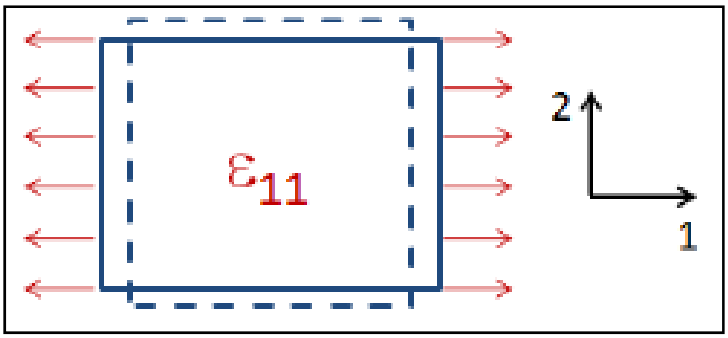


Figure 1.8 Conditions aux limites de Dirichlet
Tirée de MSC Software Company (2017, p 517)

- ✓ Les conditions aux limites de traction: Elles utilisent le même principe que les conditions aux

limites de Dirichlet sauf qu'une force est appliquée sur les surfaces du VE, au lieu d'un déplacement.

- ✓ Les conditions aux limites Mixtes: ces conditions aux limites n'appliquent pas un

champ de déplacement sur toutes les surfaces du VE. A chaque fois un champ de déplacement est appliqué sur deux surfaces et les autres surfaces sont maintenues libres (MSC Software Company, 2017).

La figure 1.9 illustre les conditions aux limites Mixtes

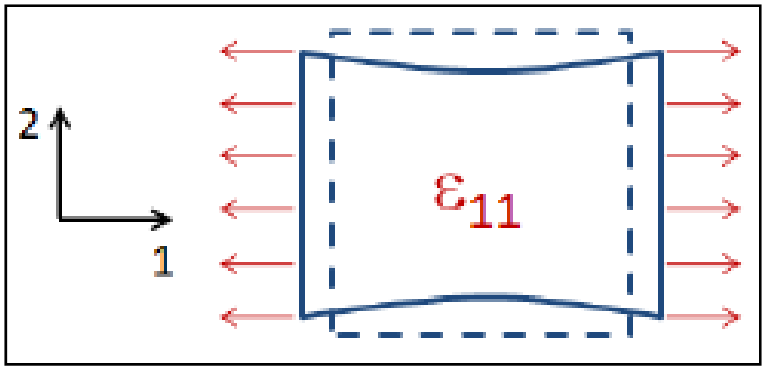


Figure 1.9 Les conditions aux limites Mixtes
Tirée de MSC Software Company (2017, p 517)

✓ Les conditions aux limites périodiques: ces conditions aux limites ne peuvent pas être appliquées que sur des géométries périodiques (les surfaces opposées sont les mêmes).

C'est presque le même concept que les conditions aux limites de Dirichlet mais l'application d'un déplacement sur une surface est additionnée par une fonction de fluctuation du déplacement. Cette fluctuation est périodique entre les faces du VE (MSC Software Company, 2017).

La figure 1.10 est un schéma explicatif des conditions aux limites périodiques.

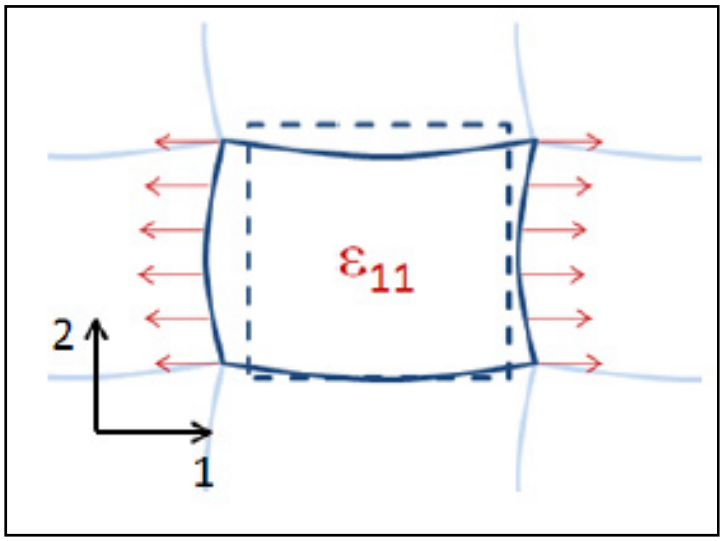


Figure 1.10 Les conditions aux limites périodiques
Tirée de MSC Software Company (2017, p 517)

Kanit et al (2003) ont trouvé que les conditions aux limites périodiques permettent d'atteindre la stabilité des propriétés effectives plus rapidement que les conditions aux limites de Dirichlet et de traction. La figure 1.11 présente l'évolution du module d'incompressibilité en fonction de la taille des volumes. Cette figure montre que la stabilité du module d'incompressibilité est atteinte avec les conditions aux limites périodiques avant les autres conditions aux limites (Kanit et al., 2003).

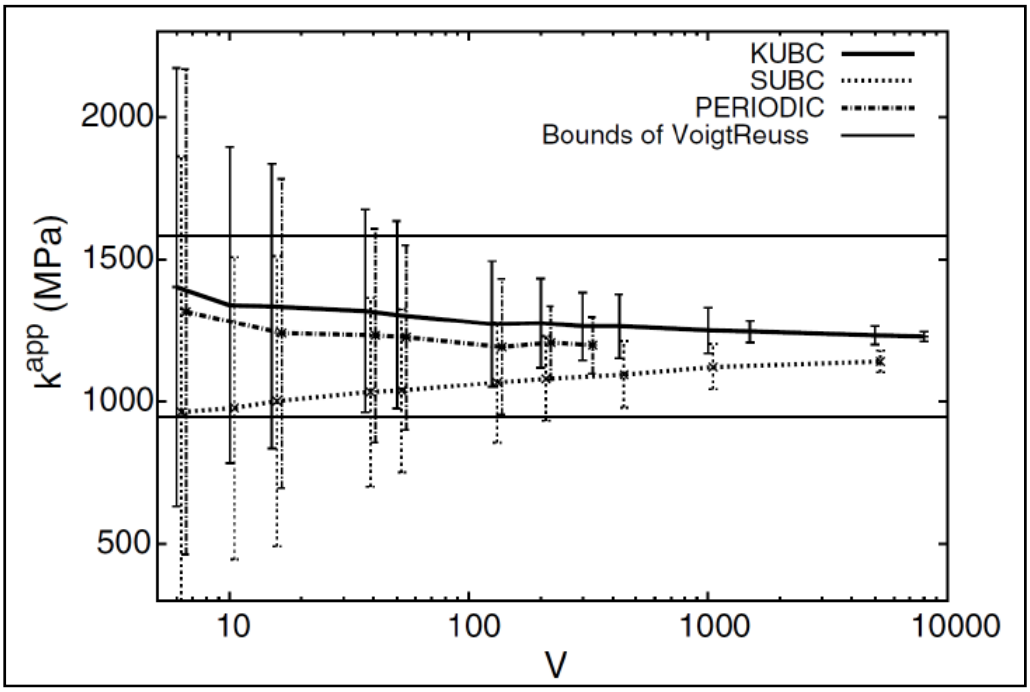


Figure 1.11 Module d'incompressibilité d'un composite mosaïque voronoi en fonction de la taille du volume
Tirée de Kanit et al., (2003, p 3665)

1.3 Problématique et objectifs de l'étude

Dans le secteur automobile, vu les nouveaux règlements imposés afin de diminuer l'émission des gaz à effet de serre, les industriels ont besoin de trouver des matériaux plus légers. En outre, les enjeux environnementaux poussent à diminuer l'utilisation des matériaux de ressources fossiles comme le carbone.

Dans ce contexte, cette recherche consiste à évaluer l'aptitude des renforts végétaux à remplacer les renforts synthétiques, dans les composites polymères. Les renforts végétaux sont

caractérisés par leur légèreté, leur caractère biodégradable, leurs ressources renouvelables et leur faible coût. Les fibres végétales sont déjà utilisées pour renforcer certaines pièces à l'intérieur des automobiles: planches de bord, panneaux de portes.
Le but de cette étude est de comparer les propriétés mécaniques de trois matériaux biocomposites renforcés par des renforts végétaux avec un matériau composite commercialisé constitué d'une matrice PP renforcé par du talc.

Les trois biocomposites sont constitués essentiellement d'une matrice PP/POE renforcée par des fibres de miscanthus et des biochars issus de l'opération de pyrolyse des fibres de miscanthus. La première formulation est constituée de la matrice renforcée par 30wt% du biochar. La deuxième formulation est constituée de la matrice renforcée de 15wt% de biochar et 15wt% de fibres de miscanthus. La troisième formulation est constituée de 30wt% de fibres de miscanthus.

L'étude suivante présente alors deux objectifs distincts:

Le premier objectif est de caractériser les propriétés mécaniques en traction, flexion, et résistance au choc des trois biocomposites.

Le deuxième objectif consiste à prédire les modules d'Young des matériaux composites à fibres aléatoires en utilisant la technique d'homogénéisation numérique par la méthode des éléments finis. En effet, l’objectif est de développer un modèle qui permet de déterminer certaines propriétés mécaniques, sans avoir recourt aux essais expérimentaux.

CHAPITRE 2

MÉTHODOLOGIE EXPÉRIMENTALE

2.1 Les matériaux

Les trois matériaux biocomposites à caractériser sont des matériaux proposés et fabriqués par le laboratoire BDDC (Bioproducts Discovery and Development Centre) à l'université de Guelph. Le tableau 2.1 décrit la composition de ces matériaux. Les trois matériaux possèdent la même matrice de PP/POE, mélangée avec un agent de compatibilité MAPP afin d'améliorer l'adhésion entre les renforts et la matrice. La différence entre les matériaux réside au niveau des renforts utilisés. Les renforts sont caractérisés par une densité inférieure à la densité du renfort minéral « le talc ». La première formulation est renforcée par le biochar, qui est issu de l'opération de pyrolyse des fibres de miscanthus à une température moyenne de 625°C. La deuxième formulation est renforcée par les fibres naturelles de miscanthus. La troisième formulation est un composite hybride renforcé par les fibres naturelles de miscanthus et les biochars.

Tableau 2.1 Composition des trois formulations

	PP (wt%)	POE (wt%)	MAPP (wt%)	biochar (wt%)	miscanthus (wt%)
Formulation1 (F1)	62	5	3	30	0
Formulation2 (F2)	62	5	3	0	30
Formulation3 (F3)	62	5	3	15	15

Les granulés de Polypropylène (PP) (connus sous le nom commercial 1350N) issus de Pinnacle Polymers LLC, LA, USA ont été utilisés dans ces formulations (Voir ANNEXE I).

Les fibres de miscanthus de longueur 4 mm, fournies par COMPETITIVE GREEN TECHNOLOGIES ont été utilisées dans deux formulations. Les biochars sont issus de l'opération de pyrolyse des fibres naturelles de miscanthus, récoltées dans le sud de l'Ontario,

Canada, de longueur moyenne 4 mm. Cette opération s'effectue au sein d'un environnement dépourvu d'oxygène dans un pyrolyseur continu (Metmag Inc., London, ON, Canada) à une température entre 600°C et 650°C pendant 10 à 20 min jusqu'à ce que la carbonisation soit complète. Le biochar obtenu a été broyé dans un broyeur à marteaux pour passer un tamis de 0,4 mm (1/64"). Le broyage à la balle du biochar broyé a été effectué en utilisant un broyeur à boulets de type D de Patterson Industries (Toronto, ON, Canada). L'agent de compatibilité utilisé est le MAPP connu sous le nom commercial FUSABOND 613 (Voir Annexe II). Son rôle principal est d'améliorer l'adhésion entre les fibres et la matrice. L'élastomère utilisé dans les formulations est le polyoléfine élastomère (POE) connu sous le nom commercial ENGAGE 7487 (voir Annexe III). Son rôle principal est d'améliorer la résistance au choc du composite. Le procédé de fabrication des échantillons comporte deux étapes. D'abord, le composite sous forme de tige à faible diamètre est fabriqué par une extrudeuse de marque LEISTRITZ de type MIC27/6L-48D (figure 2.1). La température moyenne de l'extrusion à une vitesse de 100 tr/min est 185°C, le taux d'alimentation est 6 kg/h et la température de fusion est égale à 190°C. Ensuite l'éprouvette est formée à l'aide d'un injecteur ALLROUNDER 370 S de type Arburg (figure 2.2). La température moyenne est de 185 °C.

Figure 2.1 Extrudeuse LEISTRITZ de type MIC27/6L-48D

Figure 2.2 Machine à injection plastique de type Arburg ALLROUNDER 370 S

2.1.1 Calcul de densité des échantillons

Le calcul de la densité des échantillons a été réalisée en utilisant l'équation 2.1 (Tirée de Ngô, 2016).

$$\rho_c = \rho_f v_f + \rho_m v_m = \frac{1}{\frac{w_f}{\rho_f} + \frac{w_m}{\rho_m}} \tag{2.1}$$

Avec ρ_c: La densité du composite en g/cm$^{3.}$

ρ_f: La densité de renfort.

ρ_m: La densité de la matrice.

v_f: La teneur en volume de renfort.

v_m: La teneur en volume de la matrice.

w_f: La teneur en poids de renfort

w_m: La teneur en poids de la matrice

Le tableau 2.2 présente les densités des constituants du composite.

Tableau 2.2 Densité des composants des trois biocomposites

	PP	Miscanthus	Biochar
Densité en g/cm^3	0,9 [ANNEXE I]	1,41 (Ogunsona et al., 2017)	1,34 (Behazin et al., 2017b)

Les résultats de calcul sont présentés dans le tableau 2.3

Tableau 2.3 Les densités des matériaux étudiés

	F1	F2	F3
Densité en g/cm^3	0,998	1,01	1,004

Les densités calculées des trois formulations sont inférieures à la densité du matériau commercialisé RTP 132 UV, qui est égale à 1,14 g/cm^3 (ANNEXE V).

2.1.2 Calcul des teneurs en volumes des renforts

Les teneurs en volumes des renforts sont utilisées dans le chapitre 3 pour évaluer l'adhésion interfaciale et le phénomène d'encapsulation à l'aide des modèles semi-empirique.
Le calcul de la teneur en volume des fibres s'effectue par l'équation 2.2 (Tirée de Ngô, 2016).

$$v_f = \frac{\rho_c}{\rho f} \times w_f \tag{2.2}$$

La teneur en volume des renforts dans chaque formulation est présentée dans le tableau 2.4.

Tableau 2.4 Teneur en volume des fibres et des biocharsdans chaque formulation

	F1	F2	F3
Biochar	0,223	NA	0,112
Miscanthus	NA	0,215	0,107

N.A: non applique

2.2 Essai de Traction

2.2.1 Machine d'essai

La machine de traction utilisée est la MTS Alliance munie d'une cellule de charge de 10 KN. Lors de l'essai de traction, un extensomètre à couteaux mesure l'allongement de chaque échantillon. L'acquisition des données est réalisée par un logiciel de MTS, TW Essential software. La figure 2.3 présente la machine d'essai.

Figure 2.3 Machine de Traction statique MTS Alliance

2.2.2 Paramètres d'essais

Les essais de traction pour les trois formulations sont réalisés selon la Norme ASTM D 638-14. Les éprouvettes de test sont de type IV. Le tableau 2.5 et la figure 2.4 représentent les dimensions et les tolérances des éprouvettes.

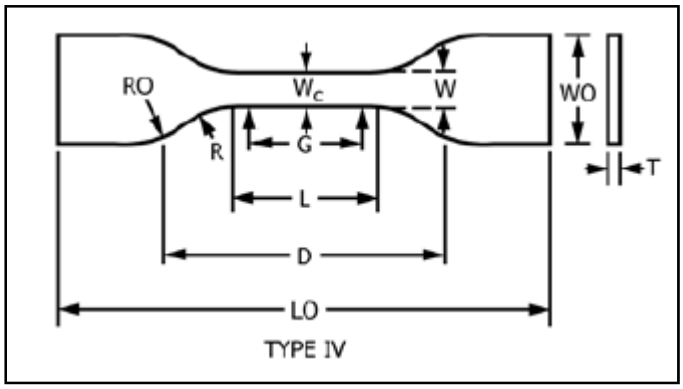


Figure 2.4 Éprouvette de type IV
Tirée de ASTM D 638-14, (2014, p.4)

Tableau 2.5 Les dimensions et les tolérances des échantillons
Tirée de ASTM D 638-14, (2014, p.4)

	W	L	WO	LO	G	D	R	RO	T
Dimension en mm	6	33	19	115	25	65	14	25	3,2
Tolérance	±0,5	±0,5	+6,4	No max	±0.13	±5	±1	±1	±0,4

Les sections des échantillons de chaque formulation sont mesurées par un pied à coulisse, comme indiqué dans la norme, au milieu et à 5 mm des extrémités de la longueur de la jauge. Les mesures sont présentées dans le Tableau A-IV-1, Tableau A-IV-2, Tableau A-IV-3 de l'ANNEXE IV. Pour chaque formulation, cinq échantillons sont testés pour s'assurer de la répétabilité des essais. La vitesse du test est 50 mm/min. Le conditionnement des échantillons avant les tests a été assuré par une chambre environnementale Thermotron (Figure 2.5) sous une température de 23 ± 2°C et une humidité de 50 ±5 % pendant 40 heures avant les tests.

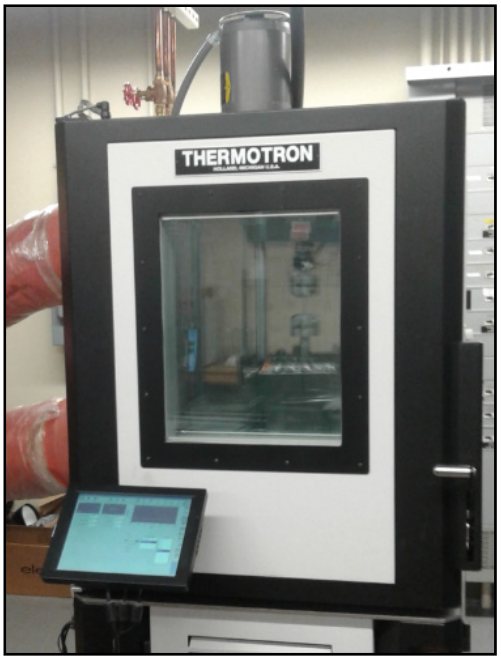


Figure 2.5 Thermotron

2.2.3 Exploitation des résultats

L'essai de traction nous permet de déterminer plusieurs propriétés mécaniques des matériaux. Les propriétés déterminées sont :

- Module d'Young E: qui représente la pente du domaine élastique de la courbe contrainte-déformation;

$$\sigma = E \times \varepsilon \tag{2.3}$$

- Résistance à la traction nominale: calculée par la force maximale (F_m) divisée par la section utile initiale (S_0);

$$\sigma_m = \frac{F_m}{S_0} \tag{2.4}$$

- Allongement à la rupture (A (%)): il est calculé en divisant le déplacement à la rupture lu dans la zone G (voir figure 2.4) par la longueur de la distance G multipliée par 100.

Afin d'assurer la répétabilité des résultats, la Norme ASTM D 638-14 exige que la différence entre les valeurs les plus éloignées de la propriété étudiée ne dépasse pas I.

$$I = 2{,}83 \times s \tag{2.5}$$

avec $$s = \sqrt{(\sum X^2 - m\bar{X}^2)/(m-1)}$$

X: représente la valeur de la propriété étudiée

$\bar{X}$: La moyenne arithmétique de la propriété étudiée

m: le nombre de mesures effectuées.

L'écart type relatif est calculé aussi afin d'avoir une idée plus claire sur la dispersion des résultats autour de la moyenne. L'écart type relatif ($s\%$) est calculé par le rapport entre le pourcentage de l'écart type et la valeur moyenne.

$$s\% = \frac{100 \times \mathrm{s}}{\bar{X}} \tag{2.6}$$

2.3 Essai de Flexion à trois points

2.3.1 Machine d'essai

L'essai de flexion à trois points a été réalisé sur une machine MTS alliance munie d'une cellule de charge de 1 KN. La figure 2.6 et 2.7 présentent la machine de l'essai de flexion.

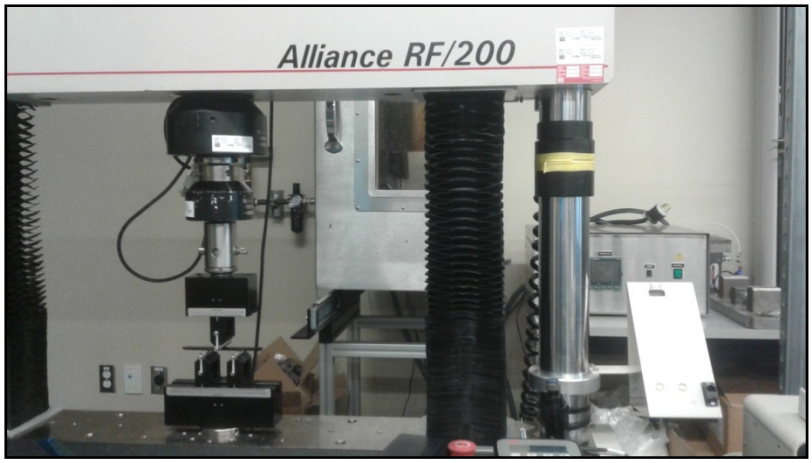


Figure 2.6 Machine de flexion

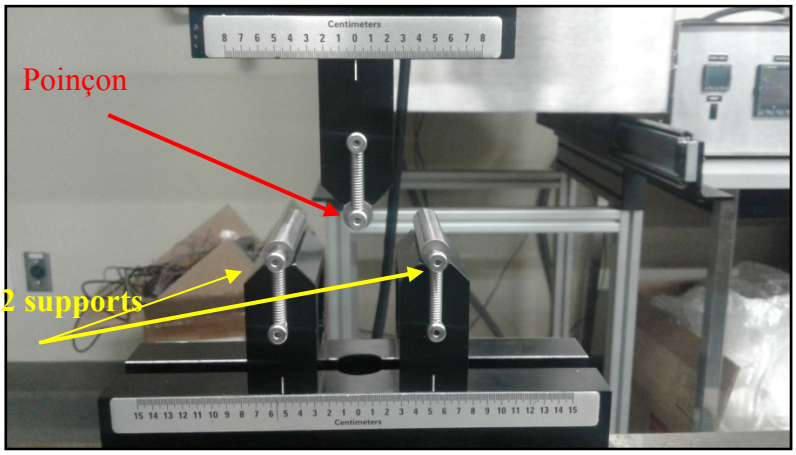


Figure 2.7 Dispositif pour essai de flexion trois-points

2.3.2 Paramètres d'essai

L'essai de flexion à 3 points est réalisé selon les recommandations de la norme ASTM D790. Les éprouvettes sont de 127 mm de longueur, 3,2 mm d'épaisseur et 12,7 mm de largeur.

La distance entre les deux supports est déterminée suivant la norme qui préconise d'utiliser une distance assurant un ratio de 16:1 entre les portées du support et l'épaisseur de l'échantillon. Ce qui fait que la distance entre les deux supports est égale à 52 mm.(Figure 2.8).

La largeur et l'épaisseur des échantillons de chaque formulation sont mesurées au milieu comme l'indique la norme. Les mesures sont illustrées dans les Tableau A-IV-4, Tableau A-IV-5, Tableau A-IV-6 et Tableau A-IV-7 de l'ANNEXE IV.

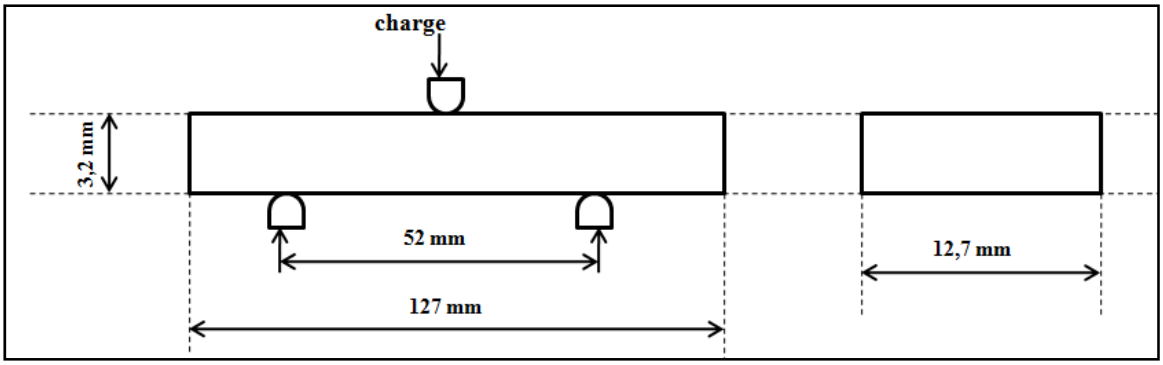


Figure 2.8 Les dimensions de l'éprouvette de l'essai de flexion

Pour chaque formulation, cinq échantillons ont été testés. Le conditionnement des échantillons a été assuré par une chambre environnementale thermotron sous une température de 23 ± 2°C et une humidité de 50 ±5 % pendant 40 heures avant les tests.

Selon la norme ASTM D790 le test doit être arrêté lorsque l'éprouvette subit une déformation égale à 5% ou l'éprouvette se brise avant que la déformation atteigne 5%.

La machine est réglée à une vitesse de 14 mm/min. Cette vitesse est calculée selon la norme ASTM D790 avec l'expression suivante:

$$R = \frac{Z_d L^2}{6e} \tag{2.7}$$

Avec R: vitesse de déformation en mm/min;

L: La distance entre les deux appuis en mm

e: L'épaisseur de l'éprouvette en mm

Z_d: Taux de déformation de la fibre externe, qui est égale à 0,1 mm/mm (Procédure B)

.

2.3.3 Exploitation des résultats

Les données enregistrées lors du test de flexion sont la charge en fonction du déplacement vertical du poinçon. Le calcul de la résistance à la flexion (σ_f) pour un essai de flexion à trois points se fait selon l'expression suivante :

$$\sigma_f = \frac{3PL}{2be^2} \tag{2.8}$$

avec

P: La charge enregistrée

L: La distance entre les deux appuis

b: La largeur de l'éprouvette

e: L'épaisseur de l'éprouvette

La déformation au milieu est calculée par l'équation suivante

$$\varepsilon_f = \frac{6De}{L^2} \tag{2.9}$$

D: Déplacement vertical du poinçon en (mm)

Le module de flexion est déterminé par l'expression suivante:

$$E_{flex} = \frac{L^3 m}{4be^3} \tag{2.10}$$

avec m: la pente de la courbe charge-déplacement

2.4 Essai de Résilience

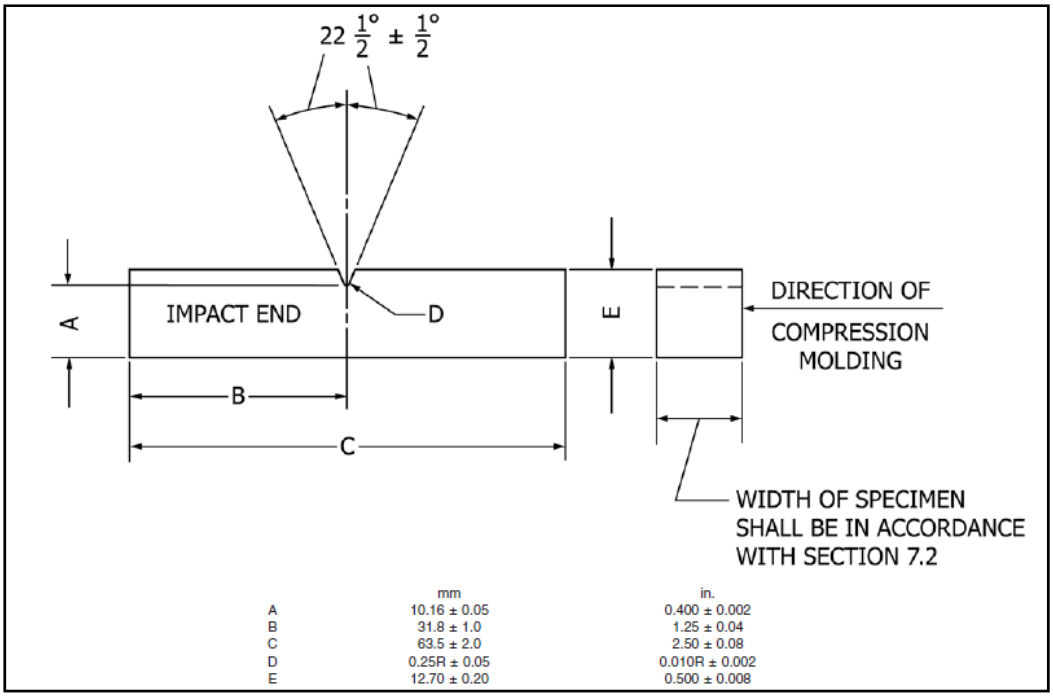
2.4.1 Machine d'essai

L'essai a été réalisé sur un testeur d'impact pendulaire (TMI 43-02), présenté dans la figure 2.9, avec un pendule qui génère une énergie de 5ft.lb (6,78 J).

Figure 2.9 Testeur d'impact pendulaire

2.4.2 Paramètres d'essai

L'essai de résistance au choc Izod avec entaille a été réalisé conformément à la norme ASTM D256 selon la procédure A. Les dimensions des échantillons utilisés sont présentées à la figure 2.10. La largeur des échantillons est égale à 3 mm.



	mm	in.
A	10.16 ± 0.05	0.400 ± 0.002
B	31.8 ± 1.0	1.25 ± 0.04
C	63.5 ± 2.0	2.50 ± 0.08
D	0.25R ± 0.05	0.010R ± 0.002
E	12.70 ± 0.20	0.500 ± 0.008

Figure 2.10 Les dimensions des échantillons de l'essai de résilience Izod
Tirée de ASTM D256 (2010, p 7)

L'entaille dans les échantillons a été réalisée par la machine TMI coupe échantillon à encoche motorisé, illustrée dans la figure 2.11.

Figure 2.11 TMI coupe échantillon à encoche motorisé

Après la réalisation des entailles, la largeur et la profondeur de chaque échantillon ont été mesurées à un endroit adjacent à l'entaille et au centre du plan de la fracture prévue. Les mesures sont présentées dans les Tableaux A-IV-8, Tableau A-IV-9, Tableau A-IV-10 et Tableau A-IV-11 de l'ANNEXE IV. Sept échantillons ont été testés pour chaque formulation. Les échantillons ont été conditionnés à température et humidité ambiante (23°C et 50%), après l'encochage pendant 48h.

2.4.3 Exploitation des résultats

Brièvement, le calcul de la résilience du matériau s'effectue en divisant l'énergie de rupture de l'échantillon (indiquée par le testeur d'impact) par la largeur de l'échantillon pour calculer la résilience en J/m.

2.4.4 Essais préliminaires et résultats

Le tableau 2.6 présente les valeurs moyennes de la résilience Izod avec entaille pour chaque formulation testée.

Tableau 2.6 Essai de résilience Izod avec entaille

	PP/POE/MAPP	Formulation1	Formulation2	Formulation3
Résilience Izod avec entaille en J/m	38,15	29,42	29,45	26,89
Écart type	6,77	1,22	2,75	3,93

Les deux formulations (F1) et (F2) qui sont la matrice renforcée respectivement par le biochar et le miscanthus présentent presque la même résilience, ce qui donne l'impression que les deux renforts (biochar et miscanthus) ont le même effet sur la résilience de la matrice. En effet la profondeur de l'échantillon après l'opération de crantage selon la norme ASTM D256 doit être 10,16 ± 0,05 mm (distance A), comme le montre la figure 2.10. Mais tous les échantillons ont dépassé cet intervalle de tolérance. Le problème réside au niveau de la machine TMI coupe échantillon à encoche motorisée (figure 2.11) qui est dédiée pour ce type de test selon la norme ASTM D256.

Alors afin d'avoir une idée plus claire sur la résilience de ces trois formulations, nous avons procédé à l'essai de résilience Izod sans entaille. Cet essai est réalisé selon la norme ASTM D4812 − 11. Les mêmes dimensions des échantillons de l'essai de résilience Izod avec entaille sont utilisés sauf que les échantillons ne sont pas entaillés. Les largeurs et les épaisseurs des échantillons ont été mesurées au milieu comme il est indiqué dans la norme. Les mesures sont présentées dans les Tableaux A-IV-12, Tableau A-IV-13, Tableau A-IV-14 et Tableau A-IV-15 de l'ANNEXE IV. Six échantillons pour chaque matériau sont testés.

2.5 Calcul des propriétés mécanique en traction du mélange PP/POE

Les propriétés mécaniques en traction du mélange PP/POE ont été déterminées par des modèles semi-empiriques. L'ajout de l'élastomère au PP diminue sa rigidité et sa résistance en traction. Le module d'Young de la matrice est calculé par un modèle semi-empirique donné par (Liang, Li, & Tjong, 1999). Il est dédié pour prédire le module d'Young du mélange plastique/élastomère (équation 2.11)

$$E_{mélange} = [E_p\ (1 + \frac{\lambda v_{POE}(M-1)}{1+(1-v_{POE})(M-1)S_p})] \quad ; \quad S_p = \frac{7-5\vartheta_{PP}}{15(1-\vartheta_{PP})} \tag{2.11}$$

avec, $E_{mélange}$: Le module d'Young du mélange,

E_e: Le module d'Young de l'élastomère (POE), E_e=1,2 MPa (ANNEXE III)

E_p: Le module d'Young de la phase résine (PP), E_p=2000 MPa (ANNEXE I)

v_{POE}: fraction volumique de l'élastomère, en utilisant l'équation 2.1 et 2.2, v_{POE} = 5%

M: $\frac{E_e}{E_p}$

ϑ_{PP}: Coefficient de poisson du PP, $\vartheta_{PP} = 0{,}41$ (Tirée de la Norme ASTM D638, p.9)

λ: paramètre de résistance de l'interface, λ= 0,64 (Liang & Ma, 2012).

La résistance de la matrice est donnée par l'équation 2.12 (Turcsanyi, Pukanszky, & Tudos, 1988).

$$\sigma_{yc} = \sigma_{ym}\frac{1 - v_{POE}}{1 + 2.5v_{POE}} \tag{2.12}$$

σ_{ym}: résistance à la traction du (PP), σ_{ym}= 40 MPa.(ANNEXE I)

v_{POE}: fraction volumique du POE.

2.6 Observation des surfaces de rupture au MEB

Les surfaces de rupture des échantillons des deux tests (traction, Izod sans entaille) sont observées au microscope électronique à balayage (MEB) de marque Hitachi, modèle S-3600N. Le mode utilisé est SE (détecteur d'électrons secondaires). A cet égard, les deux parties d'un même échantillon sont coupées à environ 1 cm de la surface de rupture. Ces surfaces sont ensuite métallisées par une couche de 20 nm de l'or pour les rendre conductrices. Par la suite, les échantillons obtenus sont placés dans la chambre à vide du MEB sous 5 kV pour être observés à fort grossissement.

CHAPITRE 3

RÉSULTAT ET DISCUSSION

3.1 Introduction

Ce chapitre consiste, en premier lieu, à présenter et analyser les résultats des essais expérimentaux. En second lieu, il comporte une comparaison entre les résultats expérimentaux des trois formulations et le matériau commercialisé (RTP 132 UV ANNEXE V), en vue d'investiguer laquelle de ces trois formulations est la plus potentielle à remplacer le matériau commercialisé.

3.2 Essai de Traction

Les courbes contraintes-déformations enregistrées lors des essais de traction pour les trois formulations apparaissent sur les figures 3.1, 3.2, et 3.3.

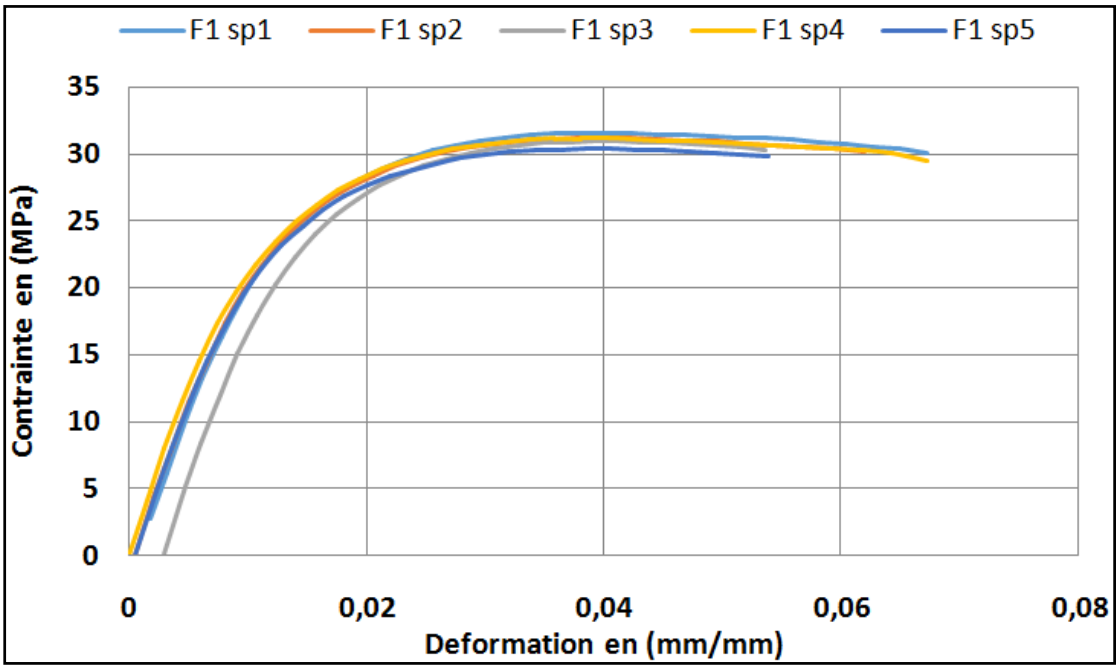


Figure 3.1 Courbe contrainte-déformation de la F1

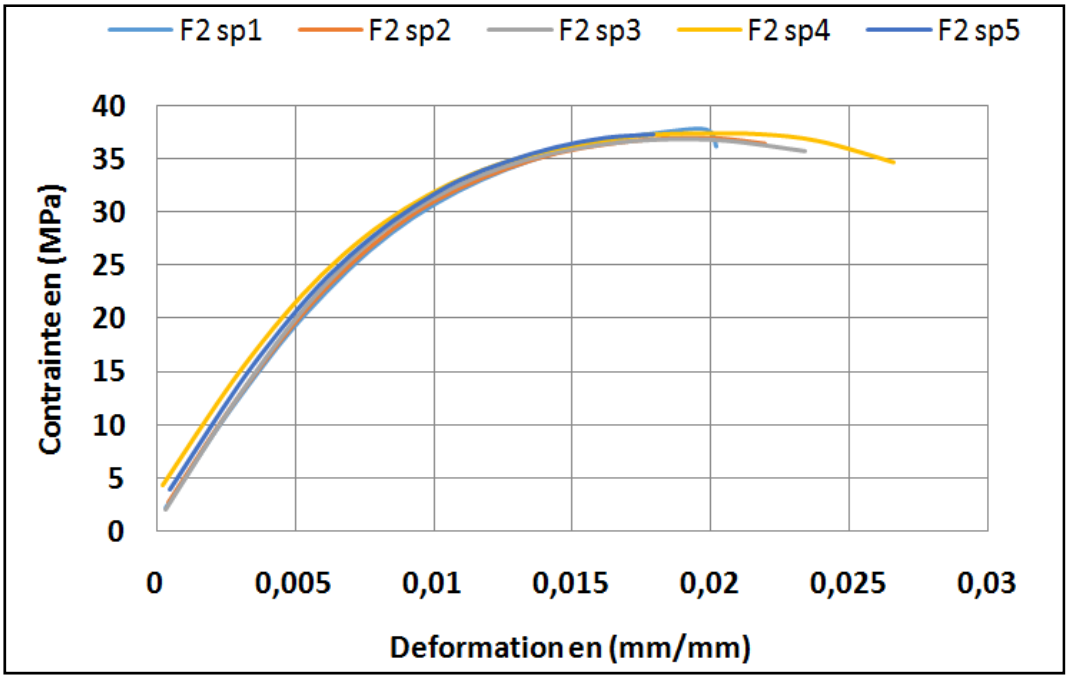


Figure 3.2 Courbe contrainte-déformation de la F2

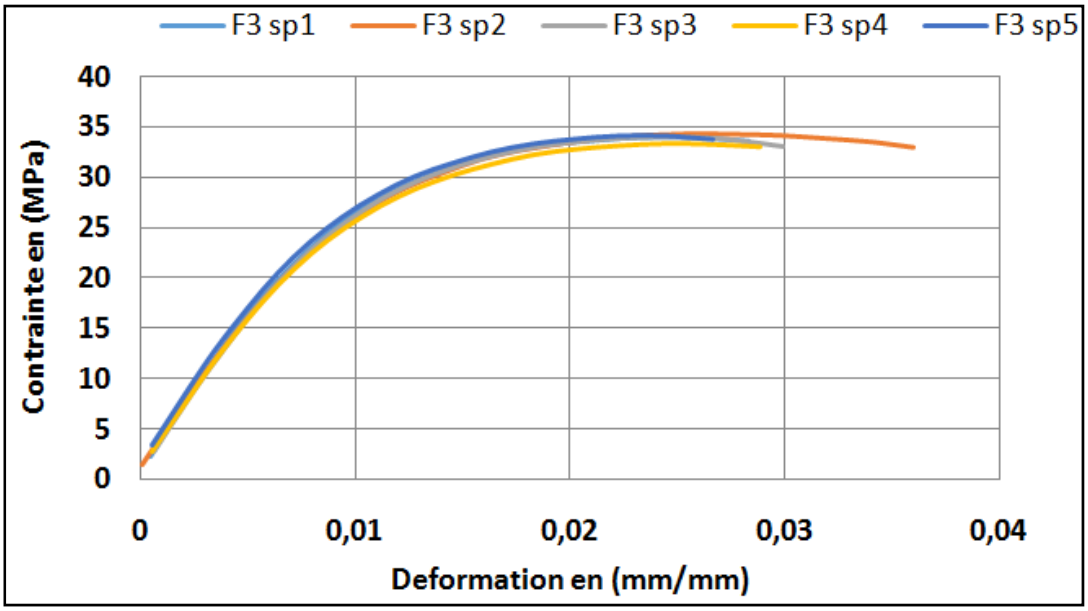


Figure 3.3 Courbe contrainte-déformation de la F3

Les modules d'élasticité, la résistance à la traction et l'allongement à la rupture sont indiqués dans le tableau 3.1.

Tableau 3.1 Synthèse des résultats de traction

Éprouvette	F1: matrice + biochar			F2: matrice + miscanthus			F3: matrice+ biochar +ms		
	E (MPa)	σ_m (MPa)	A (%)	E (MPa)	σ_m (MPa)	A (%)	E (MPa)	σ_m (MPa)	A (%)
1	2485,5	31,57	6,72	3890	37,81	2	3259,6	33,98	2,8
2	2420,6	31,18	6,4	3898,5	37,03	2,2	3137	34,45	3,6
3	2596	30,93	5,38	3809,3	36,95	2,3	3144,9	34,05	3
4	2405,7	31,13	6,7	3845,7	37,48	2,7	3100,8	33,47	2,9
5	2641,8	30,4	4,57	3917,4	37,34	1,8	3232,8	34,12	3,6
Moyenne	2509,92	31,04	5,95	3872,18	37,32	2,2	3175,02	34,01	3,18
Écart type	105,16	0,43	0,95	43,9	0,35	0,34	67,74	0,35	0,39
Écart type relatif s%	4,19	1,38	15,91	1,13	0,93	15,41	2,13	1,04	12,26
I	297,62	1,21	2,68	124,24	0,99	0,96	191,7	1	1,10
Max - Min	236,1	1,17	2,15	108,1	0,86	0,9	158,8	0,98	0,8
Moyenne	2485,5	31,57	6,72	3890	37,81	2	3259,6	33,98	2,8

Les conditions de répétabilité selon la norme ASTM D638 ont été respectées. Par contre, les valeurs des écarts type relatifs de l'allongement à la rupture pour toutes les formulations ont été supérieures à 10% ce qui montre que cette propriété varie plus que les autres.

Le tableau 3.2 illustre les propriétés mécaniques en traction du mélange PP/POE (95wt%, 5wt%) calculées à l'aide des modèles semi-empiriques (Les équations 2.11 et 2.12).

Tableau 3.2 Propriétés mécaniques du mélange PP/POE

Résistance à la traction en MPa	Module d'Young en MPa
33,77	1864

3.2.1 La première formulation

Les résultats expérimentaux en traction montrent que l'ajout de biochar au polypropylène sert à augmenter la rigidité du composite, mais il diminue un peu la résistance en traction. En effet une quantité de 30wt% de biochar a augmenté la rigidité du (PP/POE) de 34%.
L'augmentation de la rigidité dans la première formulation élimine la possibilité d'avoir le phénomène d'encapsulation des biochars avec une grande ampleur, mais laisse une possibilité d'avoir une encapsulation partielle de ces charges.

Alors d'après les résultats trouvés nous pouvons conclure que la quantité de MAPP et POE dans le composite est convenable pour avoir une rigidité meilleure à celle de la matrice. En effet, si la quantité du POE dépasse un certain seuil, le phénomène d'encapsulation aurait lieu. Par conséquent, cette quantité diminue la rigidité du mélange jusqu'à des valeurs inférieures à la rigidité de la matrice.

La diminution de la résistance en traction de la matrice après l'ajout du biochar peut être expliquée par la mauvaise adhésion entre les biochars et la matrice. Afin de vérifier le problème d'encapsulation des biochars et la mauvaise adhésion entre les biochars et la matrice, deux modèles semi-empiriques ont été utilisés.

- **Phénomène d'encapsulation**

Pour avoir une idée sur l'existence du phénomène d'encapsulation dans la première formule, Behazin et al (2017b) ont utilisé l'équation de Kerner modifiée qui calcule un module d'Young théorique du composite renforcé par des particules.

Le module d'Young théorique est calculé par l'équation 3.1 (Behazin et al., 2017b)

$$E_c = E_m \frac{1 + ABv_f}{1 - B\varphi v_f} \tag{3.1}$$

tel que $B = \frac{(\frac{E_f}{E_m} - 1)}{(\frac{E_f}{E_m} + A)}$; A=$K_e - 1$; $\varphi = 1 + [(1 - V_f) / V_f^{\,2}] v_f$

Les indices m et f correspondent respectivement à la matrice et les renforts du composite. K_e est le coefficient d'Einstein ; V_f: la teneur en volume maximale et v_f: la teneur en volume des renforts.

En comparant le module d'Young théorique calculé avec le module d'Young déterminé par les essais expérimentaux, on peut avoir une idée sur l'existence du phénomène d'encapsulation. Si le module d'Young calculé par l'équation de Kerner est supérieur à celui issu des essais expérimentaux alors on peut dire qu'il y a un phénomène d'encapsulation.

Le biochar utilisé dans notre formulation est presque similaire au biochar utilisé dans le travail de Behazin et al (2017b). Ils ont estimé que la valeur de $K_e = 2{,}6$ et ils ont utilisé une teneur en volume maximale des renforts égales à $V_f = 0{,}64$.
Le module d'Young du biochar issu de la pyrolyse du miscanthus à une température moyenne de 500°C est égal à $E_f = 5030 \pm 760$ MPa (Behazin et al., 2016).
Le biochar utilisé dans la formulation étudiée est issu de la pyrolyse de miscanthus à une température moyenne égale à 625 °C. Behazin et al (2017a) ont trouvé que plus que la température de pyrolyse des biochars augmente plus les propriétés mécaniques s'améliorent (Behazin et al., 2017a). Par conséquent, une hypothèse qui peut être déclarée de ce résultat, c'est que la température de pyrolyse améliore la rigidité du biochar.
Pour cela, nous abordons une hypothèse que les biochars utilisés dans les formulations étudiées disposent d'un module d'Young de 5790 MPa, qui présente la valeur maximale du biochar issu de la pyrolyse de miscanthus à une température moyenne de 500°C.

Afin d'évaluer l'existence du phénomène d'encapsulation, l'équation 3.1 est utilisée. Le tableau 3.3 présente les résultats trouvés.

Tableau 3.3 Ampleur théorique de l'encapsulation

Les charges	Calculé (MPa)	Mesuré (MPa)
30wt%	2455	2510

Dans ce cas, le module d'Young mesuré est presque le même que le module d'Young calculé. Ce résultat propose que la quantité de POE dans les formulations n'entraîne pas le phénomène d'encapsulation.

- **L'adhésion interfaciale**

Puisque les particules de biochars utilisées dans la première formule sont considérées de grandes tailles, l'un des problèmes qui peut diminuer la rigidité du matériau est la présence des vides dans la structure du biochar issu de fibres de miscanthus. Ces vides résultent du lumen (vide) qui se trouve dans la structure des fibres naturelles (Behazin et al., 2017b). Ils peuvent engendrer des trous dans la structure du composite. La figure 3.4 illustre un exemple du lumen présent dans la structure du biochar.

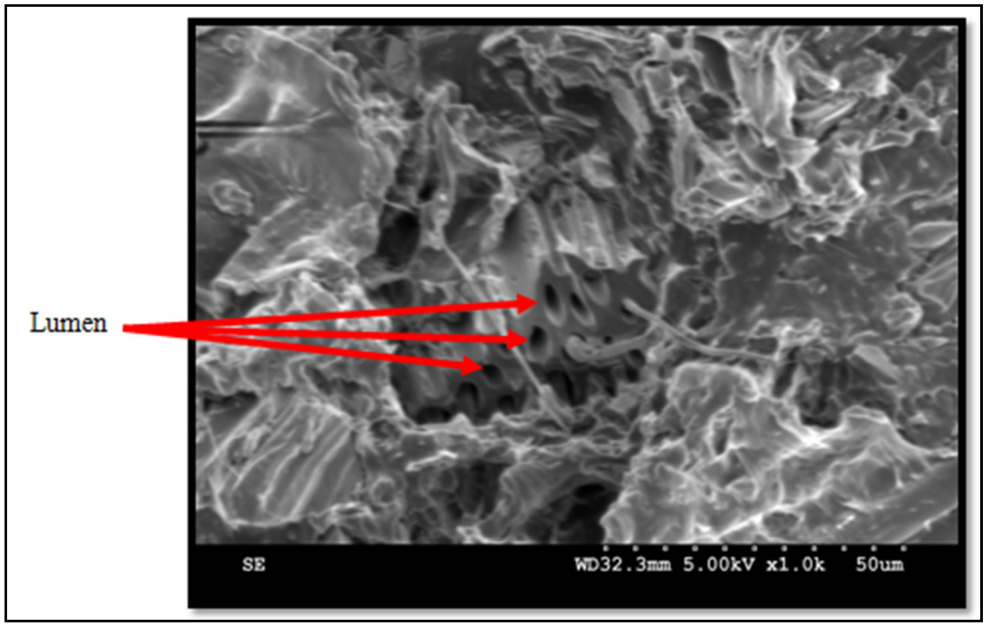


Figure 3.4 Les lumens dans la morphologie des biochars-MEB

La diminution de la résistance en traction de la formulation (F1) par rapport à la résistance à la traction du PP est remarquée dans la formule renforcée par les biochars. En général la résistance en traction dépend de l'adhésion entre les fibres et la matrice (Behazin et al., 2017b). Cela montre que le biochar présente une mauvaise adhésion avec la matrice, et les particules du biochar ne sont pas capables de supporter les charges.

Cette mauvaise adhésion peut être due à

- ✓ La quantité de l'agent de compatibilité MAPP qui n'est pas suffisante: Dans la littérature il est connu que l'agent de compatibilité MAPP améliore l'interface entre la matrice et les biochars, cela est déjà prouvé par plusieurs recherches dans la littérature. (Ikram, Das & Bhattacharyya, 2016) et (Behazin et al.,2017b);
- ✓ La taille des particules: La taille des particules peut aussi jouer un rôle important en vue d'améliorer l'adhésion entre les fibres et la matrice. Plus la taille soit petite plus la surface de contact augmente, ce qui améliore l'interface fibre-matrice (Turcsanyi et al., 1988). Behazin et al (2017b) ont trouvé que les petites tailles des particules assurent une meilleure interface fibre-matrice. De plus l'ampleur de l'encapsulation trouvée pour les petites particules (< 20 µm) est plus petite que celle dans les grandes particules (106-125 µm) (Behazin et al., 2017b).

Afin d'évaluer l'interface entre la matrice et les charges dans la formulation 1 (F1), un modèle semi-empirique développé par (Turcsanyi et al., 1988) a été utilisé (Équation 3.2).

Ce modèle lie la résistance à la traction du composite à la propriété de l'interface entre les charges et la matrice.

$$\sigma_{yc} = \sigma_{ym} \frac{1-v_f}{1+2,5v_f} e^{(Bv_f)} \tag{3.2}$$

avec σ_{yc}: La résistance à la traction du composite

σ_{ym}: La résistance à la traction de la matrice

v_f: La teneur en volume des charges

B: est un paramètre qui représente la capacité de chargement supporté par les particules.

Cette capacité dépend de trois facteurs: la résistance de l'interface, la surface de contact et les tailles des charges (Pukanszky, Szazdi, Pukanszky, & Vancso, 2006). Si la valeur de B est inférieure à 1, alors la résistance de l'interface est faible. Si la valeur de B est comprise entre 1 et 3, alors la résistance de l'interface est bonne. Et si la valeur de B est supérieure à 3, alors la résistance de l'interface est forte (Liang, 2013). D'après l'équation 3.3, le paramètre B est calculé par l'équation 3.3

$$B = \frac{1}{v_f} \ln\left(\frac{\sigma_{yc}(1 + 2{,}5 v_f)}{\sigma_{ym}(1 - v_f)}\right) \tag{3.3}$$

$$B = 2{,}74$$

D'après la valeur du paramètre B, l'interface entre la matrice et les biochars est bonne, mais elle peut être améliorée. Cela peut être réalisé par l'augmentation de la quantité de l'agent de compatibilité le MAPP.

La figure 3.5 présente une surface de rupture issue d'un échantillon de l'essai de traction de la première formulation (F1). Cette figure, présente l'influence du MAPP sur l'amélioration de l'adhésion interfaciale entre le biochar et la matrice.

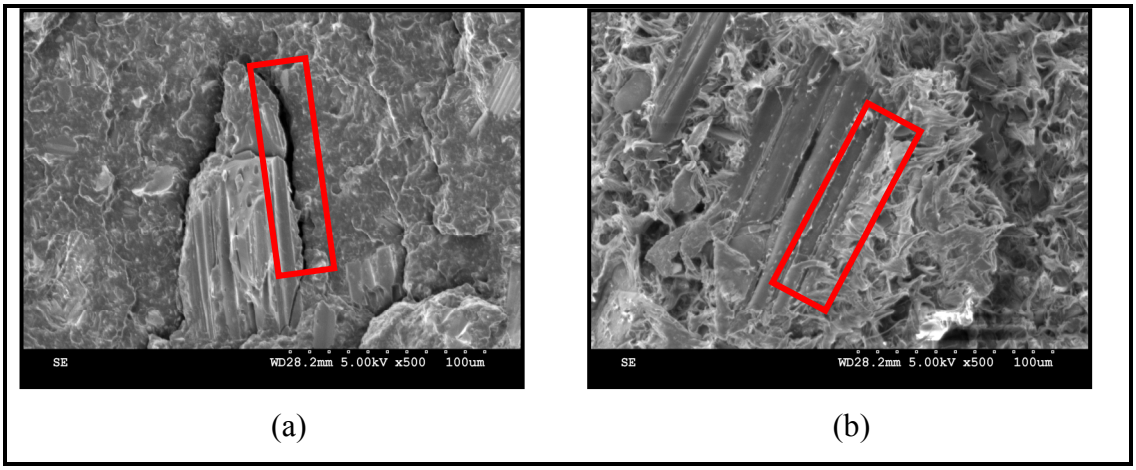


Figure 3.5 Surface de rupture d'un échantillon de l'essai de traction de la F1, (a): Mauvaise adhésion interfaciale entre le biochar et la matrice. (b): Adhésion interfaciale améliorée grâce au MAPP.

La figure 3.5 confirme le résultat trouvé par l'équation 3.3 ($1 < B < 3$). L'adhésion entre le biochar et la matrice est bonne, mais elle peut être meilleure en augmentant la quantité du MAPP.

3.2.2 La deuxième formulation

Les résultats expérimentaux de l'essai de traction montrent que la formulation contenant du polypropylène durcie (par l'élastomère) renforcé par les fibres de miscanthus présente le module d'Young et la résistance à la traction les plus élevés en les comparant avec ceux des autres formules. L'ajout de 30wt% de miscanthus à la matrice sert à augmenter le module d'Young de la matrice de 107%, cela peut être dû à la bonne dispersion des fibres. De plus il augmente la résistance du mélange (PP/POE) de 10,51% ce qui donne une impression que l'adhésion entre les fibres et la matrice est bonne. Une étude sur la surface de rupture de l'essai de traction de cette formule a été réalisée afin d'évaluer cette hypothèse. Les figures 3.6 et 3.7 présentent des images prises par le microscope électronique à balayage.

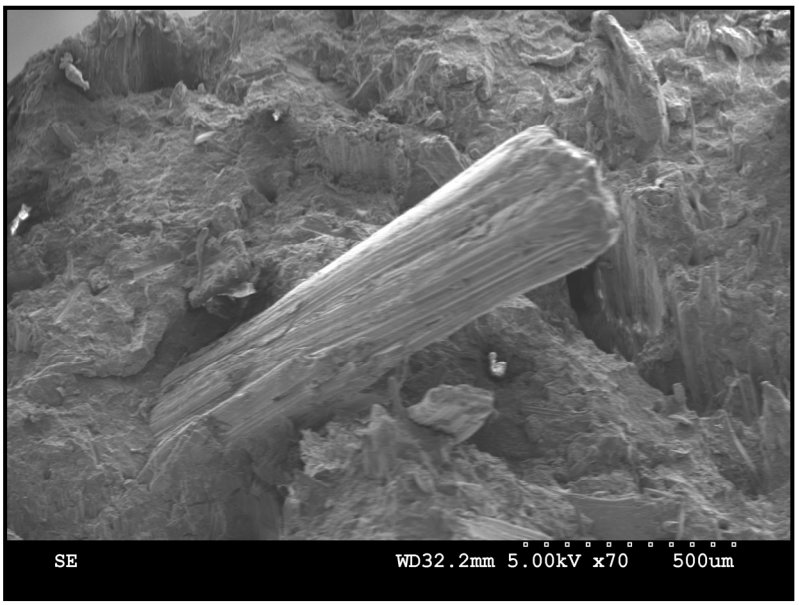


Figure 3.6 Surface de rupture d'un échantillon de l'essai de traction de la deuxième formulation

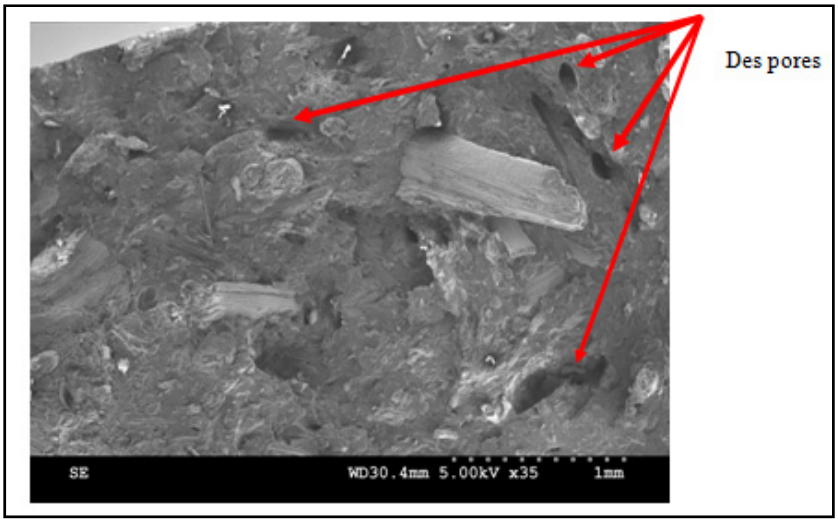


Figure 3.7 Mauvaise adhésion entre les fibres et la matrice

Les figures 3.6 et 3.7 présentent les surfaces de rupture des échantillons de la formulation 2 (F2) contenant que la matrice renforcée par les miscanthus. D'après ces figures, l'hypothèse que cette formulation présente une bonne adhésion entre les fibres et les matrices doit être remise en question. Ces figures présentent des fibres propres sans aucune trace de la matrice sur leur surface, cela montre que l'adhésion entre les fibres et la matrice n'est pas parfaite.

L'observation de la surface de rupture de cette formule par le MEB, figure 3.6 et 3.7, a aussi montré la présence des cavités et des pores situés généralement à l'interface entre les fibres et la matrice comme il est illustré surtout à la figure 3.8.

Ceci a déjà été observé par (Ragoubi et al., 2012) dans leur étude sur le Polypropylène mélangé avec des fibres de miscanthus. Ils retournent ce phénomène au

- ✓ Cisaillement lors du procédé de fabrication;
- ✓ La présence des bulles d'air ou d'eau à l'état gazeuse, emprisonnées lors du procédé de fabrication;
- ✓ L'augmentation de la viscosité lors de l'augmentation du teneur en fibres;
- ✓ Rétrécissement lors de l'opération du refroidissement.

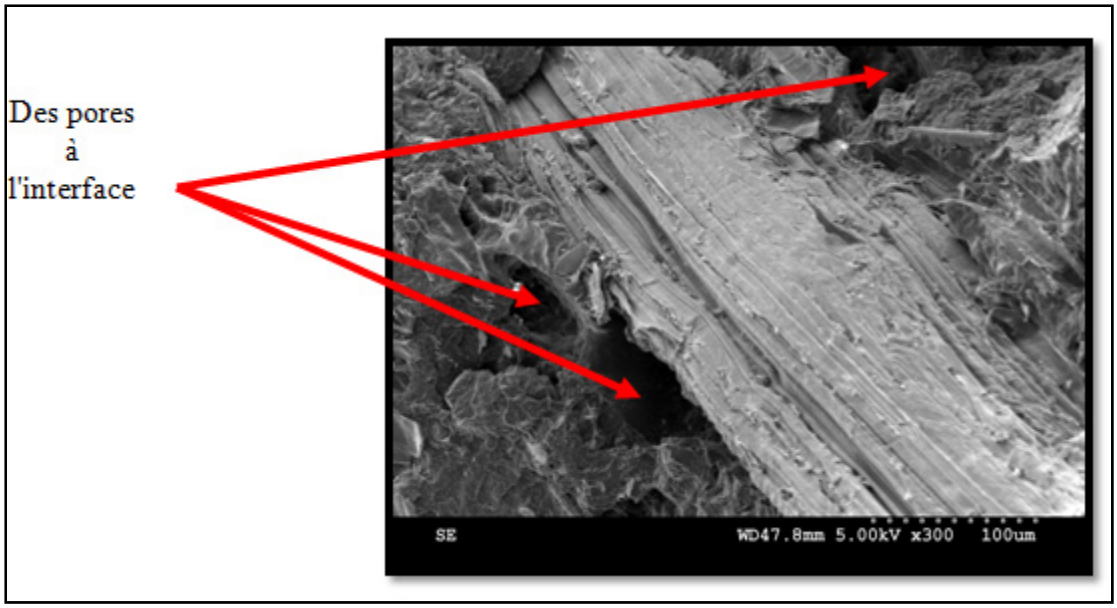


Figure 3.8 Des pores au niveau de l'interface

3.2.3 La troisième formulation

Les résultats expérimentaux de la troisième formule (F3) (le composite hybride), sont prometteurs. L'ajout du renfort mélangé entre biochar et miscanthus a augmenté la rigidité du matériau de 70% par rapport la rigidité de la matrice. C'est vrai que cette augmentation est inférieure à celle de la deuxième formulation, mais l'utilisation du biochar dans cette matrice a aidé non seulement à augmenter la rigidité, mais aussi à diminuer le poids du matériau. On a assuré également la couleur noire qui est nécessaire pour augmenter les chances du biochar à remplacer le talc, comme renfort du (PP), dans les applications automobiles.

L'utilisation du biochar aide aussi à éliminer l'odeur dégagée par le miscanthus. De plus, on prévoit qu'il est thermiquement plus stable que le miscanthus. Cette prédiction vient par analogie avec le biochar issu du bois qui est thermiquement plus stable que les fibres de bois (Das et al., 2015). Cette augmentation de la rigidité peut être dû à l'ajout du miscanthus seulement, car par analogie au biochar issu du bois, l'effet du biochar sur le polypropylène n'apparaît qu'à partir d'un seuil de 24wt% du biochar (Das et al., 2015). Cependant le renforcement du polypropylène par le biochar et le miscanthus au même temps n'a pas aidé à améliorer trop la résistance à la traction de la matrice. Néanmoins, la résistance à la traction est supérieure à celle de la première formulation qui est renforcée par le biochar seulement.

La stabilité de la résistance à la traction par rapport la matrice donne l'impression que l'adhésion est bonne entre les renforts et la matrice. Par contre, les observations microscopiques montrent que l'adhésion n'est pas parfaite. La figure 3.9 montre des pores sur la surface de rupture d'un échantillon de l'essai de traction de la troisième formulation.

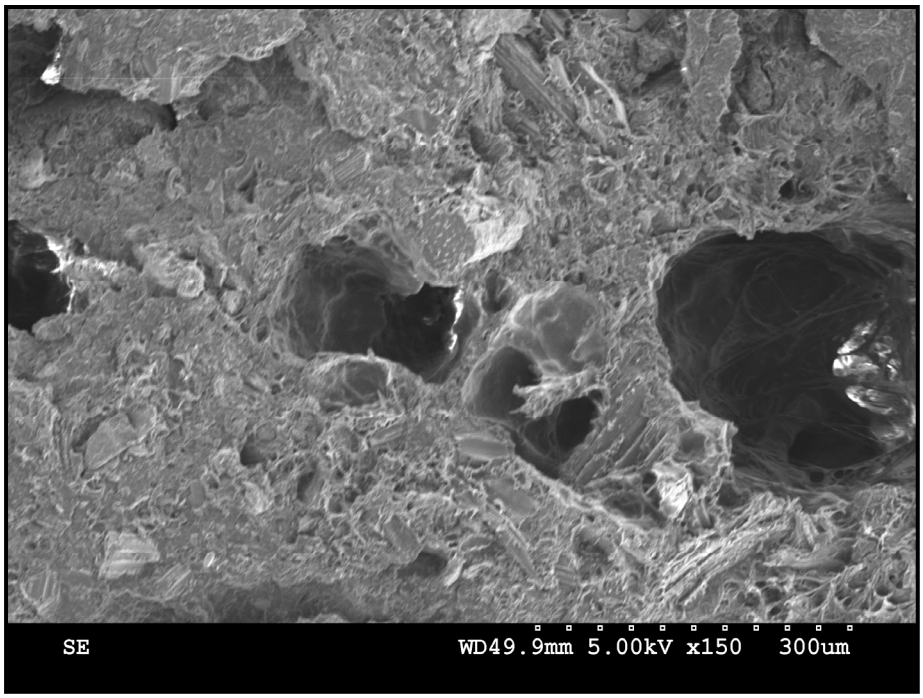


Figure 3.9 Des pores sur la surface de rupture d'un échantillon de l'essai de traction de la F3

Ces pores peuvent être dus au problème d'arrachement des fibres à cause de la mauvaise adhésion entre la matrice et les renforts.

La figure 3.10 présente un biochar avec une mauvaise adhésion interfaciale.

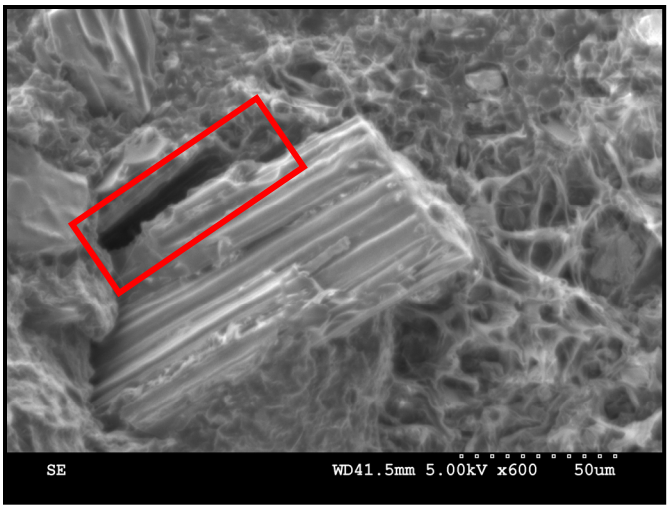


Figure 3.10 Mauvaise adhésion interfacile

Le problème de l'adhésion interfacile peut être résolu par l'ajout des agents de compatibilité comme le MAPP. Malgré que Das et al (2015) ont utilisé une quantité de MAPP de l'ordre de 4wt% avec du polypropylène renforcé de 6wt% du biochar et 30wt% du bois, ils ont trouvé des pores sur les surfaces de rupture des échantillons. En effet, ils suspectent à un problème de mise en forme, ce qui est le plus probable (Das et al., 2015).

3.3 Essai de Flexion

Le tableau 3.4 présente les résultats expérimentaux de l'essai de flexion à trois points.

Tableau 3.4 Résultats de l'essai de flexion à 3 points

	PP+POE+MAPP		Formulation1		Formulation2		Formulation3	
Échantillon	E_{flex} (MPa)	σ_f (MPa)	E_{flex} (MPa)	σ_f (MPa)	E_{flex} (MPa)	σ_f (MPa)	E_{flex} (MPa)	σ_f (MPa)
1	1581,4	47,98	2100	51,53	3235,8	59,34	2722,6	55,52
2	1669,8	50,37	2181,1	52,32	3035,3	57,04	2724,2	54,42
3	1655,4	50,12	2100	51,31	3204,6	58,51	2685,6	55,26
4	1649,5	49,28	2219	53,07	3088,3	58,81	2831,9	54,69
5	1633,3	49,08	2130,6	51,42	3177	58,61	2613,3	55,31
Moyenne	1637,88	49,37	2146,14	51,93	3148,2	58,46	2716,66	55,04
Écart-type	34,18	0,94	52,51	0,75	83,69	0,91	77,26	0,46
S%	2,09	1,91	2,45	1,45	2,66	1,55	2,84	0,84

La courbe de l'essai de flexion du ternaire PP/POE/MAPP est présentée dans la figure 3.11.

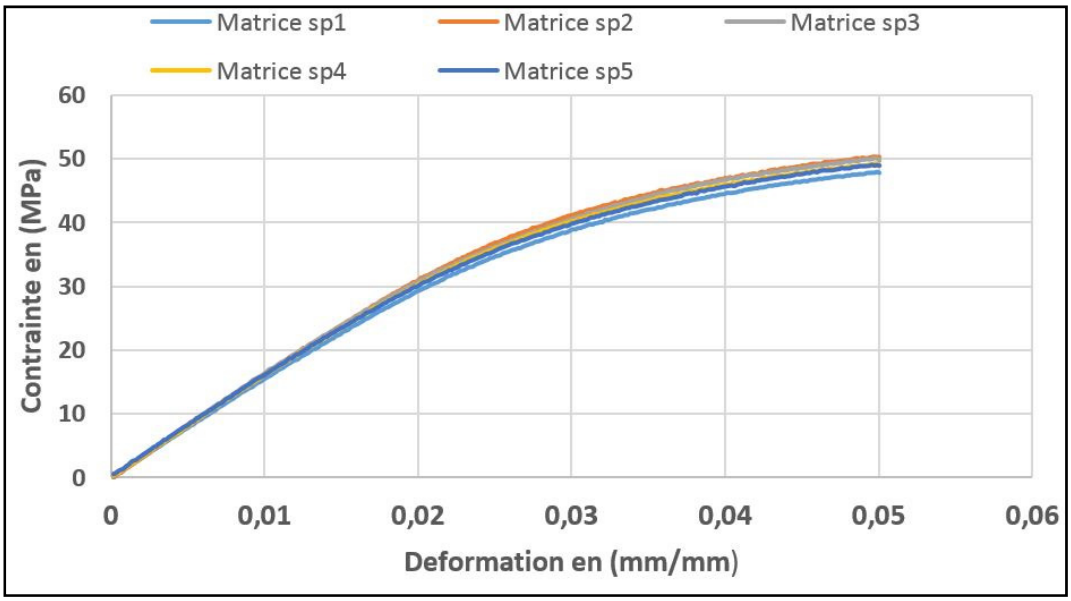


Figure 3.11 Courbe de flexion du mélange PP/POE/MAPP

La courbe de l'essai de flexion de la première formulation est présentée dans la figure 3.12

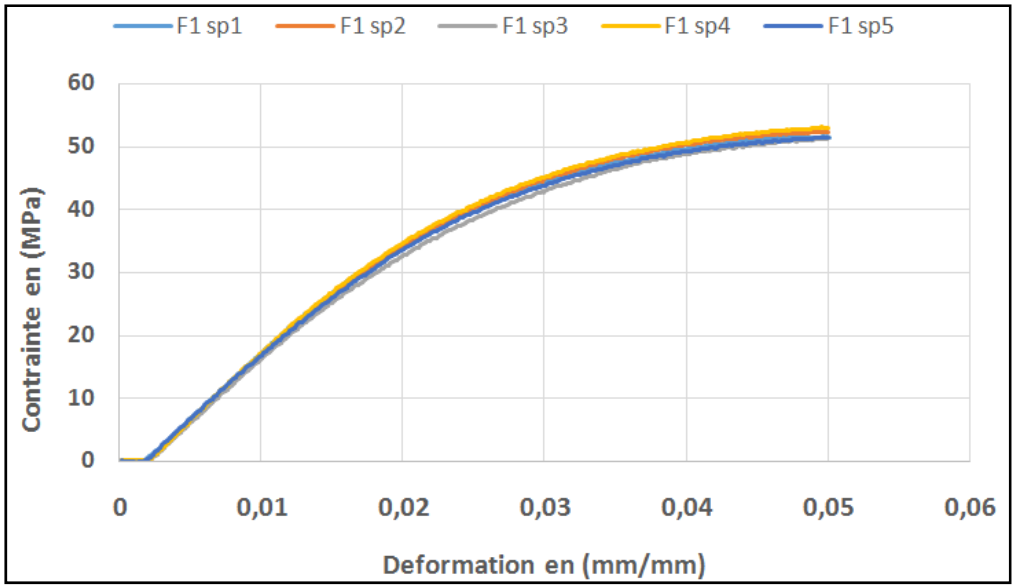


Figure 3.12 Courbe de flexion de la première formulation

La courbe de l'essai de flexion de la deuxième formulation est présentée dans la figure 3.13.

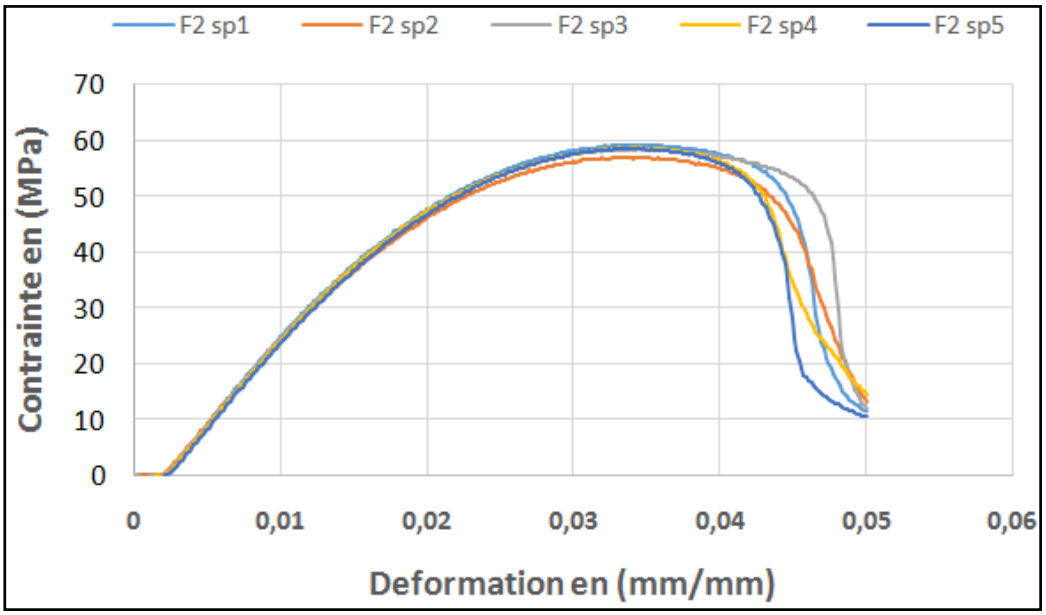


Figure 3.13 Courbe de flexion de la deuxième formulation

La courbe de l'essai de flexion de la troisième formulation est présentée dans la figure 3.14.

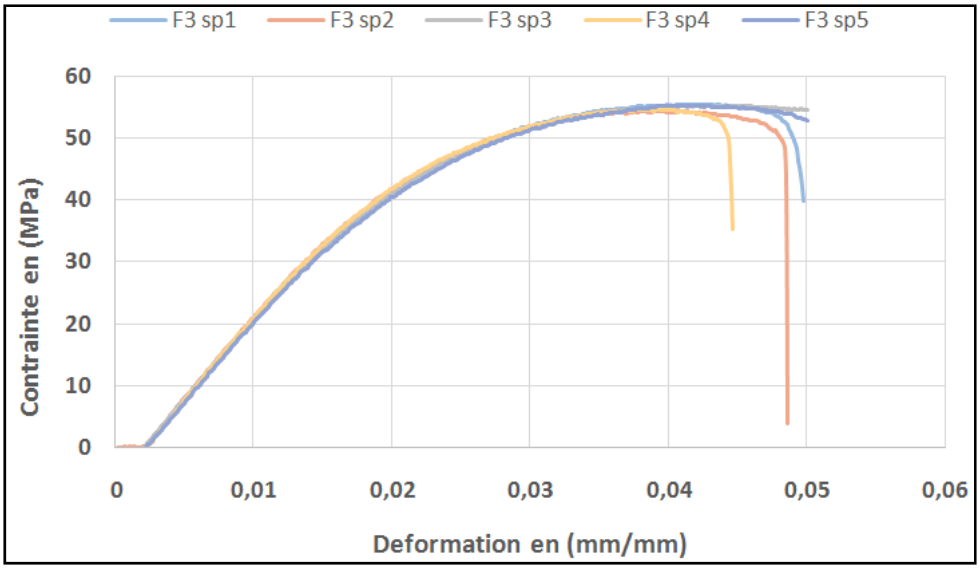


Figure 3.14 Courbe de flexion de la troisième formulation

On trouve presque les mêmes phénomènes qui ont été observés à l'essai de traction. La formulation 2 (F2) présente les meilleurs, module de flexion et de résistance en flexion. Dans les trois formulations, la résistance et le module de flexion augmentent en les comparant par rapport au ternaire PP/POE/MAPP. La résistance en flexion augmente de 5% lors de l'ajout de biochar avec le PP/POE/MAPP. L'augmentation de la résistance en flexion du composite lors de l'ajout du biochar a été trouvée aussi par Ogunsona et al (Ogunsona et al., 2017). Ils retournent cette augmentation à la bonne résistance du biochar à la compression lors du test de flexion. Le module en flexion du PP/POE/MAPP a augmenté de 30% par l'ajout de biochar (F1). La résistance en flexion de la formulation 2 (F2) est la plus élevée parmi les trois formulations. Le miscanthus augmente la résistance de flexion de 18% par rapport la résistance du ternaire PP/POE/MAPP. Cela peut être expliqué par l'adhésion partiellement bonne entre les fibres de miscanthus et la matrice. L'augmentation du module de flexion est de 92% par rapport la matrice utilisée et de 57% par rapport le polypropylène utilisé pur. Cette augmentation présente une bonne concordance avec les résultats trouvés dans la littérature. Murdy et al (2015) ont trouvé un module de flexion de l'ordre de 3 GPa du polypropylène renforcé par 25wt% de miscanthus (augmentation de 55% par rapport le PP) (Murdy et al., 2015). Généralement, une augmentation de la teneur en poids de fibres entraîne l'augmentation de la rigidité. Le même module de flexion trouvé pour 25wt% et 30wt% de miscanthus

renforçant le polypropylène, peut être expliqué par la présence du POE dans la matrice qui diminue la rigidité du matériau. La formulation 3 (F3) présente un module de flexion et une résistance supérieure à la première formulation (F1), mais toujours inférieure à la deuxième formulation (F2). Le remplacement de 15wt% de biochar par 15wt% de miscanthus a augmenté la rigidité en flexion de 60% par rapport au ternaire PP/POE/MAPP. C'est le même phénomène remarqué dans l'essai de traction. Cela revient à la rigidité du miscanthus qui est plus supérieure que la rigidité du biochar. La résistance a aussi augmenté légèrement de 11% par rapport au ternaire PP/POE/MAPP.

3.4 Essai d'impact Izod

Les résultats de l'essai de résilience Izod sans entaille sont présentés dans le tableau 3.5.

Tableau 3.5 Synthèse des résultats de l'essai de résilience Izod sans entaille en J/m

Échantillon	PP/POE/MAPP	Formulation1	Formulation2	Formulation3
1	586,8	321,07	101,93	151,77
2	660,83	303,88	126,91	132,68
3	926,83	281,07	140,94	134,32
4	933,54	288,47	108,74	138,43
5	1057,67	273,33	146,16	126,91
6	703,78	299,56	146,47	155,94
Moyenne	856,57	294,56	128,53	140
Écart type	150,31	17,23	19,43	11,42
S%	17,55	5,85	15,12	8,16

L'écart type relatif montre une variation importante de la résilience au niveau du ternaire PP/POE/MAPP et la formulation 2 (F2), par rapport à celui des autres formulations.

Généralement, l'incorporation d'une matrice polymérique avec des renforts et des charges diminue sa résilience. En effet, les inclusions diminuent la ductilité de la matrice et empêchent

sa déformation plastique en restreignant les chaînes de polymères (Ogunsona et al. 2017). Ce phénomène apparaît dans les trois formulations étudiées. Cette diminution de résistance au choc varie d'une formulation à une autre. La formulation 1 (F1) résiste mieux au choc par rapport les deux autres formulations. En effet l'ajout de 30wt% de biochar (F1) à la matrice a diminué de 65% la résistance au choc du PP/POE/MAPP. La formulation 2 (F2) est la moins résistante au choc, elle présente une diminution de 85% par rapport à la résistance au choc du ternaire PP/POE/MAPP.

La formulation 3 (F3) résiste au choc légèrement plus que la formulation 2 (F2). La diminution dans cette formulation est de l'ordre de 83%. Les résultats expérimentaux montrent que la formulation 1 (F1) présente une résistance au choc plus importante que la formulation 2 (F2). Cela suggère que le biochar nécessite une énergie pour décoller de la matrice, supérieure à celle du miscanthus. Ceci peut être confirmé par la présence de plusieurs micro-vides sur la surface de rupture des échantillons contenant de miscanthus. Par contre, la première formulation (F1) contenant que de biochar contient moins de micro-vides. Les figures 3.15, 3.16, 3.17 et 3.18 présentent les surfaces de rupture des échantillons de l'essai d'impact de la matrice et des trois formulations.

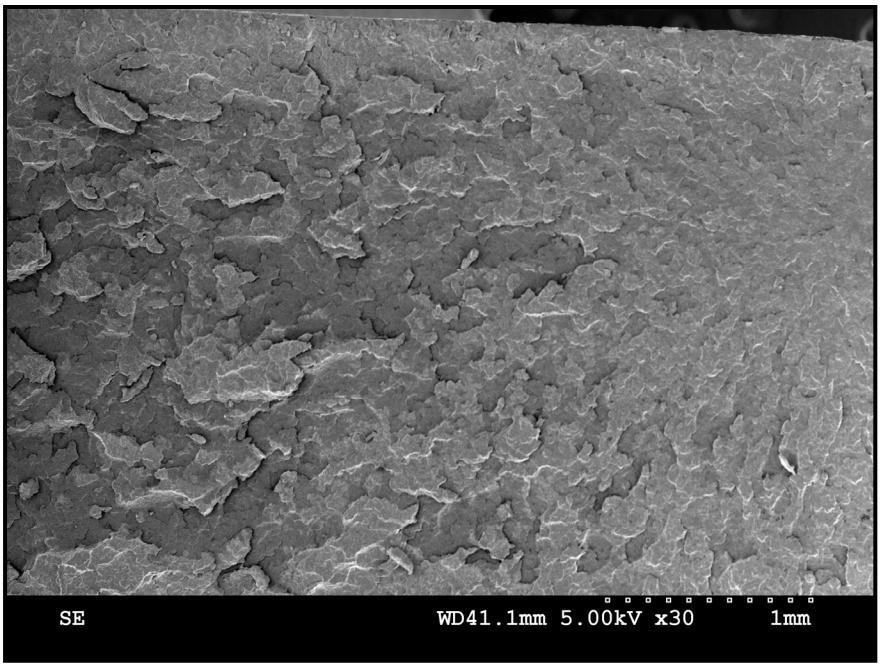


Figure 3.15 Étude microscopique de la surface de rupture d'un échantillon de PP/POE/MAPP de l'essai d'impact

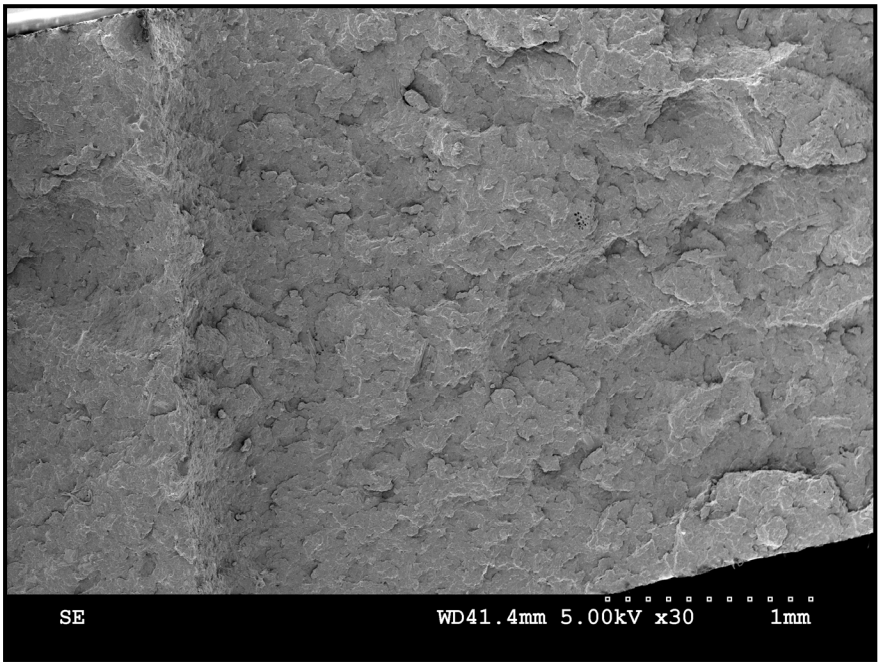


Figure 3.16 Étude microscopique de la surface de rupture d'un échantillon de la F1 de l'essai d'impact

Figure 3.17 Étude microscopique de la surface de rupture d'un échantillon de la F2 de l'essai d'Impact

Figure 3.18 Étude microscopique de la surface de rupture d'un échantillon de la F3 de l'essai d'Impact

Jun et al (Jun et al., 2005) ont trouvé que l'ajout du POE favorise l'adhésion de l'interface entre la charge et la matrice. Cela est remarqué par les ligaments qui apparaissent sur la surface de

rupture de la matrice. Ces ligaments entourent les particules lorsque la matrice est chargée. Ce qui augmente l'énergie nécessaire pour le décollage des particules de la matrice. Par conséquent, la résilience du composite augmente. Alors, le deuxième constat qui peut être fait est que la même quantité du POE n'a pas le même effet sur l'amélioration de la résilience de la matrice renforcée par le miscanthus ou le biochar. De ce fait, la diminution de la résilience de la deuxième formulation (F2) est peut-être due à la phase qui sépare les fibres de la matrice, vu l'insuffisance de la quantité de l'élastomère. Pour la formulation 3 (F3), malgré la présence de 15wt% de biochar, elle a présenté une résilience presque égale à celle de la formulation 2 (F2). Ogunsona et al (2017) suggèrent que la résistance à l'impact dépend de la forme des particules de biochar (Ogunsona et al., 2017). En effet, les particules de forme sphérique assurent une résistance au choc supérieure à celle des particules avec une autre forme. En réalité, lorsque la propagation de la fissure atteint la particule sphérique, elle change de direction et passe aux alentours de cette particule. Ce phénomène rend la pointe de la fissure ronde ce qui empêche la propagation rapide de la fissure. Par conséquent, le matériau devient plus capable d'absorber l'énergie (Ogunsona et al., 2017).

La diminution de la résistance au choc de la deuxième formulation est peut-être due à la zone de concentration de contraintes, créée par les fibres, et qui nécessite moins d'énergie pour initier un crack (Bajpai, Singh & Madaan, 2012). Bajpao et al (2012) ont trouvé que la résilience du composite renforcé par des fibres naturelles dépend de la nature des fibres utilisées. En effet, la différence entre les fibres réside au niveau de l'énergie nécessaire pour se retirer de la matrice.

3.5 Comparaison avec le Polypropylène renforcé par le talc

La figure 3.19 illustre les résultats expérimentaux du test de traction des trois formulations, les résultats calculés théoriquement de la matrice PP/POE et un exemple d'un matériau commercialisé qui consiste à un PP renforcé par 30wt% du talc. (RTP Company RTP 132 UV) (voir ANNEXE V).

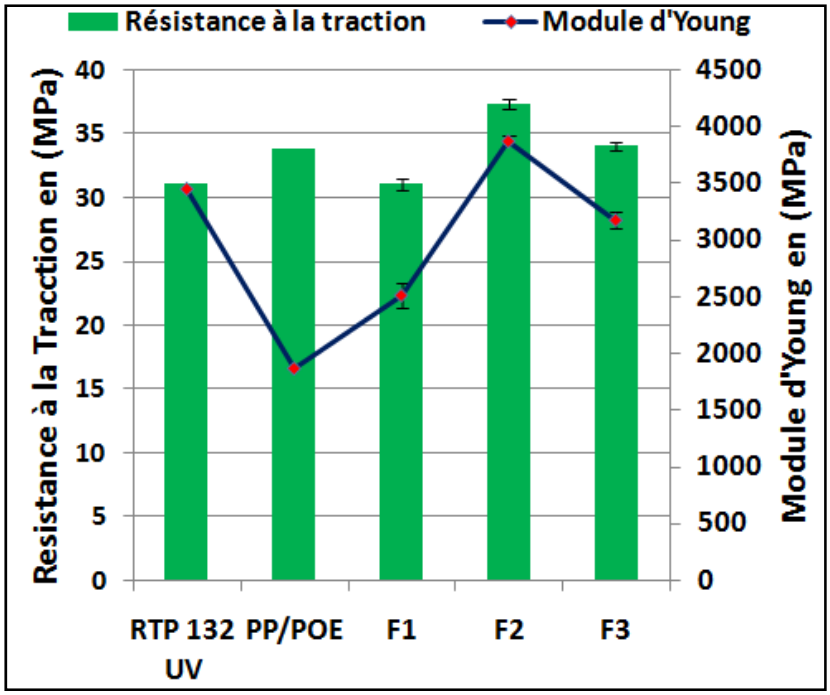


Figure 3.19 Comparaison des propriétés en traction entre les trois formulations et RTP 132 UV

En comparant les propriétés mécaniques en traction des trois formulations avec le matériau commercialisé, nous remarquons que la deuxième formulation (F2) contenant PP+30wt% de miscanthus présente des propriétés en traction supérieures à celle du matériau commercialisé. La troisième formulation (F3) présente une résistance à la traction plus supérieure à celle du RTP 132 UV mais une rigidité inférieure de 8% par rapport la rigidité du PP+30wt% talc.
La première formulation (F1) présente une résistance à la traction similaire à celle du matériau commercialisé, mais une rigidité plus faible.

La figure 3.20 présente une comparaison entre les résultats expérimentaux des propriétés en flexion des trois formulations et le matériau commercialisé. La même tendance que l'essai de traction a été observée, seulement la deuxième formulation présente des propriétés supérieures aux propriétés du matériau commercialisé.

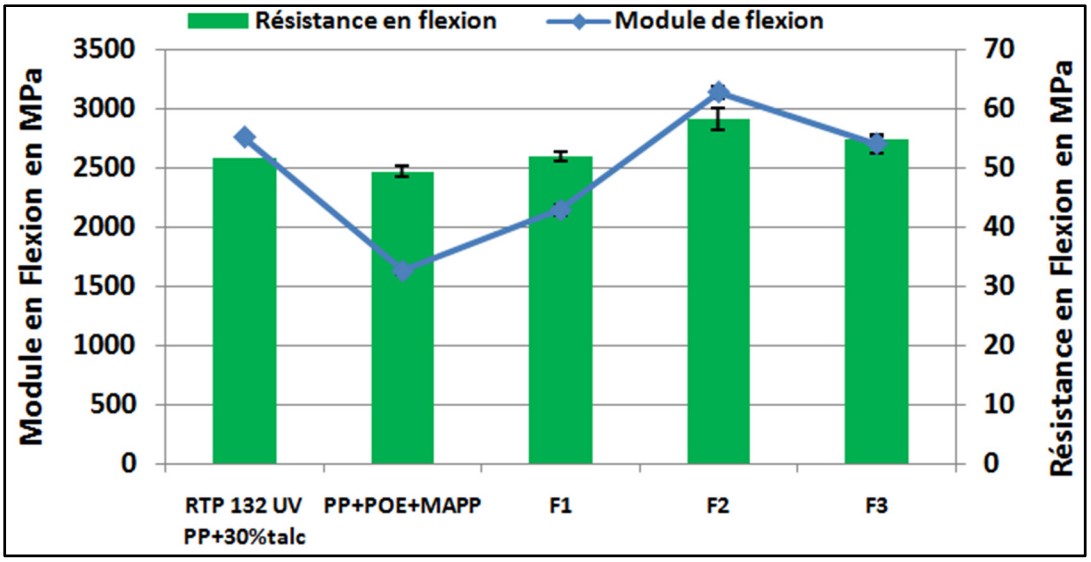


Figure 3.20 Comparaison des propriétés en flexion des trois formulations avec le RTP 132 UV

La figure 3.21 présente une comparaison des résiliences entre les différentes formulations et le PP renforcé par 30wt% du talc. Pour l'essai de résilience Izod sans entaille, toutes les formulations ont présenté des propriétés à l'impact inférieures à celle du matériau commercialisé.

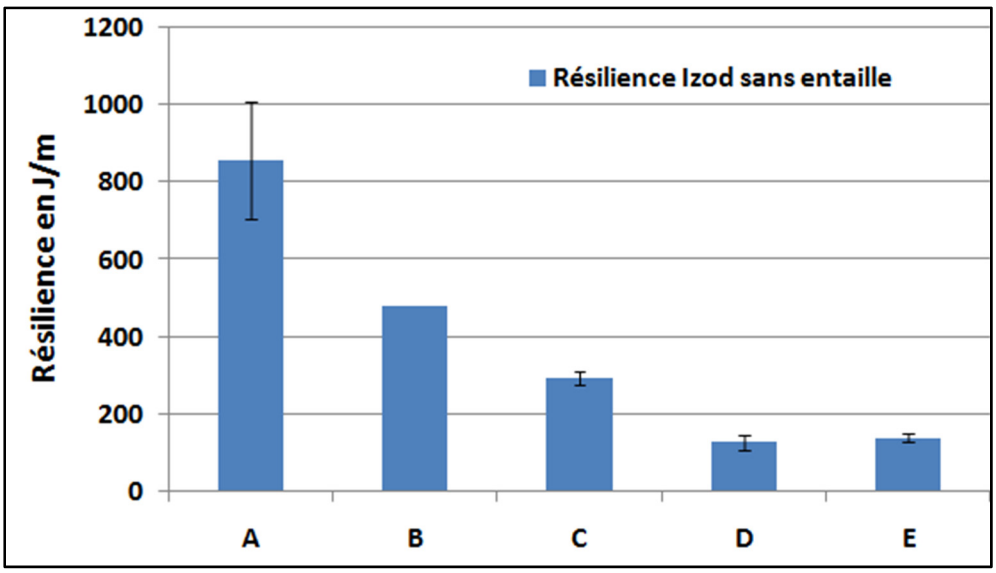


Figure 3.21 Résilience des différentes formulations, A: PP/POE/MAPP B: RTP 132 UV, PP+30wt% Talc, C: F1, D: F2, E: F3

3.6 Récapitulation et recommandation

Le tableau 3.6 présente une comparaison entre les trois formulations en vue de choisir laquelle est la plus potentielle à remplacer le matériau commercialisé.

Tableau 3.6 Comparaison des propriétés des 3 formulations

	Rigidité	Résistance au choc	La couleur noire	Odeur
	Référence: matrice		Référence: RTP 132 UV	
F2 (miscanthus)	+++	---	-	-
F1 (biochar)	+	-	+	+
F3 (hybride)	++	--	+	+

En récapitulant, le miscanthus améliore la rigidité de la matrice et peut atteindre des valeurs supérieures à la rigidité assurée par des renforts de ressources minérales.
Par contre au niveau de la résistance au choc il diminue amplement la résistance au choc de la matrice.

L'application actuelle de ces biocomposites est prévue à l'intérieur des automobiles. Cette application nécessite de respecter deux autres critères qui sont la couleur noire, et l'odeur.
Malheureusement, le PP renforcé par le miscanthus n'assure pas la couleur noire (figure 3.22), de plus il présente une odeur ce qui empêche l'utilisation de ce renfort seul avec la matrice pour remplacer le PP+talc.

Figure 3.22 Les trois formulations: F1, F2 et F3

Le biochar améliore la rigidité du PP seulement, mais pas assez pour remplacer le talc. En outre, il peut maintenir une résistance au choc supérieur à celle maintenue par le miscanthus. De plus, il assure la couleur noire et il n'ajoute aucune odeur pour le composite. Le composite hybride (F3) présente des propriétés mécaniques (la rigidité et la résistance à la traction et à la flexion) inférieures aux propriétés de la deuxième formulation (F2) et supérieures à la première formulation (F1). De plus, il assure la couleur noire naturellement et ne présente aucune odeur malgré la présence des fibres de miscanthus.

Alors le composite hybride est la solution la plus prometteuse pour atteindre les propriétés mécaniques ciblées.

Quelques recommandations afin d'atteindre les propriétés ciblées:

- Après l'étude des surfaces de rupture des échantillons des différents tests, on n'a pas trouvé le phénomène d'agglomération des fibres ce qui veut dire que c'est possible d'augmenter la quantité des renforts tout en gardant un poids inférieur au poids du PP+Talc;

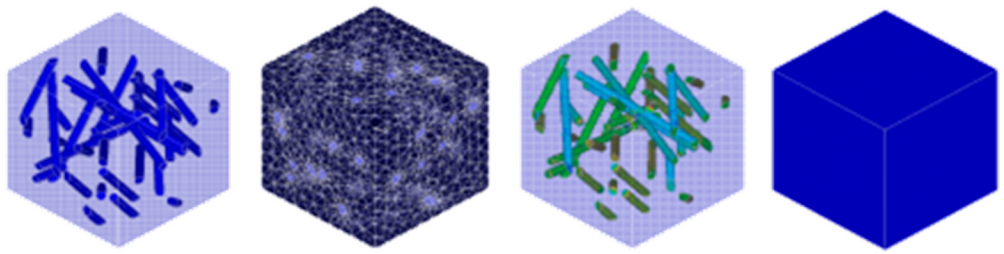
- Diminuer la taille du biochar: une diminution de la taille du biochar permet d'améliorer les surfaces de contact entre les renforts et la matrice ce qui améliore la résistance en traction et en flexion (Behazin et al., 2017a);
- L'utilisation des fibres naturelles plus rigides que le miscanthus comme les fibres de chanvre peut améliorer la rigidité du composite;
- Afin d'améliorer la résistance au choc du composite, une augmentation de la quantité du POE est requise. L'augmentation de la quantité du POE va diminuer la rigidité du composite. Cette diminution peut être récompensée par l'augmentation de la quantité du MAPP. Ce qui empêche le phénomène d'encapsulation qui diminue la rigidité et améliore l'adhésion interfaciale entre les renforts et la matrice. Ainsi les propriétés mécaniques du composite augmentent. Par conséquent, une étude sur la quantité optimale entre POE et le MAPP doit être réalisée pour assurer un bon compromis entre rigidité et résistance au choc.

CHAPITRE 4

MODÉLISATION DES MODULES D'YOUNG DES MATÉRIAUX COMPOSITES À DISTRIBUTION ALÉATOIRE

4.1 Homogénéisation numérique par la méthode des éléments finis

La technique d'homogénéisation par éléments finis consiste principalement à trouver un milieu globalement homogène équivalent au composite d'origine (Kari, Berger, Rodriguez-Ramos & Gabbert, 2007a). Les étapes principales de cette technique sont d'abord de générer le VER, puis le maillage de ce volume, ensuite le calcul par la méthode des éléments finis des contraintes et des déformations macroscopiques, et enfin le calcul des propriétés apparentes du volume. La figure 4.1 présente un schéma descriptif de ces étapes.



(a) Génération des VE (b) Maillage (c) Solution FE (d) Propriétés apparentes

Figure 4.1 Homogénéisation numérique par la méthode des éléments finis
Tirée de Moussaddy (2013, p70)

Les propriétés élastiques des volumes de taille inférieure à celui du VER sont appelées les propriétés apparentes, et les propriétés du VER sont les propriétés effectives (Huet, 1990).
Afin de modéliser les propriétés effectives du composite étudié, une échelle de modélisation devrait être spécifiée. L'échelle choisie pour ce travail est l'échelle mésoscopique où le matériau est constitué de fibres et de matrice, parfaitement liés. L'interface fibre-matrice n'est pas prise en compte dans ce modèle.

Les autres hypothèses adoptées dans le modèle présenté sont les suivantes :

- Le matériau présente un comportement isotrope transversalement (plan 1-2);
- Le comportement des fibres et de la matrice est isotrope.

4.1.1 Génération des volumes élémentaires

Pour générer des volumes contenant des fibres à distribution aléatoire, plusieurs algorithmes sont évoqués dans la littérature, à savoir:

- Molecular dynamic method;
- Voronoi tessellation scheme;
- Monte carlo method;
- RSA (Random sequential adsorption);
- Image reconstruction technique.

Le problème principal de ces algorithmes est la difficulté de générer des volumes avec une grande teneur en volume de fibres et un rapport d'aspect (Longueur de l'inclusion/ diamètre) important. Afin de générer les volumes élémentaires, un logiciel de génération et de calcul des éléments finis a été choisi. Le logiciel Digimat permet d'atteindre les seuils de teneur en volume des fibres avec le rapport d'aspect souhaité et avec la morphologie des fibres des matériaux étudiés. Digimat-FE est un logiciel qui permet de créer des volumes élémentaires contenant des fibres à distribution aléatoire. L'annexe VI décrit l'algorithme suivi par le Digimat pour la création de ces volumes élémentaires.

Avant de commencer la génération des volumes, la définition des matériaux (fibres et matrice) est requise. Dans ce cas, le biocomposite à modéliser est le biopolymère " PHBV/PBAT " connu sous un nom commercial (ENMAT5010P) renforcé par 30wt% des fibres de switchgrass (Nagarajan et al, 2013).

La définition des matériaux consiste à introduire:

- La loi de comportement: les propriétés à modéliser sont les constantes élastiques du matériau, alors la loi de comportement choisie des composants est "Elastic";
- Isotropie: La deuxième chose à indiquer est si le comportement est isotrope ou transversalement isotrope. Nous abordons l'hypothèse d'isotropie pour les fibres et la matrice;
- La densité des fibres et de la matrice;
- Le module d'Young;
- Le coefficient de poisson.

Après la détermination de la phase de l'inclusion, les caractéristiques morphologiques de switchgrass doivent être introduites par le téléchargement d'un fichier "Parasolid" contenant la forme de la fibre. La figure 4.2 présente la morphologie des fibres de switchgrass après le procédé de fabrication. Le tableau 4.1 présente les dimensions des fibres de switchgrass.
Cette morphologie est utilisée par Nagrajan et al (Nagrajan et al., 2013).

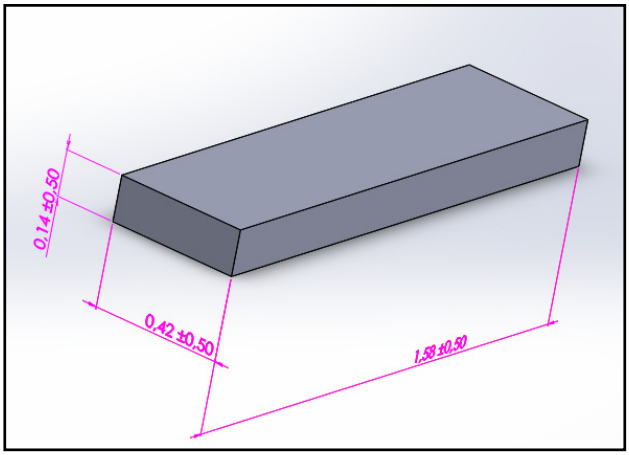


Figure 4.2 Morphologie des fibres de switchgrass après le procédé de fabrication

Tableau 4.1 Les dimensions des fibres de switchgrass

Longueur en mm	Largeur en mm	Épaisseur en mm
1,58 ± 0.5	0,42 ± 0.5	0,14 ± 0.5

Après la détermination des caractéristiques morphologiques des switchgrass, une distribution aléatoire peut être générée en 2D ou en 3D (figure 4.3).

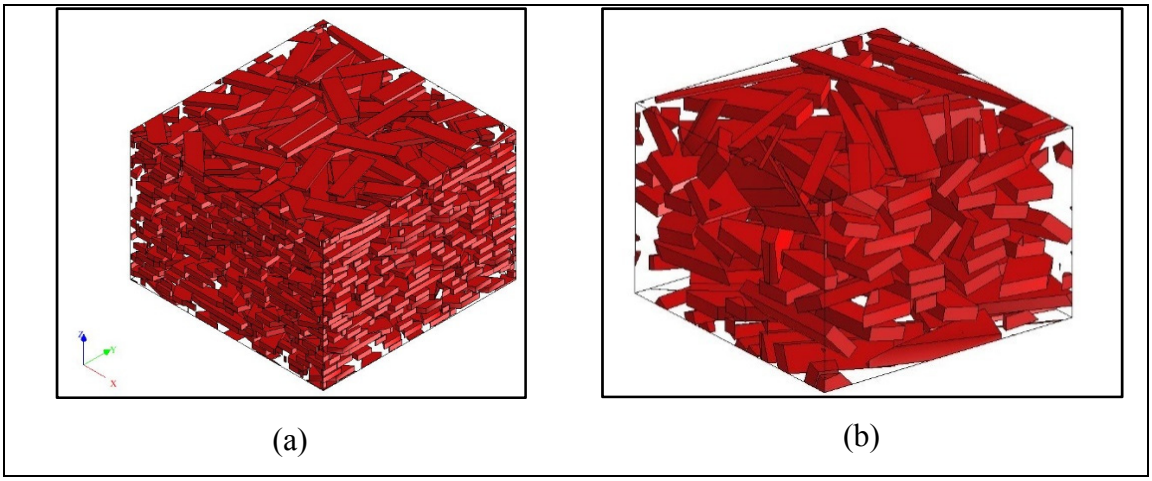


Figure 4.3 (a) Dispersion 2D, (b) Dispersion 3D

Avant de démarrer la génération de la géométrie, un ensemble de paramètres qui sont illustrés dans la figure 4.4 doivent être précisés. Parmi ces paramètres, la distance permise minimale entre les inclusions, le volume minimal d'une fibre la périodicité de la géométrie, le programme de génération de la géométrie...

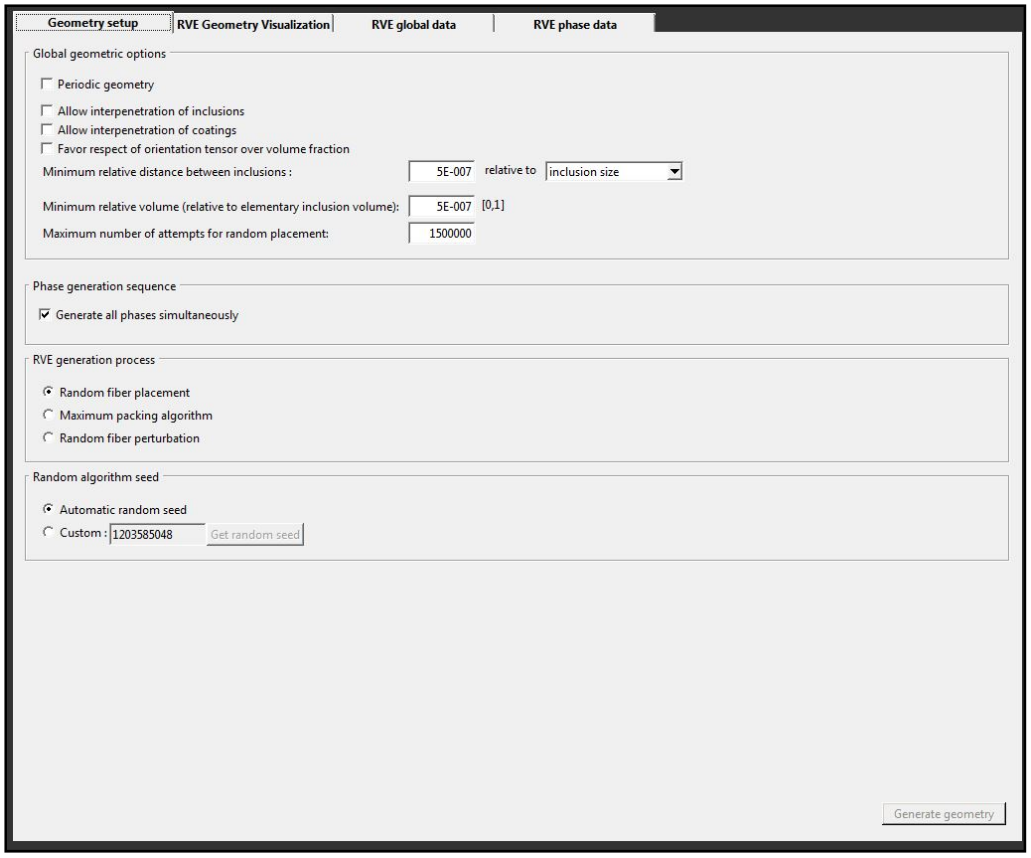


Figure 4.4 Paramètres de la géométrie

La géométrie générée peut être visualisée sous l'onglet "RVE Geometry Visualization" (figure 4.5). Le temps de la génération de la géométrie, le nombre de fibres utilisé et la teneur en volume atteinte sont présentés sous l'onglet " RVE global data" qui est illustré par la figure 4.6. Pour plus de détails sur la distribution des fibres, des informations peuvent être trouvées sous l'onglet RVE phase data, figure 4.7.

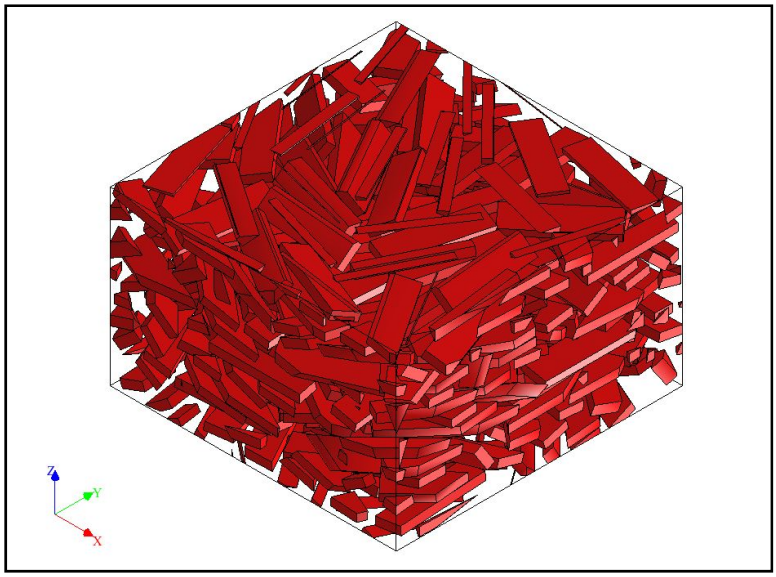
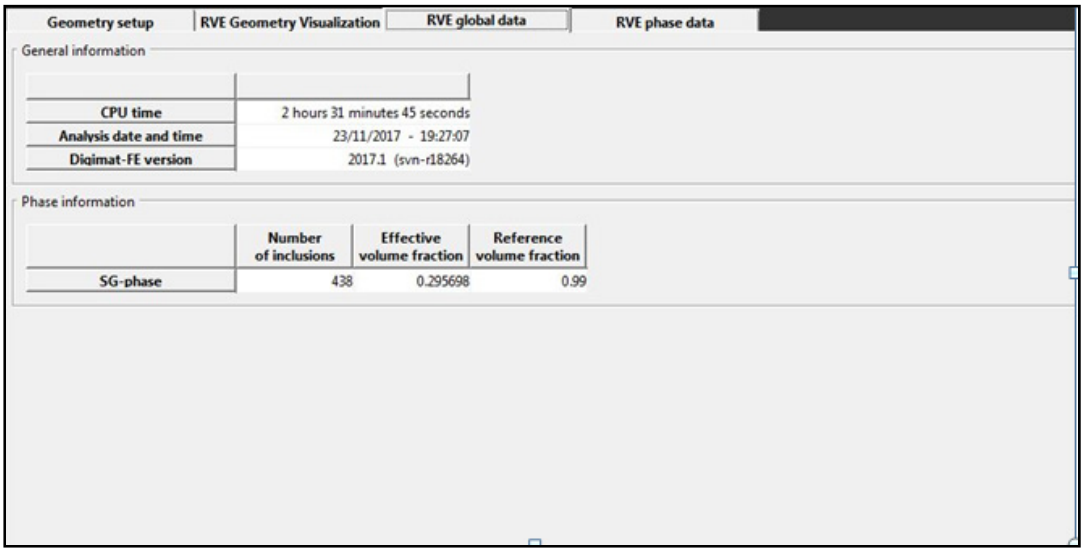


Figure 4.5 Exemple de Géométrie générée par Digimat



Geometry setup | RVE Geometry Visualization | RVE global data | RVE phase data

General information

CPU time	2 hours 31 minutes 45 seconds
Analysis date and time	23/11/2017 - 19:27:07
Digimat-FE version	2017.1 (svn-r18264)

Phase information

	Number of inclusions	Effective volume fraction	Reference volume fraction
SG-phase	438	0.295698	0.99

Figure 4.6 RVE global data

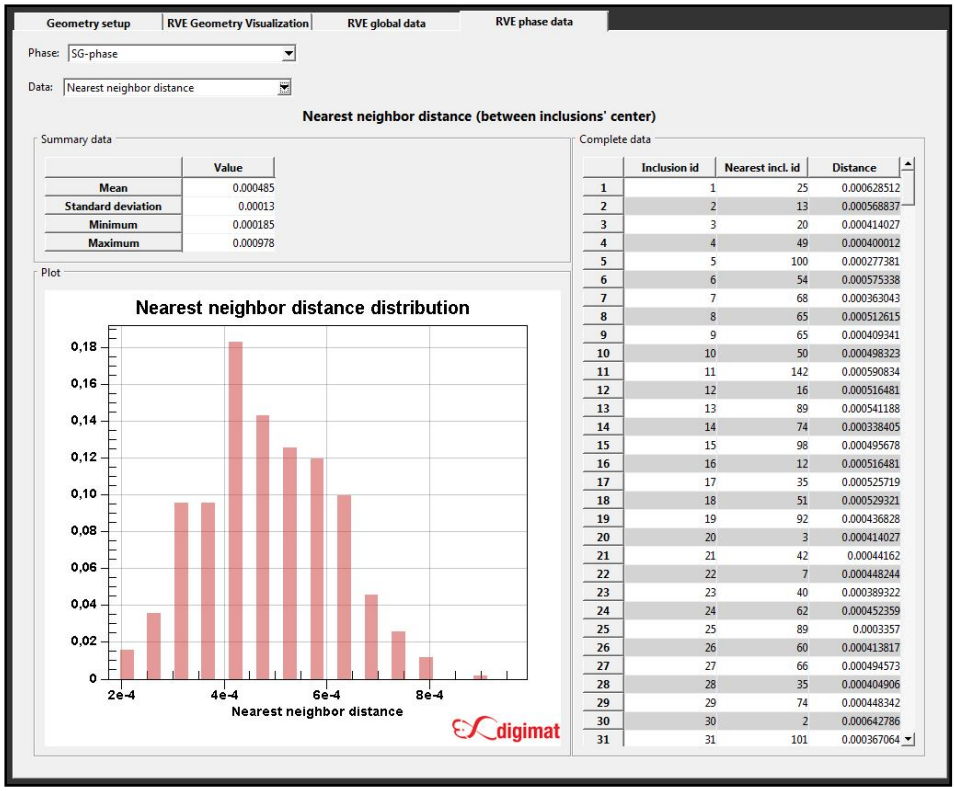


Figure 4.7 Informations sur le V.E.R

4.1.2 Les paramètres d'entrées

4.1.2.1 Les propriétés mécaniques des fibres et de la matrice

Le pré-mélange PHBV/PBAT est disponible sous le nom commercial ENMAT® 5010 P, dont la composition est comme suit: 45wt% PHBV et 55wt% ECOFLEX® (PBAT).

Le tableau 4.2 présente les propriétés de la fibre du switchgrass et de la matrice (PHBV/PBAT) trouvées dans la littérature (Nagarajan et al., 2013).

Tableau 4.2 Propriétés mécaniques des fibres et de la matrice (Tirée de Nagarajan et al., 2013)

	Switchgrass	Matrice (PHBV/PBAT)
Module d'Young	9 ±2,7 GPa	1,16 GPa
Densité	1,24 g/cm^3	1,23 g/cm^3

Les coefficients de poisson de ces deux matériaux sont nécessaires pour la modélisation du module d'Young de l'ensemble du composite.

4.1.2.2 Détermination du coefficient de poisson des fibres de switchgrass et de la matrice

Miao et al (Miao, Phillips, Grift & Mathanker, 2015) ont trouvé que le coefficient de poisson des switchgrass est entre 0,2 et 0,3. Dans cette étude, le coefficient de poisson du switchgrass a été choisi égal à 0,22.

Le coefficient de poisson de la matrice n'est pas disponible dans la littérature, par contre on trouve les coefficients de poissons des constituants de la matrice (PHBV et PBAT). Les valeurs sont présentées dans le tableau 4.3.

Tableau 4.3 Coefficient de poissons de PHBV et PBAT

	Coefficient de poisson	Référence	Densité g/cm^3
PHBV	0,35	(Jaffray, 2015)	
PBAT (Ecoflex)	0,49	(Hutchison et al., 2008)	1,25 MatWeb (http://www.matweb.com)

Alors le coefficient de poisson de la matrice peut être calculé en utilisant la méthode analytique à travers l'équation 4.1. (Tirée de Ngô, 2016).

$$\vartheta_{matrice} = \vartheta_{PBAT} \times v_{PBAT} + \vartheta_{PHBV} \times v_{PHBV} \tag{4.1}$$

Avec $\vartheta_{matrice}$: Coefficient de poisson de la matrice

ϑ_{PBAT}:Coefficient de poisson de PBAT

ϑ_{PHBV}: Coefficient de poisson de PHBV

v_{PBAT}: La teneur en volume de PBAT

v_{PHBV}: La teneur en volume de PHBV

Or les éléments inconnus dans cette équation sont les teneurs en volume des deux composants. Alors il suffit de déterminer l'une des deux teneurs en volume, pour déterminer le coefficient de poisson de la matrice, en utilisant l'équation 4.2. (Tirée de Ngô, 2016).

$$v_{PBAT} = w_{PBAT} \times \frac{\rho_{matrice}}{\rho_{PBAT}} \tag{4.2}$$

$$v_{PBAT} = 0{,}5412$$

avec ρ_{PBAT}: La densité de PBAT

$\rho_{matrice}$: La densité de mélange PBAT+PHBV

Le coefficient de poisson donné par la matrice en utilisant l'équation 4.1, est égal à 0,42.

4.1.3 Le calcul des propriétés apparentes

Le Digimat comporte la fonction " Automatic properties evaluation " qui permet de calculer les constantes élastiques du volume généré automatiquement. Le solveur utilisé pour le calcul est le Digimat-FE.

La méthode de calcul du tenseur des propriétés apparentes $\tilde{C}$ d'un volume généré est effectuée selon la même méthodologie expliquée dans la thèse de M. Moussaddy (Moussaddy, 2013).

Le tenseur des propriétés apparentes $\tilde{C}$ est calculé en utilisant l'équation (4.3).

$$\boldsymbol{\Sigma} = \widetilde{\boldsymbol{C}} : \boldsymbol{K} \tag{4.3}$$

avec $\boldsymbol{\Sigma}$ est le tenseur des contraintes macroscopiques, il est défini par

$$\boldsymbol{\Sigma} = < \sigma(x) >_V \tag{4.4}$$

$\boldsymbol{K}$ est le tenseur des déformations macroscopiques qui est défini par l'équation 4.5

$$\boldsymbol{K} = < \varepsilon(x) >_V \tag{4.5}$$

où σ et ε présentent respectivement le champ de contrainte local et le champ de déformation local.

$$\boldsymbol{\Sigma} = < \sigma(x) >_V = \frac{1}{V}\int_V \sigma(x) dV \tag{4.6}$$

$$\boldsymbol{K} = < \varepsilon(x) >_V = \frac{1}{V}\int_V \varepsilon(x) dV \tag{4.7}$$

Les " < > " présentent la moyenne volumique du champ discrétisé.
Pour les éléments discrétisés le calcul des tenseurs de déformation et de contrainte est définis par :

$$\boldsymbol{\Sigma} =< \sigma_{\boldsymbol{i}} >_V = \frac{1}{V}\sum V_i\, \sigma_i \tag{4.8}$$

$$\boldsymbol{K} =< \varepsilon_{\boldsymbol{i}} >_V = \frac{1}{V}\sum V_i\, \varepsilon_i \tag{4.9}$$

avec V_i, $\sigma_{\boldsymbol{i}}$ et $\varepsilon_{\boldsymbol{i}}$ sont respectivement le volume, la contrainte et la déformation associés à l'élément fini i. Pour mieux clarifier le calcul des propriétés apparentes $\tilde{C}$, l'équation 4.3 s'écrit :

$$\begin{bmatrix} \Sigma_{11} \\ \Sigma_{22} \\ \Sigma_{33} \\ \Sigma_{12} \\ \Sigma_{13} \\ \Sigma_{23} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \tilde{C}_{1111} & \tilde{C}_{1122} & \tilde{C}_{1133} & \tilde{C}_{1112} & \tilde{C}_{1113} & \tilde{C}_{1123} \\ \tilde{C}_{2211} & \tilde{C}_{2222} & \tilde{C}_{2233} & \tilde{C}_{2212} & \tilde{C}_{2213} & \tilde{C}_{2223} \\ \tilde{C}_{3311} & \tilde{C}_{3322} & \tilde{C}_{3333} & \tilde{C}_{3312} & \tilde{C}_{3313} & \tilde{C}_{3323} \\ \tilde{C}_{1211} & \tilde{C}_{1222} & \tilde{C}_{1233} & \tilde{C}_{1212} & \tilde{C}_{1213} & \tilde{C}_{1223} \\ \tilde{C}_{1311} & \tilde{C}_{1322} & \tilde{C}_{1333} & \tilde{C}_{1312} & \tilde{C}_{1313} & \tilde{C}_{1323} \\ \tilde{C}_{2311} & \tilde{C}_{2322} & \tilde{C}_{2333} & \tilde{C}_{2312} & \tilde{C}_{2313} & \tilde{C}_{2323} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} K_{11} \\ K_{22} \\ K_{33} \\ 2K_{12} \\ 2K_{13} \\ 2K_{23} \end{bmatrix} \tag{4.10}$$

Les colonnes de la matrice $\widetilde{\boldsymbol{C}}$ sont calculées par la résolution du modèle d'élément fini six fois, en imposant six déformations séparées (dans le cas des conditions aux limites de Dirichlet). A chaque résolution une colonne de la matrice $\widetilde{\boldsymbol{C}}$ est déterminée.

$$\boldsymbol{K}^1 = \begin{bmatrix} \varepsilon \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} ;\ \boldsymbol{K}^2 = \begin{bmatrix} 0 \\ \varepsilon \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} ; \boldsymbol{K}^3 = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ \varepsilon \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} ; \boldsymbol{K}^4 = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 2\varepsilon \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix} ;\ \boldsymbol{K}^5 = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 2\varepsilon \\ 0 \end{bmatrix} ;\ \boldsymbol{K}^6 = \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \\ 2\varepsilon \end{bmatrix} \tag{4.11}$$

Chaque colonne de la matrice de souplesse ($\tilde{\boldsymbol{S}} = \widetilde{\boldsymbol{C}}^{-1}$) est déterminée par le calcul du modèle des éléments finis en imposant à chaque fois une contrainte de traction. La détermination des constantes élastiques s'effectue en supposant que le matériau est orthotrope et isotrope planaire. Par conséquent, la matrice de souplesse $\tilde{S}$ qui est l'inverse de la matrice de rigidité peut s'écrit comme suit (4.12) (forme de la matrice de souplesse d'un matériau orthotrope) (Tirée de Ngô, 2016)

$$\tilde{C}^{-1} = \tilde{S} = \begin{bmatrix} \frac{1}{E_1} & \frac{-\vartheta_{21}}{E_2} & \frac{-\vartheta_{31}}{E_3} & 0 & 0 & 0 \\ \frac{-\vartheta_{12}}{E_1} & \frac{1}{E_2} & \frac{-\vartheta_{32}}{E_3} & 0 & 0 & 0 \\ \frac{-\vartheta_{13}}{E_1} & \frac{-\vartheta_{23}}{E_2} & \frac{1}{E_3} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{1}{G_{12}} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{G_{13}} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{G_{23}} \end{bmatrix} \tag{4.12}$$

À partir de cette matrice, les constantes élastiques (module d'Young E, coefficient de poisson ϑ, module de cisaillement G) du matériau peuvent être déterminées.

4.1.4 Les conditions aux limites

La détermination des propriétés apparentes d'un volume élémentaire dépend fortement des conditions aux limites utilisées (Kanit et al., 2006). Les conditions aux limites classiques comme Dirichlet, Neumann et périodiques amènent toutes à un volume élémentaire représentatif. Autrement dit, elles peuvent déterminer les propriétés effectives d'un volume élémentaire. Néanmoins, la différence entre ces conditions aux limites est qu'elles ne mènent pas toutes à un VER de la même taille. Parmi ces conditions aux limites une qui détermine un VER de taille plus inférieure que les autres conditions aux limites. La plus petite taille d'un VER est appelée la taille critique. La taille critique d'un VER est la taille qui aboutit à la convergence d'une propriété mesurée en augmentant la taille du VE.

Digimat-FE dispose de trois types de conditions aux limites, qui sont :

- Conditions aux limites de Dirichlet.
- Conditions aux limites mixtes
- Conditions aux limites périodiques

Dans la littérature les conditions aux limites périodiques ont abouti à la stabilité des propriétés effectives des VER avant les conditions aux limites de Dirichlet et Neumann (Kanit et al., 2003). Afin de vérifier ce résultat, plusieurs volumes de différentes tailles ont été réalisés, avec une distribution des fibres 2D, et leurs modules d'Young E1 et E2 ont été calculés avec les trois différentes conditions aux limites. Les volumes générés sont de dimensions $X_1=X_2$ et $X_3= X_1-1$. La figure 4.8 présente les dimensions du volume élémentaire.

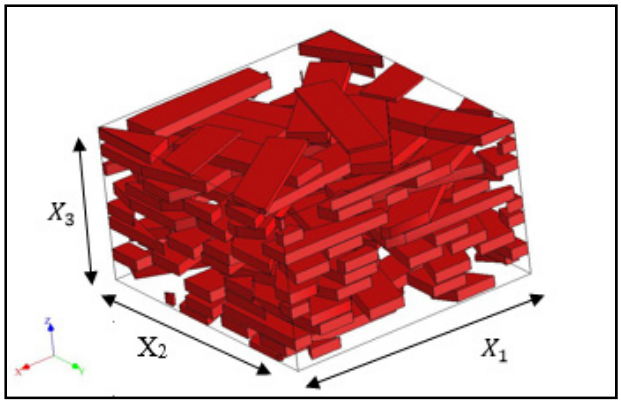


Figure 4.8 Les dimensions du VE

La figure 4.9 présente l'évolution des modules d'Young E1 et E2 en fonction de la taille des volumes générés. L'axe des abscisses présente le ratio (X_1 / L) où " L" présente la longueur des fibres.

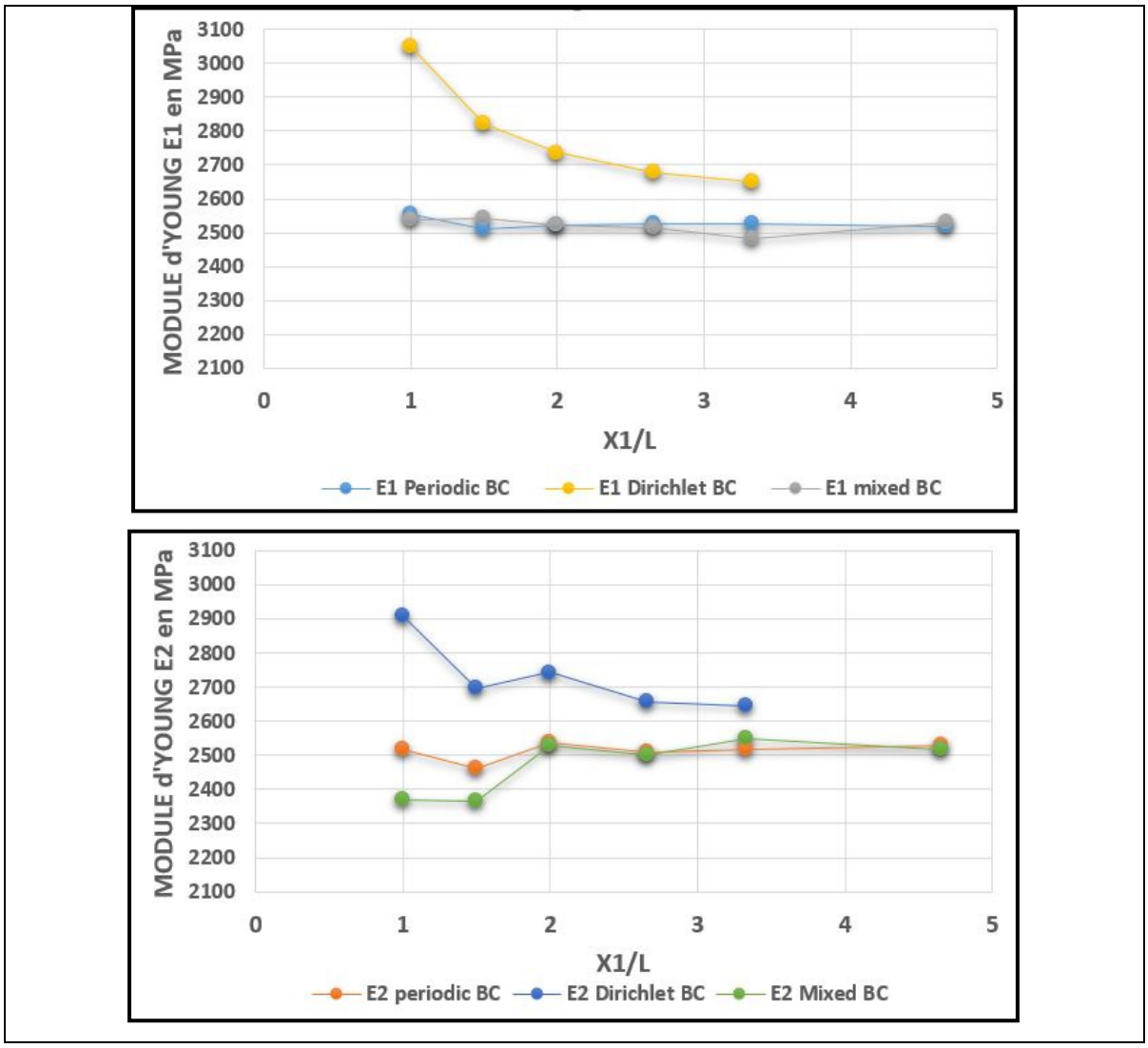


Figure 4.9 Évolution des modules d'élasticité E1 et E2 calculés avec trois types de conditions aux limites en fonction de la taille du VE

La figure 4.9 valide ce qui a été trouvé dans la littérature (Kanit et al., 2003) à propos des conditions aux limites périodiques qui assurent la stabilité des propriétés effectives plus rapidement que les autres conditions aux limites. Les conditions aux limites de Dirichlet nécessitent des VE plus grandes que celles des conditions aux limites périodiques pour aboutir à la stabilité des modules d'Young mesurés. Les conditions aux limites mixtes aboutissent à la stabilité des modules mesurés plus rapidement que les conditions aux limites de Dirichlet, mais pas assez rapides que les conditions aux limites périodiques.

Alors les conditions aux limites utilisées dans notre cas seront les conditions aux limites périodiques. Le problème de ces conditions aux limites est qu'elles exigent la réalisation des géométries périodiques, ce qui n'est pas toujours réalisable avec le Digimat surtout pour les grands VE avec une teneur en volume des fibres assez grande comme dans notre cas (presque 30%). Par conséquent, les conditions aux limites mixtes seront utilisées dans le cas où la réalisation des géométries périodiques n'est pas possible.

4.1.5 Le maillage

Le type de maillage utilisé dans cette étude est le maillage "conforme" qui utilise des éléments tétraédriques à 10 nœuds. Le même maillage a été utilisé dans d'autres travaux connexes dans la littérature (Kari et al., 2007b). La figure 4.10 présente l'élément tétraédrique à 10 nœuds.

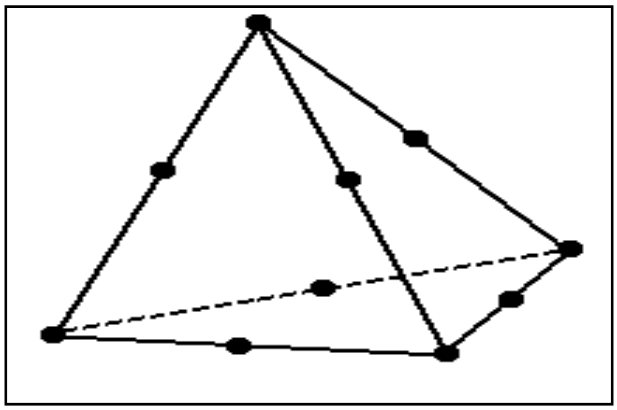


Figure 4.10 Élément tétraédrique à 10 nœuds
Tirée de
(http://autofem.com/help/fr/mesh_role.html)

Le choix de la taille des éléments peut être réalisé automatiquement par le Digimat. La taille des éléments est fixée par le logiciel selon la taille du volume généré, la taille et le diamètre de l'inclusion. Alors dans cette partie nous allons étudier la convergence du maillage et investiguer l'aptitude de cette option de Digimat à donner des résultats satisfaisants.
Pour cela, un VE de taille $3 \times 3 \times 2$ mm a été réalisé. Les modules d'Young E1, E2 et E3 ont été calculés en augmentant à chaque fois le nombre des éléments utilisés.

La figure 4.11 présente les modules d'Young calculés en fonction de la densité du maillage.

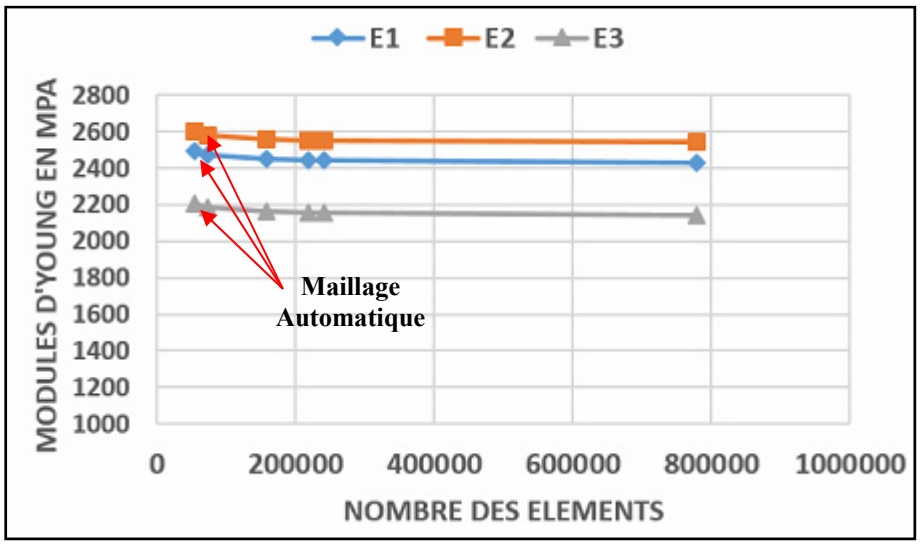


Figure 4.11 Convergence du maillage

Les résultats montrent que l'option de maillage automatique de Digimat assure la convergence des résultats.

4.1.6 Détermination de la taille critique du VER

La méthodologie abordée dans ce travail consiste à utiliser le critère de confiance développé par (Kanit et al., 2003) afin de déterminer la taille du VE qui donne une erreur relative inférieure ou égale à 1,5% après 10 réalisations. Autre raison pour l'utilisation de plusieurs réalisations pour définir un VER est que parfois l'isotropie des VE n'est pas atteinte par la réalisation d'un seul volume, mais la réalisation de plusieurs volumes peut assurer l'isotropie en moyennant les propriétés calculées à partir de chaque volume (Kanit et al., 2003).

Par la suite, puisque nous abordons l'hypothèse d'isotropie planaire, le VE doit l'assurer. L'isotropie planaire peut influencer la convergence des propriétés effectives en augmentant la taille du VE selon (Zixing et al., 2014) et (Harper et al., 2012).

Pour cela une mesure du degré de l'isotropie planaire a été déterminée en fonction de la taille des volumes générés. Cette mesure s'effectue par le critère de départ de l'isotropie utilisé dans le même contexte par (Zixing et al., 2014) et (Harper et al., 2012).

4.1.7 Critère de confiance

Ce critère a pour objectif de s'assurer que l'ensemble de réalisations est suffisant pour avoir une confiance en l'ensemble des moyennes des propriétés apparentes.
Ce critère est donné par l'équation 4.13 sous la forme utilisée par Zixing et al (Zixing et al., 2014):

$$\varepsilon_{relatif} = \frac{\varepsilon_{abs}}{Z} \tag{4.13}$$

tel que :

- Z est la valeur moyenne de la propriété élastique estimée

$$\varepsilon_{abs} = \frac{2 \times D_Z(V)}{\sqrt{n}} \tag{4.14}$$

Avec :

- $D_Z(V)$ représente l'écart-type de la propriété élastique;
- n: le nombre de réalisations.

Le calcul de critère de confiance sera utilisé en remplaçant le paramètre ' Z ' une fois par le module d'Young E1, et une autre fois par le module d'Young E2.

4.1.8 Critère du départ de l'isotropie

L'expression de ce critère s'exprime par l'équation 4.15 (Zixing et al., 2014)

$$\Delta = \sqrt{({\Delta_1}^2 + {\Delta_2}^2)} \text{ avec } \quad \Delta_1 = \frac{2(C_{11} - C_{22})}{C_{11} + C_{22}} \; ; \Delta_2 = \frac{2(C_{11} - C_{12} - 2C_{66})}{C_{11} + C_{22} + 2C_{66}} \tag{4.15}$$

Δ doit être égal à zéro si on atteint l'isotropie planaire. Alors la taille du VER à accepter serait celle qui assure une erreur inférieure à 2,5% après 10 réalisations.

4.1.9 La taille du VER

Afin de déterminer la taille critique du VER, des volumes élémentaires de différentes tailles ont été réalisés. Les ratios X_1/L des volumes générés sont 1 ; 1,5 ; 2 et 2,66.
Dix réalisations ont été faites pour chaque taille du VE. La courbe qui représente l'erreur relative de E1 et E2 en fonction du ratio X_1 /L est présentée par la figure 4.12.

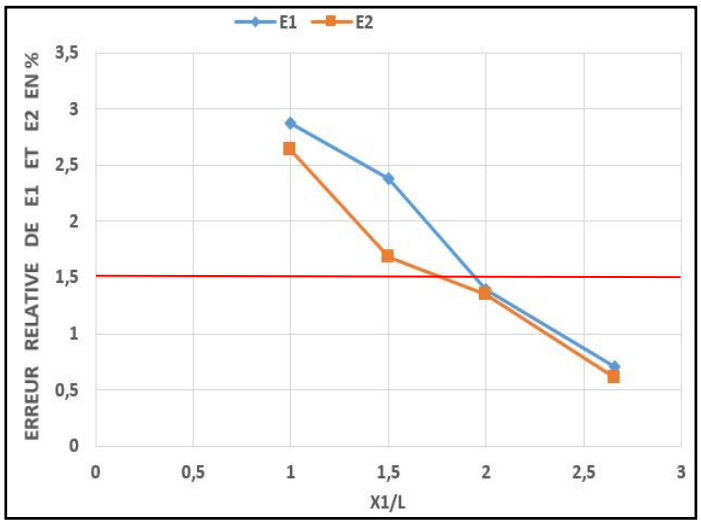


Figure 4.12 Erreur relative

D'après la figure 4.12, le rapport X_1/L =2 permet d'avoir une erreur relative inférieure à 1,5%. La taille du VER 3 × 3 × 2 mm permet d'avoir une erreur de 1,5% après 10 réalisations. Le critère du départ de l'isotropie est également étudié, les résultats sont présentés par la figure 4.13.

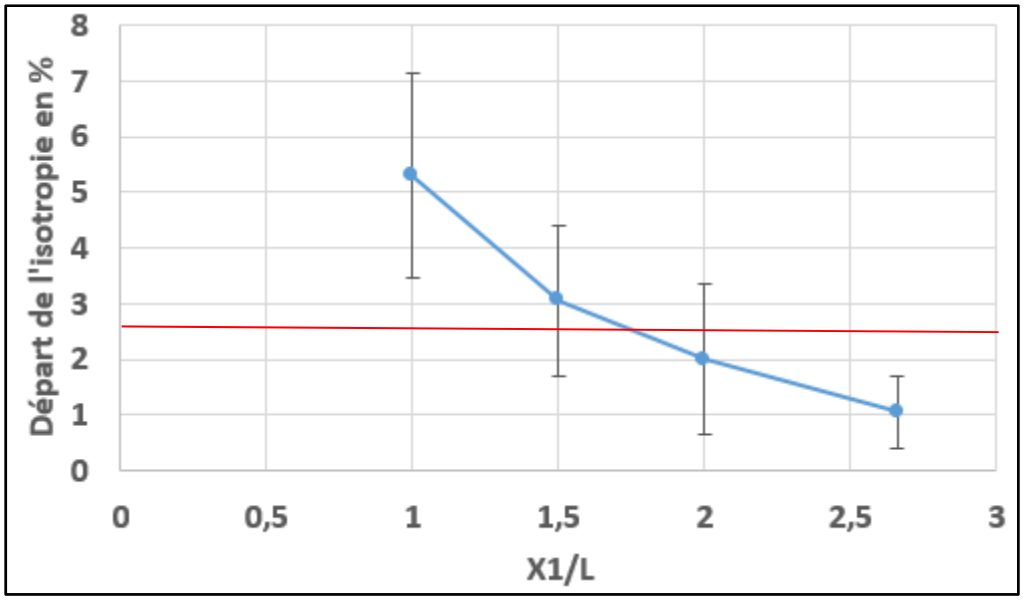


Figure 4.13 Résultats du critère d'isotropie

Dans la littérature, l'erreur tolérée choisie dans la littérature pour ce critère est de l'ordre de 5% (Harper et al., 2012). Dans notre cas, presque toutes les tailles des volumes générés assurent une erreur inférieure à 5%. Une erreur de 2,5% a été considérée acceptable pour ce travail. Par conséquent, la taille du VE qui vérifie le critère de confiance $X_1/L = 2$ (taille $3 \times 3 \times 2$ mm) est choisie pour le reste du travail.

4.2 Résultats de la modélisation du biocomposite 30wt%SG+PHBV/PBAT

Le tableau 4.4 présente des résultats de calcul numérique des modules d'Young E1 et E2 en les comparant avec les résultats expérimentaux afin de les valider.

Nous supposons que le matériau est isotrope planaire. Alors nous supposons que le résultat expérimental du module d'Young E2 est le même que E1. (Maillage: taille moyenne des éléments 13×10^{-2} mm).

Tableau 4.4 Comparaison entre les résultats expérimentaux et numériques pour une distribution en 2D

Résultats en MPa	E1	E2
Numérique par élément fini	2523,85	2539,25
Expérimental	2200	2200
Erreur en %	14,72	15,42

L'erreur trouvée entre les résultats expérimentaux et les résultats numériques est de l'ordre de 14% pour E1 et 15% pour E2.

4.2.1 Influence de la distribution des fibres

Afin d'essayer de diminuer cette erreur, 10 réalisations ont été réalisées pour des volumes comportant une distribution en 3D. La génération des volumes en 3D prend plus de temps par rapport à la génération en 2D. De plus, l'atteinte d'une teneur en masse de 30wt% de fibres n'était pas possible avec Digimat pour des géométries périodiques. Par conséquent, l'application des conditions aux limites périodiques n'est pas possible.

La figure 4.14 présente une tentative de générer une géométrie périodique de dimension 3 × 3 × 2 mm, avec une dispersion en 3D des fibres et une teneur en volume de 29,8%, en utilisant l'algorithme de génération des fibres "Maximum packing algorithm" qui consiste à générer le maximum des fibres possibles. Après huit heures, le maximum de teneur en volume des fibres était 26,8%.

General information

CPU time	8 hours 12 minutes 38 seconds
Analysis date and time	05/02/2018 - 20:26:01
Digimat-FE version	2017.1 (svn-r18264)

Phase information

	Number of inclusions	Effective volume fraction	Reference volume fraction
SG-phase	53	0.268389	0.99

Figure 4.14 Temps nécessaire pour générer une géométrie à distribution des fibres en 3D

La solution est de réaliser des géométries non périodiques à distribution des fibres en 3D. La figure 4.15 présente une géométrie non périodique à une distribution en 3D.

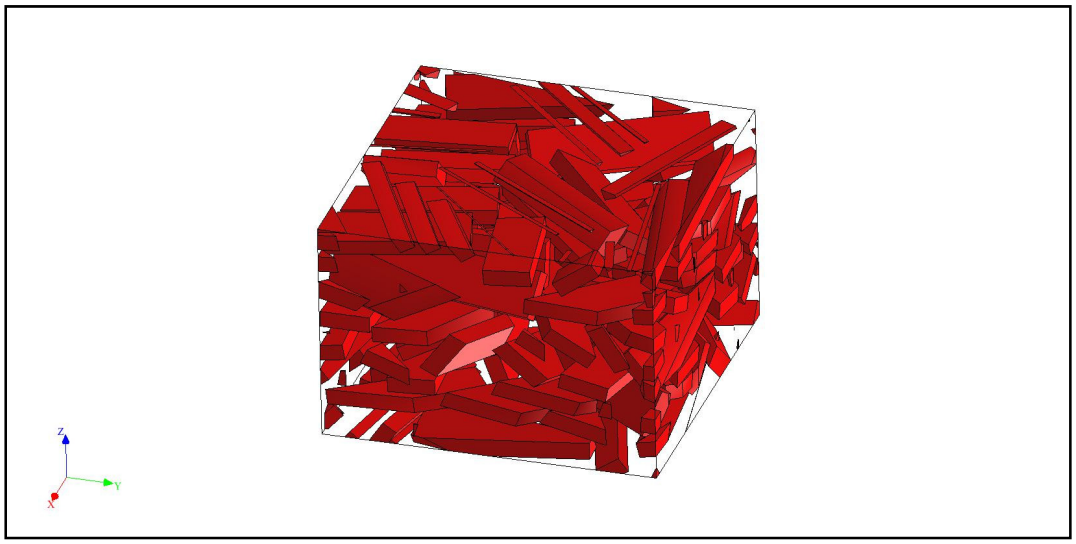


Figure 4.15 Géométrie à distribution des fibres en 3D

La figure 4.9 montre que les conditions aux limites mixtes commencent à donner des modules d'Young stables avant les conditions aux limites de Dirichlet. Alors pour le calcul des propriétés apparentes pour les géométries non périodiques, les conditions aux limites mixtes seront utilisées. Le tableau 4.5 présente les résultats trouvés pour des géométries non périodiques à distribution aléatoire des fibres.

Tableau 4.5 Comparaison entre les résultats expérimentaux et numériques pour une distribution en 3D

Résultats en MPa	E1	E2
Numérique par élément fini	2424	2414
Expérimental	2200	2200
Erreur en %	10,18	9,72

L'erreur est diminuée par rapport la distribution en 2D, et elle est devenue de l'ordre de 10%. Les résultats du tableau 4.5 montrent que les résultats numériques sont un peu plus élevés que les résultats expérimentaux cela peut être dû à plusieurs raisons:

- L'hypothèse que les fibres et la matrice sont parfaitement liées, or dans la réalité ne sont pas parfaitement liées.
- Le module d'Young des switchgrass, est égal à 9 $\pm 2{,}7$ GPa (selon Nagarajan et al., 2013), en utilisant la valeur minimale dans nos calculs les résultats seront plus proches du résultat expérimental.
- Aussi les fibres utilisées sont un mélange de fibres de feuilles et de tiges de switchgrass alors que la valeur 9 $\pm 2{,}7$ GPa présente le module d'Young seulement des tiges de switchgrass (selon Nagarajan et al., 2013).
- La morphologie des fibres utilisée dans le modèle numérique ne correspond pas exactement à la morphologie réelle des fibres.
- La longueur des fibres utilisée dans le modèle est 1,5 mm mais cette valeur était la longueur moyenne des fibres.

4.2.2 L'influence du rapport d'aspect

Dans le travail de Nagarajan et al (2013), les longueurs moyennes des fibres de switchgrass après le procédé de fabrication sont de l'ordre de 1,58 mm (Nagarajan et al., 2013). Mais en réalité le matériau est composé de plusieurs rapports d'aspect. La figure 4.16 présente les longueurs des fibres avant le procédé de fabrication.

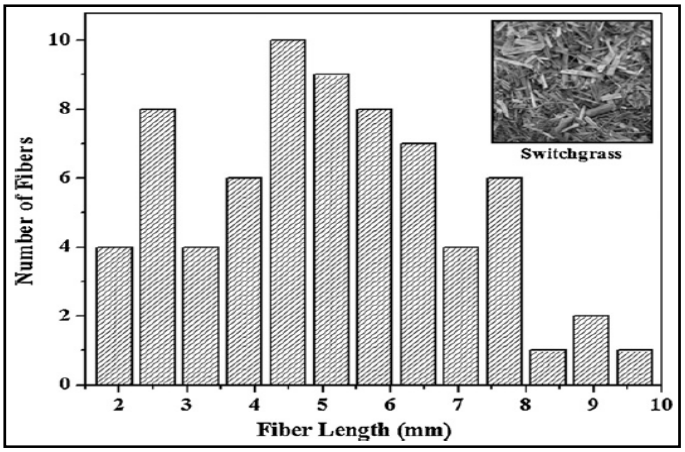


Figure 4.16 Longueurs des fibres de switchgrass avant le procédé de fabrication
Tirée de Nagarajan et al. (2013)

La valeur moyenne de la longueur des fibres avant le procédé de fabrication est de l'ordre de 5,42 mm (Nagarajan et al., 2013). Le nombre de fibres ayant une longueur supérieure à la longueur moyenne est plus grand que le nombre de fibres ayant une longueur inférieure à la longueur moyenne. Alors par analogie, le nombre des fibres après le procédé de fabrication ayant une longueur supérieure à la longueur moyenne (qui est 1,58 mm) est plus grand que le nombre de fibres ayant une longueur inférieure à la longueur moyenne.

Un volume élémentaire a été généré d'une taille de $3 \times 3 \times 2$ mm comportant les différentes longueurs des fibres de façon que la moyenne de ces longueurs soit égale à 1,58 mm. Le tableau 4.6 présente les longueurs des fibres utilisées dans ce volume avec leur rapport d'aspect.

Tableau 4.6 Longueurs et teneur en masse des fibres

Longueur en mm	**0,66**	**1,58**	**2,5**
Teneur en poids wt%	5	10	15

La figure 4.17 présente le volume élémentaire comportant des fibres de différents rapports d'aspect avec une dispersion en 2D.

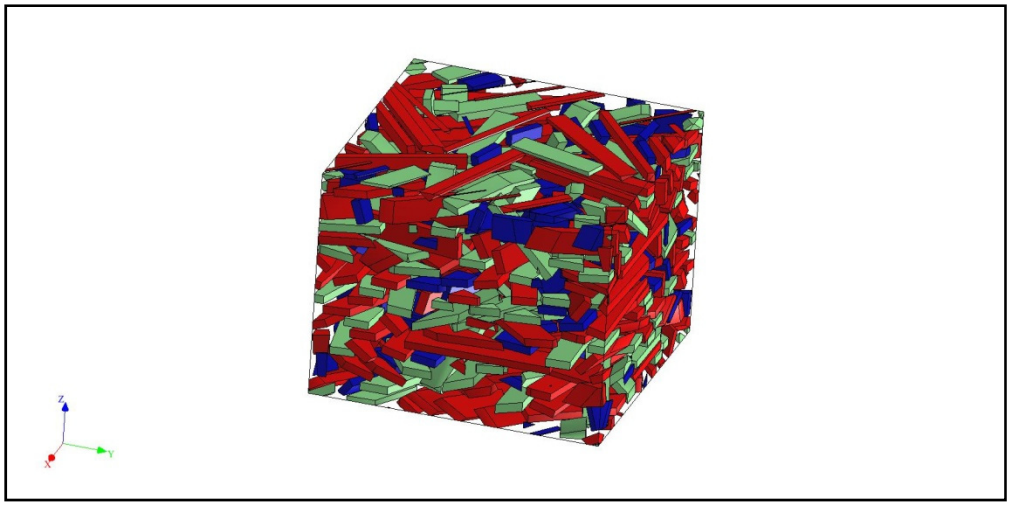


Figure 4.17 Volume élémentaire avec 3 longueurs des fibres

Le tableau 4.7 présente les résultats de calculs trouvés et l'erreur trouvée par rapport aux résultats expérimentaux.

Tableau 4.7 Résultats issus du volume avec différents rapports d'aspect

Résultats en MPa	E1	E2
Numérique par élément fini	2451	2470
Expérimental	2200	2200
Erreur en %	11,41	12,27

D'après le tableau 4.7, l'utilisation de plusieurs rapports d'aspect ne rapproche pas les résultats numériques aux résultats expérimentaux. C'est presque la même erreur trouvée avec l'utilisation du rapport d'aspect moyenne.

4.2.3 Étude de sensibilité des paramètres d'entrées

L'étude de sensibilité a été réalisée sur le coefficient de poisson des fibres de switchgrass, le coefficient de poisson de la matrice PHBV/PBAT et le module d'Young des fibres.

Cette étude a pour objectif de quantifier l'influence de ces paramètres sur le module d'Young du composite.

- **Coefficient de poisson des fibres de switchgrass**

Dans la littérature le coefficient de poisson des fibres de switchgrass varie de 0,2 à 0,3 (Miao et al., 2015). Le tableau 4.8 présente l'effet de la variation des coefficients de poisson de la matrice sur le module d'Young du composite.

Tableau 4.8 l'effet de la variation des coefficients de poisson de la matrice sur le module d'Young du composite

	Coefficient de Poisson des fibres de switchgrass		
	0,2	**0,22**	**0,3**
E1 (MPa)	2377,5	2374	2362
E2 (MPa)	2367,6	2364	2353
Variation de E1 en %	0,14	Référence	-0,5
Variation de E2 en %	0,15		-0,46

Une variation de 36% du coefficient de poisson des fibres de switchgrass présente un effet qui ne dépasse pas 1% sur le module d'Young du composite.

- **Coefficient de poisson de la matrice**

Le tableau 4.9 présente l'effet de la variation du coefficient de poisson de la matrice sur le module d'Young du composite.

Tableau 4.9 Effet de la variation du coefficient de poisson de la matrice sur le module d'Young du composite

	Coefficient de Poisson de la matrice		
	0,35	**0,42**	**0,45**
E1 (MPa)	2327,45	2374	2407,8
E2 (MPa)	2323,73	2364	2394,07
Variation de E1 en %	2	Référence	-1,42
Variation de E2 en %	1,73		-1,3

Une variation de 15% du coefficient de poisson de la matrice a un effet négligeable sur le module d'Young du composite, ne dépassant pas les 2%.

Néanmoins, l'effet de la variation du coefficient de poisson de la matrice sur les modules d'Young du composite est supérieure que l'effet de la variation du coefficient de poisson des fibres.

- **Module d'Young des fibres de switchgrass**

Dans la littérature, le module d'Young des fibres de switchgrass est égal à 9± 2,7 GPa (Nagarajan et al., 2013). Dans cette partie, une étude a été réalisée sur l'influence de la variation du module d'Young des fibres sur le module d'Young du composite, en changeant le module d'Young des fibres de switchgrass à l'extrémité de cet intervalle. Le tableau 4.10 présente l'effet de la variation du module d'Young des fibres sur le module d'Young du composite.

Tableau 4.10 Effet de la variation du module d'Young des fibres sur le module d'Young du composite

	Module d'Young des fibres de switchgrass		
	6300 (MPa)	**9000 (MPa)**	**11700 (MPa)**
E1 (MPa)	2084,43	2374	2609,97
E2 (MPa)	2080,51	2364	2593,3
Variation de E1 en %	12,2	Référence	-10
Variation de E2 en %	12		-9,7

Une variation de 30% du module d'Young des fibres présente une variation de l'ordre de 12% sur le module d'Young du composite. Alors une vérification du module d'Young de switchgrass peut diminuer l'erreur entre les résultats expérimentaux et les résultats numériques, surtout que les fibres de switchgrass utilisées dans ce composite représentent un mélange entre les tiges et les feuilles de switchgrass alors que la valeur du module d'Young reportée dans Nagarajan et al (2013) est celle du module d'Young des tiges seulement.

4.3 Modélisation des modules d'Young des nouveaux biocomposites

Les 3 nouveaux biocomposites qui ont été étudiés dans ce travail sont composés de la même matrice qui est PP/POE. Le coefficient de poisson du PP (1350N) n'est pas disponible dans la documentation technique. La valeur du coefficient de poisson utilisée dans ce travail est prise égale à 0,41 en se référant à la valeur trouvée dans la Norme ASTM D 638.

Alors, la valeur du coefficient de poisson du mélange PP/POE (95wt%/5wt%) peut être calculée par la loi de mélange (équation 4.16). Le coefficient de poisson de l'élastomère est égal à 0,5 (Verdu, 1995)

$$\vartheta_m = \vartheta_{PP}.v_{PP} + \vartheta_{POE}.v_{POE} \tag{4.16}$$

La densité du PP et POE sont respectivement 0,9 g/cm^3 et 0,86 g/cm^3 ce qui fait que la teneur en volume sera presque la même que la teneur en poids. Alors le coefficient de poisson de la

matrice est presque $\vartheta_m = 0{,}42$. Les propriétés de la matrice nécessaires pour la détermination du module d'Young numériquement sont présentées dans le tableau 4.11.

Tableau 4.11 Propriété de la matrice

	Module d'Young MPa	Coefficient de poisson	Densité
PP+POE (95wt%+5wt%)	1864	0,42	0,9 g/cm^3

Les propriétés des fibres de miscanthus sont présentées dans le Tableau 4.12.

Tableau 4.12 Les propriétés des miscanthus

Propriétés	Unité	Valeur	Référence
Module d'Young	GPa	Plage de variation [6-59,5] Valeur moyenne de cette plage 32,75	(Bourmaud, & Pimbert, 2008)
Coefficient de poisson		0,25	(Miao et al., 2015)
Densité	g/cm^3	1,41	(Muthuraj et al., 2017)

Les propriétés des biochars sont présentées dans le tableau 4.13.

Tableau 4.13 Les propriétés des biochars

Propriétés	Unité	Valeur	Référence
Module d'Young	GPa	5,03±0,76 Valeur utilisée c'est le maximum 5,790	(Behazin et al., 2016)
Coefficient de poisson		0,25 même valeur que celle du miscanthus	
Densité	g/cm^3	1,34	(Behazin et al., 2017b)

La taille du VER pour le biocomposite SG+PHBV/PBAT est trouvée deux fois la taille de l'inclusion. Par conséquent, dans la modélisation des trois formulations, la taille du VER adoptée est deux fois la taille de l'inclusion. Cinq réalisations ont été effectuées pour les trois formulations.

4.3.1 La formulation 1

La première formulation1 (F1) est la matrice (PP/POE) renforcée par 30wt% de biochar. Les biochars utilisés dans cette étude présentent une taille inférieure à 0,4 mm. La forme des biochars est irrégulière selon les images prises par le MEB illustrées dans la figure 4.18. Le rapport d'aspect semble être supérieur à 1. Les mêmes constatations ont été observées par (Nagarajan et al., 2016) et (Behazin et al., 2017b).

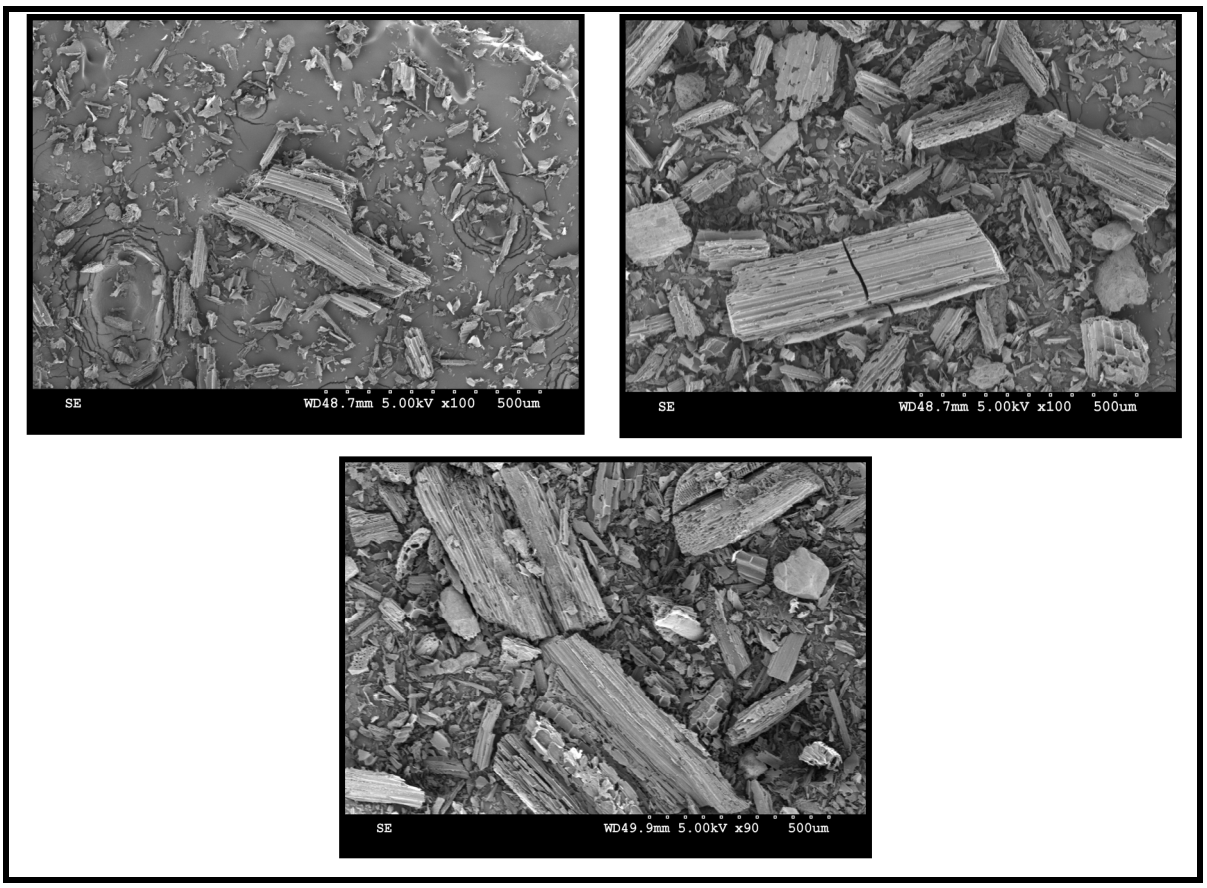


Figure 4.18 Images du biochars prises par le MEB

Alors d'après ces images du MEB, la morphologie choisie pour modéliser les biochars est la forme rectangulaire de longueur 0,3 mm, d'épaisseur 0,08 mm et de largeur de 0,1 mm (figure 4.19).

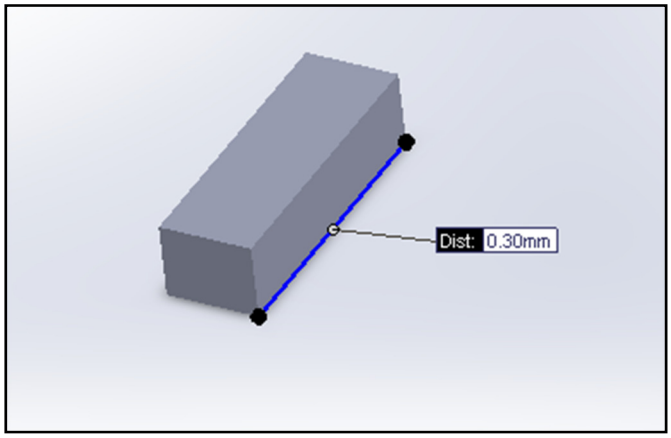


Figure 4.19 Morphologie des biochars

La taille du VER a été choisie d'une forme cubique de dimensions 1×1×1 mm, car on suppose que les composites renforcés par des particules sont isotropes. La taille est suffisamment large par rapport à la longueur des particules de biochars. La figure 4.20 présente le volume élémentaire périodique comportant les biochars en dispersion 3D.

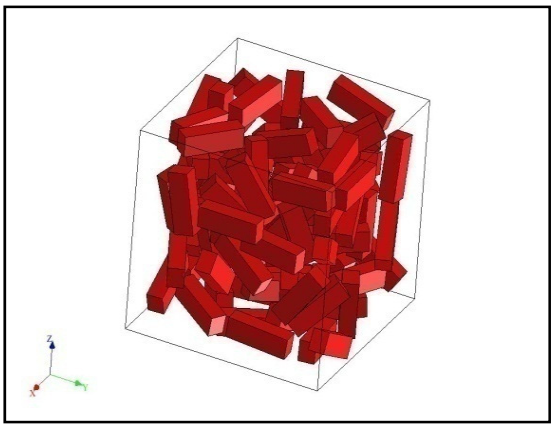


Figure 4.20 Volume élémentaire de la Formulation 1

Les conditions aux limites utilisées sont les conditions aux limites périodiques et le maillage est tétraédrique de taille moyenne des éléments $4{,}5\times10^{-2}$mm (figure 4.21).

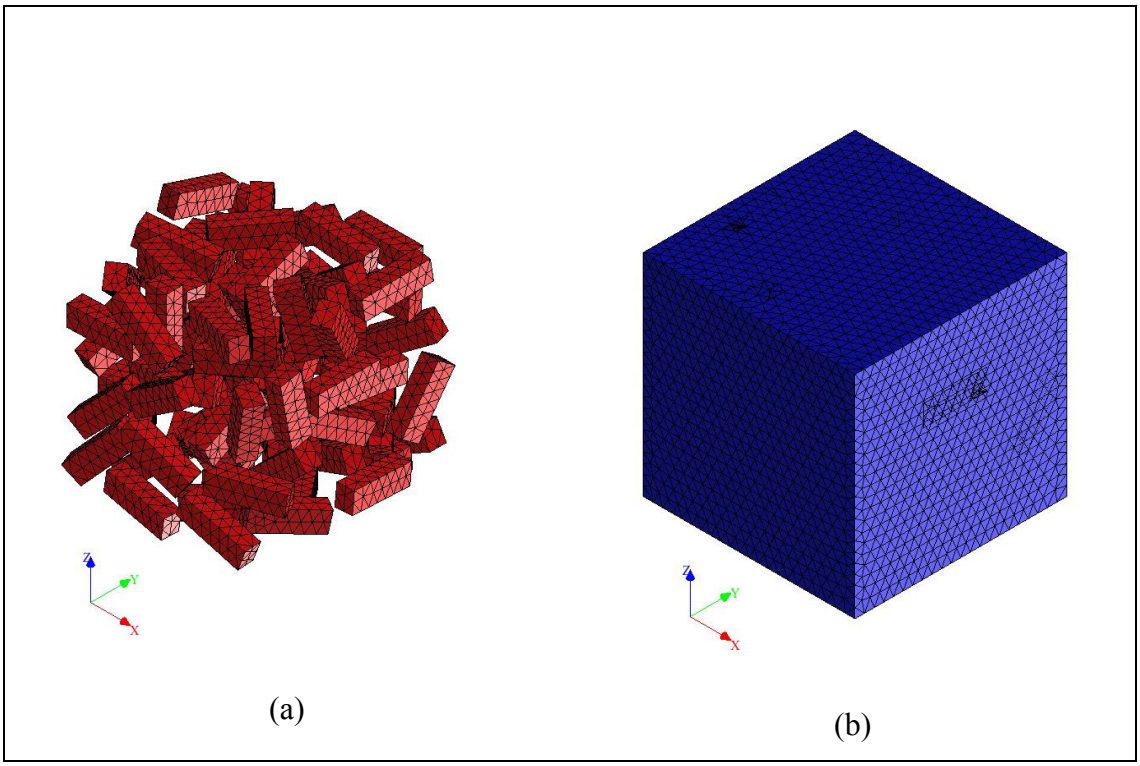


Figure 4.21 Maillage: (a) Maillage des fibres, (b) Maillage de la matrice

Les résultats trouvés avec le Digimat-FE sont présentés dans le tableau 4.14

Tableau 4.14 Comparaison entre les résultats numériques et expérimentaux de la F1

Matrice + Biochar	Résultat numérique (MPa)	Résultat expérimental (MPa)	Erreur en %
E1	2479,44	2509,92	1,21
E2	2480,03	2509,92	1,19
E3	2494,44	2509,92	0,61

Les résultats numériques sont très proches des résultats expérimentaux. Ils sont légèrement inférieurs des résultats expérimentaux. Cette erreur peut être due au module d'Young des biochars utilisés.

Ce module d'Young est dédié aux biochars issus de l'opération de pyrolyse de miscanthus à 500°C. Mais le biochar utilisé dans cette formulation est issu de la pyrolyse de miscanthus à une température de 625°C.

4.3.2 La formulation 2

Le miscanthus utilisé dans cette formulation est de longueur 4 mm. Après le procédé de fabrication, les longueurs des fibres diminuent. Muthuraj et al (Muthuraj, Misra, Defersha & Mohanty, 2016) ont trouvé que la longueur et le diamètre des fibres de miscanthus, qui renforcent un mélange de polymère PBAT/PBS, ont été diminués respectivement de 4,65 ± 2,5 mm à 1,07 ± 0,34 mm et de 0,74 ± 0,024 mm à 0,28 ± 0,11 mm après le procédé de fabrication qui est le même procédé utilisé dans ces formulations (L'extrusion suivie par le moulage par injection). Par conséquent, le miscanthus dans cette modélisation sera considéré comme un cylindre de longueur 1,07 mm et de diamètre 0,28 mm (figure 4.22).

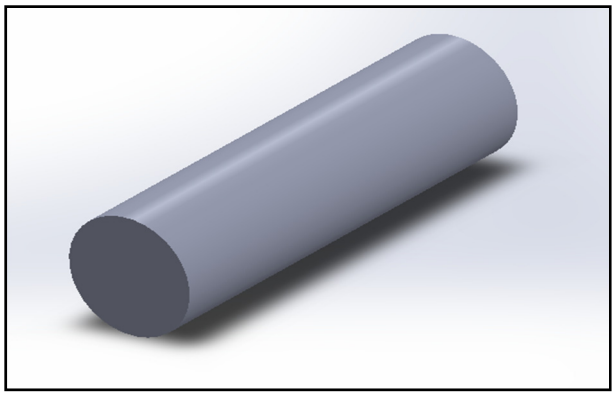


Figure 4.22 Morphologie des fibres de miscanthus

La géométrie générée pour la formulation 2 (F2) est de dimensions 3 × 3 × 2 mm. La figure 4.23 présente la géométrie périodique comportant les fibres de miscanthus en dispersion 2D.

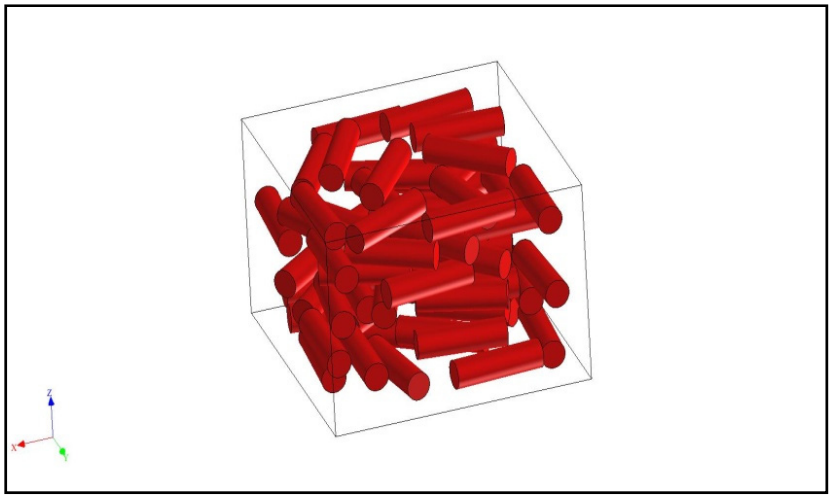


Figure 4.23 Volume élémentaire de la Formulation 2

Le maillage tétraédrique ne peut pas être utilisé avec les fibres cylindriques lorsqu'on utilise le solveur de Digimat-FE. Mais le calcul s'effectue avec le solveur Ansys. La figure 4.24 présente les fibres de miscanthus maillées par des éléments tétraédriques (taille moyenne des éléments 13×10^{-2} mm).

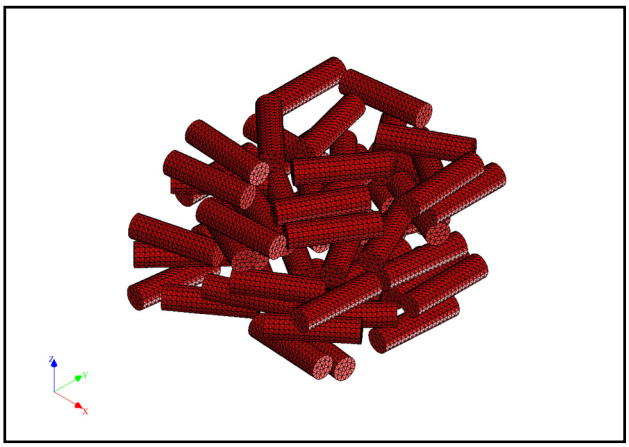


Figure 4.24 Les fibres de miscanthus maillées par des éléments tétraédriques

Le tableau 4.15 présente une comparaison entre les résultats numériques et les résultats expérimentaux.

Tableau 4.15 Les résultats numériques de la F2 avec un maillage tétraédrique

Matrice + Miscanthus	Résultat numérique (MPa)	Résultat expérimental (MPa)	Erreur (%)
E1	3619	3872	6,35
E2	3628	3872	6,3

Les résultats numériques sont très proches des résultats expérimentaux. Ils sont inférieurs aux résultats expérimentaux. Cela peut être expliqué par:

- La valeur du module d'Young des fibres de miscanthus qui n'est pas exacte;
- La morphologie des fibres de miscanthus qui n'est pas parfaitement cylindrique comme le montre la figure 4.25, également les dimensions des fibres de miscanthus utilisés;

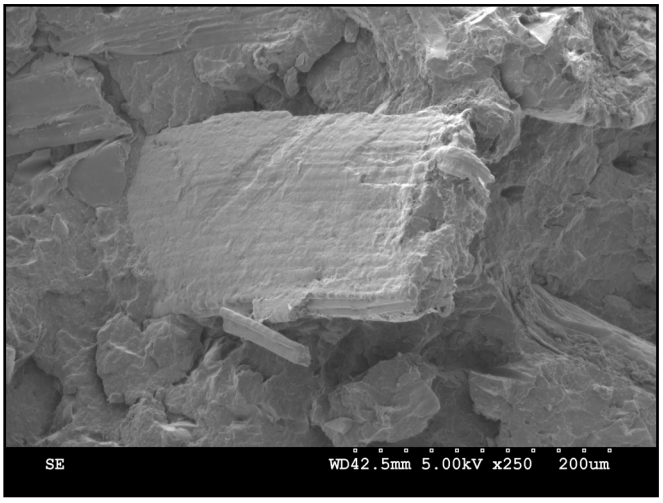


Figure 4.25 Les fibres de miscanthus

- La valeur du module d'Young de la matrice qui est calculée par un modèle semi-empirique.

4.3.3 La formulation 3

Le composite hybride a été modélisé, en utilisant les modèles des fibres de miscanthus et de biochar définis au préalable. La taille du volume élémentaire utilisée est, $2 \times 2 \times 1$ mm.

La figure 4.26 présente le volume élémentaire périodique comportant les fibres de miscanthus et les particules de biochar en dispersion 2D pour les fibres de miscanthus et en 3D pour les biochars. La figure 4.27 présente la géométrie en maillage tétraédrique (taille moyenne des éléments $4{,}5\times10^{-2}$mm)

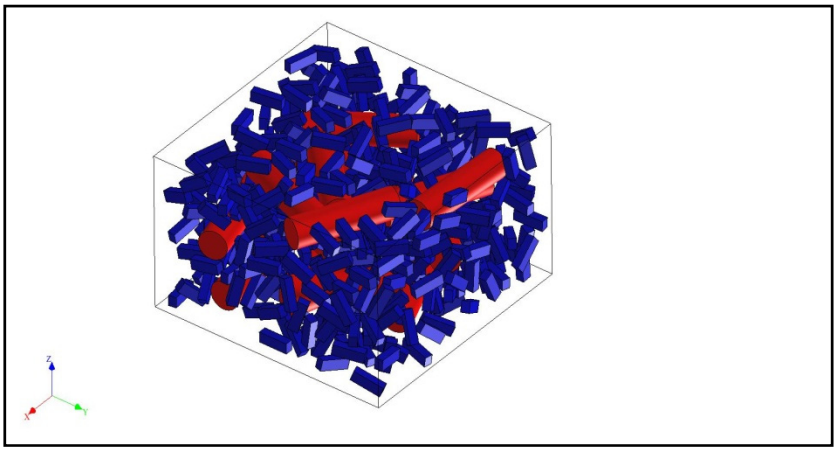


Figure 4.26 Composite hybride F3

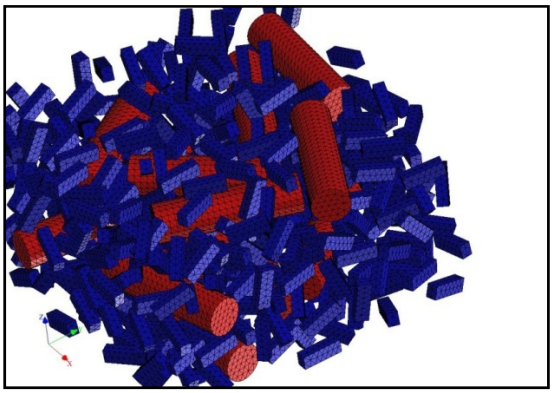


Figure 4.27 Maillage tétraédrique de la F3

Le tableau 4.16 présente une comparaison entre les résultats numériques et les résultats expérimentaux.

Tableau 4.16 Les résultats numériques de la F3 avec un maillage tétraédrique

Matrice + miscanthus + Biochar	Résultat numérique (MPa)	Résultat expérimental (MPa)	Erreur En %
E1	3033	3175	4,47%
E2	3022	3175	4,82%

Les résultats numériques sont inférieurs aux résultats expérimentaux. Mais l'erreur est inférieure à celle trouvée dans la formulation 2 (F2). Une constatation de ce résultat peut être tirée, c'est que l'ajout de 15wt% de biochar contribue, avec les fibres de miscanthus, à l'amélioration de la rigidité de la matrice. Contrairement au biochar issu de la pyrolyse des fibres de bois. En effet, Das et al (2015) ont trouvé, dans leurs études sur l'incorporation de biochar issu du bois et des fibres de bois avec le (PP), qu'à partir d'un seuil critique de teneur en poids de biochar, qui est 24wt%, les propriétés en traction et en flexion du composite s'améliorent (Das et al., 2015). Dans notre cas le résultat numérique est très proche du résultat expérimental. Par conséquent, les biochars issus de la pyrolyse de miscanthus améliore la rigidité du composite même avec une quantité de 15wt%.

CONCLUSION

La substitution des renforts synthétiques par des renforts végétaux attire l'attention des industriels dans le domaine automobile grâce à leurs propriétés mécaniques spécifiques élevées. Dans cette optique, ce mémoire s'est proposé de caractériser et modéliser les propriétés mécaniques de trois matériaux biocomposites, constitués essentiellement d'une matrice polypropylène (PP), durcie par polyoléfines élastomères (POE) renforcée par trois types de renforts végétaux. (biochar, fibres de miscanthus et un renfort hybride biochar+miscanthus).

Le premier objectif est de caractériser les propriétés mécaniques en traction, flexion et résistance au choc pour les trois formulations en vue d'investiguer lequel des trois types de renfort est capable de remplacer le talc dans les composites utilisés dans le domaine automobile. Le deuxième objectif consiste à proposer un modèle numérique, en utilisant la méthode d'homogénéisation par éléments finis, afin de prédire le module d'Young d'un matériau composite à fibres aléatoires.

Les résultats expérimentaux en traction ont montré que les biochars et les fibres de miscanthus améliorent la rigidité du PP. En effet une quantité de 30wt% de biochar améliore la rigidité du (PP/POE) de 34%. La même quantité de fibre de miscanthus améliore la rigidité de la matrice de 107%. Le composite hybride contenant 15wt% de biochar et 15wt% de miscanthus a présenté une rigidité meilleure que celle de la matrice de 70%.

En contrepartie, l'ajout de ces renforts a maintenu presque la même résistance en traction de la matrice. En effet, les biochar diminuent la résistance du PP/POE, les fibres de miscanthus ont augmenté la résistance en traction de la matrice de 10,51% et le renfort hybride a augmenté légèrement la résistance de la matrice.

La même tendance a été observée pour l'essai de flexion. Le biocomposite renforcé par les fibres de miscanthus a présenté les meilleures propriétés.

Par contre, les résultats expérimentaux de l'essai de résistance au choc Izod sans entaille ont montré que tous les renforts végétaux diminuent la résistance au choc de la matrice. Le

biocomposite renforcé par le biochar a présenté la meilleure résilience par rapport aux deux autres biocomposites.

Les trois biocomposites ont été comparés avec un matériau commercialisé constitué du PP renforcé par le talc (RTP 132 UV).
De point de vue rigidité et résistance à la traction et à la flexion, le biocomposite renforcé avec le miscanthus a présenté des propriétés meilleures que celles du matériau commercialisé. Mais il a montré une résistance au choc plus faible par rapport au matériau commercialisé.
Quant au biocomposite hybride il a présenté une résistance à la traction et à la flexion supérieure à celle du matériau commercialisé et une rigidité légèrement inférieure.
Le biochar a amélioré la rigidité de la matrice, mais pas assez pour remplacer le talc.

Le biocomposite hybride est caractérisé par une couleur noire qui est la couleur du matériau commercialisé, de plus il ne possède pas d'odeur contrairement au biocomposite renforcé par les fibres de miscanthus. En outre, la densité calculée du biocomposite hybride est inférieure à la densité du biocomposite renforcé par les fibres de miscanthus.
Par conséquent, le biocomposite hybride se considère comme le matériau le plus potentiel à remplacer le matériau commercialisé.

La modélisation des modules d'Young de ces matériaux biocomposites a été réalisée en appliquant la technique d'homogénéisation numérique par la méthode des éléments finis.
Une étude a été menée sur la représentativité du volume élémentaire utilisé. Pour cet objectif, le biocomposite PHBV/PBAT+30wt% de switchgrass a été adopté.
Alors, deux critères ont été utilisés. Le premier est le critère de confiance qui consiste à déterminer le nombre de réalisations nécessaires afin d'assurer une certaine tolérance. Dix réalisations d'un volume de taille $3 \times 3 \times 2$ mm (taille de la base du volume est deux fois la longueur des fibres) ont assuré une erreur relative inférieure à 1,5%.
Le deuxième critère est le critère de départ d'isotropie. Son rôle est d'évaluer le degré de l'isotropie assuré par la taille du volume.
Le résultat numérique est en bonne concordance avec le résultat expérimental.

Pour les trois biocomposites étudiés, cinq volumes ont été réalisés pour chaque formulation, en assurant une taille de la base du volume deux fois plus grande que la longueur des fibres. Les valeurs moyennes des modules d'Young calculées à partir de ces cinq réalisations ont présenté des résultats proches des résultats expérimentaux.

RECOMMANDATIONS

Cette recherche pourrait être complétée par:

- Une étude sur la quantité optimale entre les élastomères et les agents de compatibilité à ajouter au biocomposite hybride afin d'assurer un bon compromis entre la rigidité et la résistance au choc du biocomposite.

- La caractérisation des nouveaux biocomposites hybrides en augmentant de plus la quantité des biochars issus des températures de pyrolyse élevées.

- La comparaison de l'aptitude des biochars issus des fibres de miscanthus et des fibres de switchgrass à renforcer les matrices polymériques.

- Étude des propriétés mécaniques en traction des fibres de miscanthus.

- Étude de l’effet de la température et l’humidité sur les propriétés mécaniques (statiques et dynamiques) de ces biocomposites.

- La proposition d'un algorithme capable de générer des géométries en 3D, contenant des fibres à distribution aléatoire de différentes formes et qui peut atteindre des teneurs en volumes élevées.

ANNEXE I

La documentation technique du polypropylène

Pinnacle Polymers

P. O. Drawer E
Garyville, LA 70051
Tel: (985) 535-2000
Fax: (985) 535-1234

1350N

55 MELT FLOW HOMOPOLYMER POLYPROPYLENE FOR INJECTION MOLDING

Product Description and Applications:

Pinnacle Polymers Polypropylene 1350N is made via UNIPOL™ PP technology, which utilizes gas-phase fluidized bed reactors with a high activity catalyst system to ensure uniform physical properties and lot-to-lot consistency.

This product is intended for general-purpose injection molding of thin wall containers. 1350N contains a nucleation additive package.

Features:

The 1350N product provides:

- Superior color and processing stability
- Good flow characteristics
- Low odor and taste
- High melt flow

Pinnacle's polypropylene, as marketed by Pinnacle Polymers, in natural, uncolored pellet form complies with appropriate requirements of CFR Title 21, Part 177, Subpart B, Section 177.1520 (c) 1.1a entitled "Olefin Polymers" of the Food Additives Amendment of 1958 to the United States Food, Drug and Cosmetic Act of 1938.

Typical Properties

Property	Traditional Units	SI Units	ASTM Test
Melt Flow Rate	55 g/10 min.	55 g/10 min.	D1238[1]
Density at 23°C	0.9 g/cm^3	900 kg/m^3	D1505
Tensile yield strength, at 51 mm/min	5800 psi	40 MPa	D638[2]
Yield elongation, at 51 mm/min	8%	8%	D638[2]
Flexural modulus (1% secant) at 1.27 mm/min	290,000 psi	2000 MPa	D790A[2]
Notched Izod impact strength, at 73°F/23°C	0.5 ft-lb/in	27 J/m 2.6 kJ/m²	D256[2]

[1]Condition L 230/2.16
[2]ASTM Type I specimen, 3.2 mm thick (injection molded per ASTM D4101-92a)
UNIPOL is a trademark of Union Carbide Corporation

ANNEXE II

La documentation technique de l'agent de compatibilité

DuPont Packaging & Industrial Polymers

The miracles of science™

DuPont™ Fusabond® P613

Fusabond® resins Product Data Sheet

Description

Product Description	DuPont™ Fusabond® P613 is an anhydride modified polypropylene.

Restrictions

Material Status	• Commercial: Active
Availability	• Globally

Typical Characteristics

Uses	• Polymer Modifier
Applications	Coupling agent, short glass fiber filled PP

Typical Properties

Physical	Nominal Values	Test Method(s)	
• Density ()	0.903 g/cm³	ASTM D792	ISO 1183
• Melt Flow Rate (190°C / 1.0 kg measured)	49 g/10 min	ASTM D1238	IS0 1133
Melt Flow Rate (190°C / 2.16 kg calculated)	120 g/10 min		

Thermal	Nominal Values	Test Method(s)	
• Melting Point (DSC)	162°C (324°F)	ASTM D3418	ISO 3146

Processing Information

General

• Maximum Processing Temperature	300°C (572°F)

FDA Status Information

Fusabond® P613 resin complies with Food and Drug Administration Regulation 21 CFR 175.105 - - Adhesives. This Regulation describes adhesives that may be used as components of articles intended for use in packaging, transporting, or holding food, subject to the limitations and requirements therein.

The information and certifications provided herein are based on data we believe to be reliable, to the best of our knowledge. The information and certifications apply only to the specific material designated herein as sold by DuPont and do not apply to use in any process or in combination with any other material. They are provided at the request of and without charge to our customers. Accordingly, DuPont cannot

ANNEXE III

Documentation technique de l'élastomère (Engage 7487)

	Ethylene Butene Grades						HM Grades				XLT Grade
Property	7467[2]	7457[2]	7447[2]	7367[2]	7270 7277[2]	7256	HM 7487[2]	HM 7387[2] ENR[3] 7380	HM 7280	HM 7289	XLT 8677[2]
Density, g/cm³ ASTM D792	0.862	0.862	0.865	0.874	0.880	0.885	0.860	0.870	0.884	0.891	0.870
Melt Index, g/10 min (2.16 kg @ 190°C) ASTM D1238	1.2	3.6	5	0.8	0.8	2.5	<0.5	<0.5	<0.5	<0.5	0.5
Mooney Viscosity, MU (ML 1+4 @ 121°C) ASTM D1646	19	9	7	24	24	13	47	54	42[4]	74[4]	45
Total Crystallinity, %[5]	12	12	13	16	19	23	13	16	25	28	13
Durometer Hardness (Shore A) ASTM D2240	52	50	64	65	80	84	58	66	84	88	51
Durometer Hardness (Shore D) ASTM D2240	12	12	12	23	26	30	14	22	29	31	11
DSC Melting Peak, °C Rate 10°C/min[5]	34	40	35	51	64	76	37	50	99	99	118
Glass Transition Temperature, °C DSC Inflection Point[5]	-58	-56	-53	-51	-44	-42	-57	-52	-46	-52	-65
Haze, % ASTM D1003[6]	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.	3	6	N.D.	56	N.D.	N.D.	N.D.
2% Secant Flexural Modulus, MPa ASTM D790	4	4.7	7.6	14.2	22.1	33.6	1.2	11.5	25.3	43.5	6.3
Ultimate Tensile Strength, MPa (508 mm/min) ASTM D638	2.0	1.8	2.4	5.2	13.9	9.3	2.4	9.1	5.1	3.7	3.0
Ultimate Tensile Elongation, % (508 mm/min) ASTM D638	>600	>600	>600	>600	>600	>600	>600	>600	310	200	>1000

ANNEXE IV

MESURE DES ÉPROUVETTES

Tableau-A IV- 1 Dimensions des éprouvettes de l'essai de traction de la première formulation en mm

	Largeur 1	**Largeur 2**	**Largeur 3**	**Largeur moyenne**	**Épaisseur 1**	**Épaisseur 2**	**Épaisseur 3**	**Épaisseur moyenne**
1	6,35	6,35	6,34	**6,35**	3,17	3,17	3,17	**3,17**
2	6,35	6,34	6,35	**6,35**	3,18	3,17	3,17	**3,17**
3	6,34	6,36	6,35	**6,35**	3,18	3,2	3,18	**3,19**
4	6,36	6,37	6,36	**6,35**	3,2	3,19	3,17	**3,19**
5	6,36	6,37	6,36	**6,36**	3,22	3,21	3,23	**3,22**

Tableau-A IV- 2 Dimensions des éprouvettes de l'essai de traction de la deuxième formulation en mm

	Largeur 1	**Largeur 2**	**Largeur 3**	**Largeur moyenne**	**Épaisseur 1**	**Épaisseur 2**	**Épaisseur 3**	**Épaisseur moyenne**
1	6,36	6,34	6,35	**6,35**	3,18	3,17	3,18	**3,18**
2	6,34	6,35	6,34	**6,34**	3,17	3,17	3,17	**3,17**
3	6,34	6,35	6,35	**6,34**	3,18	3,18	3,18	**3,18**
4	6,33	6,34	6,34	**6,34**	3,17	3,17	3,18	**3,17**
5	6,34	6,33	6,34	**6,34**	3,17	3,17	3,17	**3,17**

Tableau-A IV- 3 Dimensions des éprouvettes de l'essai de traction de la troisième formulation en mm

	Largeur 1	**Largeur 2**	**Largeur 3**	**Largeur moyenne**	**Épaisseur 1**	**Épaisseur 2**	**Épaisseur 3**	**Épaisseur moyenne**
1	6,36	6,36	6,36	**6,36**	3,2	3,24	3,25	**3,23**
2	6,35	6,35	6,35	**6,35**	3,19	3,2	3,18	**3,19**
3	6,36	6,35	6,35	**6,35**	3,18	3,17	3,19	**3,18**
4	6,35	6,35	6,35	**6,35**	3,19	3,17	3,18	**3,18**
5	6,35	6,35	6,35	**6,35**	3,17	3,17	3,18	**3,17**

Tableau-A IV- 4 Mesure des éprouvettes de l'essai de flexion de la première formulation en mm

	Largeur	**Épaisseur**
1	12,71	3,22
2	12,67	3,18
3	12,67	3,18
4	12,68	3,18
5	12,71	3,22

Tableau-A IV- 5 Mesure des éprouvettes de l'essai de flexion de la deuxième formulation en mm

	Largeur	**Épaisseur**
1	12,68	3,17
2	12,68	3,17
3	12,69	3,17
4	12,68	3,17
5	12,67	3,18

Tableau-A IV- 6 Mesure des éprouvettes de l'essai de flexion de la troisième formulation en mm

	Largeur	**Épaisseur**
1	12,67	3,17
2	12,71	3,21
3	12,68	3,17
4	12,68	3,17
5	12,67	3,18

Tableau-A IV- 7 Mesure des éprouvettes de l'essai de flexion du ternaire PP/POE/MAPP

	Largeur	**Épaisseur**
1	12,6	3,14
2	12,6	3,14
3	12,6	3,14
4	12,6	3,15
5	12,58	3,15

Tableau-A IV- 8 Mesure des échantillons de l'essai Izod avec entaille de la première formulation en mm

	Largeur	**profondeur**
1	3,25	11,14
2	3,13	10,62
3	3,15	10,46
4	3,15	10,6
5	3,15	10,44
6	3,16	10,47
7	3,15	10,28

Tableau-A IV- 9 Mesure des échantillons de l'essai Izod avec entaille de la deuxième formulation en mm

	Largeur	**Profondeur**
1	3,18	10,28
2	3,16	10,84
3	3,15	10,47
4	3,16	10,59
5	3,16	10,4
6	3,16	10,3
7	3,16	10,28

Tableau-A IV- 10 Mesure des échantillons de l'essai Izod avec entaille de la troisième formulation en mm

	Largeur	**Profondeur**
1	3,15	10,36
2	3,16	10,42
3	3,15	10,37
4	3,16	10,34
5	3,16	10,31
6	3,36	10,39
7	3,16	10,4

Tableau-A IV- 11 Mesure des échantillons de l'essai Izod avec entaille du PP/POE/MAPP en mm

	Largeur	**Profondeur**
1	3,16	10,3
2	3,19	10,32
3	3,18	10,33
4	3,16	10,4
5	3,17	10,27
6	3,13	10,45
7	3,11	10,4

Tableau-A IV- 12 Mesure des échantillons de l'essai Izod sans entaille de la première formulation en mm

	Largeur	**Épaisseur**
1	3,13	12,54
2	3,15	12,62
3	3,14	12,65
4	3,13	12,75
5	3,13	12,66
6	3,15	12,61

Tableau-A IV- 13 Mesure des échantillons
de l'essai Izod sans entaille de la deuxième formulation en mm

	Largeur	**Épaisseur**
1	3,15	12,52
2	3,14	12,63
3	3,15	12,62
4	3,13	12,62
5	3,35	12,62
6	3,12	12,63

Tableau-A IV- 14 Mesure des échantillons de l'essai Izod sans entaille
de la troisième formulation en mm

	Largeur	**Épaisseur**
1	3,14	12,85
2	3,15	12,66
3	3,16	12,67
4	3,16	12,62
5	3,14	12,64
6	3,14	12,65

Tableau-A IV- 15 Mesure des échantillons de l'essai Izod
sans entaille du PP/POE/MAPP en mm

	Largeur	**Épaisseur**
1	3,15	12,63
2	3,14	12,55
3	3,14	12,5
4	3,14	12,64
5	3,14	12,45
6	3,14	12,53

ANNEXE V

Documentation technique du matériau commercialisé RTP 132 UV

RTP 132 UV

Homopolymère polypropylène

RTP Company

PROSPECTOR®
www.ulprospector.com

Technical Data

Description du produit

Warning: The status of this material is 'Commercial: Limited Issue'

The data for this material has not been recently verified.
Please contact RTP Company for current information prior to specifying this grade.

Généralités

État du matériau	• Édition limitée		
Recherchez la carte jaune UL	• RTP Company • RTP		
Disponibilité	• Afrique & Moyen-Orient • Amérique du Nord	• Amérique latine • Asie Pacifique	• Europe
Charge / Renforcement	• Charge en talc, 30% Charge par poids		
Additif	• Stabilisant anti-UV	• Stabilisant thermique	
Caractéristiques	• Bonne résistance aux UV	• Thermostabilisé	
Conformité RoHS	• Contacter le fabricant		
Aspect	• Couleur naturelle	• Noir	
Formes	• Granulés		
Process/Méthode de transformation	• Moulage par injection		

Physique	Valeur nominale Unité	Méthode de test
Densité / Gravité Spécifique	1,14 g/cm³	ASTM D792
Retrait au moulage - Écoulement (3,18 mm)	1,0 %	ASTM D955
Absorption d'eau (24 hr, 23°C)	0,030 %	ASTM D570
Mécanique	**Valeur nominale Unité**	**Méthode de test**
Module de traction	3450 MPa	ASTM D638
Résistance à la traction	31,0 MPa	ASTM D638
Allongement en traction (Rupture)	15 %	ASTM D638
Module de flexion	2760 MPa	ASTM D790
Résistance à la flexion	51,7 MPa	ASTM D790
Résistance à la compression	49,6 MPa	ASTM D695
Choc	**Valeur nominale Unité**	**Méthode de test**
Résilience en flexion Izod avec entaille		ASTM D256
3,18 mm	27 J/m	
Résilience en flexion Izod sans entaille		ASTM D4812
3,18 mm	480 J/m	

ANNEXE VI

Création d'un volume élémentaire en utilisant Digimat

En effet, Digimat propose deux algorithmes pour la création des volumes contenant des inclusions distribuées aléatoirement:

- ✓ "User defined volume fraction"
- ✓ "Maximum packing algorithm"

Les deux programmes se diffèrent seulement au niveau de la condition de l'arrêt de la génération. Le premier algorithme s'arrête lorsqu'un seuil, qui est déjà défini au préalable, est atteint. Le deuxième algorithme consiste à générer le maximum possible des fibres.

Les étapes de générations des fibres sont comme suit (MSC Software Company, 2017):

1- Génération d'une inclusion centrée à l'origine et son axe est aligné avec l'axe Z du repère global.

2- Appliquer une translation et une orientation à l'inclusion (La translation est aléatoire selon la loi de distribution uniforme)

3- Si l'interpénétration entre les inclusions n'est pas autorisée, une vérification de chevauchement aura lieu.

4- S'il y a un chevauchement entre les inclusions l'algorithme revient à l'étape 2.

5- Vérification des conditions de la distance minimale permise entre les inclusions et le volume minimal accepté des inclusions.

6- Si les conditions sont vérifiées, l'algorithme passe à l'étape suivante sinon il revient à l'étape numéro 2.

7- L'atteinte de cette étape se considère comme un placement réussi d'une inclusion. Dans cette étape, l'algorithme recalcule la nouvelle teneur en volume atteint et il le compare avec le seuil désiré. L'algorithme est fini si le seuil désiré est atteint sinon il revient à l'étape 1

LISTE DE RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

ASTM International. (2014). *Standard Test Method for Tensile Properties of Plastics*. Norme ASTM D638-14. Repéré à https://doi.org/10.1520/D0638-14

ASTM International. (2017). *Standard Test Methods for Flexural Properties of Unreinforced and Reinforced Plastics and Electrical Insulating Materials*. Norme ASTM D790-17. Repéré à https://doi.org/10.1520/D0790-17

ASTM International. (2010). *Standard Test Methods for Determining the Izod Pendulum Impact Resistance of Plastics*. Norme ASTM D256-10e1. Repéré à https://doi.org/10.1520/D0256-10E01

ASTM International. (2011). *Standard Test Method for Unnotched Cantilever Beam Impact Resistance of Plastics*. Normee ASTM D4812-11. Repéré à https://doi.org/10.1520/D4812-11

Anstey, A., Vivekanandhan, S., Rodriguez-Uribe, A., Misra, M., & Mohanty, A. K. (2016). Oxidative acid treatment and characterization of new biocarbon from sustainable Miscanthus biomass. *Science of the Total Environment, 550*, 241-247. doi: 10.1016/j.scitotenv.2016.01.015.

Behazin, E., Misra, M., & Mohanty, A. K. (2017a). Sustainable biocarbon from pyrolyzed perennial grasses and their effects on impact modified polypropylene biocomposites. *Composites Part B: Engineering, 118,* 116-124. doi: https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2017.03.003.

Behazin, E., Misra, M., & Mohanty, A. K. (2017b). Sustainable Biocomposites from Pyrolyzed Grass and Toughened Polypropylene: Structure–Property Relationships. *ACS Omega, 2*(5), 2191-2199. doi:10.1021/acsomega.7b00122

Behazin, E., Ogunsona, E., Rodriguez-Uribe, A., Mohanty, A. K., Misra, M., & Anyia, A. O. (2016). Mechanical, chemical, and physical properties of wood and perennial grass biochars for possible composite application. *BioResources, 11*(1), 1334-1348. doi: 10.15376/biores.11.1.1334-1348.

Bourmaud, A., & Pimbert, S. (2008). Investigations on mechanical properties of poly(propylene) and poly(lactic acid) reinforced by miscanthus fibers. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 39*(9), 1444-1454. doi: 10.1016/j.compositesa.2008.05.023.

Bajpai, P. K., Singh, I., & Madaan, J. (2012). Comparative studies of mechanical and morphological properties of polylactic acid and polypropylene based natural fiber composites. *Journal of Reinforced Plastics and Composites, 31*(24), 1712-1724. doi:10.1177/0731684412447992

Das, O., Sarmah, A. K., & Bhattacharyya, D. (2015). A novel approach in organic waste utilization through biochar addition in wood/polypropylene composites. *Waste Management, 38*(1), 132-140. doi: 10.1016/j.wasman.2015.01.015.

Drugan, W. J., & Willis, J. R. (1996). A micromechanics-based nonlocal constitutive equation and estimates of representative volume element size for elastic composites. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 44*(4), 497-524. doi: 10.1016/0022-5096(96)00007-5.

Gitman, I. M., Askes, H., & Sluys, L. J. (2007). Representative volume: existence and size determination. *Engineering Fracture Mechanics, 74*(16), 2518-2534. doi: 10.1016/j.engfracmech.2006.12.021.

Grand View Research, Inc (2018). Natural Fiber Composites Market Worth $10.89 Billion By 2024. Repéré à https://www.grandviewresearch.com/press-release/global-natural-fiber-composites-market

Ghossein, E. (2014). Numerical *validation of analytical homogenization models for the case of randomly distributed and oriented ellipsoidal fibers reinforced composites.* (Thèse de doctorat, École polytechnique de Montréal, Montréal, Qc, Canada). Repéré à https://search.proquest.com/docview/1694552893?accountid=27231

Gusev, A. A. (1997). Representative volume element size for elastic composites: A numerical study. Journal *of the Mechanics and Physics of Solids, 45*(9), 1449-1459. doi: 10.1016/S0022-5096(97)00016-1.

Harper, L. T., Qian, C., Turner, T. A., Li, S., & Warrior, N. A. (2012). Representative volume elements for discontinuous carbon fibre composites - Part 2: Determining the critical size. *Composites Science and Technology, 72*(2), 204-210. doi: 10.1016/j.compscitech.2011.11.003.

Hutchison, D., Bello, F., Edwards, P. J. E., Kanade, T., Kittler, J., . . . Weikum, G. (2008). *Biomedical Simulation 4th International Symposium, ISBMS 2008, London, UK, July 7-8,* 2008 Proceedings. Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag Berlin Heidelberg.

HO THI, T. N. (2008). *Etude de l'influence de la température et de l'humidité sur les propriétés mécaniques en traction des fibres de chanvre et de coco.* (Thèse de doctorat, Ecole de Technologie Supérieure, Montréal). Repéré à ProQuest Dissertations and Theses Global. (304811666).

Huet, C. (1990). Application of variational concepts to size effects in elastic heterogeneous bodies. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 38*(6), 813-841. doi: https://doi.org/10.1016/0022-5096(90)90041-2.

Halpin JC, Tsai SW. (1967). Effect of environmental factors on composite materials; Air Force Technical Report AFML-TR 67-423. Dayton, OH: Wright Aeronautical Laboratories.

Hill, R. (1963). Elastic properties of reinforced solids -- Some theoretical principles. *Journal of Mechanics and Physics of Solids, 11*(5), 357-372. doi: 10.1016/0022-5096(63)90036-X. Repéré à http://dx.doi.org/10.1016/0022-5096(63)90036-X

Ikram, S., Das, O., & Bhattacharyya, D. (2016). A parametric study of mechanical and flammability properties of biochar reinforced polypropylene composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 91,* 177-188. doi:https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2016.10.010

Jun, Y., Yong, Z., & Yinxi, Z. (2005). Fracture behavior and deformation mechanism of polypropylene/ethylene-octene copolymer/magnesium hydroxide ternary phase composites. *Journal of Applied Polymer Science, 98*(3), 957-967. doi: 10.1002/app.22111.

Jaffray, D. A. (2015). *World Congress on Medical Physics and Biomedical Engineering, June 7-12, 2015, Toronto, Canada*. Cham: Springer International Publishing.

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. *International Journal of Solids and Structures, 40*(13-14), 3647-3679. doi: 10.1016/S0020-7683(03)00143-4.

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. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering, 195*(33), 3960-3982. doi:https://doi.org/10.1016/j.cma.2005.07.022

Kari, S., Berger, H., Rodriguez-Ramos, R., & Gabbert, U. (2007a). Computational evaluation of effective material properties of composites reinforced by randomly distributed spherical particles. *Composite Structures, 77*(2), 223-231. doi: 10.1016/j.compstruct.2005.07.003.

Kari, S., Berger, H., & Gabbert, U. (2007b). Numerical evaluation of effective material properties of randomly distributed short cylindrical fibre composites. *Computational Materials Science, 39*(1), 198-204. doi: 10.1016/j.commatsci.2006.02.024.

Liang, J.-Z. (2013). Reinforcement and quantitative description of inorganic particulate-filled polymer composites. *Composites Part B: Engineering, 51*, 224-232. doi: https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2013.03.019.

Liang, J.-Z., & Ma, W.-Y. (2012). Young's modulus and prediction of plastics/elastomer blends *Journal of Polymer Engineering* (Vol. 32, pp. 343).

Liang, J. Z., Li, R. K. Y., & Tjong, S. C. (1999). Tensile properties and morphology of PP/EPDM/glass bead ternary composites. *Polymer Composites, 20*(3), 413-422. doi: 10.1002/pc.10367.

Miao, Z., Phillips, J. W., Grift, T. E., & Mathanker, S. K. (2015). Measurement of Mechanical Compressive Properties and Densification Energy Requirement of Miscanthus × giganteus and Switchgrass. *BioEnergy Research, 8*(1), 152-164. doi: 10.1007/s12155-014-9495-8.

MSC Software Company (2017). [Manuel d'utilisation de Digimiat]. Données brutes inédites.

Moussaddy, H. (2013). *A new definition of the representative volume element in numerical homogenization problems and its application to the performance evaluation of analytical homogenization models.* (Thèse de Doctorat, École polytechnique de Montréal, Montréal, QC, Canada). Repéré à https://search.proquest.com/docview/1460765352?accountid=27231

Murdy, R. C., Mak, M., Misra, M., & Mohanty, A. K. (2015). *An in-depth analysis of the physico-mechanical properties imparted by agricultural fibers and food processing residues in polypropylene biocomposites.* Paper presented at the PPS-30. 30th International Conference of the Polymer Processing Society, 6-12 June 2014, USA.

Muthuraj, R., Misra, M., & Mohanty, A. K. (2017). Biocomposite consisting of miscanthus fiber and biodegradable binary blend matrix: Compatibilization and performance evaluation. *RSC Advances, 7*(44), 27538-27548. doi: 10.1039/c6ra27987b.

Muthuraj, R., Misra, M., Defersha, F., & Mohanty, A. K. (2016). Influence of processing parameters on the impact strength of biocomposites: A statistical approach. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 83*, 120-129. doi:https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2015.09.003

Mura, T. (1987). General theory of eigenstrains. In T. Mura (Ed.), *Micromechanics of defects in solids* (pp. 1-73). Dordrecht: Springer Netherlands.

Nagarajan, V. (2012). *Sustainable Biocomposites from 'Green' Plastics and Natural Fibers: Introduction*. (Mémoire de maitrise, University of Guelph, Guelph, ON). Repéré à https://atrium.lib.uoguelph.ca/xmlui/bitstream/handle/10214/3909/Vidhya_Thesis.pdf?sequence=3

Nagarajan, V., Misra, M., & Mohanty, A. K. (2013). New engineered biocomposites from poly(3-hydroxybutyrate-co-3-hydroxyvalerate) (PHBV)/poly(butylene adipate-co-terephthalate) (PBAT) blends and switchgrass: Fabrication and performance evaluation. *Industrial Crops and Products, 42*(1), 461-468. doi: 10.1016/j.indcrop.2012.05.042. Repéré à http://dx.doi.org/10.1016/j.indcrop.2012.05.042

NGÔ, A. D. (2016). « Matériaux composites ». Cours SYS857. Automne 2016. École de technologie supérieure.

Ogunsona, E. O., Misra, M., & Mohanty, A. K. (2017). Sustainable biocomposites from biobased polyamide 6,10 and biocarbon from pyrolyzed miscanthus fibers. *Journal of Applied Polymer Science, 134*(4), 44221 (44211 pp.). doi:10.1002/app.44221

Pukanszky, B., Szazdi, L., Pukanszky, B., Jr., & Vancso, G. J. (2006). Quantitative estimation of the reinforcing effect of layered silicates in PP nanocomposites. *Polymer, 47*(13), 4638-4648. doi:10.1016/j.polymer.2006.04.053

Ragoubi, M., George, B., Molina, S., Bienaime, D., Merlin, A., Hiver, J. M., & Dahoun, A. (2012). Effect of corona discharge treatment on mechanical and thermal properties of composites based on miscanthus fibres and polylactic acid or polypropylene matrix. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing, 43*(4), 675-685. doi:10.1016/j.compositesa.2011.12.025

Ruksakulpiwat, Y., Sridee, J., Suppakarn, N., & Sutapun, W. (2009). Improvement of impact property of natural fiber-polypropylene composite by using natural rubber and EPDM rubber. *Composites Part B: Engineering, 40*(7), 619-622. doi:10.1016/j.compositesb.2009.04.006

Turcsanyi, B., Pukanszky, B., & Tudos, F. (1988). Composition dependence of tensile yield stress in filled polymers. *Journal of Materials Science Letters, 7*(2), 160-162. doi:10.1007/BF01730605

van den Oever, M. J. A., Elbersen, H. W., Keijsers, E. R. P., Gosselink, R. J. A., & de Klerk-Engels, B. (2003). Switchgrass (Panicum virgatumL.) as a reinforcing fibre in polypropylene composites. *Journal of Materials Science, 38*(18), 3697-3707. doi:10.1023/A:1025959627950

Verdu, J. (1995), Elasticité caoutchoutique. Dans G'Sell, C., & Haudin, J.-M (Éds), Introduction à la mécanique des polymères. (pp. 191-207). Vandoeuvre-lès-Nancy: Institut national polytechnique de Lorraine.

Wertz, J. L. (2014). DOCUMENTS UTILES AU DEVELOPPEMENT DE VOTRE PROJET (Les biocomposites et composites polymère-chanvre en particulier). Repéré à https://monprojet.labiomasseenwallonie.be/thematiques/produits-et-materiaux-biobases/documents#main-content

Wibowo, A. C. (2004). *Sustainable composite materials from renewable resources for automotive applications* (Mémoire de maîtrise, Université d'État du Michigan, East Lansing, États-Unis). Repéré à https://search.proquest.com/docview/305158414?accountid=27231

Zixing, L., Zeshuai, Y., & Qiang, L. (2014). 3D numerical simulation for the elastic properties of random fiber composites with a wide range of fiber aspect ratios. *Computational Materials Science, 90*, 123-129. doi:10.1016/j.commatsci.2014.04.007

Zeshuai, Y., & Zixing, L. (2014). Numerical analysis of elastic-plastic properties of polymer composite reinforced by wavy and random CNTs. *Computational Materials Science, 95*, 610-619. doi:10.1016/j.commatsci.2014.0