



Elaboration et caractérisation d'un matériau composite à base de résine polyester insaturée (UPR) renforcé avec la perlite

Ouided DEHAS*, Laidi BABOURI et Yasmina BISKRI

École Normale Supérieure d'Enseignement Technologique de Skikda, Algérie.

Résumé

L'objectif principal de ce travail est l'étude de l'effet de l'incorporation d'une charge minérale, la perlite dans une matrice thermodurcissable à base d'une résine polyester insaturée, de type résine isophthalique, sur les propriétés mécaniques, physique et , morphologique des matériaux composites comportant des taux variés de minerais, présentant différentes dimensions, notamment supérieure à 50µm, et inférieure à 50µm traité et non traité. Les composites ont été préparés par le procédé de moulage au contact ; Les plaques des composites sont durcies pendant 24 h à la température ambiante puis mises en étuve pendant 16 heures à 40 °C pour subir une post-cuisson. L'étude de propriétés mécaniques réalisées par la détermination de la contrainte à la rupture et la déformation à la rupture, la résistance à l'impact et la résistance à la rupture a montré que ces propriétés augmentent jusqu'à 4% en raison de la forte affinité entre les deux composants et de la bonne dispersion de la charge. Après, ils diminuent lorsque la teneur de la charge augmente et cela ne permettent pas une dispersion adéquate et crée des agglomérations qui initient la rupture. Une bonne corrélation a été observée entre les résultats des essais mécaniques et les observations au MEB qui a révélé que pour des concentrations plus faibles, les particules de la perlite sont bien dispersés dans la résine, mais les agglomérations sont mises en évidence lorsque la teneur en charge augmente.

Mots-clés : Résine polyester insaturée ; perlite ; Composites ; Adhésion.

Elaboration and Characterization of a Composite Material Based on Unsaturated Polyester Resin (UPR) reinforced with perlite

Abstract

The main objective of this work is the study of the effect of the incorporation of a mineral charge, perlite, in a thermosetting matrix based on an unsaturated polyester resin, of the isophthalic resin type, on the mechanical, physical and morphological properties of composite materials containing various rates of minerals, having different dimensions, in particular higher than 50 µm and lower than 50 µm, treated and not treated. The composites were prepared by the contact molding process. The study of the mechanical properties, carried out by determining the stress at break and strain at break, impact resistance and fracture resistance, showed that these properties increase up to 4 % due to the strong affinity between the two components and the good dispersion of the filler; then, decrease when the content of the filler increases which does not allow an adequate dispersion and creates agglomerations that initiate the break. A good correlation was observed between the results of the mechanical tests and the SEM observations, which reveal that for lower concentrations, the perlite particles are well dispersed in the resin, but also the evidence of agglomerations when the filler content increases.

Keywords: Unsaturated polyester resin; perlite; Composites; Adhesion.

1. Introduction

Les matériaux composites à matrice polymérique ont pris une croissance très importante durant ces dernières années. Ainsi de nouvelles générations de composites se développent à partir de différentes

matrices polymériques (thermoplastiques ou thermodurcissables): auxquelles, on associe des renforts organiques ou inorganiques particuliers et/ou fibrillaires.

Actuellement, les matériaux composites sont largement utilisés, car ils permettent, par le choix de la



nature, de la géométrie et de la répartition des constituants, d'obtenir le meilleur compromis en termes de propriétés recherchées telles que la rigidité spécifique, la résistance ou la stabilité dimensionnelle. Par conséquent, les polymères et leurs composites ont pu jouer avec succès, un rôle de substitution aux matériaux métalliques et céramiques. En effet, dans certaines applications les matériaux polymères ont pu offrir une alternative au verre et aux métaux qui sont de plus en plus remplacés par les matériaux composites à matrice polymère [1].

Dans l'ensemble des familles de composites, les composites à matrice therm durcissable et plus particulièrement, la résine polyester insaturée, représentent une large proportion de l'ensemble de ces matériaux. L'intégration de charges, telles que les oxydes d'alumine ou d'antimoine et le carbonate de calcium, de granulométrie variant entre 80 et 125 μm , dans la résine polyester insaturée a pour objectif de rendre le matériau plus stable thermiquement, d'améliorer l'aspect de surface et de diminuer le retrait... Elles ont une influence sur les propriétés des matières moulées : propriétés mécaniques, électriques et chimiques. Ces charges permettent aussi de diminuer le coût [2]. Aussi, les renforts ont pour but l'amélioration de la résistance mécanique et de la rigidité des pièces formées. Les renforts les plus utilisés sont constitués de fibres de verre, assemblées en mèches. Les avantages principaux des fibres de verre sont une bonne résistance à la corrosion, de hautes propriétés mécaniques, un poids faible, une bonne résistance aux produits chimiques, de bonnes qualités d'isolant électrique et thermique [2].

Par ailleurs, les matériaux composites à fibre se sont développés pendant le vingtième siècle grâce à la création des résines et des fibres synthétiques. A côté des composites naturels tels que le bois, l'homme a, depuis l'antiquité, élaboré un grand nombre de matériaux ou de structures composites; citons, dans le domaine de la construction, les fibres naturelles dans la boue. Les origines des composites avancés datent, toutefois, des années 1930. Les premières résines et fibres synthétiques ont été développées au cours de cette décennie. Actuellement, les composites à fibres synthétiques entrent, pratiquement, dans tous les domaines d'applications possibles, tels que le bâtiment et les transports : aérien, routier, ferroviaire [3].

Par conséquent, un grand nombre de travaux de recherche ont été réalisés sur les matériaux composites dans le but d'avoir une meilleure combinaison de propriétés pour des applications spécifiques. Parmi ces matériaux composites on a les matériaux composites à base des résines polyesters insaturées (UPR): renforcés par des renforts fibrillaires UPR/fibres de verre [4-12], UPR/fibres de carbone [13, 14] et par des renforts organiques naturels tel que les fibres de la canne à sucre [15] et des fibres végétales tel que les fibres de lin [16, 17], fibres de sisal [18-21], fibres de chanvre [22] afin d'améliorer différentes propriétés, mécanique et performances thermiques ou autres et pour diminuer par exemple la conductivité électrique et la perméabilité aux gaz, en fonction de l'application [23]. Au cours des dernières années, les nanocomposites à matrice UPR et à renforts particuliers ont été un domaine de recherche exaltant en raison des améliorations significatives sur l'ensemble des propriétés parmi ces nanomatériaux on peut citer UPR/montmorillonite (MMT) [24-26], UPR/argile [27] et UPR/bentonite [28]. Les composites à base des résines polyesters insaturées (UPR) ont été largement utilisés dans des applications industrielles telles que les industries marine, de l'automobile, les systèmes de canalisations et de la construction en raison de leur faible coût, haute résistance chimique et une bonne ouvrabilité [29].

L'objectif de ce travail est l'élaboration et la caractérisation d'un nouveau matériau composite à base de résine polyester insaturée comme matrice polymérique et de substituer le renfort classique de cette résine par un minéral, issu d'une roche siliceuse de nature volcanique, la perlite. Cette charge possède la caractéristique particulière, relativement aux minerais déjà incorporés dans les polymères, de contenir une proportion très importante de pores pouvant lui permettre de s'exfolier sous certaines conditions, et de montrer une grande surface spécifique. L'accès de la résine liquide aux pores de la charge pourrait permettre de développer des interactions suffisantes pour l'obtention de nouveaux composites aux performances acceptables, ce qui constitue l'objectif essentiel de notre étude. Les composites de résine polyester insaturée/perlite avec différents taux de charge ont été préparés par le procédé moulage au contact. Les composites obtenus ont été soumis à plusieurs techniques de caractérisations à savoir les tests

mécaniques (traction, choc et flexion), physique (densité) et par le microscope électronique à balayage (MEB).

2. Matériaux utilisés

2.1. Résine polyester insaturée

La résine polyester insaturée utilisée dans cette étude est une résine isophthalique. C'est un produit commercialisé par la firme Exxon Mobil Chemical¹, vendue industriellement sous forme de mélange peu visqueux (environ 373 mPa.s à 25 °C). La résine UPR nous a été fournie par l'entreprise Maghreb Pipe de Msila² (248 km à l'Est de la capitale Alger), spécialisée dans la fabrication de stratifié de résine polyester et de fibre de verre. La résine nous été livrée sous forme de prépolymère accélérée c'est-à-dire de formulation liquide contenant entre 30 et 50 % massique de monomère insaturée qui est le styrène et de 0,25 % en volume d'accélérateur. Le tableau 1 regroupe l'ensemble des propriétés de la résine polyester insaturée.

Tableau 1
Caractéristiques générales de la résine polyester insaturée [30].

Propriétés	Unité	Valeur	Méthode
Densité	g.mL ⁻¹	0,908	/
Viscosité Brookfield ³ à 25 °C	mPa.s	373	ASTM D 2196
Couleur	Gardner	0,1	ISO 4630
Teneur en styrène	%	39,5	
Valeur acide	mg KOH/g	15,8	ISO 2114
Temps de gel à 25 °C (0,25 % Co-6 % +1,5 % PMEC-50):	min, sec	9'54"	DIN 16945
Relativité à 25 °C (0, 25 % Co-6 % +1)	Tmax °C Tgel - Tmax	182,1 11'12"	DIN 16945

2.2. Système catalytique catalyseur/accélérateur

L'initiateur de la réaction de copolymérisation est le PMECC. La quantité d'initiateur introduite dépend de la température de travail et varie, conformément aux

indications des fiches techniques des fournisseurs, de 1 à 1,5 %. L'accélérateur utilisé pour promouvoir la réaction de durcissement de la résine est l'octoate de cobalt⁴.

2.3. La perlite

Le nom générique de perlite désigne une roche volcanique siliceuse naturelle. La caractéristique primordiale qui distingue la perlite des autres verres volcaniques, est que lorsqu'elle est chauffée à une température située dans l'intervalle de son intervalle de ramollissement, le produit se dilate de quatre à vingt fois son volume d'origine [31]. La perlite utilisée dans ce travail nous a été fournie sous cette forme expansée et provient de Tlemcen-Maghnia (580 km à l'ouest de la capitale Alger). La composition chimique générale de ce minerai est comme suit: SiO₂ : 71-75, Al₂O₃ : 12,5-18, K₂O : 4-5, Na₂O : 2,9-4, CaO : 0,5-2, Fe₂O₃ : 0,5-1,5, MgO : 0, 1-0,5, en plus d'autres composés présents en faibles concentrations [32]. Les caractéristiques générales de la perlite sont regroupées dans le tableau 2.

Tableau 2
Caractéristiques générales de la perlite [32].

Propriétés	Valeur
Couleur	Blanche
Brillance (%):	80-85
Indice de réfraction	1,47
Gravité spécifique (g.cm ⁻³):	2,34
Densité (kg.m ⁻³):	40-170
Absorption de l'eau (gms oil.gm ⁻¹):	50-100

2.4. Elaboration de composites UPR/perlite

2.4.1. Tamisage de la perlite

Avant de préparer les composites, on a procédé au tamisage de la perlite en employant des tamis avec différentes taille de mailles, afin de séparer deux fractions de minerais avec les granulométries suivantes: entre 80 et 50 µm (perlite > 50 µm); et inférieure à 50 µm (perlite < 50 µm).

¹ <https://www.exxonmobilchemical.com/en>

² <https://www.maghrebpipe.com>

³ Brookfield est la norme mondiale en termes de mesure de la viscosité. Pour le principe voir <https://labomat.eu/fr/faq/438-comment-fonctionne-un-viscosimetre-html#SnippetTab>

⁴ L'octoate de cobalt est une source de cobalt soluble dans les solvants organiques en tant que composé organométallique. Formule moléculaire brute : C₁₆H₃₀CoO₄

2.4.2. Traitement de la perlite par l'agent de couplage silanes

Le traitement de surface de la perlite par l'agent de couplage silane a été réalisé comme suit. Une solution à 3 % massique de vinyltriméthoxysilane (VTMS) est mise sous agitation pendant 15 minutes. Le pH de la solution est ajusté à une valeur de 4 par ajout progressif de l'acide acétique. Après cela, la perlite de granulométrie inférieure à 50 µm est incorporée à la solution et est maintenue sous agitation pendant 24 heures à la température ambiante. Après filtration, la perlite ainsi traitée est rincée à l'eau distillée, puis mise à sécher à l'air libre pendant 48 heures.

La quantité de résine polyester insaturée accélérée est soigneusement pesée de façon à préparer des plaques de composites ayant une épaisseur moyenne de 4 mm, et ce en utilisant des moules en bois.

La résine polyester insaturée accélérée est mélangée aléatoirement dans un récipient métallique. La perlite, des deux granulométries, non traitée et traitée en surface et étuvée à 50 °C pendant 24 heures, est ajoutée selon les taux suivants 1, 2, 3, 4 et 5 % (tableau 3). Enfin, une concentration de 1,5 % de P MEC est ajoutée pour assurer la réticulation de la matrice du composite. Les différentes formulations, ainsi préparées, sont versées sur une feuille de téflon sur laquelle est déposé le moule en bois. Un ébulleur est utilisé pour assurer la bonne répartition de la formulation liquide sur toute la surface du moule et dégager les éventuels bulles d'air formées lors de l'opération de mélangeage des composites. Les plaques des trois types de composites sont durcies pendant 24 h à la température ambiante puis mises en étuve pendant 16 heures à 40 °C pour subir une post-cuisson.

Tableau 3
Compositions des formulations UPR/perlite

UPR/perlite	Taux de perlite (%)					
perlite > 50 µm	0	1	2	3	4	5
perlite < 50 µm	0	1	2	3	4	5
perlite < 50 µm traitée	0	1	2	3	4	5

2.4.3. Techniques expérimentales

A) Essais mécaniques

a. Essai de traction

L'essai de traction a été effectué sur des éprouvettes rectangulaires ayant les dimensions (115×10×4) mm³. Les éprouvettes ont été testées sur une machine du type dynamomètre DT-W-20 kN à une vitesse de déplacement de 2 mm/min et en considérant une longueur initiale entre les appuis L₀ = 50 mm. Les caractéristiques en traction, notamment, la contrainte à la rupture σ_r et la déformation à la rupture ε_r ont été évaluées à partir des courbes contraintes/allongement obtenues.

La contrainte à la rupture exprime la charge de traction par unité de surface supportée par l'éprouvette à l'instant de sa rupture. Elle est donnée par l'expression suivante :

$$\sigma_r = F/S \text{ (N.m}^{-2}\text{)} \quad (1)$$

F: Charge de traction supportée par l'éprouvette (N) ;
S: Section initiale (m²).

La déformation à la rupture est calculée par l'équation suivante:

$$\varepsilon_r = \Delta L/L_0 \text{ (%) } \quad (2)$$

ΔL: Allongement;

L₀: Longueur initiale de l'éprouvette.

b. Essai de résistance au choc

L'essai de résistance au choc résulte de l'application d'une sollicitation mécanique à grande vitesse de percussion et avec une énergie élevée, engendrant la rupture d'une éprouvette en une fraction de seconde. Il permet de déduire dans des conditions expérimentales données, la fragilité ou la ductilité d'un matériau. L'essai a été réalisé sur un appareil du type Resil Impactor, sur des éprouvettes non entaillées, ayant les dimensions (65×15×4) mm³. Le choc est donné au centre de l'éprouvette au moyen d'un marteau de 7,5 kg. L'énergie de fracture ou résilience a_n est calculée, pour les barreaux lisses selon l'équation suivante :

$$a_n = A_n/e \cdot L \quad (3)$$

A_n étant l'énergie cinétique en joule absorbée par l'éprouvette au moment de l'impact alors que L et e

sont, respectivement, la largeur et l'épaisseur de l'éprouvette.

c. Essai de flexion

L'essai de flexion des trois points a été effectué sur des éprouvettes ayant les dimensions (80×15×4) mm³ de la matrice UPR non chargée et des différents composites élaborés et ce selon la norme AFNOR NFT 57-105. L'écartement D entre les deux points d'appui de l'éprouvette est de 60 mm alors que la vitesse de la traverse mobile est de 2 mm/min.

B) Mesure de la densité des composites

Les mesures de la densité (d) ont été effectuées, sur des fragments de la résine et des composites, en utilisant un appareil balance du type Ohaus, selon la norme ISO 1183, méthode A, conçue pour les matériaux possédant une densité supérieure à 1. La réalisation de l'essai a consisté aux étapes suivantes :

- 1- Préparer le pycnomètre ;
- 2- Tarer la balance ;
- 3- Prendre un échantillon dont le poids varie de 1 à 5 g ;
- 4- Mettre l'échantillon sur la corbeille, et enregistrer la masse w_a ;
- 5- Tarer la balance à nouveau puis immerger l'échantillon dans le liquide d'immersion ;
- 6- Enregistrer la masse volumique selon la formule suivante [33] :

$$d = \frac{w_a \cdot \rho(fl)}{w_a - wfl} + 0,0012 \text{ g.cm}^{-3} \quad (4)$$

où $\rho(fl)$ est la masse volumique du liquide d'immersion exprimée en g.cm^{-3} (dans notre cas c'est l'eau $\rho(fl) = 1 \text{ g.cm}^{-3}$) ; w_a le poids de l'échantillon dans l'air, et wfl la valeur absolue de la poussée hydrostatique, tous deux exprimés en g. La valeur $0,0012 \text{ g.cm}^{-3}$ est la masse volumique de l'air dans les conditions normales.

C) Microscopie électronique à balayage MEB

Les observations morphologiques des surfaces fracturées des échantillons des composites ont été faites par un microscope électronique à balayage de marque

Hitachi S3000N. Les échantillons ont été placés dans de l'azote liquide, fracturés et enfin métallisés par une couche conductrice en or déposée au moyen d'un métalliseur de marque Balzers SCD 004. Lors de l'observation, des micrographies sont enregistrées à différentes magnitudes.

3. Résultats et discussion :

3.1. Propriétés mécaniques des composites UPR/perlite

Les propriétés mécaniques (traction, choc et flexion -3 points) des composites UPR/perlite ont été déterminées en fonction de la taille des particules, du taux et du traitement de surface de la charge.

3.1.1. Propriétés en traction

Les variations des propriétés en traction, notamment la contrainte et la déformation à la rupture des composites UPR/perlite > 50 μm , UPR/perlite < 50 μm et UPR/perlite < 50 μm traitée par le silane (Si) en fonction du taux, de la taille des particules et du traitement de la perlite, sont représentées par les figures 1 à 4.

D'après les figures 1 et 2, donnant les variations de la contrainte à la rupture en fonction du taux de perlite, nous avons noté une augmentation par rapport à la matrice pure jusqu'à des taux de 3 et 4 %, suivie d'une diminution pour les composites UPR/perlite ayant les dimensions > 50 μm et < 50 μm , respectivement. Cette augmentation est d'autant plus importante que la granulométrie de la charge diminue et que la perlite soit traitée par le silane. L'augmentation de la contrainte à la rupture est attribuée à la rigidification du matériau après l'incorporation de la perlite. Par ailleurs, quand le taux de charge s'accroît, la possibilité de formation d'agrégats augmente, nuisant ainsi à la continuité au sein du composite et formant des sites favorables à sa rupture fragile. Ces résultats sont en accord avec ceux de Seki *et al.* [4], Chirayil *et al.* [5] et lin *et al.* [39] en étudiant les composites UPR/huntite, UPR/nanocellulose, UPR/perlite et UPR/nanoargile respectivement.

De même, les valeurs de la déformation à la rupture ont été également affectées par le taux de perlite, la dimension de ses particules et le traitement de surface. En effet, les variations illustrées par les figures 3 et 4 montrent une amélioration de la déformation à la rupture d'une valeur de 0,94 % pour la résine polyester non chargée à des valeurs de 0,98, 1,97 et 1,90 % pour les composites UPR/perlite > 50 μm , UPR/perlite < 50 μm et UPR/perlite < 50 μm (Si) pour un taux de perlite de 4 %, respectivement. D'une manière générale, les propriétés mécaniques en traction des composites UPR/perlite sont proportionnelles à la dimension de la charge; plus celle-ci diminue, plus les propriétés augmentent. Au-delà de 4 %, la déformation à la rupture décroît pour l'ensemble des composites. Ces résultats sont expliqués par le fait que la surface de contact charge/matrice est d'autant plus petite que la taille de la particule est plus grande, car la surface spécifique augmente avec la diminution de la taille de la

charge. L'amélioration des propriétés peut aussi être attribuée à la distribution plus uniforme de la charge dans la matrice. Dans ce contexte, Madugu *et al.* [40] ont proposé que la répartition uniforme des charges dans la microstructure des composites est un facteur clé pour la promotion des propriétés mécaniques. Cependant, la diminution de la résistance mécanique en traction et de la déformation à la rupture indique soit une mauvaise dispersion de la charge, soit la présence d'agglomérats ou encore l'existence de défauts tels que les micro-vides [41]. Les figures citées plus haut montrent aussi que les composites à charge traitée présentent de meilleures valeurs de la contrainte et la déformation à la rupture que ceux à charge non traitée. Il semblerait que le traitement chimique de la surface de la perlite permet sa meilleure dispersion dans la matrice et garantit une bonne adhésion interfaciale entre les deux phases puisqu'il permet d'établir des liaisons chimiques entre la perlite et la résine UPR [42].

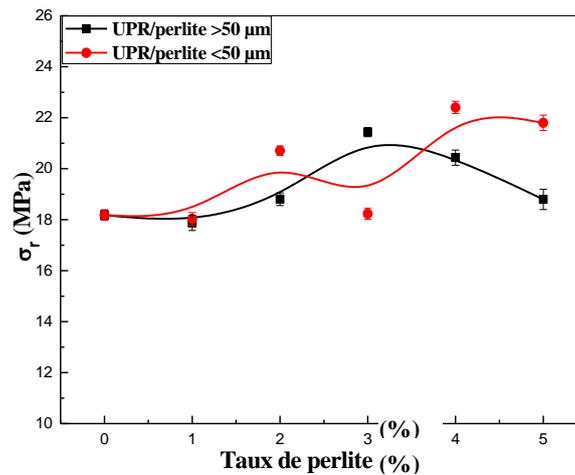


Figure 1. a/ Préparation du mélange résine /perlite ; b/ Versement du mélange dans le moule ; c/ durcissement des plaques ; d/ Plaques composites.

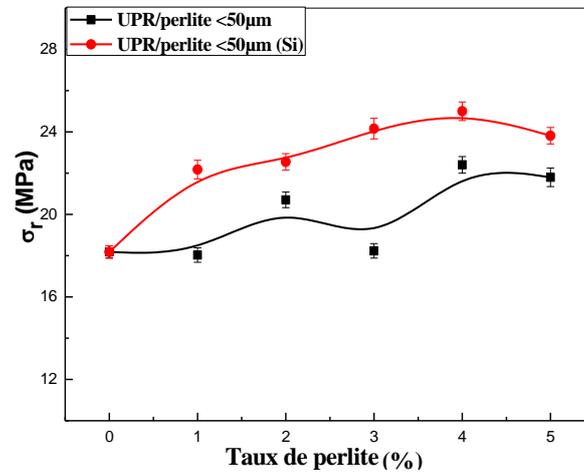


Figure 2. Variations de la contrainte à la rupture des composites UPR/perlite < 50 μm en fonction du taux de charge et du traitement de surface.

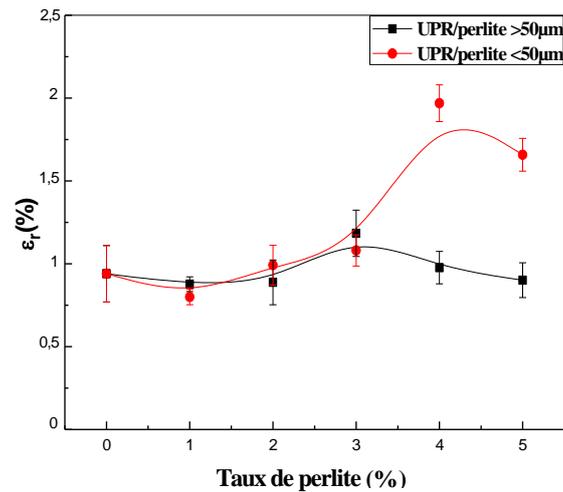


Figure 3. Variations de la déformation à la rupture des composites UPR/perlite en fonction du taux de charge et de la taille des particules.

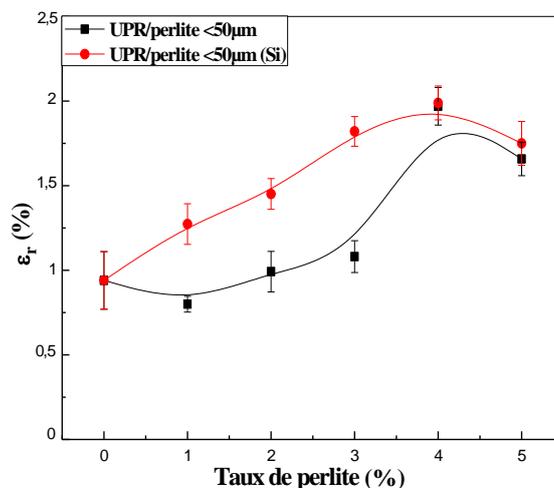


Figure 4. Variations de la déformation à la rupture des composites UPR/perlite < 50 μm en fonction du taux de charge et du traitement de surface.

3.1.2. Résilience des composites UPR/perlite

Les variations de la résistance au choc Izod⁵ sans entaille des composites UPR/perlite en fonction du taux de charge, de la taille des particules et du traitement de surface sont représentées par les figures 5 et 6. Les courbes montrent clairement que la résilience des composites augmente avec le taux de perlite jusqu'à 3-4 %, puis diminue. Nous pouvons aussi discerner l'effet de la taille des particules et du traitement de la surface de la charge. Ainsi, les composites comportant les particules les plus fines avec et sans traitement de surface présentent la résistance à l'impact la plus élevée. En effet, plus la dimension des particules est faible, plus leurs effets comme initiateurs de la rupture fragile s'atténuent, provoquant la promotion de la résilience des composites relativement à celle des composites à particules de plus grandes tailles. Par ailleurs, l'adhésion renfort/matrice est légèrement améliorée grâce au traitement de surface qui permet de promouvoir, pour certain pourcentage, le contact à l'interface entre les deux composants du matériau [43].

L'augmentation de la résilience de l'ensemble des composites relativement à la matrice UPR peut être due à la capacité de la résine à diffuser à l'intérieur des

certaines particules sphériques et poreuses de la perlite, ce qui assure la continuité du matériau et compense les effets à l'interface, résultant du manque d'affinité de la matrice pour la charge. A partir de taux de perlite de 4 %, l'inverse se produit car les effets des phénomènes à l'interface (formation d'agrégats et manque d'adhésion) dominent à cause de la grande concentration de la charge minérale et de la faible contribution de la résine susceptible de diffuser dans le minéral (il ne reste pas suffisamment de résine quand le taux de renfort atteint 5 %). La proportion de résine diffusant à l'intérieur de la perlite devient plus faible et les problèmes dus au manque de mouillage des particules minérales par la matrice surgissent, provoquant la diminution de la résistance à l'impact [38].

⁵ L'essai est réalisé sur une éprouvette usinée en V d'une longueur de 75 mm. L'entaille en V est pratiquée à 28 mm de l'une des extrémités. L'autre extrémité est encastrée verticalement jusqu'au niveau de l'entaille. Un couteau horizontal de choc spécial vient frapper la face entaillée à l'extrémité libre.

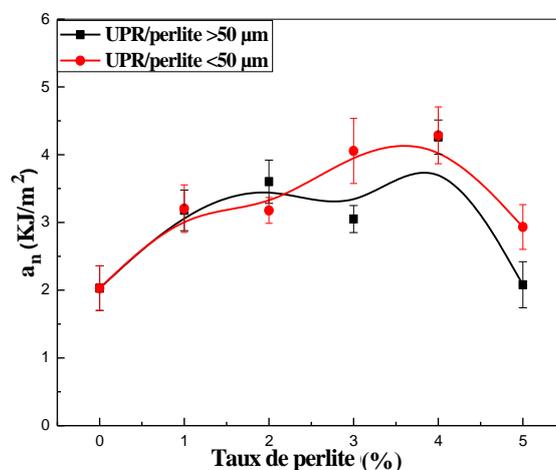


Figure 5. Variations de la résilience des composites UPR/perlite en fonction du taux de charge et de la taille des particules.

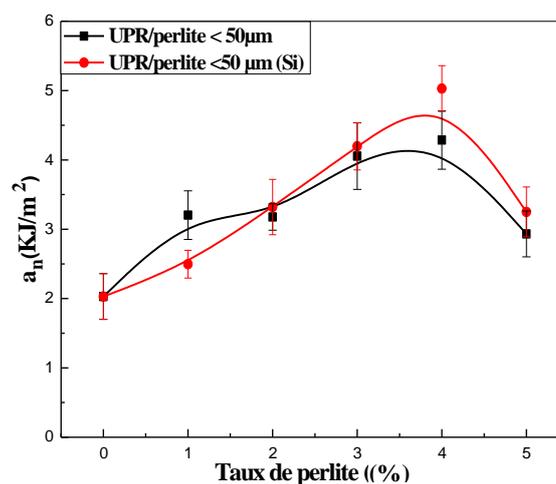


Figure 6. Variations de la résilience des composites UPR/perlite < 50 µm en fonction du taux de charge et du traitement de surface.

3.1.3. Propriétés en flexion des composites UPR/perlite

Les propriétés en flexion des composites UPR/perlite sont étudiées en suivant les variations de la résistance à la rupture en fonction du taux de charge minérale, de la taille des particules et de leur traitement de surface, comme le montre les figures 7 et 8. D'une manière générale, les courbes montrent une amélioration de la résistance à la rupture des composites avec l'augmentation du taux de perlite jusqu'à 4 %, puis une diminution est notée pour le taux de 5 %. Aussi,

pour un même taux de perlite, nous observons que plus la taille des particules diminue, plus la résistance à la rupture est meilleure.

L'augmentation de la résistance à la rupture est essentiellement due à la rigidification des composites par suite à l'ajout de la perlite. Par ailleurs, la diminution notée pour le taux de 5 % de minerai peut être interprétée par le fait que lorsque le taux de charge augmente, la proximité des particules et leur affinité les unes pour les autres favorisent la formation d'agrégats, dont le mauvais mouillage par la résine engendre des sites défailants au sein du matériau. En d'autres termes,

à de taux de charge élevée, la quantité de résine devient insuffisante et ne peut assurer le parfait mouillage des particules de perlite ce qui crée des vides initiateurs de la rupture fragile du composite [41, 43-44]. De même que pour les essais de choc et de traction, l'effet de la taille des particules est crucial car il est noté que la résistance à la flexion est d'autant plus meilleure que la taille des particules de perlite est plus faible. En effet, pour un même taux de charge, le nombre de sites d'accrochage des écailles de la perlite augmente avec la diminution de la taille des particules. Enfin, la figure montre que le traitement de surface de la charge par le silane améliore légèrement la résistance à la flexion qui augmente, particulièrement pour les taux les plus élevés de perlite.

En conclusion aux résultats des essais mécaniques de traction, de choc et de flexion, il apparait que les composites comportant de 3 à 4 % de perlite < 50 μm et traitée en surface semblent présenter les performances mécaniques optimales. Ceci est sans doute possible du fait qu'il réalise le meilleur compromis entre les trois paramètres influents suivants :

- Le taux de charge optimal pour lequel un bon mouillage est obtenu ;
- Un nombre suffisant de sites d'ancrage des écailles de la perlite ;
- Une contribution non négligeable de l'agent surfactant silane dans l'amélioration de la dispersion et de l'adhésion à l'interface résine/perlite [37, 45].

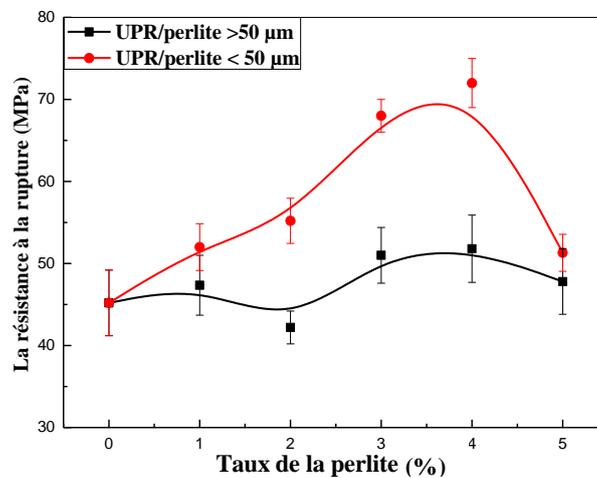


Figure 7. Variations de la résistance à la rupture des composites UPR/perlite en fonction du taux de charge et de la taille des particules.

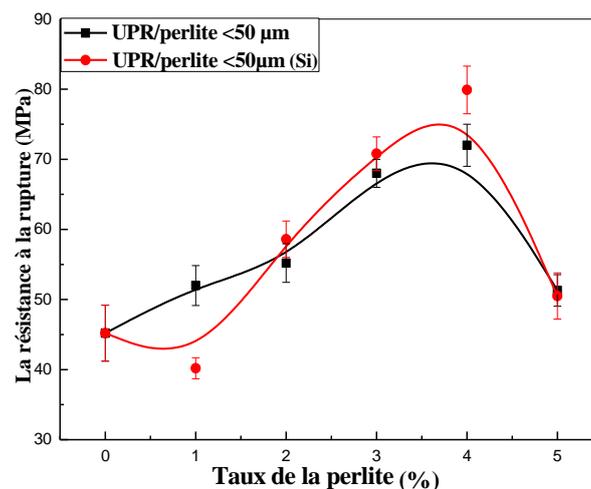


Figure 8. Variations de la résistance à la rupture des composites UPR/perlite < 50 μm en fonction du taux de charge et du traitement de surface.

3.2. Densités des composites UPR/perlite

Les figures 9 et 10 représentent les variations de la densité des composites en fonction du taux de perlite, la dimension de ses particules et du traitement de surface. L'incorporation de la perlite, dont la densité est relativement très faible, n'affecte pas celle des composites, ce qui permet d'obtenir des matériaux dont

la densité est comparable à celle de la matrice. Ceci est dû à la contribution de la densité du minéral dans celle du composite et son indépendance de la taille des particules et du traitement de surface. Ainsi, l'ajout de la perlite permet l'élaboration de composites dotés de bonnes performances mécaniques sans porter préjudice à la densité, ce qui est considéré comme un atout en faveur des constituants de ce composite.

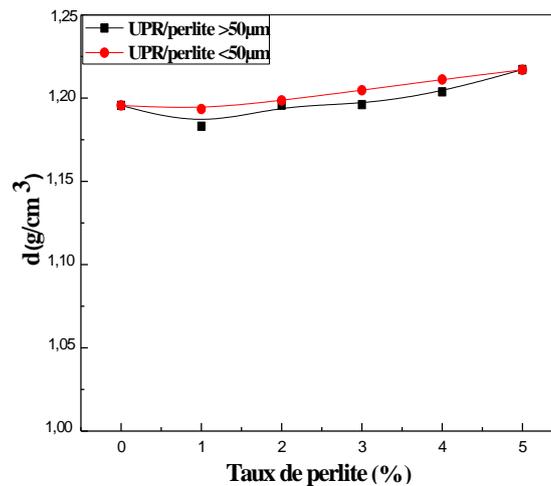


Figure 9. Variations de la densité des composites UPR/perlite en fonction du taux de charge et de la taille des particules.

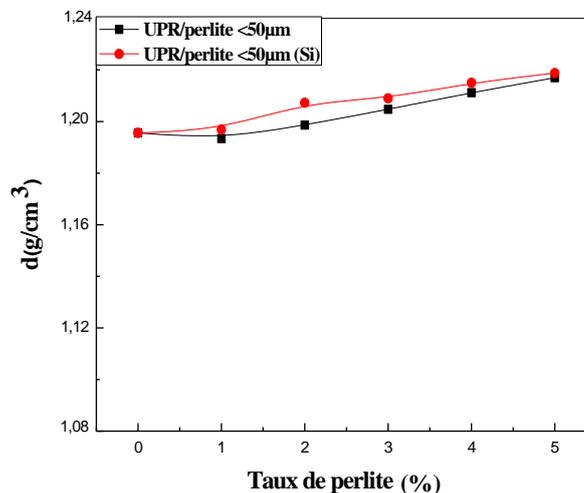


Figure 10. Variations de la densité des composites UPR/perlite < 50 µm en fonction du taux de charge et du traitement de surface.

3.3. Etude morphologique de la perlite et des composites UPR/perlite

La figure 11 représente les micrographies électroniques de la perlite non traitée dont les dimensions des particules sont < 50 µm, et ce selon

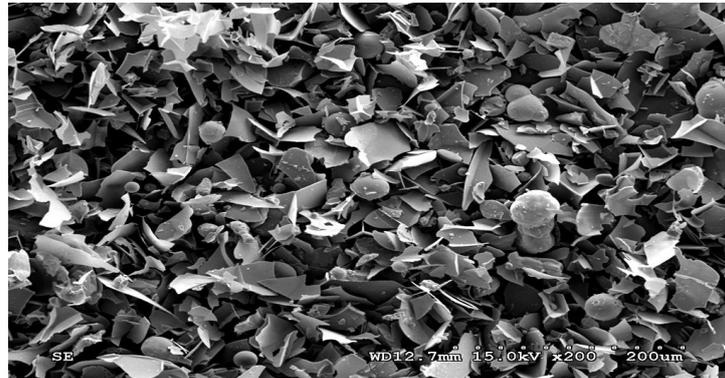
trois différentes échelles d'agrandissement (a) : 200, (b) : 100 et (c) : 50 μm . A première vue, la perlite utilisée se présente sous forme de plaquettes et de particules irrégulières et sphériques de différentes dimensions.

Les particules sous forme de plaquettes et de formes irrégulières semblent être les débris résultant de l'expansion puis l'éclatement des particules sphériques. Ces débris comprennent à la fois des écailles assez minces, résultant de la rupture de la paroi externe, et dont l'épaisseur est variable car fonction du degré d'expansion de la particule sphérique avant l'éclatement (micrographie (a)) ainsi que des particules irrégulières provenant de la subdivision de la masse interne des granules expansés (micrographie (b)). Elles montrent une structure tubulaire et poreuse.

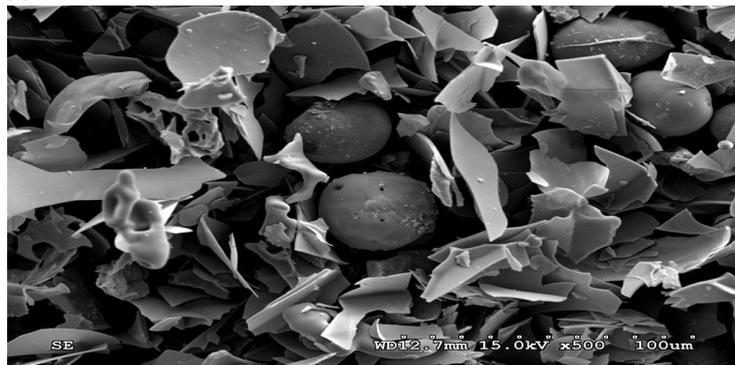
Les particules sphériques présentent différents degrés d'expansion et donc aussi divers diamètres (10-45 μm).

Les formes montrées par les particules irrégulières témoignent de la porosité de la structure interne des particules sphériques de perlite. Ceci est d'autant plus évident que les particules sont plus expansées.

(a)



(b)



(c)

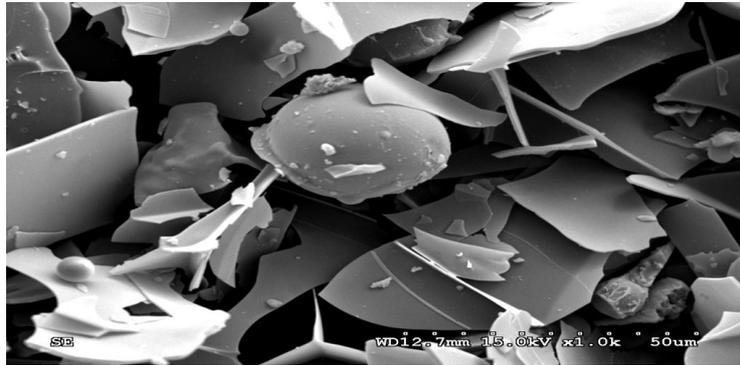
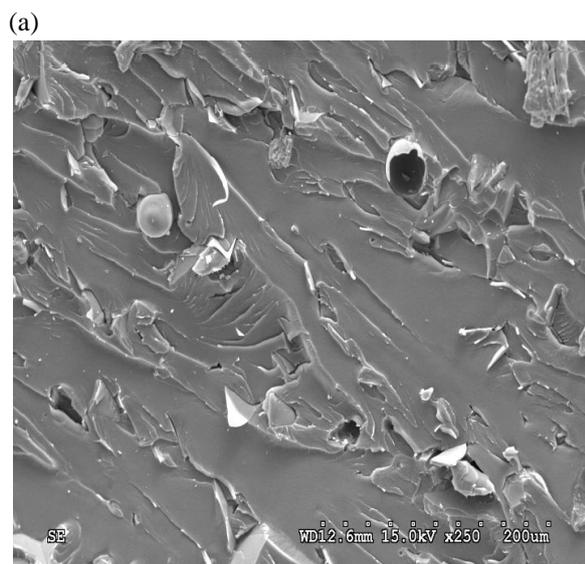


Figure 11. Observations au microscope électronique à balayage de la perlite selon trois différentes échelles d'agrandissement (a) : 200, (b) : 100 et (c) : 50 μm .

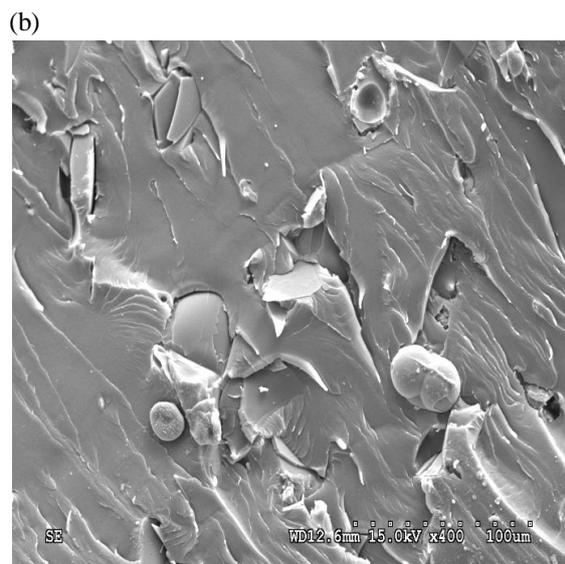
L'observation au MEB de composites UPR/perlite à 4 et 5 % de perlite < 50 μm non traitée a donné les micrographies électroniques représentées dans la figure 12. Les problèmes liés au manque d'affinité des particules de perlite pour la résine UPR sont révélés par la mauvaise adhésion et la présence d'agrégats de charge au sein de la matrice, particulièrement pour le taux de 5 %. Malgré ceci, les particules plaquettaires semblent bien incrustées dans la résine, ce qui a apparemment contribué à la promotion des propriétés mécaniques pour les taux de 3 et 4 %. En effet, les micrographies (a) et (b) montrent une bonne distribution des particules plaquettaires et sphériques. Les plaquettes de perlite sont bien insérées dans la matrice et leur

rupture lors de l'impact suggère qu'elles contribuent efficacement dans la résistance mécanique du matériau. A l'opposé, les particules sphériques sont arrachées durant la sollicitation du fait de leur mauvaise adhérence à la matrice.

D'autre part, les micrographies (c) et (d) du composite à 5 % de charge montrent des agrégats résultant du taux élevé de perlite. Le mauvais mouillage des particules produit des vides initiateurs de la rupture fragile du composite. La faible résistance de ce matériau apparaît aussi suite à une importante contribution du processus d'arrachement des particules sphériques lors de la sollicitation.



(c)



(d)

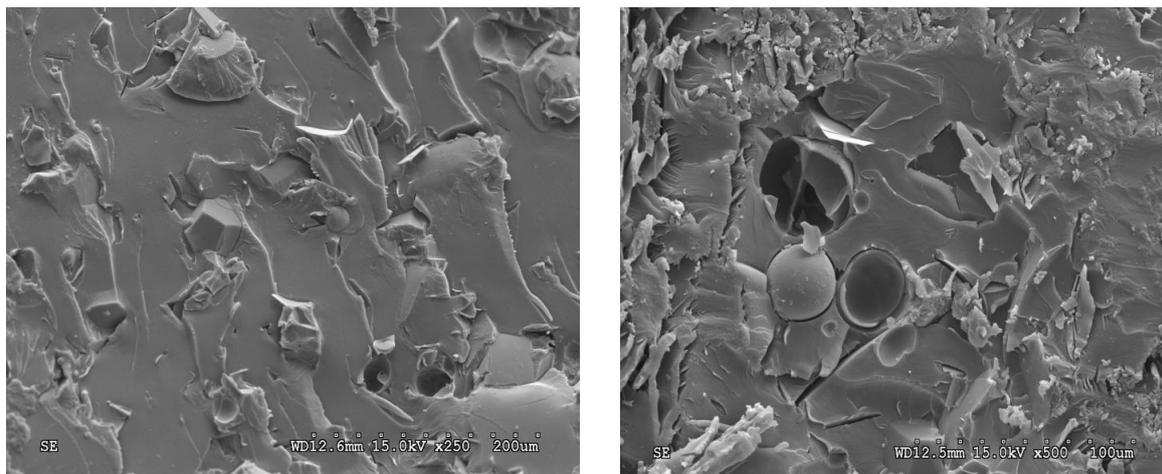


Figure 12. Microphotographies électroniques des composites UPR/perlite < 50 µm non traitée
(a) et (b) 4 % et (c) et (d) 5 % de perlite.

4. Conclusions

La caractérisation des composites UPR/perlite en fonction du taux de charge, de la taille des particules et de leur traitement de surface par l'agent de couplage silane a permis de dégager certaines conclusions.

Par ailleurs, la caractérisation mécanique (traction, choc et flexion) des composites a permis de constater :

- L'augmentation de la contrainte à la rupture avec l'augmentation du taux de perlite, la diminution de la taille des particules et leur traitement de surface,
- L'augmentation de la résistance à l'impact jusqu'à un taux de charge de 4 %, pour les composites à charge traitée et non traitée
- La promotion de la résistance à la rupture avec le taux de charge et le traitement de surface.

Les observations morphologiques ont montré que les plaquettes de la charge sont bien insérées dans la matrice et contribuent à la résistance mécanique des composites, alors que les particules sphériques exhibent une mauvaise adhérence et sont arrachées lors de la sollicitation.

Références

[1] Berlin A. A., Volfson S. A., Enikolopian N. S. and Negmatov S. S., Principles of polymer composites, Springer edition, Berlin (1986).
 [2] Jacquinet P., Préparation et moulage par compression des SMC polyester et Phénoliques, Technique de l'ingénieur A 3727, France (1988).
 [3] Benmesli S., « Influence des renforts et leur traitement de surface sur les propriétés », Mémoire de magister, Université Ferhat Abbas Sétif (Algérie), (2007).

[4] Varga C., Miskolczi N., Bartha L. and Lipoczi G., Improving the mechanical properties of glass-fibre-reinforced polyester composites by modification of fibre surface. *Materials and Design*, 31 (1) (2010): 185-193
<https://doi.org/10.1016/j.matdes.2009.06.034>
 [5] Lee G.-W., Lee N.-J., Jang J., Lee K.-J. and Nam J.-D., Effects of surface modification on the resin-transfer moulding (RTM): of glass-fibre/unsaturated-polyester composites. *Composites Science and Technology*, 62 (1): (2002): 9-16
[https://doi.org/10.1016/S0266-3538\(01\)00091-4](https://doi.org/10.1016/S0266-3538(01)00091-4)
 [6] Rot K., Huskic M., Makarovic M., Ljubic T. Mlakar and Zigon M., Interfacial effects in glass fibre composites as a function of unsaturated polyester resin composition. *Composites: Part A*, 32 (2001): 511-516
[https://doi.org/10.1016/S1359-835X\(00\)00113-5](https://doi.org/10.1016/S1359-835X(00)00113-5)
 [7] Ferreira J., Errajhi O. and Richardson M., Thermogravimetric analysis of aluminised E-glass fiber reinforced unsaturated polyester composites. *Polymer testing*, 25 (8) (2006): 1091-1094
<https://doi.org/10.1016/j.polymertesting.2006.07.012>
 [8] Laoubi K., Hamadi Z., Ahmed Benyahia A., Serier A. and Azari Z., Thermal behavior of E-glass fiber-reinforced unsaturated polyester composites. *Composites: Part B*, 56 (2014): 520-526.
<https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2013.08.085>
 [9] Isa M., Ahmed A., Aderemi B., Taib R. and Mohammed I., Effect of fiber type and combinations on the mechanical, physical and thermal stability properties of polyester hybrid composites. *Composites: Part B*, 52 (2013): 217-223
<https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2013.04.018>
 [10] Segovia F., Ferrer C., Salvador M. and Amigo V., Influence of processing variables on mechanical characteristics of sunlight aged polyester-glass fibre composites. *Polymer Degradation and Stability*, 71 (2001): 179-
[https://doi.org/10.1016/S0141-3910\(00\)00168-3](https://doi.org/10.1016/S0141-3910(00)00168-3)
 [11] Dionysis E., Mouzakis E., H Zoga. and Galiotis C., Accelerated environmental ageing study of polyester/glass fiber reinforced composites (GFRPCs). *Composites: Part B*, 39 (3) (2008): 467-475.
<https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2006.10.004>
 [12] Wang Y., Meng J., Zhao Q. and Shuhua Q., Accelerated ageing tests for evaluations of a durability performance of glass-fiber reinforcement polyester composites. *Materials Science and Technology*, 26 (2010): 467.
[https://doi.org/10.1016/S1005-0302\(10\)60087-4](https://doi.org/10.1016/S1005-0302(10)60087-4)
 [13] Monti M., Puglia D., Natali M., Torre L. and Kenny J., Effect of carbon nanofibers on the cure kinetics of unsaturated polyester

- resin: Thermal and chemorheological modelling. *Composites Science and Technology*, 71 (2011): 1507.
<https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2011.06.010>
- [14] Gamstedt E. K., Skrifvars M., Jacobsen T. K. and Pyrz R., Synthesis of unsaturated polyesters for improved interfacial strength in carbon fibre composites. *Composites: Part A*, 3 (2002): 1239.
[https://doi.org/10.1016/S1359-835X\(02\)00077-5](https://doi.org/10.1016/S1359-835X(02)00077-5)
- [15] Vilay V., Mariatti M., Mat Taib R. and Todo M., Effect of fiber surface treatment and fiber loading on the properties of bagasse fiber-reinforced unsaturated polyester composites. *Composites Science and Technology*, 68 (2008): 631.
<https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2007.10.005>
- [16] Baley C., Busnel F., Grohens Y. and Sire O., Influence of chemical treatments on surface properties and adhesion of flax fibre-polyester resin. *Composites: Part A*, 37 (2006): 1626.
<https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2005.10.014>
- [17] Alix S., Philippe E., Bessadok A., Lebrun L., Morvan C. and Marais S., Effect of chemical treatments on water sorption and mechanical properties of flax fibres. *Bioresource Technology*, 100 (2009): 4742.
<https://doi.org/10.1016/j.biortech.2009.04.067>
- [18] Sangthong S., Pongprayoon T. and Yanumet N., Mechanical property improvement of unsaturated polyester composite reinforced with admicellar-treated sisal fibers. *Composites: Part A*, 40 (2009): 687.
<https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2008.12.004>
- [19] Sreekumar P., Joseph K., Unnikrishnan G. and Thomas S., A comparative study on mechanical properties of sisal-leaf fibre-reinforced polyester composites prepared by resin transfer and compression moulding techniques. *Composites Science and Technology*, 67 (2007): 453.
<https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2006.08.025>
- [20] Sreekumar P., Selvin P., Saiter J., Joseph K., Unnikrishnan G. and Thomas S., Effect of fiber surface modification on the mechanical and water absorption characteristics of sisal/polyester composites fabricated by resin transfer molding. *Composites: Part A*, 40 (2009): 1777.
<https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2009.08.013>
- [21] Ratna A. and Mohana K., Mechanical properties of natural fibre reinforced polyester composites: Jowar, sisal and bamboo. *Materials and Design*, 32 (2011): 4658.
<https://doi.org/10.1016/j.matdes.2011.03.015>
- [22] Dhakal H., Zhang Z. and Richardson M., Effect of water absorption on the mechanical properties of hemp fibre reinforced unsaturated polyester composites. *Composites Science and Technology*, 67 (2007): 1674.
<https://doi.org/10.1016/j.compscitech.2006.06.019>
- [23] Alexandre M. and Dubois P., Polymer-layered silicate nanocomposites: preparation, properties and uses of a new class of materials, 28 (1-2): (2000)1-63.
[https://doi.org/10.1016/S0927-796X\(00\)00012-7](https://doi.org/10.1016/S0927-796X(00)00012-7)
- [24] Bensadoun F., Kchit N., Billotte C., Trochu F., and Ruiz E., A comparative study of dispersion techniques for nanocomposite made with nanoclays and an unsaturated polyester resin. *Journal of Nanomaterials*, 406087 (2011): 1-12.
<https://doi.org/10.1155/2011/406087>
- [25] Chieruzzi M., Miliozzi A. and Kenny J., Effects of the nanoparticles on the thermal expansion and mechanical properties of unsaturated polyester/clay nanocomposites. *Composites: Part A*, 45 (2013): 44.
<https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2012.09.016>
- [26] Suh D. J., Lim Y. T. and Park O. O., The property and formation mechanism of unsaturated polyester-layered silicate nanocomposite depending on the fabrication methods. *Polymer*, 41 (2000): 8557.
[https://doi.org/10.1016/S0032-3861\(00\)00216-0](https://doi.org/10.1016/S0032-3861(00)00216-0)
- [27] Morote-Martinez V., Torregrosa-Coque R. and Miguel Martin-Martinez J., Addition of unmodified nanoclay to improve the performance of unsaturated polyester resin coating on natural stone. *International Journal of Adhesion & Adhesives*, 31 (2011): 154.
<https://doi.org/10.1016/j.ijadhadh.2010.12.001>
- [28] Ollier R., Rodriguez E. and Alvarez V., Unsaturated polyester/bentonite nanocomposites: Influence of clay modification on final performance. *Composites: Part A*, 48 (2013): 137.
<https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2013.01.005>
- [29] Xu L. and Lee J., Effect of nanoclay on shrinkage control of low profile unsaturated polyester (UP): resin cured at room temperature. *Polymer*, 45 (2004): 7325.
<https://doi.org/10.1016/j.polymer.2004.08.051>
- [30] Fiche technique de la résine (Résine polyester isophtalique): fournie par l'entreprise Maghreb Pipe, Msila-Algérie.
- [31] Calciners and dryers in Mineral industries - Background information for proposed standards, EPA-450/3-85-025a, U. S. Environmental protection agency, research triangle park, NC, October (1985).
- [32] Fiche technique de la perlite, Tlemcen, maghnia.
- [33] Chieruzzi M., Miliozzi A. and Kenny J., Effects of the nanoparticles on the thermal expansion and mechanical properties of unsaturated polyester/clay nanocomposites. *Composites: Part A*, 45 (2013): 44.
<https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2012.09.016>
- [34] Silverstein R. M., Webster F. X. et Kiemle D. J., Identification spectrométrique de composés organiques'', 7ème édition, édition De Boeck, Université Bruxelles (2007).
- [35] Guessoum M., Nekkaa S., Fenouillot-Rimlinger F. and Haddaoui N., Effects of kaolin surface treatments on the thermomechanical properties and on the degradation of polypropylene. *International Journal of Polymer Science*, Article ID549154, 9(2012).
<https://doi.org/10.1155/2012/549154>
- [36] Majouli A., Alami Younssi S., Tahiri S., Albizane A., Loukili H. and Belhaj M., Characterization of flat membrane support elaborated from local Moroccan perlite. *Desalination*, 277 (2011): 61.
<https://doi.org/10.1016/j.desal.2011.04.003>
- [37] Seki Y., Sever K., Sarikanat M., Sakarya A. and Elik E., Effect of huntite mineral on mechanical, thermal and morphological properties of polyester matrix. *Composites: Part B*, 45 (2013): 1534.
<https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2012.09.083>
- [38] Chirayil C., Mathewa L., Hassanb P., Mozeticc M. and Thomas S., Rheological behaviour of nanocellulose reinforced unsaturated polyester nanocomposites. *International Journal of Biological Macromolecules*, 69 (2014): 274.
<https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2014.05.055>
- [39] Lin Chana M., Lau K-tak, Wong T-tat, Ho M-po and Hui D., Mechanism of reinforcement in a nanoclay/polymer composite. *Composites: Part B*, 42 (2011): 1708.
<https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2011.03.011>
- [40] Madugu I.A., Abdulwahab M. and Aigbodion V.S., Effect of iron fillings on the properties and microstructure of cast fiber-polyester/iron filings particulate composite. *Journal of Alloys and Compounds*, 47 (2009): 807.
<https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2008.09.165>
- [41] Jin Park S. and Seong Jin J., Effect of silane coupling agent on interphase and performance of glass fibers/unsaturated polyester composites. *Journal of Colloid and Interface Science*, 242 (2001): 174. <https://doi.org/10.1006/jcis.2001.7788>
- [42] Hosain Beheshty M., Vafayan M. and Poorabdollah M., Low profile unsaturated polyester resin-clay nanocomposite properties. *Polymer composite*, 629 (2009).
<https://doi.org/10.1002/pc.20597>

- [43] B.-Wan Jo, Seung-Kook Park, Do-Keun Kim, Mechanical properties of nano-MMT reinforced polymer composite and polymer concrete. *Construction and Building Materials*, 22 (2008): 14. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2007.02.009>
- [44] Schubel P., Johnson M., Warrior N. and Rudd C., Characterisation of thermoset laminates for cosmetic automotive applications: Part III – Shrinkage control via nanoscale reinforcement. *Composites: Part A*, 37, 1757 (2006). <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2005.09.014>
- [45] Ngo T. -D., Ton-That M. -T., Hoa S. V., Cole K. C., Preparation and properties of epoxy nanocomposites. Part 2: the effect of dispersion and intercalation/exfoliation of organoclay on mechanical propertie. *Polymer Science Engineering*, 52 (2012): 607. <https://doi.org/10.1002/pen.22123>
-