



(51) Classification internationale des brevets :
D04H 1/64 (2012.01) *E04B 1/80* (2006.01)
D06N 7/06 (2006.01) *E04C 2/24* (2006.01)

(21) Numéro de la demande internationale :
PCT/FR2012/050744

(22) Date de dépôt international :
5 avril 2012 (05.04.2012)

(25) Langue de dépôt : français

(26) Langue de publication : français

(30) Données relatives à la priorité :
1152967 6 avril 2011 (06.04.2011) FR
1154264 17 mai 2011 (17.05.2011) FR

(71) Déposants (pour tous les États désignés sauf US) :
FIBRES RECHERCHE DEVELOPPEMENT [FR/FR];
Rue Gustave Eiffel, Technopole de l'Aube en
Champagne/Hotel, F-10000 Troyes (FR). **UNIVERSITE
MONTPELLIER 2 SCIENCES ET TECHNIQUES**
[FR/FR]; Place Eugène Bataillon, F-34095 Montpellier
(FR). **UNIVERSITE MONTPELLIER 1** [FR/FR]; 5,
Boulevard Henri IV, F-34000 Montpellier (FR). **ECOLE
NATIONALE SUPERIEURE DE CHIMIE DE MONT-
PELLIER** [FR/FR]; 8, Rue de l'Ecole Normale, F-34000
Montpellier (FR). **CENTRE NATIONAL DE LA RE-**

CHERCHE SCIENTIFIQUE [FR/FR]; 3, Rue Michel
Ange, F-75794 Paris Cedex 16 (FR).

(72) Inventeurs; et

(75) Inventeurs/Déposants (pour US seulement) : **HABAS,
Jean-Pierre** [FR/FR]; 18, Rue Edouard Branly, Appt 118,
F-34790 Grabels (FR). **STEMMELEN, Mylène** [FR/FR];
119, Rue de Javel, F-75015 Paris (FR). **LAPINTE,
Vincent** [FR/FR]; 46, Rue des Amandiers, F-34160 Cas-
tries (FR). **CAILLOL, Sylvain** [FR/FR]; Résidence Euro-
pa-Espagne -, 412 Avenue Père Soulas, F-34090 Montpel-
lier (FR). **BOUTEVIN, Bernard** [FR/FR]; Les Terres
Blanches -, 1, Rue Anselme Mathieu, F-34090 Montpellier
(FR). **RICBOURG, Maxime** [FR/FR]; 472 Route Natio-
nale, F-59930 La Chapelle D'armentieres (FR).

(74) Mandataire : **RHEIN, Alain**; Cabinet Bleger-rhein, 17,
Rue de la Forêt, F-67550 Vendenheim (FR).

(81) États désignés (sauf indication contraire, pour tout titre
de protection nationale disponible) : AE, AG, AL, AM,
AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ,
CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO,
DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN,
HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR,
KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME,
MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ,
OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD,

[Suite sur la page suivante]

(54) Title : SHEET OF VEGETABLE WOOL FIBRE IMPREGNATED WITH AN EPOXIDISED VEGETABLE OIL

(54) Titre : NAPPE DE FIBRE DE LAINE VEGETALE IMPREGNEE D'UNE HUILE VEGETALE EPOXYDEE

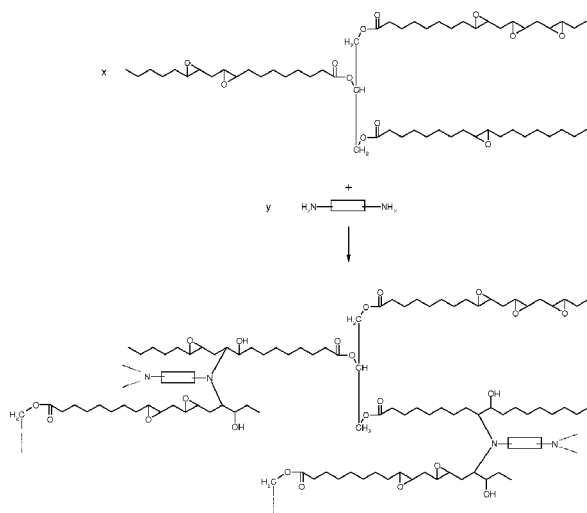


Fig 1

(57) Abstract : The invention relates to a sheet of vegetable wool fibre impregnated with a reactive mix made up of a partially or completely epoxidised vegetable oil and a hardener. The invention also relates to a panel including a sheet according to the invention. The invention further relates to a method for manufacturing a sheet or a panel according to the invention, comprising the following steps: mixing an epoxidised vegetable oil and a hardener at a temperature higher than each one of the melting temperatures thereof and lower than each one of the breakdown temperatures thereof; depositing the obtained mix on an assembly of vegetable wool fibres at a temperature higher than each one of the melting temperatures thereof and lower than each one of the breakdown temperatures thereof.

(57) Abrégé : L'invention a trait à une nappe de fibre de laine végétale imprégnée d'un mélange réactif composé d'une huile végétale partiellement ou totalement époxydée et d'un durcisseur. Elle concerne également un panneau comprenant une nappe selon l'invention. L'invention concerne encore un procédé de fabrication d'une nappe ou d'un panneau selon l'invention, comportant les étapes suivantes : • mélange d'une huile végétale époxydée et d'un durcisseur à une température

[Suite sur la page suivante]



SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

- (84) **États désignés** (*sauf indication contraire, pour tout titre de protection régionale disponible*) : ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasién (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), européen (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT,

LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Publiée :

— *sans rapport de recherche internationale, sera republiée dès réception de ce rapport (règle 48.2.g))*

NAPPE DE FIBRE DE LAINE VEGETALE IMPREGNEE D'UNE HUILE VEGETALE
EPOXYDEE

L'épuisement annoncé des ressources pétrolières a poussé
5 les acteurs industriels du secteur de l'isolation à étudier
l'amélioration et de l'isolation thermique, notamment des
bâtiments, mais aussi des véhicules. La présente invention
s'inscrit dans ce domaine de l'isolation thermique, sans que
l'on puisse considérer, pour autant, qu'elle soit limitée dans
10 ses applications à ce seul domaine. En particulier, cette
invention pourra également trouver un intérêt dans le cadre de
l'isolation phonique.

La présente invention concerne plus particulièrement une
nappe de fibres de laine végétale, utilisable pour isoler
15 thermiquement et/ou phoniquement une paroi. Dans la suite de la
demande, et pour simplifier la lecture, on se contentera de
citer l'isolation thermique, mais il est bien entendu qu'une
grande partie des nappes utilisables pour l'isolation thermique
sont également utiles pour l'isolation phonique, et que par
20 ailleurs on peut mettre en œuvre de telles nappes dans des cas
où seule l'isolation phonique est recherchée.

Les laines végétales d'isolation thermique peuvent être
considérées comme des produits concurrentiels des laines
minérales (verre, roche) pour application, notamment dans le
25 domaine de l'habitat éco durable. Ces laines minérales reposent
majoritairement sur l'utilisation de matériaux polymères
synthétiques de nature thermodurcissable comme par exemple le
phénol-formaldéhyde. Le document FR2626597 présente un panneau
d'isolation thermique et acoustique avec une laine minérale liée
30 par une résine mélaminée thermodurcissable.

D'autres déclinaisons de panneaux à base de laine de verre
ont examiné le remplacement des matrices thermodurcissables par
des liants polymères thermoplastiques. Le document FR2731243
présente un panneau d'isolation thermique et acoustique avec une
35 laine de verre liée par un thermoplastique, tel le PVC.

Une autre voie a proposé de remplacer au sein des laines minérales les liants pétrochimiques par une composition formée par un monosaccharide et/ou un polysaccharide avec un acide organique polycarboxylique ayant une masse molaire inférieure à 1000. Une telle invention est détaillée dans le document FR2924719A1.

Les laines végétales déjà commercialisées sont très souvent à base de fibres de chanvre ou de lin. Un polymère thermoplastique semi-cristallin (polyéthylène, polypropylène, polyéthylène téréphtalate) est utilisé quant à lui comme liant inter-fibres afin d'assurer leur cohésion mécanique pour la conception d'une nappe, voire d'un panneau d'isolation en laine végétale. Mais, son origine pétrochimique interdit à ces nappes ou panneaux d'isolation d'afficher un label de produit naturel ou écologique.

Les performances mécaniques et thermiques des laines végétales sont bien évidemment fonction de divers facteurs dont certains sont directement imputables à la nature même des fibres utilisées. On peut à ce titre citer :

- leur composition chimique : chaque espèce végétale est caractérisée par une proportion de cellulose-hémicellulose-lignine spécifique
- leur facteur de forme : il s'agit du rapport longueur sur diamètre des fibres utilisées
- leur distribution en taille
- leur disposition au sein de la nappe : fibres crochetées ou non.

En ce qui concerne le liant polymère, la majorité des applications commerciales utilisant des fibres végétales font appel à des polymères thermoplastiques polyoléfines (polyéthylène, polypropylène) ou polyester (polyéthylène téréphtalate). Du fait de leur nature semi-cristalline, ces polymères peuvent fondre lors d'une élévation de température, ce qui leur permet de diffuser au sein du réseau fibreux. Après refroidissement jusqu'à la température ambiante, ces polymères

recouvrent une rigidité mécanique élevée permettant d'assurer la cohésion inter-fibres nécessaire à la production d'une nappe isolante.

Souvent les nappes isolantes sont produites sous forme de
5 panneaux rigides ou semi-rigides, pouvant être posés par exemple entre un mur et un parement, pour améliorer l'isolation thermique dudit mur. Elles peuvent également servir à isoler une paroi non plane, comme une portière de voiture. Dans ce cas on peut, soit former un panneau non plan, par exemple par moulage,
10 ou alors former la nappe directement sur son support. Pour ce faire, on peut préparer d'un côté les fibres, de l'autre le polymère. On peut alors déposer le polymère sur les fibres, puis projeter l'ensemble sur la paroi à recouvrir. On peut aussi projeter en même temps, par un dispositif approprié de
15 projection, les fibres et le polymère. Le choix du procédé dépendra des caractéristiques des polymères choisis.

Dans la présente demande, le terme nappe sera utilisé pour décrire une couche de fibres, liées par un liant, avec une forme quelconque, plane ou non, qu'elle soit préformée de manière à
20 former une pièce à part, ou qu'elle soit formée au moment d'être appliquée sur la paroi dont elle doit améliorer l'isolation thermique et/ou phonique. Dans la description on utilisera souvent le terme « panneau », étant donné que le panneau représente l'application la plus courante. Mais là aussi les
25 variantes décrites s'appliquent à des nappes quelconques.

Le choix d'un liant thermoplastique issu du pétrole présente plusieurs inconvénients. En effet, il n'est pas possible de recycler ces matières une fois mélangées avec les fibres végétales. Par ailleurs, du fait de leur origine 100%
30 pétrochimique, ces différentes classes de liants ne peuvent en aucune façon conférer à la matière isolante un label «vert». Enfin, les caractéristiques mécaniques proches des différents types de thermoplastiques utilisés limitent la déclinaison d'une large gamme de laines végétales.

35 Au-delà des facteurs inhérents aux fibres, décrits ci-dessus, la proportion relative de polymère permet de faire

varier les propriétés physiques du panneau fibreux. Toutefois, pour ne pas altérer l'aspect thermique du panneau isolant, le pourcentage massique de la matrice thermoplastique ne doit pas excéder 10 à 20%. Cela limite donc fortement le recours à ce
5 moyen pour conférer les propriétés souhaitées à un panneau.

Le processus de fabrication peut également être employé pour faire varier les propriétés physiques du panneau. Par exemple, la pression de compactage impactera notamment la densité de la laine végétale, mais aussi du même coup son
10 caractère isolant. Le mode de dispersion de la matrice polymère (sous forme de poudre ou de fibres) au sein du réseau végétal est également un autre élément d'influence. Les moyens d'action se révèlent toutefois extrêmement limités.

La présente invention se propose de remédier à au moins une
15 partie des inconvénients précités et propose de substituer le liant thermoplastique d'origine pétrochimique par une formulation polymère thermodurcissable dérivée de la Chimie Verte. Cette dernière repose sur le mélange réactif d'une huile végétale époxydée avec un durcisseur.

20 A cet effet, l'invention concerne une nappe de fibres de laine végétale. Cette nappe est imprégnée d'une huile végétale époxydée et d'un durcisseur. L'association de l'huile végétale époxydée et du durcisseur constitue un liant permettant à la nappe de fibres de laine végétale de constituer un tout
25 solidaire et cohérent. Ce concept autorise une très large déclinaison de formulations suivant la nature chimique intrinsèque de ses composants, la composition du mélange ou encore les conditions de polymérisation associées (temps, température)

30 Selon d'autres caractéristiques :

- l'huile végétale époxydée peut être une huile riche en acides gras insaturés, en particulier une huile obtenue à partir d'un végétal de la liste constituée du lin, tournesol, soja, olive, bois de Tung, coton, colza, ricin, noix de cajou,
35 arachide, pépin de raisin ; ces huiles ont été identifiées comme étant d'excellents composants pour l'invention. Elles

peuvent être utilisées pures ou comme un mélange des huiles précédemment citées. Toute autre huile présentant la particularité d'être riche en acides gras insaturés peut être considérée comme un bon candidat à la base de la présente invention,

- l'huile végétale époxydée peut être une huile de lin époxydée ; celle-ci est particulièrement intéressante car sa proportion en acides gras insaturés excède les 90% avec notamment une forte composition en acides gras linoléique et linolénique ; par ailleurs, n'étant pas comestible, sa valorisation ne rentre aucunement en conflit avec une production orientée initialement vers l'alimentaire
- ladite huile de lin époxydée peut comprendre de 2 à 6 groupes époxyde ; des huiles avec peu de groupes époxydes seront sélectionnées pour obtenir des nappes plus souples, et des huiles avec d'avantage de groupes époxydes permettront d'obtenir des nappes plus rigides.
- ledit durcisseur peut être un composé portant plusieurs amines primaires ou secondaires (n supérieur ou égal à 2). Dans le cas général, on désignera le dit composé sous le terme de polyamine ; ce peut être par exemple une diamine si $n=2$
- ladite polyamine peut être d'origine biologique, ce qui permet de produire la nappe entièrement à partir de composants biologiques
- ledit durcisseur peut être un anhydride d'acide qui peut être mono ou plurifonctionnel. On retiendra néanmoins que chaque cycle anhydride pourra réagir avec deux unités époxydes
- ledit anhydride peut être d'origine biologique, ce qui permet de produire la nappe entièrement à partir de composants biologiques

La présente invention concerne également un panneau d'isolation thermique comportant une nappe selon l'invention, dans lequel ladite huile végétale époxydée et ledit durcisseur forment un liant de sorte à conférer une cohésion mécanique

suffisante audit panneau ; un tel panneau peut être utilisé aisément dans la construction.

Enfin la présente invention concerne un procédé de fabrication d'une nappe ou d'un panneau selon l'invention
5 comportant les étapes suivantes :

- mélange d'une huile végétale époxydée et d'un durcisseur à une température supérieure à chacune de leurs températures de fusion et inférieure à chacune de leurs températures de dégradation,
- 10 • dépose du mélange obtenu sur un ensemble de fibres de laine végétale à une température supérieure à chacune de leurs températures de fusion et inférieure à chacune de leurs températures de dégradation.

Selon d'autres caractéristiques :

- 15 • ladite dépose peut être effectuée selon une méthode de la liste constituée de pulvérisation, infusion, dispersion, projection
- un solvant peut être ajouté audit mélange avant sa dépose, de sorte à le rendre moins visqueux
- 20 • lesdites fibres peuvent être déposées sur un tapis roulant, le ratio huiles/fibres étant régulé par le débit de dépose d'huile et la vitesse de défilement du tapis roulant, de préférence une aspiration du mélange au travers des fibres étant ajoutée de sorte à améliorer la pénétration et la
- 25 diffusion du mélange au travers des fibres
- lesdites fibres peuvent être placées dans un rotor horizontal où elles sont brassées et dispersées, avant la dépose dudit mélange par pulvérisation directe
- après dépose dudit mélange la nappe peut être pressée, soit
- 30 au travers d'un laminoir permettant de réguler l'épaisseur du tapis fibreux, soit par un moule formé par un jeu d'empreinte/contre-empreinte, puis soumise à un traitement thermique afin de permettre la réticulation du mélange.

L'avantage découlant de la présente invention consiste en
35 ce que le liant utilisé est en grande partie d'origine

biologique et, selon quelques modes préférés de réalisation, complètement d'origine biologique.

D'autres caractéristiques et avantages de l'invention ressortiront de la description détaillée qui va suivre se rapportant à un exemple de réalisation donné à titre indicatif
5 et non limitatif.

La compréhension de cette description sera facilitée en se référant au dessin joint, dans lesquels :

- la figure 1 représente une formule chimique
10 essentielle dans le procédé selon l'invention ;

La présente invention concerne une nappe de fibres de laine végétale. De telles fibres sont connues pour leurs caractéristiques isolantes. Néanmoins pour pouvoir être formées en nappe ou même en panneau, il faut y adjoindre un liant. Selon
15 l'invention, ce liant est constitué d'une huile végétale époxydée et d'un durcisseur.

Une huile végétale est une unité triglycéride : elle est à ce titre formée par trois acides gras greffés sur une unité glycérol. Seules les chaines grasses porteuses de doubles
20 liaisons carbone-carbone ($C=C$) sont qualifiées d'insaturées. La transformation de ces doubles liaisons ($C=C$) par peroxydation permettra la création de groupe époxydes et par voie de conséquence l'époxydation de l'huile. En d'autres termes, seules les huiles végétales contenant des acides gras insaturés peuvent
25 être époxydées. Ce procédé sert de base à la synthèse du liant selon l'invention, qui sera utilisé dans la fabrication de panneaux de laines végétales d'isolation thermique.

Quelques exemples de chaines grasses insaturées sont rassemblés dans le tableau 1. Les acides gras associés sont
30 présents naturellement dans les huiles végétales de lin, tournesol, soja, olive, bois de Tung, coton, colza ricin, noix de cajou, arachide, pépin de raisin qui ont donc été identifiées comme étant des solutions possibles pour l'invention. L'huile peut être utilisée pure ou comme un mélange des huiles
35 précédemment citées.

Acide gras	Formule chimique
Acide palmitoléique	$\text{CH}_3(\text{CH}_2)_5\text{CH}=\text{CH}(\text{CH}_2)_7\text{COOH}$
Acide oléique	$\text{CH}_3(\text{CH}_2)_7\text{CH}=\text{CH}(\text{CH}_2)_7\text{COOH}$
Acide linoléique	$\text{CH}_3(\text{CH}_2)_4\text{CH}=\text{CH}-\text{CH}_2-\text{CH}=\text{CH}(\text{CH}_2)_7\text{COOH}$
Acide linoléinique	$\text{CH}_3-\text{CH}_2-\text{CH}=\text{CH}-\text{CH}_2-\text{CH}=\text{CH}-\text{CH}_2-\text{CH}=\text{CH}(\text{CH}_2)_7\text{COOH}$
Acide éléostéarique	$\text{CH}_3-(\text{CH}_2)_3-\text{CH}=\text{CH}-\text{CH}=\text{CH}-\text{CH}=\text{CH}(\text{CH}_2)_7\text{COOH}$
Acide ricinoléique	$\text{CH}_3-(\text{CH}_2)_4\text{CH}-\text{CH}(\text{OH})-\text{CH}_2-\text{CH}=\text{CH}(\text{CH}_2)_7\text{COOH}$

Tableau 1 : acides gras insaturés

Parmi les différentes huiles citées, celle extraite des
 5 graines de lin est particulièrement intéressante car elle est
 très riche en acides gras insaturés (> 90%) avec notamment une
 forte proportion d'acides gras linoléique et linoléinique (voir
 tableau 2). Par ailleurs, n'étant pas comestible, sa
 valorisation ne rentre aucunement en conflit avec une production
 10 orientée initialement vers l'alimentaire.

Huile	Acide gras insaturés (%)	Acide oléique (%)	Acide linoléique (%)	Acide linoléinique (%)
Lin	~ 90	12-34	17-24	35-60

Tableau 2 : composition type d'une huile de lin

L'époxydation d'une huile de lin permet par exemple de
 15 donner accès à une molécule porteuse de 2 à 6 groupes époxydes
 qui seront autant de groupes qui pourront réagir avec des
 groupes de durcisseur de type anhydride ou polyamine. La
 sélection de l'huile pourra donc influencer sur la rigidité de la
 nappe par le choix du nombre de groupe époxydes présents : plus
 20 il y aura de groupes époxydés, plus grande sera la rigidité de
 la nappe.

L'invention englobe deux catégories de durcisseurs. La première est formée par les polyamines (molécules porteuses de plusieurs fonctions amines), la seconde par les anhydrides d'acides et acides.

5 Une amine primaire est capable d'ouvrir deux groupes époxydes pour former deux liaisons covalentes. Ainsi, une diamine de formule chimique standard $H_2N-R-NH_2$ pourra réagir avec quatre groupes époxydes (NH_2 est une terminaison amine primaire et R est le bloc central). Cette réaction peut
10 engendrer la formation d'un réseau polymère tridimensionnel si ces deux groupes époxydes sont portés par deux chaînes macromoléculaires différentes. La transformation est qualifiée de réticulation. Le schéma de principe est proposé sur la figure 1.

15 Dans le cadre de notre invention, la réaction polyamine-époxy est déclinée au travers du mélange formé par une huile végétale époxydée avec un durcisseur diaminé afin de produire une formulation thermodurcissable. Pour un couple huile-polyamine, la proportion de chaque composé dans le mélange
20 réactionnel peut être choisie en fonction du degré de réticulation souhaité afin d'ajuster au besoin la rigidité matière ou son péguant par défaut de durcisseur. Mais pour une consommation totale des réactifs conduisant à un produit stable, il est important de travailler en quantités stœchiométriques.
25 Par exemple, pour une huile de lin époxydée portant 5,45 fonctions époxydes par unité triglycéride, la stœchiométrie de la formulation est de 1,36 mole de diamine primaire pour 1 mole d'huile.

L'étude de la réactivité peut être opérée par calorimétrie
30 différentielle à balayage en suivant l'évolution de la chaleur dégagée par la réaction de réticulation. La rhéométrie dynamique peut elle aussi être employée afin de déterminer les caractéristiques de la cinétique de polymérisation à une température donnée, telle que sa vitesse ou encore la durée
35 permettant d'atteindre l'équilibre de la réaction. Ces informations clés obtenues à différentes températures sont

utiles afin de déterminer les facteurs optimum de mise en œuvre (température et durée) nécessaires à la construction du cycle thermique de mise en œuvre.

Une première génération de liants à base d'huile végétale
5 époxydée peut ainsi être développée en faisant appel à des polyamines issues de la pétrochimie. Comparée à la solution thermoplastique actuelle, ce type de liants présente déjà l'avantage de reposer sur un taux de carbone renouvelable beaucoup plus important du fait de la présence d'huile végétale
10 dans la formulation thermodurcissable.

La nature exacte du bloc central R de la polyamine permet de moduler à façon les propriétés de la matrice finale, notamment sur le plan des propriétés mécaniques ou thermiques. Il est alors possible de décliner une large gamme de laines
15 végétales en fonction de la souplesse ou de la rigidité mécanique souhaitée.

Le cas le plus simple est représenté par les polyamines porteuses de deux fonctions amines. On parle alors de diamine. Une diamine présentant un bloc central R rigide - c'est-à-dire
20 reposant sur des unités chimiques cycliques ou aromatiques - doit être privilégiée pour la production de liants « structuraux ». On peut citer par exemple, la p-phénylènediamine, l'isophoronediamine (également désigné sous le terme de 5-amino-1,3,3-triméthylcyclohexaneméthylamine), le m-xylylènediamine. Le liant dérivé de ce type de polyamine convient particulièrement pour la production de panneaux de laines d'isolation thermique denses et rigides. Il est à noter que certaines diamines aromatiques de type « méthylène diamine »
25 doivent être écartés du fait de leur risque sanitaire.

30 Inversement, une diamine affichant un bloc central aliphatique permettra la fabrication de liants plus souples. Cette même souplesse pourra être modulée par la longueur de l'unité aliphatique, voire la présence de rotules chimiques souples de types éther. Citons par exemple l'éthylène diamine,
35 le 1,4-diaminobutane, le hexaméthylène diamine, le bis(3-aminopropyl)amine, 1-(2-aminoéthyl)pipérazine, les Jeffamines.

Dans ce cas, la flexibilité du liant autorise la production de panneaux de laines beaucoup plus souples et capables de s'adapter à une pose dans des zones de géométrie complexe. Ces mêmes panneaux fibreux affichent une déformation rémanente après
5 compression beaucoup plus faible que celle observée avec les panneaux à base de liant rigide. Il est bon de noter que la proportion de liant dans l'amas fibreux permet néanmoins de moduler l'écart entre les deux types de durcisseurs.

Par ailleurs, la réaction entre une terminaison amine et un
10 groupe époxyde peut également être conduite avec une huile époxydée durcie avec une polyamine, c'est-à-dire un composé chimique présentant plus de deux fonctions amines. Cette solution est un nouveau levier permettant l'extension de la gamme de liants pour satisfaire en particulier des contraintes
15 spécifiques sur le plan mécanique ou thermique. Plusieurs polyamines commerciales peuvent servir de base à ce concept, telles que la diéthylène triamine, la triéthylène tetramine, la tetraethylene pentamine, les T-Jeffamines.

Une seconde génération de liants pour laines végétales peut
20 être obtenue en faisant réagir l'huile végétale époxydée avec des diamines produites à partir de sources biologiques. Par exemple, le composé « 1-4 diaminobutane » préalablement cité, peut aussi être obtenu par Chimie Verte notamment par hydrolyse de protéines animales. Autre composé pouvant être produit à
25 partir de composants biologiques, la 1,5-diaminopentane. Dans un registre différent, certains acides aminés sont porteurs de plusieurs fonctions amines qui leur permettent de satisfaire à la fonction de durcisseur. Citons par exemple, la lysine, l'arginine, l'asparagine, la glutamine. Tous ces durcisseurs
30 permettent, à l'instar de leurs homologues issus de la pétrochimie, de faire réticuler l'huile époxydée lors d'une augmentation de la température. Les liants ainsi obtenus autorisent la conception de panneaux d'isolation thermique 100% d'origine biologique. Ce dernier point est intéressant car ce
35 type de produit est parfaitement compatible avec les attentes du marché de l'habitat durable.

La présente invention englobe également les laines végétales dont le liant a été obtenu par la polymérisation de l'huile végétale époxydée avec un durcisseur anhydride. Différents composés anhydrides ont été testés pour étendre la
5 gamme des liants dévolus aux laines végétales. Quelques exemples peuvent être cités à savoir l'anhydride phtalique, l'anhydride maléique, l'anhydride succinique, l'anhydride hexahydrophthalique ou encore méthylhexahydrophthalique. Chacun nécessite bien entendu la définition de températures de réticulation adaptées
10 pour tenir compte de la réactivité du mélange. Dans tous les cas, la vitesse de réaction du durcisseur anhydride vis-à-vis de l'huile est plus lente que celle observée avec les durcisseurs polyaminés. Ce point est important dans le cadre d'une production industrielle, même si la réaction de réticulation
15 peut être catalysée, en particulier par l'utilisation d'un dérivé aminé.

La voie anhydride peut également être explorée par la Chimie Verte. Par exemple, l'anhydride itaconique peut être obtenu par traitement de l'acide citrique. Mélangé à de l'huile
20 végétale époxydée, il permet la production d'un nouveau liant issu intégralement de sources biologiques.

La préparation du liant consiste à mélanger l'huile végétale époxydée et son durcisseur. Si ce dernier est solide à température ambiante, il peut être chauffé au-delà de son point
25 de fusion mais en deça de sa température de vaporisation et de dégradation. L'huile sera bien entendu chauffée à la même température afin d'éviter toute cristallisation du durcisseur lors du mélange « huile/durcisseur ». La stœchiométrie du mélange dépend du taux d'époxydation de l'huile (i.e. de la
30 quantité de groupes époxydes par groupe triglycéride) mais également de la fonctionnalité du durcisseur (diamine, polyamine, anhydride d'acide...) On retiendra qu'un groupe amine peut réagir avec deux groupes époxydes. Le même rapport 1:2 est observé avec la réaction d'un groupe anhydride sur un groupe
35 époxyde.

Lorsque le durcisseur est solide à température ambiante, il est nécessaire de préchauffer l'huile époxydée seule à une température légèrement supérieure à la température de fusion du dit durcisseur. L'huile est brassée mécaniquement au moyen d'un
5 mélangeur à pales afin d'homogénéiser sa température. Le durcisseur est alors ajouté progressivement afin de permettre son incorporation plus aisée au mélange. L'agitation mécanique est maintenue à faible vitesse durant 5 à 10 minutes jusqu'à obtention d'un mélange de couleur homogène. Un dégazage de la
10 solution peut être opéré dans une enceinte à vide, afin d'éliminer toute trace de bulles d'air dans le mélange. Toutes ces étapes manuelles peuvent également être opérées au moyen d'une machine doseuse/mélangeuse.

- mélange d'une huile végétale époxydée et d'un durcisseur à
15 une température où les deux produits sont liquides afin de permettre une meilleure diffusion des unités réactives. Il convient toutefois de choisir cette température en deça de la température de dégradation de chaque produit afin d'éviter toute altération thermique du milieu réactionnel.
- dépose du mélange obtenu sur un ensemble de fibres de laine
20 végétale. La température de dépose est choisie de telle sorte à maintenir la globalité du milieu réactionnel à l'état liquide. Elle est donc au minimum égale à la température de mélange. Elle ne doit pas être opérée à une température
25 excessive à laquelle le procédé de réticulation suviendrait trop rapidement. En effet, une température trop proche du domaine réactionnel peut entraîner une gélification rapide du mélange et gêner du même coup la diffusion du mélange dans la nappe.

30 En règle générale, la viscosité du mélange « huile/durcisseur » est suffisamment faible pour autoriser sa vaporisation sur les fibres végétales au moyen de buses. Le cas échéant, elle peut être abaissée par ajout de solvant dont le choix doit être défini en fonction du type de durcisseur retenu.
35 Une large gamme existe car l'huile époxydée est en effet soluble dans de très nombreux solvants : le chloroforme, l'acétate

d'éthyle, certains alcanes (hexane, heptane), l'éther de pétrole, l'éther diéthylique, le dichlorométhane, le toluène, le THF ou encore le dioxane...

L'humectation des fibres peut être opérée par différents
5 procédés. Une première technique consiste à vaporiser la formulation thermodurcissable sur les fibres préalablement disposées sur un tapis roulant. Le débit de pulvérisation de la matière et/ou la vitesse de défilement du tapis permettent de réguler le ratio huile/fibres. Une aspiration de la résine au
10 travers du réseau fibreux peut être opérée pour permettre une meilleure pénétration, puis diffusion du liant au travers du tissu fibreux.

Dans la deuxième technique, les fibres végétales préalablement séchées sont placées dans un rotor horizontal où
15 elles sont brassées et dispersées. La phase d'imprégnation avec le mélange huile/durcisseur peut alors survenir par pulvérisation directe.

Quel que soit le mode d'imprégnation retenu, la nappe de fibres ainsi humectée est alors pressée soit au travers d'un
20 laminoir permettant de réguler l'épaisseur du tapis fibreux, soit par un moule formé par un jeu d'empreinte/contre-empreinte. Puis, l'ensemble est soumis à un traitement thermique afin de permettre la réticulation du mélange « huile-durcisseur ». L'étape finale de chauffage peut être opérée au moyen de lampes
25 émettant dans l'infrarouge, d'un tunnel d'air chaud ou par contact thermique direct. Une fois la polymérisation du liant opérée, le panneau végétal affiche une bonne cohésion mécanique. Le liant devenu rigide confère au panneau une bonne résistance à la traction. La diffusion homogène du liant au sein du tapis
30 fibreux assure quant à elle une couleur régulière et une bonne stabilité dimensionnelle.

Les panneaux de laine végétale ainsi fabriqués peuvent être utilisés comme éléments d'isolation thermique pour la construction traditionnelle en substitution des panneaux de
35 laine minérale (verre ou roche). Basées en grande partie ou totalement sur des produits d'origine biologique, les laines

végétales offrent une alternative très intéressante aux laines lignocellulosiques à base de liant pétrochimique notamment dans le cadre de l'habitat durable (maison à ossature bois). Il est important de préciser qu'au-delà du seul aspect thermique, les
5 panneaux de laine végétale permettent également d'assurer une fonction d'isolation phonique. Cela permet d'obtenir plusieurs avantages :

- Comparée aux laines minérales, la laine végétale est un matériau d'isolation performant et très léger : cette
10 particularité permet son aménagement dans des cloisons suspendues.
- La laine végétale basée sur un liant polymère issu en partie ou totalement de la Chimie Verte est parfaitement en phase avec les attentes de l'habitat éco durable dont les parts de
15 marché ne cessent de croître au sein de notre société moderne.
- En ce sens, la laine végétale produite à partir d'un liant 100% d'origine biologique peut prétendre à afficher un label écologique, ce qui lui confère une indéniable supériorité
20 vis-à-vis des produits actuellement commercialisés à base de liant polymère pétrochimique. L'image écologique de cette classe de produits ouvre une application privilégiée dans le domaine de l'habitat durable.
- La synthèse chimique du liant thermodurcissable vert repose
25 sur une chimie en phase avec les attentes d'une production industrielle.
- Au-delà de ce seul aspect écologique, la laine avec un liant polymère dérivé d'huile végétale époxydée sera beaucoup moins sujette aux fluctuations du cours du pétrole que les
30 matériaux basés sur l'emploi de polymère d'origine pétrochimique.
- Au demeurant, du fait de son état liquide avant polymérisation, le liant à base d'huile se disperse plus facilement dans le réseau végétal que les liants

thermoplastiques pétrochimiques. La quantité de produit à utiliser reste donc faible.

- Le liant époxy biosourcé peut être décliné au travers de compositions chimiques très diverses. Chacune est dotée de propriétés spécifiques (mécaniques, thermiques...) qui permettent de décliner une large gamme de laines végétales capables de s'adapter à des fonctions très différentes (laines rigides ou souples, laines dotées d'une faible déformation rémanente sous compression...).
- De par sa nature thermodurcissable, le liant biosourcé peut être déposé sur les fibres végétales constitutives de la laine d'isolation thermique par des procédés très différents de ceux utilisés pour le liant pétrochimique thermoplastique. Diverses méthodes très économes en produit peuvent être utilisées : pulvérisation, infusion, dispersion, projection...
- Une laine végétale biosourcée n'est pas synonyme de produit à faible durée de vie puisque « biosourcé » n'est pas synonyme de « biodégradable »...
- Les laines végétales d'isolation thermique sont connues pour être plus sensibles à l'humidité et au feu que les laines minérales. Mais, ce point n'est en aucune façon induit par l'utilisation d'un liant dérivé d'huile végétale époxydée.

Bien que l'invention ait été décrite à propos d'une forme de réalisation particulière, il est bien entendu qu'elle n'y est nullement limitée et qu'on peut y apporter diverses modifications de formes, de matériaux et de combinaisons de ces divers éléments sans pour cela s'éloigner du cadre et de l'esprit de l'invention.

REVENDICATIONS

1. Nappe de fibres de laine végétale caractérisée en ce qu'elle est imprégnée d'un liant composé d'une huile végétale
5 partiellement ou totalement époxydée et d'un durcisseur.

2. Nappe selon la revendication précédente, dans laquelle le pourcentage massique dudit liant n'excède pas 20%.

3. Nappe selon l'une des revendications précédentes, dans laquelle l'huile végétale époxydée est une huile riche en
10 acides gras insaturés, en particulier une huile obtenue à partir d'un végétal de la liste constituée du lin, tournesol, soja, olive, bois de Tung, coton, colza, ricin, noix de cajou, arachide, pépin de raisin.

4. Nappe selon la revendication précédente, dans
15 laquelle ladite huile de lin époxydée comprend de 2 à 6 groupes époxyde.

5. Nappe selon l'une des revendications précédentes, dans laquelle ledit durcisseur est une polyamine ou un anhydride de diacide

20 6. Nappe selon la revendication précédente, dans laquelle ladite polyamine, respectivement ledit anhydride est d'origine biosourcée.

7. Utilisation d'une nappe selon l'une des revendications précédentes comme éléments d'isolation thermique
25 et/ou phonique.

8. Procédé de fabrication d'une nappe selon l'une des revendications 1 à 6, caractérisé en ce qu'il comporte les étapes suivantes :

• mélange d'une huile végétale époxydée et d'un
30 durcisseur à une température supérieure à chacune de leurs températures de fusion et inférieure à chacune de leurs températures de dégradation,

• dépose du mélange obtenu sur un ensemble de fibres de laine végétale à une température supérieure à chacune de leurs
35 températures de fusion et inférieure à chacune de leurs températures de dégradation,

• après dépose dudit mélange la nappe est pressée, soit au travers d'un laminoir permettant de réguler l'épaisseur du tapis fibreux, soit par un moule formé par un jeu d'empreinte/contre-empreinte, puis soumise à un traitement
5 thermique afin de permettre la réticulation du mélange.

9. Procédé selon la revendication précédente dans lequel ladite dépose est effectuée selon une méthode de la liste constituée de pulvérisation, infusion, dispersion, projection.

10. Procédé selon l'une des revendications 8 ou 9, dans lequel un solvant est ajouté audit mélange avant sa dépose, de sorte à le rendre moins visqueux.

11. Procédé selon l'une des revendications 8 à 10, dans lequel lesdites fibres sont déposées sur un tapis roulant, le ratio huiles/fibres étant régulé par le débit de dépose d'huile
15 et la vitesse de défilement du tapis roulant, de préférence une aspiration du mélange au travers des fibres étant ajoutée de sorte à améliorer la pénétration et la diffusion du mélange au travers des fibres.

12. Procédé selon l'une des revendications 8 à 10, dans lequel lesdites fibres sont placées dans un rotor horizontal où
20 elles sont brassées et dispersées, avant la dépose dudit mélange par pulvérisation directe.

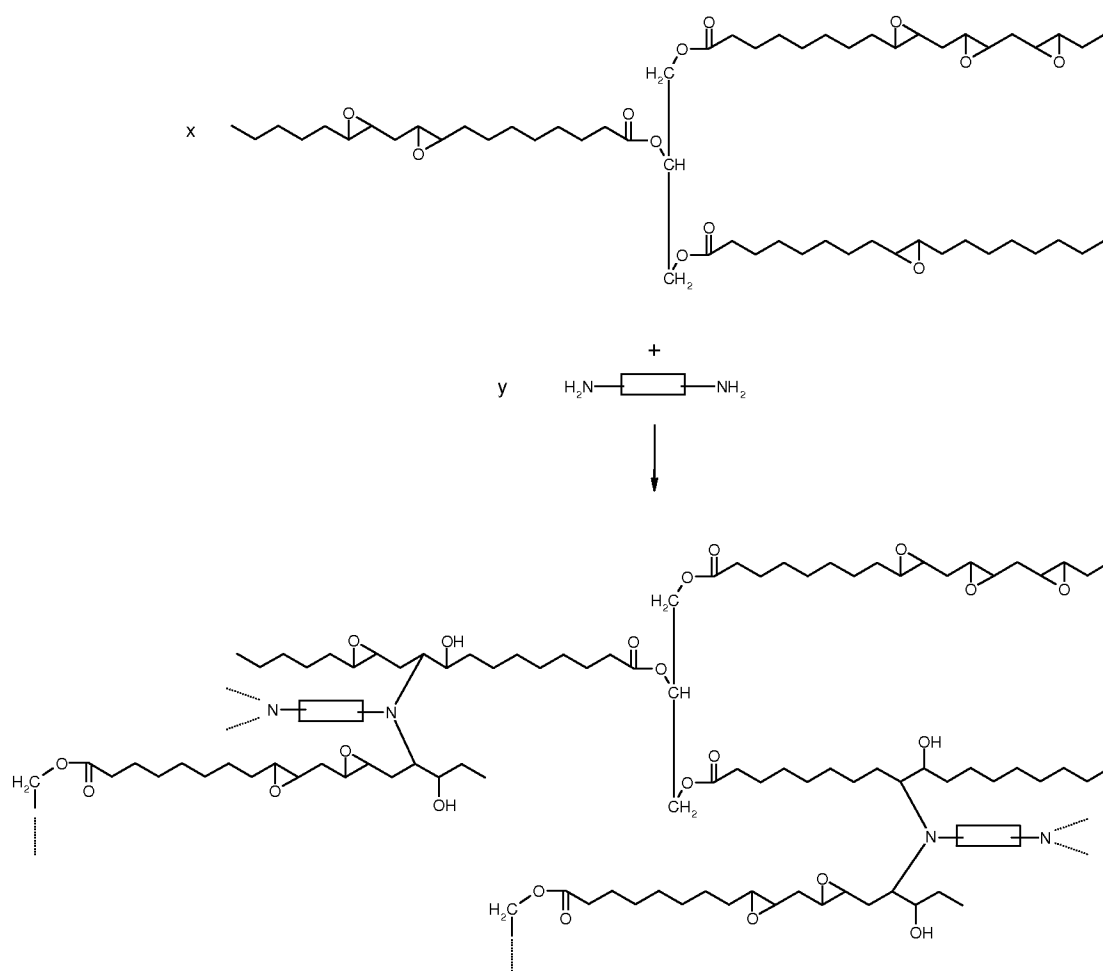


Fig 1