

# Impact d'un vieillissement fongique sur la durabilité de composites PE/ fibre de lin

Marielle Guéguen Minerbe<sup>1</sup>, Issam Nour<sup>2</sup>, Sandrine Moscardelli<sup>3</sup>, Peter Davies<sup>4</sup>, Laetitia van Schoors<sup>5</sup>.

<sup>1</sup>Université Paris-Est, IFSTTAR, MAST/CPDM, 77447 MARNE-LA-VALLEE CEDEX 2, mail : [marielle.gueguen@ifsttar.fr](mailto:marielle.gueguen@ifsttar.fr) :

<sup>2</sup>Université Paris-Est, IFSTTAR, MAST/CPDM, 77447 MARNE-LA-VALLEE CEDEX 2, mail : [issam.nour@ifsttar.fr](mailto:issam.nour@ifsttar.fr)

<sup>3</sup>Université Paris-Est, IFSTTAR, MAST/CPDM, 77447 MARNE-LA-VALLEE CEDEX 2, mail : [sandrine.moscardelli@ifsttar.fr](mailto:sandrine.moscardelli@ifsttar.fr)

<sup>4</sup>Ifremer, Département : Recherche et Développement Technologique, Laboratoire : Comportement de structures en Mer, Pointe du Diable, 29280 Plouzané, e-mail : [peter.davies@ifremer.fr](mailto:peter.davies@ifremer.fr)

<sup>5</sup>Université Paris-Est, IFSTTAR, MAST/CPDM, 77447 MARNE-LA-VALLEE CEDEX 2, mail : [laetitia.van-schoors@ifsttar.fr](mailto:laetitia.van-schoors@ifsttar.fr)

---

## RÉSUMÉ.

*L'utilisation d'agro-ressources ou de co-produits de l'industrie agricole dans les matériaux pour des applications bâtiment est en plein essor afin de limiter leur empreinte écologique. Cependant, ces nouveaux matériaux « verts » ne doivent pas présenter des durabilités inférieures aux matériaux usuels. Il est donc important de pouvoir évaluer la durée de vie de ces nouveaux matériaux bio-sourcés. Afin de déterminer l'impact de moisissures sur les propriétés mécaniques des composites polyéthylène/fibres courtes de lin, des éprouvettes ont été incubées à 30°C et 96±3% HR pendant 3 mois dans trois conditions différentes (stériles, naturelles etensemencées). Un dénombrement des microorganismes est réalisé ainsi que des essais de traction afin de mesurer l'impact des microorganismes sur les propriétés fonctionnelles des matériaux. Il a ainsi pu être mis en évidence une chute de module élastique et une augmentation de l'allongement à la rupture de ces matériaux suite au développement de moisissures.*

## ABSTRACT.

*The use of agro-resources or of co-produced by the agro-industry in materials used in the building is expanding to limit their ecological footprint. However, these new "green" materials do not have to present lower durability than the usual materials. It is thus important to be able to estimate the lifetime of these new organic materials. To determine the impact of fungi on the mechanical properties of composites polyethylene / flax fibers, specimen's type IBA were incubated in 30°C and 96±3 % RH during 3 months in three different conditions (sterile, natural and seed). An enumeration of microorganisms is realized as well as tensile tests to measure the impact of microorganisms on the functional properties*

*MOTS-CLÉS : Composite PE/lin, moisissures, propriétés mécaniques.*

*KEY WORDS: PE/flax composites, fungi, mechanical properties.*

---

## 1. Introduction

Afin de répondre aux enjeux du développement durable, les acteurs du bâtiment et du génie civil proposent aujourd'hui des solutions alternatives et innovantes permettant, entre autre, de réduire les émissions de gaz à effet de serre et de limiter l'utilisation des ressources fossiles. Une voie de développement actuel est de remplacer les matériaux traditionnels non ou peu renouvelables par des produits issus de la filière végétale.

Ces nouveaux matériaux ont l'avantage, en plus d'être une ressource renouvelable, de posséder des bonnes caractéristiques thermique et phonique grâce à leur porosité. Actuellement des composites bio-sourcés sont développés ou en cours de développement. Ceux-ci présentent des applications pour le bâtiment. On retrouve ainsi des carrelages, des encadrements de fenêtres ou des lames de terrasses constitués dans la majorité des cas d'une matrice en polypropylène et de fibres de lin ou de chanvre. Les éventuelles évolutions des propriétés de ces composites renforcés par des fibres végétales pendant leur utilisation sont mal appréhendées à l'heure actuelle.

Sur des matériaux plus « traditionnels », en France, 37% des habitations présentent un développement de micro-organismes liés à la présence d'humidité et/ou d'infiltration [ADE 15]. Les micro-organismes recensés sont des moisissures, des bactéries gram négatif et des mycobactéries [VER 14]. Outre l'aspect inesthétique, ces micro-organismes sont à l'origine de contaminants aériens tels que les spores, les allergènes, des toxines et d'autres métabolites. Ces micro-organismes sont capables de se développer sur de nombreux supports : béton, papier peint, peinture, bois ...

Or les fibres ou granulats végétaux, de nature ligno-cellulosique, sont hydrophiles. Cette propriété favorise le développement de micro-organismes et plus particulièrement de moisissures qui ne peut avoir lieu qu'à partir d'une certaine teneur en eau. De plus, les molécules ligno-cellulosiques (cellulose, hémicelluloses, pectines et lignine) représentent une source de carbone privilégiée pour ces micro-organismes. En consommant les fibres et/ou les granulats végétaux, certaines moisissures peuvent altérer les propriétés des matériaux. De plus, leur développement représente un risque pour la santé humaine en raison de leurs propriétés allergènes

Aussi, notre étude porte sur le développement de moisissures sur des composites constitués d'une matrice polyéthylène basse densité renforcée par des fibres courtes de lin à une forte humidité. De plus, l'impact des moisissures sur les propriétés mécaniques de ces composites est évalué. Notre étude s'attache à essayer de différencier l'impact de l'humidité de l'impact des moisissures.

## 2. Matériel et Méthodes

### 2.1. Les matériaux

Les matériaux étudiés sont des composites à matrice polyéthylène basse densité renforcée par différents taux massique de fibres de lin (11 ; 29 ; 38 et 54%). Les fibres de lin sont des fibres courtes d'environ 20  $\mu\text{m}$  de diamètre et de 3 mm de longueur. Ces fibres n'ont subi aucun traitement mis à part la coupe et le rouissage sur champs. Pour les composites renforcés par 11 et 29% en masse de lin, l'injection se fait à 180°C sous une pression de 50 bars. Pour des taux de fibres de 38 et 54% en masse, les composites sont injectés à 190°C sous une pression de 55 bars. Aucun agent comptabilisant n'a été ajouté. Les composites sont sous la forme d'éprouvette haltère de type 1BA.

### 2.2. Les vieillissements microbiologiques

Les éprouvettes ont été vieilles selon trois conditions différentes. Dans un premier contenant, les composites sont préalablement nettoyés à l'éthanol (70% v/v) et exposés aux UV pendant 30 minutes (conditions dites « stériles »). Dans un deuxième contenant, les échantillons sont disposés sans traitement préalable (conditions dites « naturelles »). Enfin dans le dernier contenant, les composites sont inoculés avec trois types de moisissures s'étant développées dans les solutions de vieillissement physico-chimique (conditions dites «ensemencées»). Les éprouvettes sont incubées à  $30\pm 1^\circ\text{C}$  et  $96\pm 3\%$  HR pendant 3 mois.

Au bout d'un et trois mois, une éprouvette est prélevée afin d'effectuer un dénombrement des micro-organismes, et plus particulièrement des moisissures sur gélose pomme de terre – dextrose (PDA). Pour cela, les microorganismes présents sont prélevés à l'aide d'un écouvillon sur la totalité de l'éprouvette. Les micro-organismes sont ensuite récupérés en vortexant l'écouvillon dans de l'eau stérile contenant du sodium dodecyl sulfate (SDS) comme tensioactif. Des dilutions successives au dixième sont ensuite réalisées. 100 $\mu\text{L}$  de chaque

dilution sont étalés sur une boîte de pétri contenant du milieu gélosé PDA. Les boîtes sont ensuite mises à incuber pendant 48h à 30°C, puis le dénombrement des unités formant colonies (UFC) est effectué. La concentration en microorganismes est exprimée en UFC. cm<sup>-2</sup>.

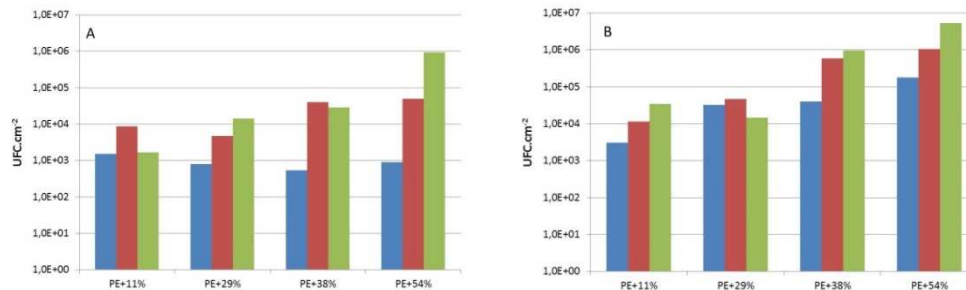
### 2.3. Caractérisation mécanique des éprouvettes

Au bout de 3 mois, trois éprouvettes sont prélevées puis caractérisées mécaniquement. Les essais de traction ont été menés à l'aide d'une presse de traction Instron<sup>TM</sup> avec un capteur de force de 2kN. Les essais ont été réalisés avec une vitesse de 2 mm.min<sup>-1</sup>. La résistance et l'allongement à la rupture ont été déterminés directement à partir des courbes de contrainte/déformation. Le module d'élasticité a été déterminé sur un intervalle de déformation de 0,1 à 0,3%.

## 3. Résultats et Discussion

Après 1 mois de vieillissement, les surfaces des composites se sont couverts de moisissures (Figure 1A). Bien que nous ayons stérilisé les composites, les composites ont été contaminés par des moisissures à hauteur de 10<sup>3</sup> UFC. cm<sup>-2</sup>, et ce quelle que soit la quantité de fibres de lin présente. Cette contamination provient du contenant qui n'a pas permis une étanchéité totale. En effet, les dénombrements initiaux des composites avant et après stérilisation ne présentent pas de moisissures à leur surface.

En ce qui concerne les composites vieillis naturellement et les compositesensemencées, la concentration en moisissures est relativement similaire pour le PE+11%, PE+29 et le PE+38% masse de lin (Figure 1A). Cependant, on observe un facteur 10 entre ces deux conditions pour le PE+54% masse de lin. Dans les conditions naturelles etensemencées, les composites les plus chargés en fibres de lin présentent la concentration en moisissures la plus importante.



**Figure 1 :** Dénombrement sur PDA des moisissures à la surface du PE+11%, PE+29%, PE+38% et PE+54% masse de lin après 1 mois (A) et 3 mois (B) d'incubation à 96%HR et 30°C en conditions stériles (en bleu), naturelles (en rouge) etensemencées (en vert) (n=1).

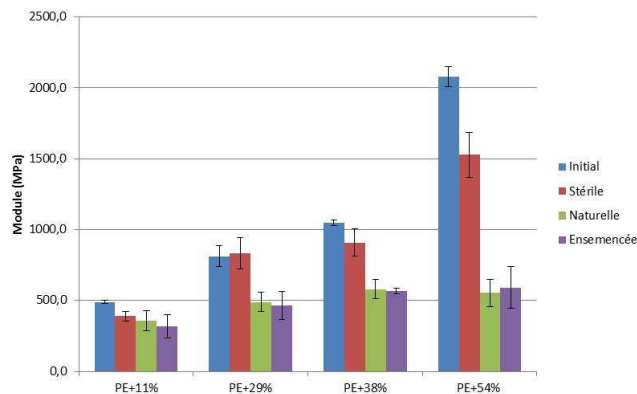
Après 3 mois de vieillissement (Figure 1B), les concentrations en moisissures à la surface des échantillons ont légèrement augmenté quelles que soient les conditions de vieillissement (stériles, naturelles ouensemencées ; Figure 1B). L'augmentation est de l'ordre d'un demi à un log. La concentration en moisissures n'a que peu évolué pendant ces deux mois supplémentaires de vieillissement, ceci est peut-être lié à la capacité maximale de charge de micro-organismes possibles sur ces matériaux. La capacité de charge maximale correspond au nombre maximum de micro-organismes que peut supporter un milieu donné.

Les propriétés mécaniques en traction de ces éprouvettes ont ensuite été évaluées après 3 mois de vieillissement (Figure 2 et Figure 3). Les modules des composites PE+11% masse de lin n'évoluent pas au cours des 3 mois de vieillissement et ce quelle que soient les conditions. Pour le composite PE+29% en masse de lin, aucune différence significative n'est observée entre le module initial et le module après 3 mois de vieillissement en condition stérile. Par contre, on observe une chute du module des composites PE+38% et PE+54% en masse de lin après 3 mois de vieillissement en condition stérile. Cette chute est plus marquée dans le cadre du composite PE+54% en masse de lin, elle est de l'ordre de 26%. Cette chute peut s'expliquer par le phénomène

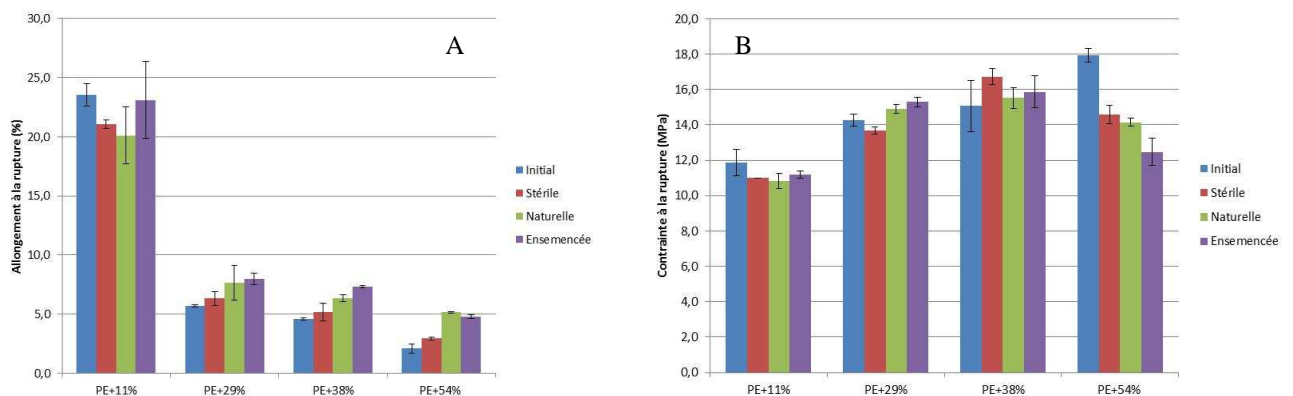
de plastification au sens physico-chimique lié à la forte humidité. En effet, les fibres étant hydrophiles, elles vont favoriser la fixation des molécules d'eau conduisant à une augmentation de la mobilité des chaînes macromoléculaires et notamment des microfibrilles de cellulose [THU 14].

De plus, dès une charge en lin supérieure à 29% en masse du composite, les modules sont plus faibles dans les conditions naturelles etensemencées que les modules initiaux ou après 3 mois de vieillissement en condition stérile. Les chutes de module sont respectivement de 40%, 38% et 72% pour les composites chargés avec 29, 38 et 54% en masse de lin. Les conditions naturelles etensemencées sont les conditions dans lesquelles les moisissures se sont le plus développées dès le début du vieillissement. Les micro-organismes semblent donc modifier les modules des composites les plus chargés.

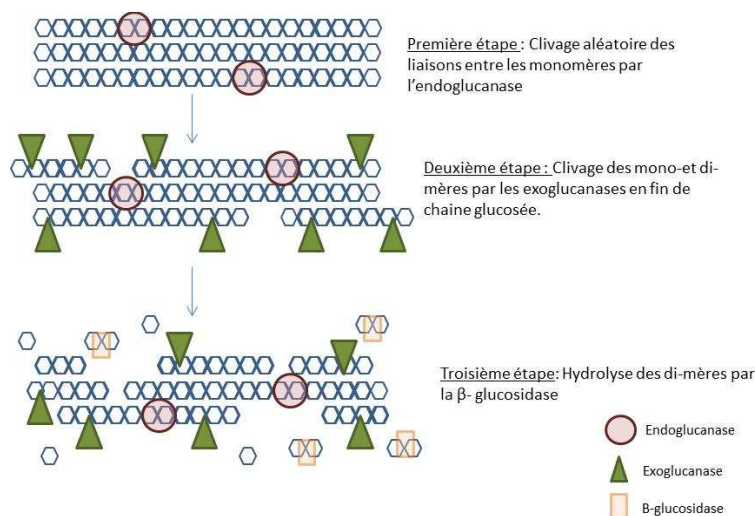
Le module du composite dépend à la fois du module du PE et du module de la fibre de lin. Le module du PE seul utilisé dans cette étude est de  $150,9 \pm 51,9$  MPa. Le module des fibres de lin est compris entre 30 et 110 GPa [BAL 04]. Il est lié aux microfibrilles de la cellulose [BOS 06 ; BAL 12]. Les fibres de lin sont composées de cellulose à hauteur de 64 à 85% [PET 67 ; MUS 10 ; RAB 15] or la cellulose est la molécule ligno-cellulosique la plus facilement dégradée par les micro-organismes. En effet, la dégradation de la cellulose ne nécessite que l'utilisation de 3 enzymes : l'endoglucanase, l'exoglucanase et la  $\beta$ -glucosidase (figure 4) [MAL 02]. L'endoglucanase permet de couper aléatoirement les liaisons inter-monomères dans les zones amorphes. L'exoglucanase coupe les extrémités des chaînes en mono ou dimères, enfin la  $\beta$ -glucosidase hydrolyse les dimères [MAL 02].



**Figure 2 :** Evolution des modules élastiques des composites PE renforcés par 11, 29, 38 et 54% en masse de fibres courtes de lin avant (en bleu) et après 3 mois de vieillissement en condition stérile (en rouge), en condition naturelle (en vert) et en conditionensemencée (en mauve)( moyenne  $\pm$  écart type,  $n=3$ ).



**Figure 3 :** Evolution de l'allongement à la rupture (A) et de la contrainte à la rupture (B) des composites PE renforcés par 11, 29, 38 et 54% en masse de fibres courtes de lin avant (en bleu) et après 3 mois de vieillissement en condition stérile (en rouge), en condition naturelle (en vert) et en conditionensemencée (en mauve)(moyenne  $\pm$  écart type,  $n=3$ )



**Figure 4 :** Dégradation de la cellulose sous l'action de l'endoglucanase, de l'exoglucanase et de la  $\beta$ -glucosidase d'après Malherbe et Cloete [MAL 02].

En ce qui concerne l'allongement à la rupture (Figure 3A) et la contrainte à la rupture (Figure 3B), les évolutions durant les vieillissements sont moins marquées que pour les modules élastiques. On observe une augmentation de l'allongement à la rupture pour les composites PE+29%, PE+38% et PE+54% en masse de lin en conditions stérile, naturelle etensemencée. Ainsi l'allongement initialement faible du composite PE+54% se voit doublé en condition naturelle etensemencée. Ce résultat confirme les chutes de modules liées au phénomène de plastification au sens physico-chimique. En effet, une augmentation du pourcentage d'eau dans les fibres végétales induit une chute du module et une augmentation de l'allongement à la rupture [BAL 05].

Concernant la contrainte à la rupture, peu de différences sont observables (Figure 3B) pour les composites PE+11%, PE+29% et PE+54% en masse de lin. Pour le composite PE+54% en masse de lin, la contrainte à la rupture passe de  $17,9 \pm 0,4$  MPa à  $12,5 \pm 0,8$  MPa après 3 mois en conditionsensemencées.

Globalement, les propriétés mécaniques du PE+11% de masse de lin ne varient pas au cours de ces 3 mois de vieillissement. Pour le PE+29% et le PE+38%, leurs modules diminuent en conditions naturelle etensemencée et en même temps leurs allongements à la rupture augmentent de l'ordre de 30%. Par contre, la contrainte à la rupture n'est pas modifiée. Concernant le composite PE+54% en masse de lin, il présente les mêmes évolutions que le PE+29 et le PE+38% en masse de lin mais de façon beaucoup plus marquée.

#### 4. Conclusion

L'étude que nous avons menée sur l'impact d'un développement fongique sur les propriétés mécaniques de composites PE renforcés par différents pourcentages massiques de fibres courtes de lin a permis de mettre en évidence que ces matériaux étaient propices au développement microbien malgré une stérilisation initiale. De plus, plus ces matériaux sont chargés en fibres de lin, plus la quantité de moisissures est importante.

Après trois mois de vieillissement, nous pouvons observer une plastification au sens physico-chimique des matériaux les plus chargés en fibres de lin. De plus, les composites présentant une forte charge en micro-organismes (supérieure à  $10^5$  ufc.cm<sup>2</sup>) présentent une forte chute des modules, suggérant une consommation de la cellulose amorphe.

Ces résultats sont cependant à prendre avec précaution car nous nous sommes placés à 30°C et  $96 \pm 3\%$ HR pendant 3 mois. Ces conditions ne devraient être rencontrées sous nos latitudes qu'exceptionnellement.

Dans une deuxième étape, nous allons chercher à identifier les microorganismes ayant colonisés les composites. De plus, le développement de moisissures sur ces composites subissant des cycles courts d'humidification/séchage sera étudié afin de mieux se rapprocher de la réalité.

## 5. Références

- [ADE 15] ADEME , «Un air sain chez sain – Des solutions et des pratiques pour améliorer la qualité de l’air intérieur», Edition mai 2015, 39p.
- [BAL 04] BALEY C., «Influence of kink bands on the tensile strength of flax fibers», *Journal of Materials Sciences*, vol. 36, 2004, p. 331-334.
- [BAL 05] ] BALEY C., «Fibres naturelles de renfort pour matériaux composites », *Techniques de l’Ingénieur*, vol. 2, 2005.
- [BAL 12] BALEY C., LE DIGOU A., «Eco-design, life cycle analysis (LCA) and recycling. Flax and hemp fibre: a natural solution for the composite industry», *JEC Composites*, 2012, p1226-1233.
- [BOS 06] BOS H.L., MUSSIG J., VAN DER OEVER M.J.A., « Mechanical properties of short-flax-fibre reinforced coupounds », *Composites Part A : Applied Science And Manufacturing*, vol. 37, n°10, 2006, p. 1691-1604
- [MAL 02] MALHERBE S., CLOETE T.E., «Lignocellulose biodegradation: fundamentals and application. », *Environmental Science and Biotechnology*, vol. 1, n°2,, 2002, p. 105-114.
- [MUS 10] MUSSIG J., FISCHER H., GRAUPNER N., DRIELING A., «Testing methods for measuring physical and mechanical fibre properties (Plant and animal fibres) », *Industrial application of natural fibres: structures, properties and technical applications*, 2010, p. 269-309.
- [PET 67] PETERS R.H., «Impurities in Fibres: Purification of Fibres», *Textile Chemistry Vol.II Elsevier Applied Science, Amsterdam*, 1967.
- [RAB 15] RABII H., VAN SCHOORS L., GUEGUEN M., DAVIES P., « Impact of hygrothermal ageing of low-density polyethylene/short flax fibre composites on the multi-scale properties », *Proceedings of the First International Conference on Bio-based Building Materials*, June 22nd - 24th 2015, Clermont-Ferrand, France.
- [THU 14] THUAULT A., EVE S., BLOND D., BREARD J., GOMINA M., « Effects of the hygrothermal environment on the mechanical properties of flax fibres », *Journal of Composite Materials*, vol. 48, 2014, p. 1699-1707.
- [VER 14] VERDIER T., COUTAND M., BERTRON A., ROQUES C., « A review of indoor microbial growth across building materials and sampling and analysis methods », *Building and Environment*, vol 80, 2014, p 136-149.