



# BIBLIOTHÈQUE

CÉGEP DE L'ABITIBI-TÉMISCAMINGUE  
UNIVERSITÉ DU QUÉBEC EN ABITIBI-TÉMISCAMINGUE

## Mise en garde

La bibliothèque du Cégep de l'Abitibi-Témiscamingue et de l'Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue (UQAT) a obtenu l'autorisation de la personne autrice de ce document afin de diffuser, dans un but non lucratif, une copie de son œuvre dans [Depositum](#), site d'archives numériques, gratuit et accessible à tous. L'autrice ou l'auteur conserve néanmoins ses droits de propriété intellectuelle, dont son droit d'auteur, sur cette œuvre.

## Warning

The library of the Cégep de l'Abitibi-Témiscamingue and the Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue (UQAT) obtained the permission of the author to use a copy of this document for nonprofit purposes in order to put it in the open archives [Depositum](#), which is free and accessible to all. The author retains ownership of the copyright on this document.

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC EN ABITIBI-TÉMISCAMINGUE

ÉCOLE DE GÉNIE

**ALTERNATIVES D'AMÉLIORATION DE LA DUCTILITÉ ET LA TENACITÉ DES  
COMPOSITES BOIS-POLYPROPYLENE**

MÉMOIRE

PRÉSENTÉ

COMME EXIGENCE PARTIELLE

DE LA MAÎTRISE EN INGÉNIERIE

PAR

KHALIL ABDELMOULA

MARS 2019

## REMERCIEMENTS

Je suis heureux d'exprimer mes remerciements à mon directeur de recherche François GODARD Professeur titulaire à l'École de génie de l'Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue, pour leurs encouragements constants et leurs précieuses suggestions à travers les progrès de mon travail expérimental et la rédaction de ce mémoire.

Je suis très heureux d'exprimer mes meilleures salutations, ma profonde gratitude, mon endettement et ma profonde reconnaissance à mon honorable co-directeur, Ahmed KOUBAA, Professeur chercheur à l'Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue et Directeur scientifique du laboratoire de biomatériaux, pour sa supervision constante, ses conseils inspirants et ses encouragements enthousiastes tout au long de ma recherche

Je voudrais aussi remercier énormément Mme Besma BOUSLIMI, agente de recherche au laboratoire Biomatériaux à l'Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue, pour avoir accepté de donner une partie de son précieux temps et d'avoir ainsi partagé une partie de leur savoir.

Je suis également reconnaissant envers Williams BELHADEF, technicien au Laboratoire de biomatériaux pour leur soutien technique et ses inspirations officielles. Merci pour toute l'aide qu'il m'a attribué pour bien se familiariser avec l'équipement du laboratoire et pour ses conseils pertinents.

Je remercie aussi tous les techniciens du CTRI surtout monsieur Gilles VILLENEUVE, le technicien de laboratoire et responsable des équipements, ainsi que monsieur Fahim Meziane, de m'avoir accueillie au sein de leur laboratoire.

Je tiens à exprimer mes vifs remerciements à la Chaire de recherche du Canada en valorisation, caractérisation et transformation du bois, le programme des bourses

MITACS et le Conseil de Recherche en sciences naturelles et en Génie du Canada (CRSNG) pour le support financière accordée à la réalisation du présent projet.

La partie la plus importante de ma vie est ma famille. Je n'aurais jamais pu accomplir un de mes objectifs sans le soutien des membres de ma famille. Je suis également redevable à mes parents, frères, cousins et cousines. Ils étaient toujours là quand j'en avais besoin. Merci à Mohammed BOUKHRIS qui est mon inspiration. Je ne serai jamais capable d'exprimer toute ma gratitude. Merci pour toutes vos aides et vos sacrifices. Malgré que vous soyez de l'autre côté de la mer, vous êtes près de moi.

Je ne peux pas trouver les mots justes et sincères pour exprimer mon affection et mes pensées à mes chers et dynamiques collègues Thana SAFFAR, Mohammed HANNEB et Abdelatif ELGHALI.

Un remerciement particulier et sincère pour tous les efforts que vous avez bien voulu fournir. Vous avez toujours été présent;

Que ce travail soit un témoignage de ma gratitude et mon profond respect.

Enfin le plus grand merci à tous mes collègues en particulier, Amna MARWANI, Abir WESSLETTI, Safa AROUS, Fedy BOUKHRIS, Omar HAMDANI, Mohanned Amokrane ABDELWAHEB, Mayez DANDASHLI et Hamza BERROUCH. Merci à tous mes amis et sympathisants pour leurs encouragements qui ont inspiré moi pour terminer la mission.

## TABLES DE MATIÈRES

Remerciements .....	i
Tables de Matières .....	iii
Liste des figures .....	viii
Liste des tableaux .....	xiv
Résumé .....	xvi
Abstract .....	xviii
Liste des acronymes .....	xx
Introduction .....	1
CHAPITRE I .....	4
Revue de littérature .....	4
1. Introduction .....	4
1.1 Fibre naturelle .....	4
1.1.1 Le bois .....	5
1.1.2 Composition chimique de la fibre de bois .....	9
1.1.3 Propriétés mécaniques et physiques des fibres de bois .....	13
1.2 Procédé de mise en pâte .....	14
1.3 Les différentes matrices polymériques .....	16
1.3.1 Les thermodurcissables .....	17
1.3.2 Les thermoplastiques .....	18
1.3.2.1 Polypropylène .....	19
1.4 Composite bois-polymère .....	22

1.4.1 Comportement ductile et tenace des composites bois-polymère .....	23
1.4.1.1 Définition de la ténacité .....	23
1.4.1.2 Méthode de mesure de la ténacité .....	24
1.4.1.3 La résistance aux chocs .....	26
1.4.1.4 Méthode adoptée pour le calcul de la résistance aux chocs .....	26
1.4.1.5 Définition de la ductilité .....	28
1.4.1.6 Mécanismes de déformation .....	29
1.4.1.7 La théorie de Griffith de la rupture fragile.....	31
1.4.2 Facteurs influant sur la ductilité et la ténacité des matériaux composites ..	32
1.4.2.1 Effet de la dispersion des fibres dans la matrice sur la ductilité et la ténacité .....	32
1.4.2.2 Effet de la stabilité thermique des fibres sur la ductilité et la ténacité des composites bois-polymère .....	33
1.4.2.3 Effet du caractère hydrophile des fibres de bois sur la ductilité et la ténacité des composites .....	33
1.4.2.4 Orientation des fibres .....	34
1.4.2.5 Teneur en fibre .....	35
1.4.3 Amélioration des comportements ductile et tenace de composites .....	37
1.4.3.1 Méthode de traitement physique des fibres naturelles .....	38
1.4.3.2 Méthodes de modifications chimiques des fibres naturelles.....	39
1.4.3.3 Modifiant au choc .....	41
1.4.3.4 Les additifs inorganiques .....	47
1.4.4 Les techniques plasturgistes.....	48
1.4.4.1 Extrusion .....	49

1.4.4.2 Injection.....	50
Chapitre II .....	51
Matériels et Méthodes .....	51
2.1 Originalité de la recherche.....	51
2.2 Objectifs .....	51
2.3 Hypothèse de recherche.....	52
2.4 Méthodologie.....	52
2.5 Matériel .....	54
2.5.1 Préparation des fibres.....	54
2.5.2 Caractérisation des propriétés des fibres .....	56
2.5.3 Caractéristiques du polypropylène.....	57
2.5.4 Agent de couplage .....	58
2.5.5 Additifs .....	58
2.6 Méthode.....	59
2.6.1 Traitement des fibres de kraft.....	59
2.6.2 Préparation de la matrice .....	60
2.6.3 Techniques de mise en forme des composites .....	61
2.6.4 Caractérisation des composites bois-polymère élaborés .....	67
2.6.4.1 Étude des propriétés physiques .....	68
2.6.4.2 Étude des propriétés mécaniques .....	72
2.6.4.3 Étude des propriétés thermiques .....	77
2.6.4.4 Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier .....	80
2.6.4.5 Microscopie à balayage électronique.....	80

Chapitre III .....	82
Résultats et discussion .....	82
3.1 Chimie de surface .....	82
3.2 Caractérisation morphologique .....	91
3.3 Étude des propriétés physiques .....	96
3.3.1 Résultats détaillés des propriétés physiques .....	96
3.3.2 Effet de la quantité et le type de fibre sur le comportement physique du PP .....	97
3.3.3 Effet de l'incorporation des fibres kraft plastifiées et des modificateurs d'impact sur le comportement hydrique du PP.....	101
3.3.3.1 Effet du traitement de fibre par glycérol .....	105
3.3.3.2 Effet de l'incorporation du MAPP et SEBS-MA sur la stabilité dimensionnelle .....	106
3.3.3.3 Effet de la combinaison du traitement de fibre et l'incorporation du SEBS-MA sur la stabilité dimensionnelle .....	107
3.4 Études des propriétés thermiques .....	108
3.4.1 Étude des propriétés thermiques par la thermogravimétrie .....	108
3.4.1.1 Propriétés thermiques des fibres exploitées .....	108
3.4.1.2 Propriétés thermiques des mélanges thermoplastiques PP/SEBS-MA .....	112
3.4.1.3 Étude du comportement thermique des composites élaborés .....	115
3.4.2 Étude des propriétés thermiques par analyse calorimétrique différentielle à balayage .....	130

3.4.2.1 Influence de l'incorporation et la variation de la teneur en SEBS-MA sur les propriétés thermiques de PP .....	130
3.4.2.2 Influence de l'incorporation des fibres de bouleau blanc, kraft et kraft traitées par glycérol sur la cristallinité du PP.....	135
3.4.2.3 Étude de la différence de cristallinité du PP entre les divers composites élaborés .....	145
3.5 Étude des propriétés mécaniques des composites élaborés.....	149
3.5.1 Analyse et discussion des résultats .....	149
3.5.2 Étude des propriétés mécaniques des mélanges PP/SEBS-MA .....	153
3.5.3 Étude des propriétés mécaniques des composites par traction .....	159
3.5.3.1 Effet d'augmentation de la teneur en fibre de différentes catégories. ....	159
3.5.3.2 Effet du traitement des fibres par glycérol et l'incorporation d'additif élastique SEBS-MA sur les propriétés en traction des mélanges PP/Kraft ...	165
3.5.4 Étude des propriétés mécaniques par flexion .....	173
3.5.5 Étude des propriétés mécaniques par essai d'impact.....	177
Conclusions et perspectives .....	183
Références .....	189
Annexes.....	210

## LISTE DES FIGURES

Figure 1.1 : Classification des fibres naturelles (Mohanty et al., 2002) .....	5
Figure 1.2 : Coupe transversale d'un tronc d'arbre (Navi et Heger 2005) .....	6
Figure 1.3 : Représentation schématique des couches de la paroi cellulaire de la trachéide de résineux ou de fibre de feuillu (Astley et al., 1998) .....	7
Figure 1.4 : Structure chimique de la cellulose (Bledzki et Gassan 1999) .....	10
Figure 1.5 : Structure chimique de l'hémicellulose (Estournel-Pelardy 2011) .....	11
Figure 1.6 : Unités précurseurs de la lignine : les alcools coniférylique(I), sinapylique(II) et p-coumarylique (Fengel et Wegener 1983).....	12
Figure 1.7 : État semi-cristallin des polymères (Gehring 2013) .....	17
Figure 1.8 : Polymérisation du propylène (Gehring 2013) .....	20
Figure 1.9 : Classification des composites selon le type des fibres incorporées (Michaud 2003).....	23
Figure 1.10 : Courbe de résistance à la fissuration de la mécanique de la rupture (Seidler et Grellmann 1995).....	25
Figure 1.11 : Réaction possible entre (A) chanvre/PLA et (B) chanvre/PEG (Taib et al., 2010).....	42
Figure 1.12 : Différentes microstructures des composites de PP et fibres de bois (40 %) avec modifiants au choc (10 %) et agent couplant (2 % de MAPP) (Oksman et Clemons 1998) .....	47
Figure 1.13 : Représentation schématique des différentes interactions inter faciales du PEHD / CPE /CaCO <sub>3</sub> (Wang et al., 1997) .....	48
Figure 1.14 : Profil d'une vis d'une extrudeuse à double alimentation (Gosselin 2005) .....	50
Figure 1.15 : Schéma d'une presse à injection (Gosselin 2005).....	50
Figure 2.1 : Protocole méthodologique adopté.....	53
Figure 2.2 : Préparation des fibres de bouleau blanc.....	54

Figure 2.3 : Processus de préparation des fibres kraft (Laboratoire Biomatérial UQAT & CTRI) .....	55
Figure 2.4 : Analyseur des fibres Metso FS300TM du laboratoire de biomatériaux de l'UQAT.....	56
Figure 2.5 : Traitement de la farine de kraft .....	59
Figure 2.6 : Préparation des granules en PP & SEBS-MA .....	60
Figure 2.7 : Processus d'élaboration des éprouvettes en bois-polymère (Wu et al., 2016) .....	61
Figure 2.8 : Produit de l'extrudeuse bis vis .....	63
Figure 2.9 : Mise en granule .....	63
Figure 2.10 : Pied à coulisse .....	68
Figure 2.11 : Micromètre .....	68
Figure 2.12 : Balance électronique .....	68
Figure 2.13 : Mesure du gonflement.....	71
Figure 2.14 : Test d'immersion dans l'eau .....	72
Figure 2.15 : Dispositif de traction du laboratoire de biomatérial de l'UQAT .....	74
Figure 2.16 : Test de flexion à 3 points au sein du laboratoire de biomatérial de l'UQAT.....	75
Figure 2.17 : Dispositif de test d'impact au sein du laboratoire de biomatérial de l'UQAT.....	76
Figure 2.18 : Calorimètre différentiel d'analyse du laboratoire de biomatérial de l'UQAT.....	78
Figure 2.19 : Analyseur thermogravimétrique du laboratoire de biomatérial de l'UQAT.....	79
Figure 2.20 : Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier du laboratoire de biomatérial de l'UQAT .....	80
Figure 2.21 : Microscopie électronique à balayage du laboratoire de microscopie de l'UQAT .....	81

Figure 3. 1 : Spectre du glycérol .....	87
Figure 3.2 : Spectre des fibres kraft non traitées et des fibres kraft traitées par glycérol .....	88
Figure 3.3 : Spectres FTIR des CBP à base de PP remplis avec des fibres kraft traitées par glycérol et autres non traitées.....	89
Figure 3.4 : Spectres FTIR des CBP à base de PP remplis avec des fibres kraft traitées par glycérol et autres non traitées et modifiés par 20% (en masse) de SEBS-MA.....	90
Figure 3.5 : Image de Microscopie électronique à balayage (MEB) du (PP; 30% fibre kraft non traitée).....	91
Figure 3.6 : Image de Microscopie électronique à balayage (MEB) du (PP; 30% fibre kraft non traitée; 3% MAPP) .....	92
Figure 3.7 : Image de Microscopie électronique à balayage (MEB) du (PP; 30% fibre kraft non traitée; 20% SEBS-MA; 3% MAPP).....	94
Figure 3.8 : Image de Microscopie électronique à balayage (MEB) du (PP; 30% fibre kraft traitée; 3% MAPP).....	95
Figure 3.9 : Effet de la variation du type et de la teneur en fibre sur le gonflement en épaisseur .....	98
Figure 3.10 : Effet de la variation du type et de la teneur en fibre sur le gain massique .....	99
Figure 3.11 : Évolution du gonflement en épaisseur des différents types de composite à 30% de fibre kraft.....	102
Figure 3.12 : Évolution du gonflement en épaisseur des différents types de composite à 40% de fibre kraft.....	102
Figure 3.13 : Évolution du gonflement en épaisseur des différents types de composite à 50% de fibre kraft.....	103
Figure 3.14 : Évolution du gain massique des différents types de composite à 30% de fibre kraft.....	103

Figure 3.15 : Évolution du gain massique des différents types de composite à 40% de fibre kraft.....	104
Figure 3.16 : Évolution du gain massique des différents types de composite à 50% de fibre kraft.....	104
Figure 3.17 : Analyses thermogravimétriques (TGA) de la farine de bouleau blanc, farine kraft et farine kraft traitée .....	110
Figure 3.18 : Courbes des dérivées thermogravimétriques (DTG) de la farine de bouleau blanc, farine kraft et farine kraft traitée.....	110
Figure 3.19 : Analyse thermogravimétrique (TGA) du PP vierge, SEBS-MA et les mélanges PP/SEBS-MA.....	113
Figure 3.20 : Courbes des dérivées thermogravimétriques (DTG) du PP vierge, SEBS-MA et les mélanges PP/SEBS-MA .....	113
Figure 3.21 : Analyse thermogravimétrique des mélanges PP/Fibre bouleau blanc/MAPP à différentes teneurs en fibre .....	116
Figure 3.22 : Courbes des dérivées thermogravimétriques (DTG) des mélanges PP/Fibre bouleau blanc/MAPP à différentes teneurs en fibre.....	117
Figure 3. 23 : Analyse thermogravimétrique des différents types de mélange à 30% de fibre .....	126
Figure 3. 24 : Courbes des dérivées thermogravimétriques (DTG) des différents types de mélanges a 30% de fibre .....	127
Figure 3.25 : Thermogrammes de premiers cycles de fusion du PP, SEBS-MA et les mélanges PP/SEBS-MA.....	131
Figure 3.26 : Thermogrammes de refroidissement du PP, SEBS-MA et les mélanges PP/SEBS-MA.....	131
Figure 3.27 : Thermogrammes de deuxièmes cycles de fusion du PP, SEBS-MA et les mélanges PP/SEBS-MA.....	132
Figure 3.28 : Thermogrammes de premier cycle de fusion des mélanges PP/Fibre bouleau blanc/MAPP .....	137

Figure 3.29 : Thermogrammes de refroidissement des mélanges PP/Fibre bouleau blanc/MAPP .....	138
Figure 3.30 : Thermogrammes de premier cycle de fusion des diverses catégories de composites chargés par 30% de fibre.....	146
Figure 3.31 : Thermogrammes de refroidissement des diverses catégories de composites chargés par 30% de fibre.....	146
Figure 3.32 : Variation du module d'Young des mélanges PP/SEBS-MA .....	153
Figure 3.33 : Variation de la résistance maximale à la traction des mélanges PP/SEBS-MA.....	153
Figure 3.34 : Variation de la déformation à la charge maximale des mélanges PP/SEBS-MA.....	154
Figure 3.35 : Variation du module d'élasticité en flexion des mélanges PP/SEBS-MA .....	156
Figure 3.36 : Variation de la résistance maximale des mélanges PP/SEBS-MA.....	156
Figure 3.37 : Variation de la déformation à la charge maximale en flexion des mélanges PP/SEBS-MA.....	157
Figure 3.38 : Variation de la résistance à l'impact des mélanges PP/SEBS-MA .....	158
Figure 3.39 : Variation du module d'Young des composites chargés par des fibres kraft et bouleau blanc en fonction de la teneur en fibre .....	160
Figure 3.40 : Variation du module de rupture en traction des composites chargés par des fibres kraft et bouleau blanc en fonction de la teneur en fibre .....	160
Figure 3.41 : Variation de la résistance maximale des composites chargés par des fibres kraft et bouleau blanc en fonction de la teneur en fibre.....	161
Figure 3.42 : Variation d'allongement à la rupture des composites chargés par des fibres kraft et bouleau blanc en fonction de la teneur en fibre.....	161
Figure 3.43 : Variation de l'énergie de rupture des composites chargés par des fibres kraft et bouleau blanc en fonction de la teneur en fibre.....	162

Figure 3.44 : Variation du module d'Young des composites chargés par des fibres kraft (modifiés par traitement glycérol ou additifs élastiques) en fonction de la teneur en fibre .....	165
Figure 3.45 : Variation du MOR en traction des composites chargés par des fibres kraft (modifiés par traitement glycérol ou additifs élastiques) en fonction de la teneur en fibre .....	166
Figure 3.46 : Variation de la résistance maximale en traction des composites chargés par des fibres kraft (modifiés par traitement glycérol ou additifs élastiques) en fonction de la teneur en fibre .....	166
Figure 3.47 : Variation d'allongement à la rupture en traction des composites chargés par des fibres kraft (modifiés par traitement glycérol ou additifs élastiques) en fonction de la teneur en fibre .....	167
Figure 3.48 : Variation de l'énergie de rupture des composites chargés par des fibres kraft (modifiés par traitement glycérol ou additifs élastiques) en fonction de la teneur en fibre .....	167
Figure 3.49 : Module d'élasticité en flexion des composites en fonction du pourcentage de fibre incorporée.....	173
Figure 3.50 : Contrainte maximale en flexion des composites en fonction de la proportion des fibres .....	174
Figure 3.51 : Déformation à la contrainte maximale en flexion des composites en fonction de la proportion des fibres .....	174
Figure 3.52 : Résistance à l'impact des composites chargés par des fibres kraft et bouleau blanc en fonction de la teneur en fibre .....	178
Figure 3.53 : Variation de l'énergie à la rupture en fonction de la résistance à l'impact des différentes catégories de composites à 30% de fibre .....	179
Figure 3.54 : Variation de l'énergie à la rupture en fonction de la résistance à l'impact des différentes catégories de composites à 40% de fibre .....	180
Figure 3.55 : Variation de l'énergie à la rupture en fonction de la résistance à l'impact des différentes catégories de composites à 50% de fibre.....	180

## LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1.1 : Avantages et inconvénients des matrices thermodurcissables (Saheb et Jog 1999).....	18
Tableau 1.2 : Avantages et inconvénients des matrices thermoplastiques (Saheb et Jog 1999) .....	19
Tableau 1.3 : Les propriétés du PP (Joseph et al., 2002) .....	21
Tableau 1.4 : Les avantages et inconvénients du PP (Richaud 2006).....	22
Tableau 2.1 : Longueur (Ln), diamètre (Dn) et ratio Ln/Dn pour les différentes fibres.....	57
Tableau 2.2 : Les caractéristiques du PP fournies par le fabricant. ....	57
Tableau 2.3 : Les caractéristiques du MAPP fournies par le fabricant. ....	58
Tableau 2.4 : Les caractéristiques du SEBS-MA fournies par le fabricant. ....	59
Tableau 2.5 : Composition des matériaux produits.....	62
Tableau 2.6 : Profil de température dans l'extrudeuse.....	63
Tableau 2.7 : Condition de mise en granules. ....	64
Tableau 2.8 : Propriétés de la presse d'injection.....	65
Tableau 2.9 : Profil de température des différentes zones de la presse.....	66
Tableau 2.10 : Paramètre d'injection.....	66
Tableau 2.11 : Normes utilisées pour la caractérisation des composites bois-polymère.....	67
Tableau 2.12 : Cycle thermique adopté .....	78
Tableau 3.1 : Récapitulations des bandes d'absorption FTIR et leurs liaisons associées.....	86
Tableau 3.2 : Résultats des analyses de variance (valeur F) pour les propriétés physiques.....	96
Tableau 3.3 : Propriétés thermiques des thermoplastiques utilisés.....	114

Tableau 3. 4 : Propriétés thermiques des composites .....	115
Tableau 3.5 : Effet de l'incorporation du SEBS-MA sur les propriétés thermiques des composites.....	123
Tableau 3. 6 : Effet de l'incorporation du SEBS-MA sur les propriétés thermiques des composites chargés par des fibres traitées .....	124
Tableau 3.7 : Propriétés de fusion et cristallisation du PP, SEBS-MA et les mélanges PP/SEBS-MA.....	132
Tableau 3.8 : Propriétés de fusion et cristallisation des mélanges PP/fibre bouleau blanc/MAPP.....	136
Tableau 3.9 : Propriétés de fusion et cristallisation des mélanges PP/Fibre kraft/MAPP.....	139
Tableau 3.10 : Propriétés de fusion et cristallisation des mélanges PP/Fibre kraft traitée par glycérol/MAPP.....	141
Tableau 3.11 : Propriétés de fusion et cristallisation des mélanges PP/Fibre kraft/SEBS-MA/MAPP.....	142
Tableau 3.12 : Propriétés de fusion et cristallisation des mélanges PP/fibre kraft traitée par glycérol/SEBS-MA/MAPP.....	144
Tableau 3.13 : Résultats des analyses de variance (valeur F) pour les propriétés mécaniques des composites PP/fibre bouleau blanc/MAPP et PP/fibre kraft/MAPP .....	151
Tableau 3.14 : Résultats des analyses de variance (valeur F) pour les propriétés mécaniques des composites modifiés.....	152

## RÉSUMÉ

Le composite bois-polymère est un matériau de construction commun et est aussi utilisé dans diverses applications. Une ductilité élevée et une résistance aux chocs sont souvent deux propriétés requises simultanément pour les CBP. Toutefois, l'incorporation d'une haute teneur en fibres dans la matrice provoque la création des zones de concentrations des contraintes et la propagation des fissures. Une faible ténacité et ductilité impliquent que le composite ne peut pas être cloué ou vissé directement. L'objectif de cette étude a été d'améliorer la ductilité et la ténacité des composites bois-polypropylène. Pour ce faire, deux types de fibre ont été testés : fibre de bouleau blanc et fibre kraft et ont été utilisées à 30%, 40% et 50% en masse. Le polypropylène modifié à l'anhydride (MAPP) a été utilisé en 3% (en masse) en tant qu'agent de couplage. Un traitement des fibres par glycérol (une solution plastifiante) a été effectué pour améliorer le glissement entre la charge et la matrice. Une deuxième approche a été appliquée pour améliorer les comportements qui font partie du projet et se base sur l'incorporation d'un modificateur d'impact élastomère, Styrène-éthylène-butadiène-styrène modifié avec l'anhydride maléique (SEBS-MA). Les mélanges ont été produits moyennant l'extrusion suivie d'un moulage par injection. Les composites induits ont été caractérisés par des essais mécaniques (la traction, la flexion et la résistance à l'impact) et des essais thermiques (la thermogravimétrie et la calorimétrie à balayage différentiel). Les résultats obtenus ont montré que pour les diverses teneurs en fibre, les composites PP/fibre kraft se sont relevés plus ductiles et résilients. La déformation à la rupture des mélanges chargés par 30% de fibre kraft est plus élevée que celle à base des fibres de bouleau blanc avec un facteur multiplicatif de 2,38. De même pour la résistance aux chocs, l'incorporation des fibres kraft a abouti à des résistances de l'ordre de 5,63 kJ/m<sup>2</sup> comparé à 4,5 kJ/m<sup>2</sup> dans le cas des fibres de bouleau blanc. Cependant, les composites renforcés par des fibres de bouleau blanc sont plus rigides avec des modules d'Young variant entre 2,46 GPa et 3,8 GPa. La caractérisation des composites traités par le glycérol a montré une réduction dans les diverses performances mécaniques. La rigidité a diminué de 71% et 41% pour les mélanges à 40% et 50% de fibre en les comparant par ceux à base des fibres kraft non modifiées. Elle a décliné de 2,15 GPa et 3,34 GPa à 1,26 GPa et 1,16 GPa pour les deux teneurs en fibres mentionnées suite à l'application du glycérol. La déformation a présenté la même tendance que la rigidité, l'application d'une faible force a entraîné une rupture brutale avec des faibles allongements à la rupture de l'ordre de 2,6%. L'étude au microscope électronique à balayage a confirmé une meilleure adhérence entre les

particules de bois et la matrice de polypropylène lorsque le MAPP et le SEBS-MA ont été ajoutés aux formulations. La variation de la quantité du SEBS-MA de 10% à 20% a réduit le module d'Young de 2,32 GPa à 1,11 GPa pour des composites à 50% de fibre. L'addition du 10% d'élastomère a amélioré la déformation d'une manière significative allant jusqu'à 29% pour les composites à 30% de fibre kraft. La variation de la teneur du SEBS-MA à des valeurs plus grandes (20%) se manifeste par l'augmentation de l'aptitude des composites à se déformer et s'allonger, les mélanges à 30% de fibre kraft sont devenus plus ductiles et ils se déforment aux environs de 62%. Les énergies d'impact entaillées sont aussi améliorées présentant des facteurs multiplicatifs de 2,42 et 4,10 pour les composites à 30% de fibres kraft et modifiés par 10 et 20% d'élastomère, respectivement. La combinaison du traitement des fibres et l'addition du 20 % de SEBS-MA dans la même formulation permettent d'élaborer des composites ductiles avec un allongement à la rupture d'environ de 95% et une énergie d'impact égale à 28,72 kJ/m<sup>2</sup> pour des composites à 30% de fibre kraft.

**Mots clés :** fibre bouleau blanc, fibre kraft, modificateur d'impact, traitement glycérol, composites bois-polypropylène, propriétés mécaniques.

## ABSTRACT

Wood-plastic composites (WPC) is common construction material and it is used in many other applications. High ductility and impact resistance are simultaneously required for WPC. However, the incorporation of a high fiber content in the matrix facilitates the fracture creation and crack propagation. In fact, low toughness and ductility may imply difficulties for the direct nailing or screwing. The main objective of this study was to improve the ductility and toughness of wood-polypropylene blends. Two categories of fiber were used and incorporated with increasing weight ratio (30%, 40% and 50%): white birch fiber and kraft fiber. Maleated polypropylene (MAPP) was used in the formulation in 3% (by weight) to enhance bonding between fiber and PP. Treatment of the fibers with glycerol (a plasticizing solution) was carried out to improve the slippage between the filler and the matrix. A second approach has been applied to improve the mentioned behaviors. It is based on the incorporation of Maleated styrene-ethylene-butadiene-styrene (SEBS-MA). All components were mixed in extruder. After pelleting, the blends were molded with an injection-molding machine. The ensuing composites were characterized in terms of mechanical properties (tensile, bending and impact resistance) and thermal properties (thermogravimetry and differential scanning calorimetry). The obtained results showed that PP/kraft fiber composites were more ductile and resilient. The elongation at break of the blends loaded with 30% of kraft fiber was greater than that of the white birch fibers with a multiplying factor of 2.38. The same behavior was observed for impact strength. Composites with kraft fiber (30% by weight) present the important toughness compared to blends reinforced with the same weight ratio of birch fiber. It was in the range of 5.63 kJ/m<sup>2</sup> and 4.5kJ/m<sup>2</sup>. However, composites reinforced with white birch fibers were more rigid with modulus of Young ranging from 2.46 GPa to 3.8 GPa. Composites with treated fibers have lower mechanical properties. The rigidity of these types of composites decreased by 71% and 41% for blends reinforced by 40% and 50% of fiber comparing to unmodified based-kraft fiber. It decreased from 2.15 GPa and 3.34 GPa to 1.26 GPa and 1.16 GPa for the two fiber loads mentioned following the application of glycerol. The deformation exhibited the same tendency as the stiffness: the application of a weak force resulted a sudden rupture with light elongations at break of the order of 2.6%. Scanning electron microscope observation confirmed a better adhesion between the wood particles and the polypropylene matrix when MAPP and SEBS-MA were added to the formulations. Variation of elastomer proportion from 10% to 20% reduced the modulus of Young from 2.32 GPa to 1.11 GPa for composites at 50% of fiber.

Adding 10% of elastomer improved the deformation by 29% for composites with 30% kraft fiber content. The variation of the content of SEBS-MA at higher values (20%) is manifested by the increase in the ability of the composites to deform and lengthen, the 30% kraft fiber blends have become more ductile and they deform around 62%. Notched impact energies were also improved with multiplying factors of 2.42 and 4.10 for same composites, modified with 10 and 20% elastomer, respectively. The combination of fiber treatment and the addition of the 20% of SEBS-MA in the same formulation allows for the development of highly ductile composites with an elongation at break of about 95% and impact energy equal to 28,72 kJ /m<sup>2</sup> for composites with 30% (by mass) of kraft fiber.

**Key words:** white birch fiber, Kraft fiber, impact modifier, glycerol treatment, wood-polypropylene composites, mechanical properties.

## LISTE DES ACRONYMES

A%: Taux d'absorption  
AA-g-PP : Polypropylène greffé à l'acide acrylique  
ANOVA: Analyse de variance  
ASTM: American Society For Testing and Materials  
b : Largueur de l'éprouvette  
BIIR : Caoutchouc modifié par des radicaux bromobutyle  
CaCO<sub>3</sub> : Carbonate de calcium  
CBP: Composite bois-polymère  
CPE : Polyéthylène carboxylé  
CPE : Polyéthylène chloré  
CRSNG : Conseil de recherches en sciences naturelles et en génie du Canada  
CTMP: Pâte chimico-thermomécanique  
CTRI : Centre technologique des résidus industriels  
DSC : Calorimétrie différentielle à balayage  
E : Module d'élasticité en traction  
E<sub>0</sub> : Épaisseur du composite à l'état initial  
EPDM : Éthylène/propylène/diène  
EPDM-MA : Éthylène/propylène/diène modifié avec l'anhydride maléique  
EVA : Copolymère éthylène-acétate de vinyle  
F<sub>m</sub> : Force maximale  
FS : Farine de soja  
FTIR: Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier  
GM : Gain en masse  
GV : Gain volumique  
h : Épaisseur de l'échantillon  
ISO : Organisation internationale de normalisation

Lo : Longueur initiale

MAPP: Polypropylène greffé à l'anhydride maléique

M eau : Masse de l' eau

MITACS: Mathematics of Information Technology and Complex Systems

Mo : Masse du composite à l'état initial

MOE : Module d'élasticité

MOR : Module de la rupture

Mp : Masse du composite à l'instant du prélèvement de la mesure après immersion dans l'eau

NBR : Élastomère liquide de butadiène-acrylonitrile

PCTM : Pâte chimico-thermomécanique

PE : Polyéthylène

PEG : Polyéthylène glycol

PEHD: Polyéthylène haute densité

PLA : Acide polylactique

Pm : Polyisobutylène

PMPPIC : polyéthylène-polyphényl-isocyanate

PP: Polypropylène

PSF : Farine de soja plastifiée

PVC : Chlorure de polyvinyle

Rm : Résistance à la traction

SBS : Styrène- butadiène- styrène

SEBS : Styrène- éthylène- butadiène-styrène

SEBS-MA : Styrène- éthylène- butadiène- styrène modifié avec l'anhydride maléique

T : Température

T<sub>c</sub>: Température de cristallisation

T<sub>f</sub>: Température de fusion

T<sub>g</sub> : Température de transition vitreuse

TMP : Pâte thermomécanique

TPO : Élastomère thermoplastique éthylène/propylène

$W_f$  : Fraction massique des fibres dans le composite

WPC : Wood Plastic Composite

$\Delta H_f$  : Enthalpie de fusion spécifique du polymère utilisé

$\Delta H_f^\circ$  : Enthalpie de fusion du polymère 100% cristallin à la température d'équilibre thermodynamique

$\chi_c$  : Taux de cristallinité

$\varepsilon_r$  : Déformation à la rupture

$\sigma_m$  : Contrainte maximale

## INTRODUCTION

L'incorporation des fibres naturelles dans les thermoplastiques a pour objectif principal de réduire le coût par unité de volume et d'améliorer la rigidité. Les charges à base de cellulose à bas prix telles que la farine de bois, les fibres de bois et les fibres de cellulose ont une rigidité élevée, une faible densité, et sont recyclables. Cependant, il y a une mauvaise adhésion interfaciale entre la matrice hydrophobe et la charge hydrophile, ce qui entraîne généralement une diminution de la ténacité et la ductilité. L'incorporation d'une teneur en fibres dans la matrice facilite la création des fractures et la propagation des fissures. Les faibles ténacités et ductilités impliquent que le matériau ne peut pas être cloué ou vissé directement. Jusqu'à présent, les chercheurs n'ont pas trouvé de nouvelles méthodologies pour augmenter la concentration des fibres plus que 50% (en masse) tout en gardant une ténacité et une ductilité élevées.

La construction résidentielle désigne le plus important marché des composites bois-polymère au Canada. Selon l'étude de Clemons (2000), l'application de cette catégorie de matériau se divise en balcon aux environs de 50 % et des portes/fenêtres de l'ordre de 22 %. Les composites bois-polymère sont appliqués dans plusieurs autres domaines. La plupart des outils utilisés dans la vie quotidienne sont produits à partir des matériaux composites, dont le renfort est de types biodégradables. En Europe ainsi que l'Amérique du Nord, vu leurs isolations thermiques et acoustiques assez importantes, les industries des automobiles fabriquent la moitié des accessoires en composites PP/fibre de bois. Les fibres lignocellulosiques constituent le meilleur renfort pour produire des panneaux de porte, les boucliers moteurs et les dossiers de siège à haute qualité (Xu et al., 2010). Les applications structurales ont été exigeantes pour les composites bois-polymère. Les poutres en composites doivent résister à la contrainte prévue avec une probabilité de rupture et d'endommagement limitée et en gardant une rigidité importante.

L'étude de la ductilité et la ténacité des composites bois-polymère se divise en deux volets principaux traitant les comportements mentionnés pour la matrice exploitée et la fibre. Le matériau de la matrice joue un rôle crucial dans les mélanges bois-polymère. Si la matrice a une ductilité et ténacité élevées, elle peut aboutir à la production des composites plus tenaces. Les propriétés des fibres sont en corrélation avec les propriétés mécaniques des composites notamment la ductilité et la ténacité. Le choix du renfort naturel doit être judicieux et semble critique afin de garantir une importante adhésion entre les différentes composantes du mélange.

La ténacité et la ductilité des composites bois-polymère peuvent être améliorées de plusieurs manières: 1) augmenter la ténacité et la ductilité de la matrice thermoplastique; 2) optimiser l'interface (ou l'interphase) entre la fibre et la matrice grâce à l'utilisation d'agents de couplage; 3) optimiser les propriétés liées à la charge, telles que la teneur en fibre, la taille des particules et la dispersion.

Le polypropylène lui-même a de faibles propriétés d'impact, en particulier à basses températures. La ténacité, la ductilité et la résistance au choc du PP peuvent être améliorées par l'utilisation des copolymères séquencés de polypropylène, l'ajout d'élastomères ou la copolymérisation avec l'éthylène. Les élastomères sont des adjuvants incorporés dans les composites bois-polymère pour augmenter la résistance aux chocs, ce sont des éléments élastiques qui participent à la réduction du comportement fragile des matériaux innovés (Kuboki et al., 2007). Les modificateurs d'impact les plus couramment utilisés et les plus efficaces pour le PP sont les copolymères d'éthylène / propylène (EPM) ou les terpolymères d'éthylène / propylène / diène (EPDM). Les mélanges contenant 10 à 40% d'élastomères sont appelés « polypropylènes antichocs ». La taille et la distribution du domaine d'élastomère ont également un effet sur les propriétés d'impact de PP. Une distribution uniforme et de petits domaines,  $<1 \mu\text{m}$ , devraient améliorer les propriétés d'impact du PP (Oksman et al., 1998).

Les méthodes les plus efficaces pour optimiser la ductilité ainsi que la ténacité et qui sont appliquées sur la charge lignocellulosique sont celles basées sur les traitements par des solutions chimiques ou plastifiantes et l'addition de certains types d'additifs. Les différents additifs contribuent à une meilleure compatibilité entre la fibre de bois polaire et les thermoplastiques non polaires. L'adhérence entre le renfort et la matrice est améliorée par la création des nouveaux ponts de liaisons chimiques qui rend les mélanges plus tenaces et améliore l'allongement à la rupture (Kazayawoko et al., 1999). Durant la phase de mélange des deux matériaux (matrice et renfort), les fibres incorporées tendent à s'agglomérer qui est à l'origine d'une faible ténacité et ductilité. L'application de différents traitements, de type physique, chimique ou physico-chimique peut améliorer l'adhésion. Les fibres sont caractérisées par des surfaces plus faciles à être modifiées que la matrice. Les solutions chimiques les plus utilisées sont : le silane, les produits alcalins et les lubrifiants tels que le glycérol. Les méthodes du traitement diffèrent selon la solution choisie et la technique de préparation des fibres, généralement trois différents modes sont appliqués tels que le greffage, l'imprégnation et le revêtement (Silva de Araújo 2001)

Les chercheurs et les industriels ont exploité plus que quarante additifs dans la production des composites, le polypropylène maléate (MAPP), incorporé à une faible quantité, présente une solution recommandée, mais l'amélioration de la ductilité reste limitée (Lu et al., 2007). De nouveaux additifs sont ajoutés dans la formulation des composites afin d'améliorer la résistance au choc et la propagation des fissures. Le m-TMI-g-PP, agent de compatibilité avec une fonction isocyanate synthétisé par greffage d'isocyanate de m-isopropényl- $\alpha$ ,  $\alpha$ -diméthylbenzyle (m-TMI) sur du polypropylène isotactique (PP), est un autre type d'additif incorporé en faible teneur pour obtenir une meilleure dispersion des fibres dans la matrice et un mouillage plus efficient ce qui donne la possibilité aux composites d'être plus résilients et résistent à des chocs de puissance plus importante (Karmarkar et al., 2007)

## CHAPITRE I

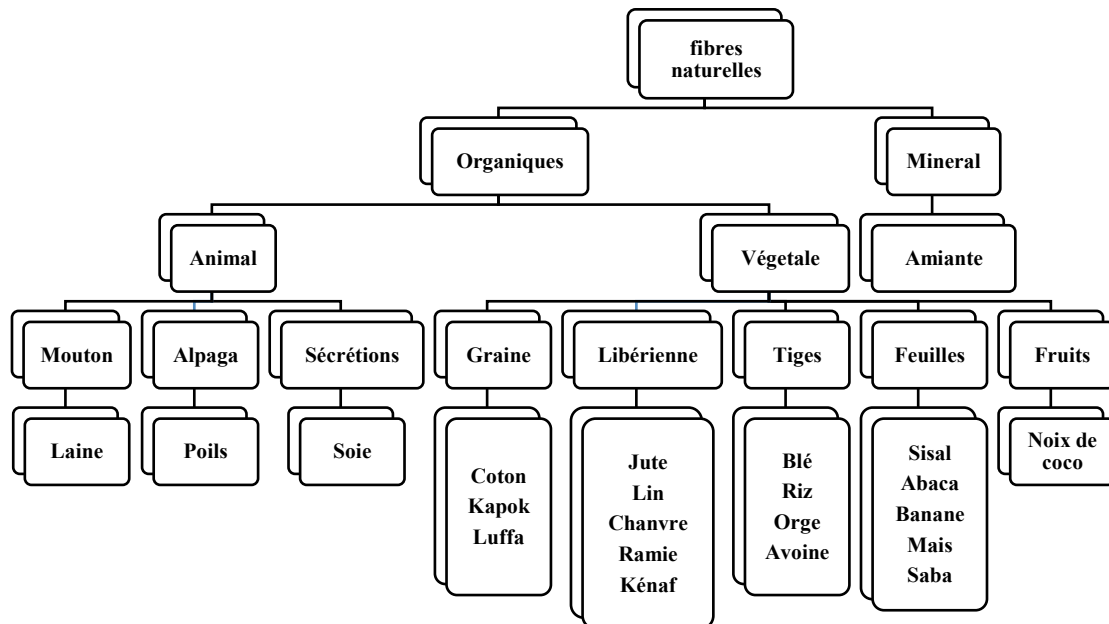
### REVUE DE LITTÉRATURE

#### **1.Introduction**

Dans ce chapitre, les propriétés chimiques, physiques et mécaniques de la fibre de bois et la procédure de production de la pâte kraft ont été détaillées. Les différentes catégories des polymères employés et leurs rôles comme des matrices dans les composites sont étudiés. Les facteurs de contrôle de la ductilité et la ténacité de composites ont été présentés. L'accent a été mis sur les différentes méthodologies de modification de l'interface renfort-matrice, car elles sont en corrélation avec les propriétés ductile et tenace des composites. Les divers types d'additifs sont bien illustrés dans cette partie et l'effet de chacun sur la rigidité, la ténacité et la ductilité des composites bois-polymère a été identifié.

#### **1.1 Fibre naturelle**

Les fibres naturelles ont récemment attiré l'attention des scientifiques et des technologues en raison des avantages qu'elles offrent par rapport aux matériaux de renforcement conventionnels (Colberg et Sauerbier 1997, Schneider et al., 1995). Ces fibres naturelles sont des fibres moins coûteuses avec une faible densité et des propriétés spécifiques élevées. Celles-ci sont biodégradables et non abrasives, contrairement aux autres catégories de fibres. Aussi, elles sont facilement disponibles et leurs propriétés spécifiques sont comparables à celles des autres fibres utilisées. Les fibres naturelles sont issues de différentes sources : les plantes, les minéraux ou les animaux comme il est détaillé dans la figure 1.1 :



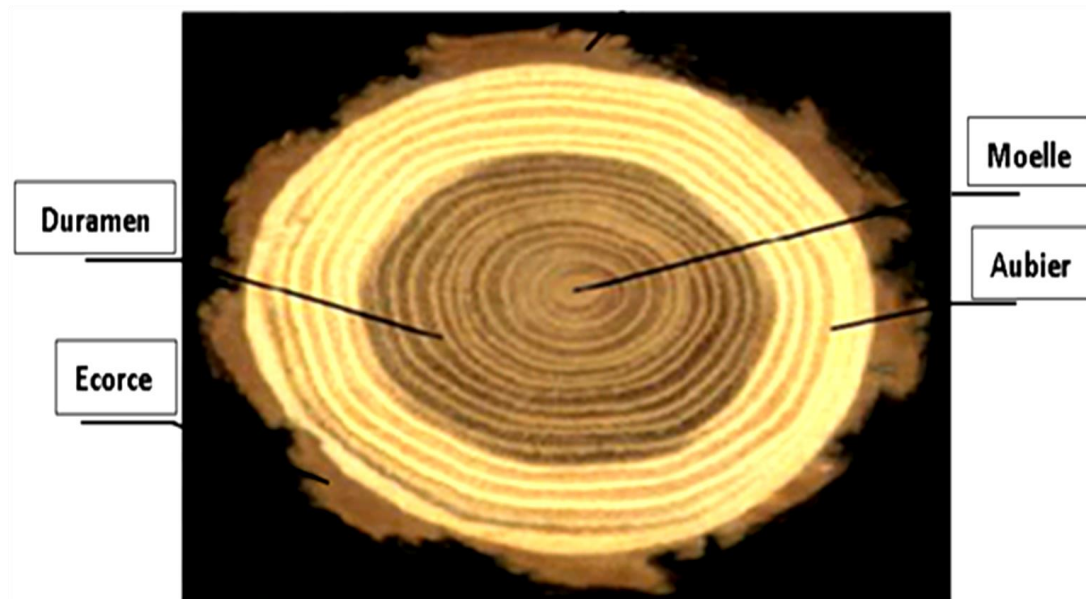
**Figure 1.1 : Classification des fibres naturelles (Mohanty et al., 2002)**

Une large variété de fibres de cellulose peut être sélectionnée pour renforcer les polymères. Les fibres de bois et les fibres agroalimentaires désignent les catégories les plus exploitées (Brahmakumar et al., 2005). Elles existent sous différentes formes : des tiges, des feuilles et des poils de graines (Saheb et Jog 1999). Ce type de fibres est disponible à cause de la grande quantité de déchets, générée aux différentes étapes de la transformation. Les fibres de cellulose peuvent être triées suivant la partie de la plante d'où elles sont extraites (Eichhorn et al., 2001)

### 1.1.1 Le bois

Les fibres de bois sont extraites à partir des arbres. Le tronc est formé par une écorce recouvrant le bois fonctionnel qui entoure le bois de cœur. L'écorce est constituée de l'extérieur vers l'intérieure par trois parties différentes : l'écorce externe, l'inerte, et finalement l'écorce interne ou encore liber. Elle participe à la conduction de la sève élaborée par les feuilles vers les racines de la plante (Ross 2010). Le cambium est une autre composante localisée à l'interface écorce-bois fonctionnelle, il est composé par

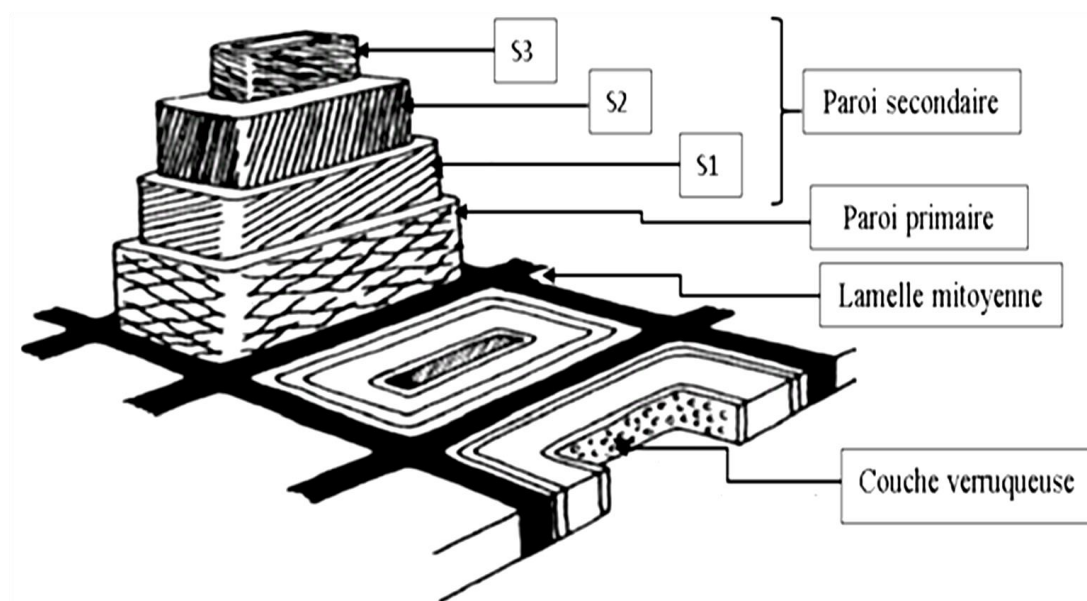
des cellules initiales qui se divisent sous forme des cellules libériennes. L'aubier se diffère aux autres éléments par leur structure. Il contient des tissus morts et vivants, c'est la partie responsable à la conduction de la sève brute (Ross 2010). Au centre du tronc se trouve le bois parfait appelé duramen (Simpson et TenWolde 1999).



**Figure 1.2 : Coupe transversale d'un tronc d'arbre (Navi et Heger 2005)**

Les fibres de bois sont biodégradables, non abrasives, hydrophiles et issues d'une source renouvelable. Elles sont constituées principalement par des cellules sous forme des fuseaux (Herrera-Franco et Valadez-Gonzalez 2004). Chaque fibre a une structure en couches complexe qui contient une paroi cellulaire primaire et trois parois cellulaires secondaires. La couche intermédiaire épaisse des parois cellulaires secondaires détermine les propriétés mécaniques des fibres. Elle est constituée par une série de microfibrilles cellulaires enroulées en hélice, formées à partir des molécules de cellulose à longue chaîne. Chaque paroi cellulaire est composée de trois composants principaux qui sont la cellulose, les hémicelluloses et la lignine. La lignine et l'hémicellulose agissent comme une matrice tandis que les microfibrilles (constituées de molécules de cellulose) agissent comme des fibres (Dittenber et

GangaRao 2012, John et Thomas 2008). Les autres composants comprennent les pectines, l'huile et les cires (Wong et al., 2010). Le lumen est présent dans les fibres naturelles, ce qui en fait une structure creuse contrairement aux fibres synthétiques (Liu et al., 2012). La teneur de ces composantes varie d'une essence à une autre. La morphologie basique des parois cellulaires est déterminée par la quantité de la cellulose, elle représente environ 45% de la masse du bois (John et Thomas 2008). La figure 1.3 présente l'organisation structurale de la paroi cellulaire du bois.



**Figure 1.3 : Représentation schématique des couches de la paroi cellulaire de la trachéide de résineux ou de fibre de feuillu (Astley et al., 1998)**

Dans le cas où le plan ligneux est constitué par un empilement de cellules, chacune de ces couches est formée par plusieurs sous-couches : une couche intercellulaire appelée aussi lamelle mitoyenne, elle est responsable au collage des cellules entre elles, et une paroi cellulaire formée par deux autres parois : primaire et secondaire.

- La couche intercellulaire (lamelle mitoyenne) est une membrane très fine formée principalement par la lignine et les substances pectiques. C'est une couche de séparation plus épaisse au niveau du bois final que le bois initial

dont l'épaisseur varie entre 0,5 et 1,5  $\mu\text{m}$ . Le procédé de défibrage chimique est basé essentiellement sur la destruction de cette lamelle par des solutions acides (Brémaud 2006, Noël 2007).

- La paroi primaire est une couche d'épaisseur 0,1  $\mu\text{m}$ . Elle est formée à partir d'un chevauchement de microfibrilles de cellulose qui contiennent les hémicelluloses, la lignine et les substances pectiques (Brémaud 2006, Noël 2007).
- La paroi secondaire désigne la couche la plus rigide, elle est caractérisée par une grande épaisseur et par sa haute densité. Cette membrane contient une forte teneur en matière cristalline (cellulose), elle correspond à la partie la plus résistante. La lignine, l'hémicellulose et les matières pectiques se localisent au niveau des microfibrilles de cellulose selon trois sous-couches:
  - La couche externe S1 : l'épaisseur de cette couche varie entre 0,1 et 0,35  $\mu\text{m}$ , elle est identifiée par sa structure lamellaire. Les microfibrilles de cellulose dévient par rapport à l'axe longitudinal d'un angle de 60 à 80° (Brémaud 2006, Noël 2007).
  - La couche centrale S2 : Elle constitue 80% de l'épaisseur de la paroi cellulaire. Selon sa localisation dans l'accroissement annuel, l'épaisseur de cette couche varie entre 1 et 10  $\mu\text{m}$ . En les comparant à celles de la couche S1, les microfibrilles de cellulose présentent une faible déviation avec l'axe longitudinal, d'environ 5 à 30°. Cette couche est la responsable au comportement physique de la cellule (Brémaud 2006, Noël 2007).
  - La couche interne S3 : C'est une membrane mince caractérisée par une épaisseur d'environ 0,5 à 1,1  $\mu\text{m}$ . Les microfibrilles de cellulose présentent l'orientation la plus élevée par rapport à l'axe longitudinal avec un angle de déviation qui varie entre 60 et 90°.

Cette couche peut contenir une paroi verruqueuse formée par des épaisissements spirales (Keller 1994).

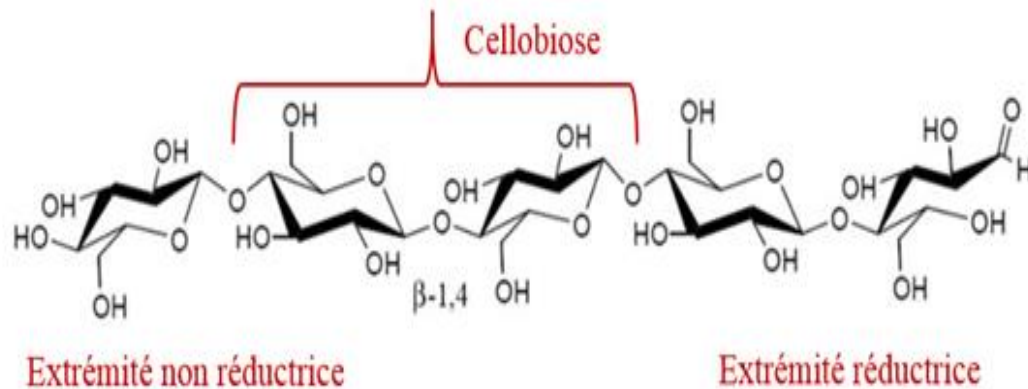
### **1.1.2 Composition chimique de la fibre de bois**

La structure et la composition chimique de la fibre de bois sont influencées par plusieurs facteurs. Elles varient selon les conditions climatiques, l'essence et l'âge de l'arbre. Le bois est classé selon deux familles : bois des résineux et bois des feuillus. Il est composé essentiellement par trois matières organiques : la cellulose, l'hémicellulose et la lignine (Ross 2010). Les deux types de bois ont des teneurs en cellulose assez similaires, mais le pourcentage de la lignine des résineux est un peu plus élevé. De plus, le bois contient également des substances en faible teneur nommée des extractibles (Satyanarayana et al., 2009). Le bois est constitué par plusieurs éléments chimiques. Le carbone (C), l'oxygène (O) et l'hydrogène (H) désignent les entités principales avec des pourcentages : 50%, 42% et 6 % respectivement. Ils sont liés entre eux par des liaisons chimiques pour former la cellulose, l'hémicellulose et la lignine. Aussi, le bois est constitué par d'autres éléments chimiques en faible quantité comme l'azote et les minéraux (Ca, K, Na, Mg et Fe).

#### ❖ Cellulose :

En 1838, Anselme Payen a identifié que les parois cellulaires de la plupart des plantes sont constituées par la même substance nommée cellulose (Kritschewsky 1985). Cette composante garantit le soutien et la protection de la fibre de bois. La cellulose est une macromolécule à longue chaîne stéréorégularité dont la structure est constituée par une grande partie cristalline (Avat 1993). Cette composante est présentée sous forme d'un polymère linéaire dont l'unité de base est le D-anhydroglucopyranose (souvent abrégée en unités d'anhydroglucose ou même en unités de glucose par commodité). Elles sont rattachées les unes aux autres par

l'intermédiaire des liens de type  $\beta$ -1,4-glycosidique (Bledzki et Gassan 1999). La figure 1.4 représente la structure chimique de la cellulose.



**Figure 1.4 : Structure chimique de la cellulose (Bledzki et Gassan 1999)**

La cellulose est constituée par deux groupements d'alcools primaires et secondaires. Ils réagissent de la même manière que les entités chimiques simples de compositions similaires. Différentes réactions peuvent avoir lieu telles que l'oxydation et l'estérification pour se transformer en ester. Ils sont caractérisés par un comportement plus compliqué que celui des substances simples, car les réactions ne s'établissent que dans un milieu hétérogène (Nevell et Zeronian 1985). Généralement, la cellulose réagit d'une façon similaire à un polyalcool (ou polyol) avec un groupement hydroxyle de type primaire et deux autres de forme secondaires. La réactivité des groupements hydroxyles est expliquée par la participation des liaisons hydrogène (Bledzki et al., 1995). La réactivité relative des groupements hydroxyles qui constituent la cellulose n'est pas constante, elle varie d'une réaction à une autre. Les propriétés mécaniques des fibres naturelles dépendent de type de cellulose. Chaque catégorie de cellulose possède sa propre géométrie cellulaire qui est en relation avec les propriétés mécaniques (Kritschewsky 1985). La cellulose résiste à l'hydrolyse, aux alcalis forts et aux agents oxydants, mais elle est dans une certaine mesure dégradable lorsqu'elle est exposée à des traitements chimiques et à des solutions acides.

❖ Hémicellulose :

Les hémicelluloses sont des polysaccharides de faible poids moléculaire qui fonctionnent comme une matrice de cimentation entre les microfibrilles de cellulose. Le groupe de polysaccharides reste associé à la cellulose après l'élimination de la lignine. L'hémicellulose est hydrophile et peut être facilement hydrolysée par des acides et des bases dilués. Elle désigne 25% de la masse du bois de forme  $(C_6H_{10}O_5)_n$ . C'est un polymère à chaîne plus courte et non linéaire, constituée essentiellement par le pentoses, l'hexoses et une faible teneur en glucose (Yongfeng 2011).

L'hémicellulose se diffère de la cellulose par trois aspects :

- En premier lieu, elle contient différentes unités de sucre alors que la cellulose ne contient que des unités de type 1,4-β-D-glucopyranose ;
- En deuxième lieu, elle présente un degré de ramification des chaînes élevé, alors que la cellulose est un polymère strictement linéaire ;
- Troisièmement, l'hémicellulose a une structure semi-cristalline et le degré de polymérisation de la cellulose est dix à cent fois plus élevé.

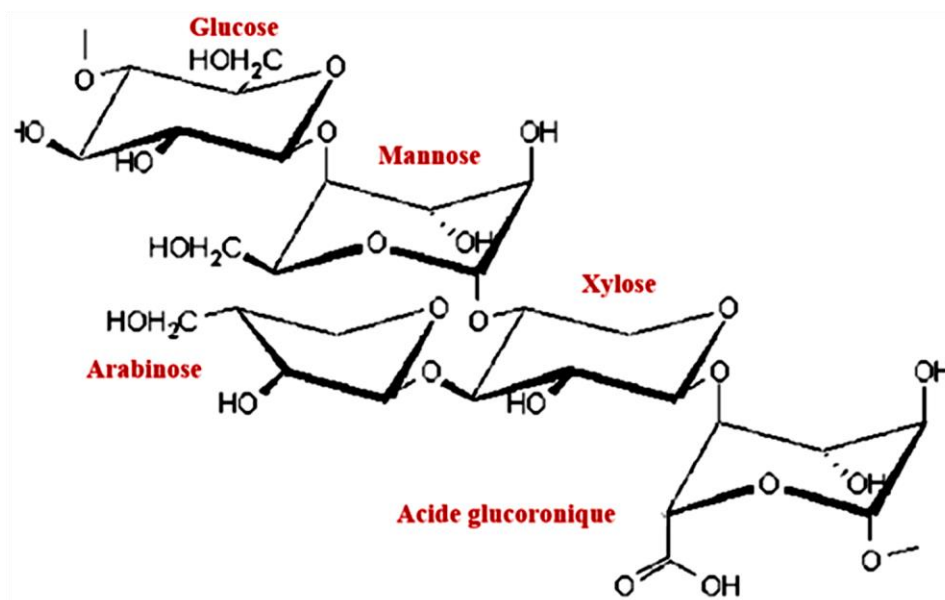
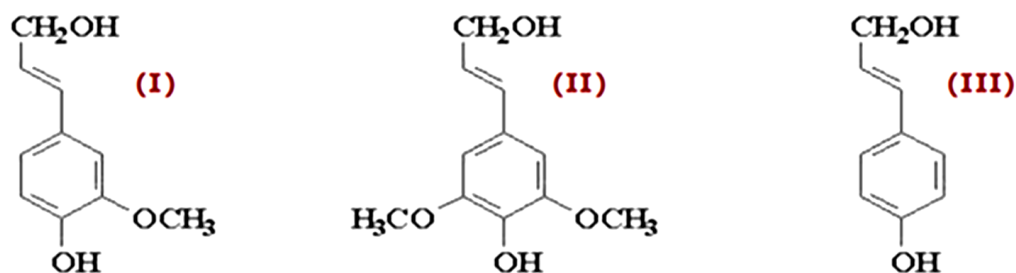


Figure 1.5 : Structure chimique de l'hémicellulose (Estournel-Pelardy 2011)

La formule chimique et la quantité des différents constituants de l'hémicellulose se diffèrent d'une plante à une autre. Les résineux sont caractérisés par des hémicelluloses sous forme des mannoses, alors que celles des feuillus sont principalement des xyloses. L'hémicellulose constitue la partie hydrophile du bois, elle est sensible à la variation de l'humidité ce qui entraîne des gonflements responsables à la variation dimensionnelle.

❖ Lignine :

Les lignines sont des polymères tridimensionnels d'hydrocarbures complexes. Elles désignent la partie responsable à la rigidité des parois cellulaires et participent à la protection de la plante contre les attaques fongiques. Elles peuvent être considérées comme un polymère thermoplastique, caractérisé par une température de fusion d'environ 170°C et une température de transition vitreuse de l'ordre de 90°C (Ofomaja et Naidoo 2011).



**Figure 1.6 : Unités précurseuses de la lignine : les alcools coniférylique(I), sinapylique(II) et p-coumarylique (Fengel et Wegener 1983)**

La structure de la lignine des feuillus n'est pas la même que celle des résineux, elles ne présentent pas une forme identique dans les différentes parties de la paroi cellulaire. Elle existe sous forme d'un réseau tridimensionnel aléatoire dans la lamelle mitoyenne alors qu'elle forme un réseau polymérique bidimensionnel et organisé au niveau de la paroi secondaire. Elle s'agit de la lignine guaïacyl obtenue par la

polymérisation de l'alcool coniférylique pour les résineux et la lignine guaiacyl-syringyl qui est un copolymère d'alcool coniférylique et synapylique dans le cas des feuillus (Sederoff et al., 1999). La lignine est constituée par des composantes de type aliphatiques et aromatiques, elle peut être considérée comme un polymère amorphe et hydrophobe caractérisée par des faibles propriétés mécaniques que celles de cellulose. Les acides ne permettent pas l'hydrolyse de cette composante, elle peut être soluble dans une solution alcaline à haute température (Ofomaja et Naidoo 2011).

### **1.1.3 Propriétés mécaniques et physiques des fibres de bois**

En raison de leur rigidité, leur résistance relative et leur faible densité, les industriels ont choisi les fibres de bois comme alternatives aux autres renforts pour charger les polymères. Les fibres de bois sont appropriées pour charger les thermoplastiques puisqu'il y a la possibilité d'avoir des composites avec les mêmes performances que ceux chargés par des fibres synthétiques (Gassan et Bledzki 1996). Les propriétés mécaniques et physiques du bois sont variables, plusieurs facteurs sont à l'origine de cette différence comme l'essence de bois, les conditions environnantes durant la croissance, la partie d'arbre d'où l'échantillon étudié a été extrait et finalement l'âge de la plante (Augier 2007).

Kohler et Wedler (1995) et Satyanarayana et al., (1986) ont étudié les différences entre les fibres de lin et d'ananas. Leurs résultats ont montré que la résistance à la traction des fibres de lin dépend beaucoup plus de la longueur de la fibre que dans le cas des fibres de verre. Par rapport à cela, la résistance à la traction des fibres d'ananas dépend moins de la longueur. La nature hydrophile est un problème majeur pour toutes les fibres de cellulose si elles sont utilisées comme renfort dans les plastiques.

## 1.2 Procédé de mise en pâte

La mise en pâte est un processus basé sur le défibrage du bois ou d'autres matières selon différentes méthodes : chimiques, thermiques ou mécaniques. C'est la conversion d'une matière sous forme des fibres séparées afin de produire une pâte. Les procédés de défibrage mécaniques sont classiques, le bois est broyé sous forme des fibres de différentes granulométries par des broyeurs ou des raffineurs à disques (Nakagaito et Yano 2004). Les fibres des pâtes chimiques sont séparées par la dégradation de la lignine et la dissolution d'autres entités en utilisant des solutions acides ou basiques. Durant le procédé de mise en pâte, les fibres de bois peuvent avoir un traitement chimique sans modifier leurs propriétés mécaniques (Garceau et al., 1989).

Les industries papetières ont développé plusieurs méthodes de défibrage pour améliorer la production de la pâte, la qualité des papiers et le rendement des différents procédés. Les procédés les plus courants sont : la mise en pâte mécanique, la mise en pâte thermomécanique (TMP), le procédé de mise en pâte kraft et le procédé de mise en pâte chimico-thermomécanique (CTMP) (Garceau et al., 1989).

Deux différentes méthodes sont adoptées afin de produire la pâte mécanique, soit en utilisant des meules abrasives pour réduire la taille des copeaux de bois jusqu'à ce qu'ils seront farinés, soit en les passant à travers deux disques mis en mouvement de rotation. Les opérations de défibrage sont réalisées à la pression atmosphérique alors que la préparation de la pâte peut s'effectuer sous une pression variable en fonction de l'essence des fibres. Les procédés mécaniques sont les plus rentables, le rendement varie entre 93 et 96%. Ce genre de pâte est obtenue sans ajouter aucune solution chimique, elle est constituée essentiellement par les éléments organiques du bois ; cellulose, hémicellulose et lignine (Garceau 1987).

Le cycle de production de la pâte thermomécanique (TMP) est basé sur deux opérations; le traitement des fibres en utilisant des vapeurs saturées et le raffinage

sous pression. Les paramètres du processus sont différents que les autres, la température du vapeur peut dépasser 100°C et les disques du raffineur tournent à une vitesse élevée (Garceau 1987). Afin d'améliorer les performances de la pâte thermomécanique, les industries ont installé dans leur chaîne de production deux raffineurs en séries pour augmenter le pourcentage des fibres longues dans la pâte élaborée. Le rendement de ce procédé se situe aux alentours de 90% (Zhang et Koubaa 2009). L'utilisation des pâtes mécaniques et thermomécaniques reste limitée, la présence de la lignine dans le mélange provoque le changement du couleur blanc vers le jaune (Garceau 1987).

Le procédé chimico-thermomécanique (PCTM) est la combinaison des deux processus de mise en pâte, il est classé parmi les procédés les plus rentables de l'ordre de 89%. L'utilisation des solutions chimiques facilite la séparation et le ramollissement des fibres de bois. Les paramètres de la production tels que la température, la durée et la concentration varient selon l'essence des fibres. La solution chimique est préparée par l'addition du sulfite de sodium dont la concentration varie entre 4 et 12%, le mélange obtenu est chauffé à une température d'environ 160°C durant 15 à 110 minutes (Garceau et al., 1989). Concernant le procédé mi- chimique, la production de la pâte est basée sur deux étapes différentes : le traitement des fibres par des solutions chimiques permet la réduction de la teneur en lignine et ensuite le défibrage mécanique du mélange obtenu. Le rendement de ce procédé varie entre 65 et 75% (Zerhouni et al., 2012).

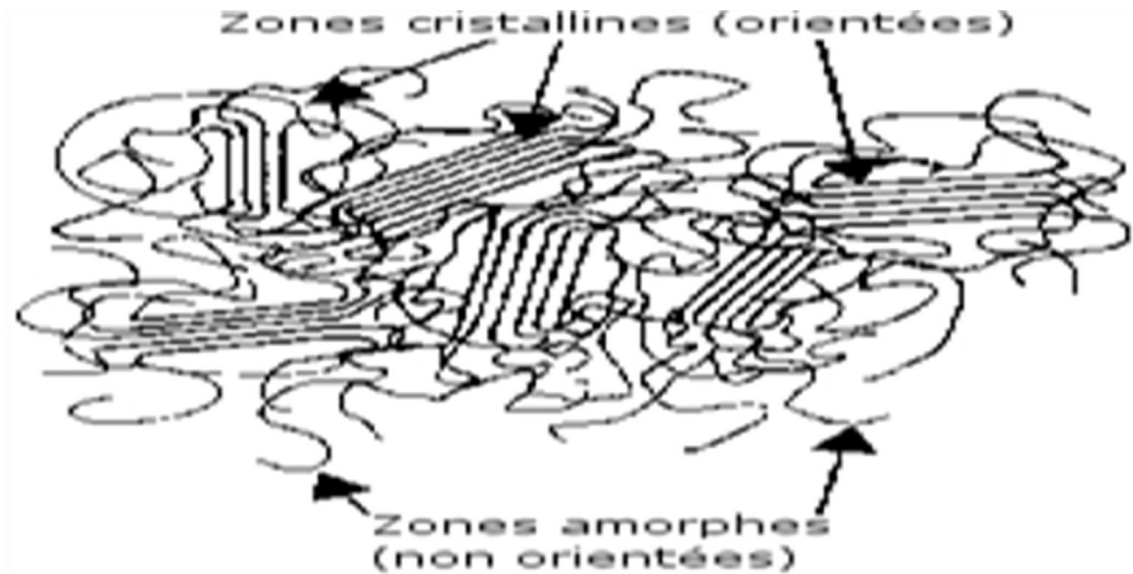
Le procédé de mise en pâte kraft est classé parmi les procédés chimiques, dont le rendement peut aller jusqu'à 55% (Garceau 1987). Les paramètres de la production de ce genre de pâte se différent aux autres, les résidus du bois sont mis dans un mélange constitué par la soude, les carbonates et les sulfates de sodium et ils sont chauffés à 170°C environ. La préparation de la pâte dans un milieu alcalin facilite la dissolution de la lignine et la séparation des fibres (Bourbonnais et Paice 1992). Le

traitement chimique est obtenu par trois réactions ; l'adsorption des hydrosulfures et des hydroxydes sur la lignine, la dégradation de la lignine et finalement la désorption du mélange dégradé (Yang et Liu 2005). La pâte kraft est préférée aux autres types de pâte en raison de sa meilleure résistance mécanique, un indice d'éclatement supérieurs et un bon allongement à la rupture. À la fin du processus, les solutions chimiques utilisées sont accumulées à l'orifice de sortie de la chaudière et injectées de nouveau pour le traitement des fibres (Garceau 1987).

### 1.3 Les différentes matrices polymériques

Le polymère est une composante organique caractérisée par sa structure carbonée. Cette structure est constituée essentiellement par un motif de base nommé monomère (A). La répétition successive de ce motif attribue à la macromolécule la structure en chaîne carbonée (Lafaye 2002). Selon les motifs, les polymères sont classés en deux catégories différentes, si la chaîne est constituée par des motifs identiques il s'agit donc d'un homopolymère (-A-A-A-), si elle présente une combinaison des motifs de nature différente, il présente un copolymère.

Les copolymères existent sous plusieurs formes distinctes, des copolymères alternés ( $\cdots AB AB AB AB \cdots$ ) dans le cas où les motifs s'alternent, des copolymères à bloc ( $AA \cdots A-BB \cdots BB-A \cdots AA$ ), copolymères statistiques ( $\cdots AABABABBBAB \cdots$ ) et les copolymères greffés (Kausch 2001). Les polymères sont des combinaisons de diverses chaînes macromoléculaires dont la cohérence est assurée par l'effet de deux classes d'interaction. Les polymères synthétiques sont élaborés sous forme de chaînes linéaires ou ramifiées. Les chaînes sont constituées par des arrangements qui peuvent être réguliers ou non réguliers. Si l'arrangement est régulier, la structure du polymère s'approche à l'état cristallin où les chaînes sont disposées selon une configuration ordonnée. Dans le cas inverse, le polymère est considéré comme un matériau amorphe où les chaînes sont enchevêtrées et imbriquées (Gehring 2013).



**Figure 1.7 : État semi-cristallin des polymères (Gehring 2013)**

La matrice polymérique joue un rôle crucial dans la fabrication des composites bois-polymère. Les thermoplastiques et les thermodurcissables sont utilisés comme matériaux matriciels pour ce genre de composites. Ils sont aisément moulés et mis en forme. Généralement, ils sont sélectionnés selon les caractéristiques des produits à élaborer ; physiques, thermiques, ou mécaniques (Fontanille et Vairon 1994).

### **1.3.1 Les thermodurcissables**

Les thermodurcissables sont des polymères formés par des chaînes carbonées liées les unes aux autres par des ramifications et des pontages. Les chaînes ramifiées constituent un réseau tridimensionnel compliqué qui se démolit dans le cas d'une rupture irréversible (Aucher 2009). Ce sont des polymères élaborés par polymérisation, en utilisant plusieurs agents comme les réticulant et les catalyseurs ou les durcisseurs. Ces structures réticulées sont résistantes au solvant et au fluage, elles sont constituées par des nœuds qui empêchent la fusion. Les thermodurcissables utilisés dans les composites comprennent les époxydes, les phénols et les polyesters (Saheb et Jog 1999).

**Tableau 1.1 : Avantages et inconvénients des matrices thermodurcissables (Saheb et Jog 1999)**

<b>Avantages des matrices thermodurcissables</b>	<b>Inconvénients des matrices thermodurcissables</b>
<ul style="list-style-type: none"> <li>• La composition chimique des thermodurcissables est similaire à celle des fibres naturelles</li> <li>• Les thermodurcissables ont une structure de chaîne hautement réticulée, le glissement et le pivotement entre les chaînes sont difficiles</li> <li>• La structure de chaîne donne une résistance élevée et de bonnes propriétés telles que la rigidité</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• La formulation des thermodurcissables est très complexe.</li> <li>• Le cycle de traitement est très long</li> <li>• Les coûts du matériel sont élevés</li> </ul>

### 1.3.2 Les thermoplastiques

Les thermoplastiques sont constitués par des chaînes linéaires ou ramifiées et flexibles. Ils ont la capacité d'avoir des déformations élastiques dues au déploiement des chaînes. Les chaînes ne sont pas liées par des ramifications ou des pontages, l'augmentation de la température entraîne un glissement entre elles (Aucher 2009). Les thermoplastiques sont caractérisés par une température de fusion ou encore température de ramollissement, ils peuvent être des matériaux semi-cristallins tels que les polyoléfines (PP : polypropylène, PE : polyéthylène), les PEEK et les PTFE, ou amorphes comme les PC, les ABS et les PMMA (Razi et al., 1999).

La plupart des recherches rapportées jusqu' à maintenant traitent des composites dont la matrice est en polyéthylène, polypropylène, polystyrène, polyamide et chlorure de polyvinyle. Ceci est principalement dû au fait que la température de fusion du thermoplastique est inférieure à 200°C pour éviter la dégradation thermique des fibres naturelles (Myers et al., 1990). Le PP et le PE sont qualifiés par une faible densité et une meilleure résistance à l'humidité. Après avoir évalué les avantages et les limites

des thermodurcissables et thermoplastiques, le polypropylène est le polymère sélectionné comme matrice dans la présente étude.

**Tableau 1.2 : Avantages et inconvénients des matrices thermoplastiques (Saheb et Jog 1999)**

Avantages des matrices thermoplastiques	Inconvénients des matrices thermoplastiques
<ul style="list-style-type: none"> <li>• Les coûts de production sont moins chers que les thermodurcissables</li> <li>• les thermoplastiques sont les plus employés dans le moulage des pièces complexes</li> <li>• Des méthodes simples telles que l'extrusion et le moulage par injection sont utilisées pour fabriquer les composites</li> <li>• Ils sont souples et résistants, et présentent de bonnes propriétés mécaniques</li> <li>• Les composites bois-thermoplastiques tels que le polypropylène sont plus résistants à l'humidité</li> <li>• Le recyclage des composites élaborés est possible</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Le pourcentage de chargement en fibre est limité</li> <li>• L'orientation des fibres dans la matrice est aléatoire</li> <li>• L'amélioration des propriétés n'est pas aussi efficace que celle observée dans les composites bois-thermodurcissables</li> <li>• Les thermoplastiques ont une structure chimique différente par rapport aux fibres naturelles, ils présentent une nature non polaire, de sorte que l'adhésion reste limitée</li> </ul>

### 1.3.2.1 Polypropylène

Le polypropylène est l'un des polymères les plus polyvalents. C'est une polyoléfine linéaire de formule  $(C_3H_6)_n$ . Généralement, cette résine thermoplastique est obtenue

par une polymérisation Ziegler-Natta ou par une polymérisation catalysée par la métallocène (Gehring 2013).



**Figure 1.8 : Polymérisation du propylène (Gehring 2013)**

Il est caractérisé par une température de fusion ( $T_f$ ) d'environ  $165^\circ\text{C}$  et une température de transition vitreuse ( $T_g$ ) égale à  $-10^\circ\text{C}$  (Tableau 1.3). Le taux de cristallinité de la plupart des PP commerciaux varie entre 40 et 60%. Selon les caractéristiques mentionnées, la densité des polypropylènes s'étend de 0,85 à 0,95 (Joseph et al., 2002).

Le polypropylène ressemble au polyéthylène haute densité dans certaines propriétés. Les différences sont au niveau de la densité qui est plus faible. La rigidité et la dureté du PP sont plus élevées que celles du PEHD. C'est le plus rigide parmi les polymères polyoléfiniques. Sa résistance à l'abrasion et à la température sont remarquables, il est qualifié par des excellentes propriétés diélectriques, d'isolation ainsi que sa résistance aux pliages répétés (Tableau 1.3). L'ensemble de ces caractéristiques le rendent l'un des matériaux les plus convoités dans la plupart des travaux de production (Tableau 1.4). Par contre, le polypropylène se dégrade facilement lorsqu'il est exposé au soleil et s'il n'est pas mis en œuvre avec des adjuvants protecteurs (Richaud 2006).

**Tableau 1.3 : Les propriétés du PP (Joseph et al., 2002)**

<b>Propriétés</b>	<b>Unité</b>	<b>Valeur</b>
<b>Indice de fluidité</b>	dg/mn	3 à 6
<b>Masse volumique</b>	g/cm <sup>3</sup>	0,905
<b>Absorption d'eau</b>	%	0
<b>Allongement à la rupture</b>	%	~500
<b>Résistance aux chocs Charpy</b>	23 °C (kJ/m <sup>2</sup> )	10 à 15
<b>Température de transition vitreuse</b>	°C	-10
<b>Point de fusion</b>	°C	165
<b>Conductivité thermique</b>	W/m°C	0,24

Le polypropylène peut être utilisé à la fois comme une matrice thermoplastique ou comme une fibre :

- S'il est considéré comme un thermoplastique, il est exploité pour la fabrication des boîtes alimentaires, les pièces automobiles ainsi que les accessoires de la vie de tous les jours. Grâce à sa résistance thermique, le polypropylène ne fond pas au-dessous de 160°C (Holbery et Houston 2006).
- S'il est considéré comme une fibre, le polypropylène sera utilisé pour la décoration et la réalisation des revêtements de sol, de plus les fibres polypropylène constituent l'adjuvant idéal dans les mélanges en béton pour diminuer le retrait plastique et augmenter les propriétés de surface (Holbery et Houston 2006).

**Tableau 1.4 : Les avantages et inconvénients du PP (Richaud 2006).**

<b>Principaux avantages du PP</b>	<b>Principaux inconvénients du PP</b>
<ul style="list-style-type: none"> <li>• Résistance à la traction et fatigue</li> <li>• Rigidité</li> <li>• Température d'utilisation assez élevée</li> <li>• Résistance chimique</li> <li>• Résistance à la fissuration</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Mise en œuvre délicate</li> <li>• Fragile à basse température</li> <li>• Sensibilité à l'oxydation et aux UV</li> <li>• Collage difficile</li> </ul>

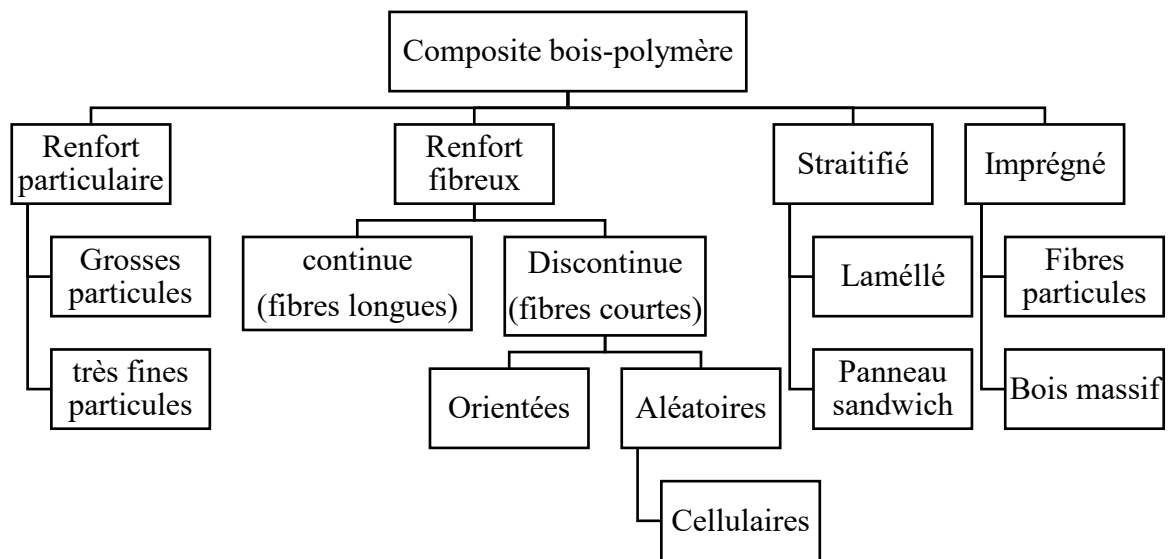
Il existe une grande variété d'applications de PP, y compris les emballages alimentaires, les équipements de laboratoire et les accessoires des véhicules (Beg 2007).

#### **1.4 Composite bois-polymère**

Les polymères sont des matériaux avec un faible module d'élasticité, ce qui laisse leurs exploitations dans certaines applications d'ingénierie limitées. Généralement, les industriels utilisent des adjuvants comme : le carbonate de calcium ( $\text{CaCO}_3$ ), talc, kaolin, mica et fibre de verre, pour améliorer la rigidité (Leong et al., 2004). Depuis les années soixante-dix, les chercheurs ont utilisé des fibres organiques telles que les fibres de bois, les pâtes krafts et les fibres de cellulose.

Woodhams et al., (1984) ont mentionné que les mélanges contenant une pâte de bois présentent un rapport élevé entre la rigidité et le poids. Ce ratio est généralement supérieur ou égal à celui de la totalité des autres matériaux exploités dans le domaine civil comme les alliages d'acier et les composites chargés par les fibres inorganiques de verre ou renforcés par le talc. Les mélanges thermoplastiques/fibres de cellulose sont caractérisés par plusieurs avantages par rapport à ceux contenant un renfort inorganique (Kokta et al., 1986):

- ❖ La densité est plus faible ;
- ❖ Les fibres de bois sont issues d'une source renouvelable ;
- ❖ Les coûts de production sont moins élevés que certaines charges inorganiques tels que le talc et le mica ;
- ❖ Une faible abrasion au niveau des équipements d'injection.



**Figure 1.9 : Classification des composites selon le type des fibres incorporées (Michaud 2003)**

## 1.4.1 Comportement ductile et tenace des composites bois-polymère

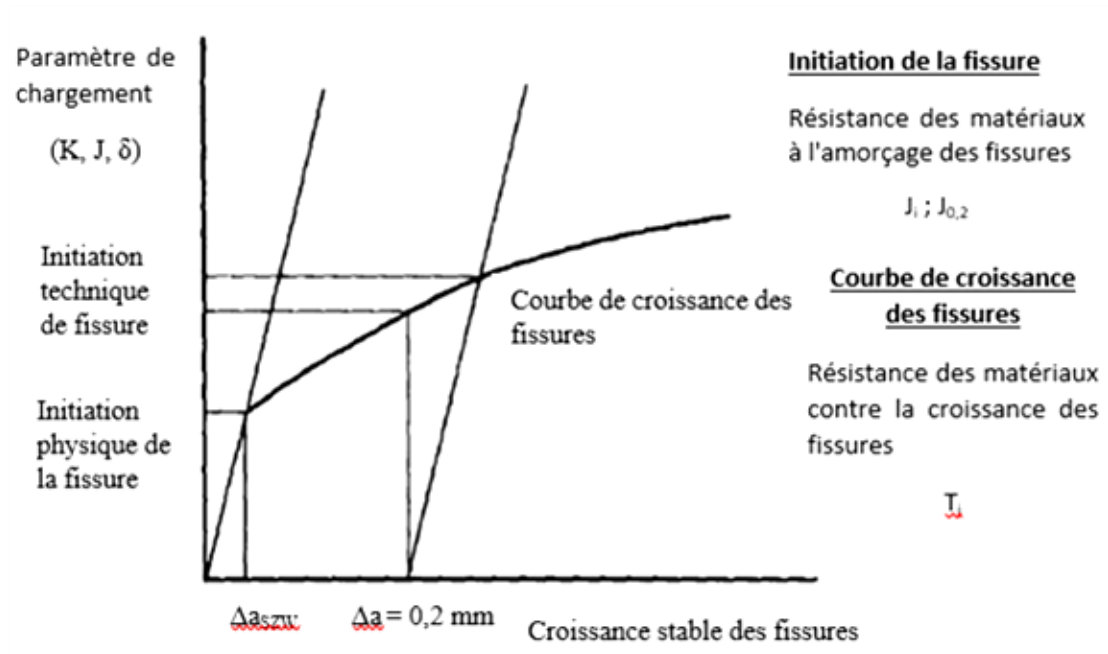
### 1.4.1.1 Définition de la ténacité

La ténacité est une propriété intrinsèque du matériau qui désigne sa capacité à s'opposer à la propagation des fissures, elle peut être définie par la quantité d'énergie absorbée par le matériau avant la défaillance. La ténacité et la résistance au choc font partie des propriétés les plus importantes des polymères et de leurs systèmes modifiés tels que les composites bois-polymère (Bucknall 1977). L'objectif principal du développement de thermoplastiques modifiés est pratiquement de produire un

matériau de haute rigidité et associé à une résistance suffisante aux chocs (Pukánszky et al., 1995). Le renforcement des thermoplastiques au moyen de fibres cellulosiques améliore considérablement la rigidité et la résistance tout en réduisant considérablement la ténacité du composite (Kokta et al., 1983, Woodhams et al., 1984).

#### **1.4.1.2 Méthode de mesure de la ténacité**

Afin de déterminer les critères de défaillance des composants techniques ou des éprouvettes présentant des fissures, différents concepts de la mécanique de la rupture ont été développés. La mécanique de la rupture élastique linéaire (LEFM) décrit avec succès les propriétés de rupture des polymères fragiles et son applicabilité est bien établie pour différentes vitesses de déformation (statique, dynamique, fatigue) (Agrawal et Pearsall 1991, Hashemi et Williams 1984, Hashemi et Williams 1985, Voss et Friedrich 1986). Cependant, il existe des polymères dans lesquels un rendement plastique important se produit au fond de la fissure avant le début de l'extension de la fissure. Pour certains matériaux, le concept LEFM perd sa validité et l'utilisation d'un critère de rupture tenant compte de ce comportement est nécessaire. Ces polymères sont par exemple les systèmes modifiés à haute résistance aux chocs (HIPS), l'ABS, la plupart des mélanges de polymères (PC / ABS, TPU / ABS), les copolymères séquencés (PPB), les polymères semi-cristallins tels que PE et PP et certains composites à matrices thermoplastiques. Pour les matériaux qui présentent un comportement élasto-plastique, l'approche J-intégrale est largement utilisée. Le développement de l'intégrale de J en tant que critère de rupture permet une interprétation énergétique du comportement à la rupture des matériaux. Il est possible de déterminer des valeurs mécaniques de rupture en dehors de la validité du LEFM, ainsi que de déterminer les critères de rupture pour le comportement du matériau élasto-plastique avant la rupture, compte tenu de la croissance stable de la fissure. Dans les matériaux élasto-plastiques, le processus de fracture est caractérisé par les phases.



**Figure 1.10 : Courbe de résistance à la fissuration de la mécanique de la rupture (Seidler et Grellmann 1995).**

Ce processus total peut être décrit avec la courbe de résistance à la fissuration (courbe R) (Figure 1.10). En principe, les courbes de résistance aux fissures sont fonction du paramètre de charge (la fracture tenace K,  $K_I$ : facteur d'intensité de contrainte, J-intégrale,  $J_I$ : valeur d'initiation de la fissure, ou de l'ouverture du déplacement de la fissure,  $\delta_I$ : déplacement d'ouverture de fissure), en cas de croissance stable de la fissure. Ces courbes peuvent être déterminées par le chargement des éprouvettes de manière à former des fissures stables de différentes longueurs,  $\Delta a$ . Les diagrammes de charge, de déplacement de point de charge (dans des conditions d'impact-flexion) sont enregistrés parallèlement. La croissance des fissures stables est quantifiée sur la surface de fracture par microscopie optique. Les surfaces de fracture sont produites en cassant les éprouvettes à la température de l'azote liquide. La courbe de résistance aux fissures permet de quantifier une valeur critique au début d'une croissance de fissure

stable, par exemple  $J_i$  ou  $J_{0,2}$ , et de quantifier la résistance des matériaux à la croissance de fissure avec le module de déchirement,  $T_J$ .

D'autres procédures expérimentales correspondent à la détermination de la valeur d'amorce de la fissure à partir de la modification de la conformité au cours de la croissance de la fissure (Kobayashi et Niinomi 1989) ou la détermination de la courbe de résistance à la fissure à l'aide de la méthode de la courbe clé (Ernst et al., 1979).

#### **1.4.1.3 La résistance aux chocs**

La résistance aux chocs d'un matériau est définie comme l'énergie nécessaire à la rupture transversale de la section de l'unité lors d'un chargement à grande vitesse. Elle donne une mesure de l'aptitude du matériau à supporter un chargement par impact durant le service. En pratique, la valeur numérique réelle dépendra du type de test et de la forme de l'échantillon. La présence de défauts de surface ou d'entailles réduit considérablement la résistance à l'impact de la plupart des matériaux homogènes. Des tests d'impact ont été conçus, mais l'un des tests les plus simples et les plus utilisés est le test d'impact Charpy avec ou sans entaille. Il peut fournir des informations utiles sur les performances en service de différents matériaux, en particulier si le rayon de la pointe de l'entaille est varié (Vincent 1971).

#### **1.4.1.4 Méthode adoptée pour le calcul de la résistance aux chocs**

En pratique, les tests Izod et Charpy standard sont utilisés pour caractériser la résistance aux chocs. Ils sont simples à réaliser, mais difficiles à traduire en conception technique. Dans leur forme la plus élémentaire, ils fournissent une base semi-quantitative pour la sélection des matériaux. Ils peuvent être utilisés soit pour classer les matériaux existants, soit pour évaluer les améliorations apportées aux formulations expérimentales. Ces tests fournissent uniquement l'énergie totale consommée pendant l'ensemble du processus de fracture sans description détaillée de la consommation d'énergie à chaque phase (Paul et Bucknall 2000).

Une méthode plus raffinée de mesure des propriétés d'impact est l'essai d'impact instrumenté qui permet de séparer les étapes du processus de fracture en enregistrant les courbes charge-flèche/temps. Le développement de testeurs utilisant des instruments à impact a permis de surmonter les inconvénients des méthodes de test standard et de faciliter l'acquisition de plusieurs informations manquantes lors de l'impact, particulièrement utiles pour les systèmes composites, qui sont plus complexes qu'un matériau homogène (Grellmann et al., 2001, Reed 1992, Seidler et Grellmann 1995). La méthode de test instrumentée par impact est maintenant utilisée pour évaluer les caractéristiques de rupture par impact et les paramètres de mécanique de rupture des thermoplastiques modifiés (Grellmann et al., 1998, Li et al., 1998, Seidler et Grellmann 1999, Tam et al., 1996). Bien qu'un certain nombre d'études sur la résistance aux chocs de composites bois-polypropylène aient été rapportées (Le Thi et al., 1996, Oksman et Clemons 1998, Wu et al., 2000), des analyses limitées ont été menées sur les différentes étapes de l'impact (Clemons et al., 1997, Xie et al., 2002). De plus, il existe quelques études sur l'application des approches de la mécanique de la rupture sur ce type de matériau (Park et Balatinecz 1997, Li et Li 2001).

Les tests d'impact d'Izod et Charpy avec des échantillons entaillés ou non entaillés sont les méthodes les plus couramment utilisées pour mesurer la résistance des composites bois-polypropylène au choc. Ces procédures sont détaillées dans la norme ASTM D 256. L'énergie de rupture des composites à fibres courtes est composée de l'énergie d'amorçage de la fissure et de l'énergie de propagation de la fissure, qui correspond entièrement à l'énergie de retrait de la fibre (Williams et al., 1973).

L'énergie correspondante à la déliaison ou à la rupture de la liaison fibre-matrice est négligeable. L'énergie absorbée pour fracturer le matériau dépend principalement de l'énergie nécessaire pour propager les fissures. En revanche, pour un échantillon non entaillé, l'énergie requise pour créer une fissure est incluse dans la résistance aux chocs (Landel et Nielsen 1993). Pour les composites bois-PP, la résistance élevée aux chocs sans entaille Izod par rapport aux valeurs d'impact entaillées a été attribuée à

des fibres fortement orientées dans la peau externe causées par le moulage par injection (Le Thi et al., 1996). Les chercheurs ont expliqué que le facteur de forme de la plupart des fibres de bois et leur configuration tortueuse (rubans torsadés) ont un effet sur le retrait des fibres. Malgré la simplicité et la commodité des procédures de test, les tests d'impact Izod et Charpy donnent des valeurs d'impact dépendantes du test utilisé ainsi que de la géométrie de l'échantillon (Landel et Nielsen 1993). Les résultats sont souvent difficiles à interpréter et à comparer avec ceux d'autres tests, car ces méthodes donnent des résultats peu reproductibles (Landel et Nielsen 1993). Ainsi, le concept de mécanique de la rupture peut être utilisé pour surmonter les limitations de la méthode de test d'impact Izod et pour comprendre les processus de fracture des composites à impact modifié. Le principe de base est que l'échec est précipité par des concentrations de contraintes qui se sont développées autour d'irrégularités structurelles. La résistance à l'extension de la fissure ( $K_c$ ) et l'énergie nécessaire pour étendre une fissure ( $G_c$ ) correspondent aux paramètres de base à mesurer.

#### **1.4.1.5 Définition de la ductilité**

La ductilité des matériaux correspond à la capacité de se déformer plastiquement sans atteindre la rupture. La fracture est effectuée lorsqu'un défaut sous forme de fissure ou cavité devient critique. La ductilité est l'aptitude à résister à la propagation de la fissure. Selon le mode de rupture, les matériaux seront classés en deux catégories, soit fragile ou ductile. L'allongement à la rupture est un paramètre parfois étudié pour évaluer la ductilité d'un composite bois polymère (Adhikary et al., 2008).

Le pourcentage d'allongement dans un test est souvent dominé par l'élongation uniforme, qui dépend de la pente de la courbe contrainte/déformation. Une deuxième contribution à l'élongation en pourcentage provient de l'élongation locale, qui dépend de la réduction finale de la surface et de la distribution des souches dans la région étranglée. Il semble que la valeur d'élongation soit trop complexe pour être

considérée comme une propriété fondamentale d'un matériau (Borri et al., 2013). La valeur de la réduction de surface est clairement liée au début de la rupture et est considérée comme une meilleure indication de la ductilité d'un matériau. Cependant, il n'est généralement pas évident qu'un effet de « rétroaction négative » se produise, ce qui tend à empêcher d'obtenir des valeurs de ductilité élevées. Lors d'un essai de traction, l'état de contrainte dans l'échantillon est initialement une simple tension uniaxiale. Une fois que la striction se développe, le système de contrainte change de manière à générer une composante de contrainte de traction hydrostatique qui se superpose à la contrainte axiale (Borri et al., 2013).

La contrainte de traction hydrostatique augmente à mesure que le cou devient plus profond, de sorte que la fracture est plus susceptible de se produire. Cette situation conduit à un effet stabilisant, une augmentation de la ductilité entraîne la formation d'un cou plus profond, ce qui entraîne le développement de contraintes locales plus importantes et donc une plus grande possibilité de rupture. Une augmentation considérable de la ductilité peut n'entraîner qu'une légère amélioration de la valeur de réduction de surface (Paul et Bucknall 2000).

#### **1.4.1.6 Mécanismes de déformation**

Les mécanismes de déformation dans les thermoplastiques renforcés par des fibres peuvent être regroupés en mécanismes liés à la matrice (fissuration, affaissement, propagation de fissures stable et instable, rendement en cisaillement) et en mécanismes liés aux fibres (décollement, arrachement et rupture de la fibre) (Karger-Kocsis 2012).

En outre, le mécanisme de déformation est influé par diverses conditions telles que le nombre des microfissures créées par les particules inorganiques ou les fibres lignocellulosiques, l'initiation de petites zones plastiques (fissures ou bandes de cisaillement) induites par une concentration de contrainte au niveau de particules (par exemple des particules de caoutchouc) et une cavitation à la surface de particules

(particules inorganiques ou modifiantes) ou à l'intérieur de celles-ci. Lorsque les vides sont créés à partir de grosses particules ou d'agrégats, ils sont susceptibles de former une fissure de longueur critique, ce qui initiera une rupture fragile dans un composite contenant des particules faiblement adhérentes. Les petites particules bien dispersées et faiblement adhérentes créent un grand nombre de vides petits et stables qui permettent une déformation supplémentaire des ligaments de la matrice entre les particules (Kausch et Béguelin 2001).

De plus, la plupart des recherches sur le polypropylène chargé de bois (Clemons et al., 1997, Feng et al., 2001) sont réalisées à l'aide d'éprouvettes moulées par injection, où des effets d'orientation considérables et une structure noyau-coquille affectent dans une large mesure les mécanismes de déformation et la réponse mécanique des composites.

L'examen au microscope électronique à balayage des éprouvettes fracturées en traction peut fournir des informations sur les effets du modificateur d'impact et de l'agent de compatibilité sur le comportement de déformation des matériaux (Nuñez et al., 2002).

L'analyse des surfaces fracturées en traction des composites PP / fibre de bois non modifié a montré que les fibres de bois sont décollées et retirées de la matrice en PP sans aucun signe visible de déformation plastique, ce qui indique une mauvaise adhésion interfaciale. La fracture produite dans le PP est causée par la formation intensive des vides dans les matériaux. Le retrait de la fibre entraîne une rupture fragile prématurée à des faibles niveaux de contrainte et d'allongement (Xie et al., 2002).

### 1.4.1.7 La théorie de Griffith de la rupture fragile

En 1920 Alan Arnold Griffith a étudié la rupture des matériaux d'un point de vue énergétique. Cette théorie a été la plus exploitée en mécanique de la rupture durant quatre-vingt ans (Francfort et Marigo 2002). Le modèle de fissuration est basé sur deux hypothèses :

- Une énergie de surface est associée à chaque fissure. Cette énergie est proportionnelle à l'aire créée suite à la fracture.
- La propagation de la fissure est analysée par un bilan énergétique. Il aura une propagation de fissure à condition que l'énergie que restitue le matériau par rupture des liaisons compense l'énergie de surface générée par l'allongement de la fissure. Néanmoins, la fissure ne se propagera pas lorsque la restitution est insuffisante.

Griffith a associé à chaque fissure une énergie. Il a montré que l'énergie et la longueur de la fissure sont proportionnelles. Le coefficient de proportionnalité est défini par le taux de restitution d'énergie critique  $G_c$ . La densité d'énergie  $\Phi$  est indépendante du déplacement des lèvres de la fissure (Francfort et Marigo 2002). Elle peut avoir deux valeurs; soit nulle au début de la propagation de la fissure ou égal au taux de restitution d'énergie critique du  $G_c$ . Notant que  $\delta$  désigne l'ouverture des lèvres de la fissure, la densité d'énergie peut se présenter par les formules suivantes :

- $\Phi(\delta) = 0$  si  $\delta=0$
- $\Phi(\delta) = G_c$  si  $\delta < 0$

L'ensemble  $K$  désigne les points de discontinuités qui caractérisent l'état de fissuration.

L'énergie de surface définie par Griffith s'écrit sur cette forme  $\{G_c \text{ longueur}(K)\}$  si  $K$  est rectifiable, si non l'énergie sera étudiée par la métrique de Hausdorff (Francfort et Marigo 2002) :

$$\delta (K) = G_c * H^1 (K) \quad (1.1)$$

#### **1.4.2 Facteurs influant sur la ductilité et la ténacité des matériaux composites**

La ductilité et la ténacité des composites renforcés par des fibres de bois dépendent en grande partie de la force des liaisons à l'interface fibre-matrice. L'incompatibilité entre le renfort naturel et le polymère est l'une des préoccupations majeures dans la production des composites. Les propriétés mécaniques, notamment la résistance au choc et la ductilité, les propriétés physiques et les propriétés thermiques sont gouvernées par les facteurs suivants :

##### **1.4.2.1 Effet de la dispersion des fibres dans la matrice sur la ductilité et la ténacité**

L'incorporation des fibres naturelles dans des matrices thermoplastiques est accompagnée par une faible adhésion entre les deux matériaux. La dispersion des fibres dans la matrice a une grande influence sur l'homogénéité des mélanges et par suite la déformation du composite. C'est un paramètre pour évaluer les propriétés ductile, tenace et résistance aux chocs des composites. Le traitement des fibres par diverses solutions ou l'addition des différents adjuvants sous forme d'auxiliaires de traitement peuvent améliorer la dispersion des fibres (Lu et al., 2007). L'adhésion interfaciale entre les fibres et le polymère contribue aux performances des composites. Elle est en relation vigoureuse avec la transmission des contraintes appliquées sur la matrice à la fibre. Les thermoplastiques sont des matériaux non polaires caractérisés par des surfaces hydrophobes non compatibles avec les fibres polaires ce qui entraîne des composites fragiles et non résistants aux chocs. Cette opposition des critères induit la création des faibles liaisons entre la matrice et le renfort, présentant aussi une faible ductilité et ténacité. Afin d'améliorer l'affinité et l'adhésion dans le but d'augmenter la ténacité et la ductilité, des agents de couplage chimiques ont été utilisés avec des pourcentages variables dans les formulations des composites (Saheb et Jog 1999). Le polypropylène modifié à l'anhydride (MAPP) est

ajouté dans les mélanges fibres lignocellulosiques-polypropylène. Des résultats antérieurs ont suggéré que la quantité du groupement modifié à l'anhydride MA greffée et la masse moléculaire du MAPP sont deux paramètres qui déterminent l'efficacité de l'additif sur les comportements mécaniques tels que la ductilité et la ténacité. (Bouafif et al., 2009).

#### **1.4.2.2 Effet de la stabilité thermique des fibres sur la ductilité et la ténacité des composites bois-polymère**

L'incorporation des fibres naturelles dans des matrices polymériques reste limitée en raison de deux facteurs : la dégradation des fibres sous l'effet de l'augmentation de la température et la possibilité des émissions volatiles causées par les composantes extractibles. Les températures de dégradations des fibres de bois sont variables d'une espèce à une autre. Les fibres naturelles peuvent résister à environ 200°C. La dégradation des fibres sous l'effet de l'augmentation de température provoque le dégagement des gaz volatiles et la formations des résidus. Les produits de cette dégradation sont incompatibles avec le polymère, leurs présences dans la structures des composites se manifestent par des vides et des défauts, ce qui réduit la ductilité et la ténacité des systèmes étudiés (Joseph et al., 1999). Cette condition limite le choix des thermoplastiques qui peuvent être utilisés comme des matrices. Généralement, le polypropylène, le polyéthylène, le polystyrène et le chlorure de polyvinyle sont les plus utilisés, car leur température de fusion ( $T_f$ ) est inférieure à la température de dégradation de la plupart des fibres naturelles (Joseph et al., 1999).

#### **1.4.2.3 Effet du caractère hydrophile des fibres de bois sur la ductilité et la ténacité des composites**

Pour obtenir un composite ductile et tenace à base de fibres de bois hydrophiles et d'un polymère non polaire, il est nécessaire d'avoir une bonne interaction entre les différentes composantes, généralement par modification superficielle des fibres (Maldas et Kokta 1990, Raj et al., 1989), modification de l'interface ou de la matrice

par addition d'agents de couplage (Maldas et Kokta 1991, Oksman et Lindberg 1995). Le renforcement des thermoplastiques au moyen de fibres de cellulose améliore considérablement la rigidité et la résistance tout en réduisant considérablement la ténacité et la ductilité du composite (Kokta et al., 1983, Woodhams et al., 1984).

La déposition des composites bois-polymère dans un milieu humide peut provoquer le gonflement des fibres et par suite la variation des dimensions. La stabilité dimensionnelle et les performances mécaniques comme la ductilité et la ténacité des composites sont en corrélation (Fu et Lauke 1996). L'absorption de l'eau affecte les différentes propriétés : mécaniques, notamment la ductilité et la ténacité, électriques et thermiques. La variation de dimensions des produits en bois-thermoplastique est inférieure à celle des pièces en bois. Ceci est expliqué par le phénomène d'encapsulation des fibres par le polymère. L'utilisation des additifs dans la formulation des mélanges reste insuffisante pour éliminer complètement l'absorption de l'humidité. L'acétylation des groupes hydroxyle présents à la surface des fibres désigne une méthode efficace afin d'augmenter la stabilité dimensionnelle. Une bonne liaison entre la fibre et la matrice peut également diminuer le taux et la quantité d'eau absorbée par le composite (Fu et Lauke 1996).

#### **1.4.2.4 Orientation des fibres**

L'orientation des fibres liées entre elles est un paramètre appréciable dans l'étude des composites bois-polymère. L'influence de l'orientation des fibres sur les performances peut être identifiée à partir de la modélisation de la résistance à la traction des composites où les renforts sont dispersés unidirectionnels ou orientés arbitrairement. Les fibres courtes s'orientent rarement dans une seule direction. Dans le cas où les fibres sont alignées perpendiculairement à la direction d'une force appliquée, elles ne renforcent pas la matrice pour augmenter la résistance du composite. Cependant, la résistance à la traction selon l'axe de l'alignement des fibres (fibres orientées

longitudinalement) est supérieure à celle des composites dont les fibres sont orientées aléatoirement (Joseph et al., 1999).

Il est possible d'obtenir un certain degré d'alignement pendant les procédés de mélange par extrusion et de moulage par injection. Des changements progressifs et continus au niveau de l'orientation des fibres dans tous les composants moulés prennent endroit. Ces changements sont liés d'une manière complexe à la taille et à la teneur des fibres, au comportement d'écoulement de la matrice polymère fondue et la cavité du moule (Fu et Lauke 1996).

La ductilité et la ténacité dépendent aussi de l'orientation des fibres dans la matrice thermoplastique. En outre, pour les composites chargés de fibres courtes, le comportement au choc est plus complexe que celui du polymère non chargé en raison de l'orientation des fibres et de leur contribution interfaciale. Il existe deux mécanismes permettant aux fibres de réduire la résistance aux chocs (Joseph et al., 1999):

- Les fibres ont tendance à réduire l'allongement à la rupture et peuvent réduire l'aire sous la courbe contrainte-déformation;
- Des concentrations de contrainte peuvent se produire autour des extrémités des fibres, les zones de faible adhérence et les zones de contact des fibres.

#### **1.4.2.5 Teneur en fibre**

L'addition d'une faible quantité de fibre entraîne une diminution significative des propriétés telles que l'allongement à la rupture et la résilience. Cette faiblesse est le résultat des défauts créés par les extrémités des fibres, elles agissent comme des concentrations de stress et provoquent une rupture brutale.

La quantité de fibres incorporée est limitée par une valeur bien définie à laquelle les propriétés de résistance du composite cessent d'augmenter. Elle est connue sous le nom volume critique de renfort ajouté. À des fractions de volume de fibres élevées, la

diminution de la résistance des composites aura lieu en raison des défauts de remplissage de la matrice (Bibo et Hogg 1996). La diminution des propriétés mécaniques peut être expliquée par d'autres facteurs, lors des opérations d'extrusion et de moulage par injection, une quantité des fibres sera endommagée par l'interaction avec le polymère ou par leurs contacts avec les surfaces des équipements. En cas où la teneur en fibres est élevée, l'interaction fibre-fibre augmente, entraînant une réduction de la longueur moyenne. Si la longueur moyenne des fibres est inférieure à la longueur critique, l'efficacité de renforcement serait réduite. La longueur critique est définie par l'équation (1.2) avec  $\tau_i$ ,  $r_f$  et  $\sigma_{cu}$  correspond à la contrainte de cisaillement interfaciale entre la matrice et les fibre, le rayon de la fibre et la résistance ultime du composite, respectivement. (Fu et al., 2000).

$$L_c = \frac{r_f * \sigma_{cu}}{\tau_i} \quad (1.2)$$

Plusieurs modèles théoriques ont été développés afin de prédire la variation de la résistance à la traction et le module d'Young des composites en fonction de la teneur en fibres (Kalaprasad et al., 1997). Les modèles les plus appliqués pour prédire ces caractéristiques sont fondés sur deux formes de modélisation ; parallèle ou sérielle. Le modèle parallèle représente les limites supérieures de la résistance à la traction et du module d'Young. Le modèle série décrit l'effet de la teneur en fibre sur les bornes inférieures (Cabral et al., 2005). Le modèle de Hirsch est la combinaison des deux modèles, il présente la moyenne pondérée de la modélisation en série et celle en parallèle. Le transfert des contraintes entre la fibre et la matrice est caractérisé par un paramètre empirique nommé  $x$ , il dépend de l'orientation, de la longueur et de la dispersion des fibres. La valeur de  $x$  peut varier de 0 à 1 pour donner le meilleur ajustement.

- Modèle parallèle

$$M_c = M_f * V_f + M_m * V_m \quad (1.3)$$

$$S_c = S_f * V_f + S_m * V_m \quad (1.4)$$

- Modèle série

$$M_c = \frac{M_m * M_f}{M_m * V_f + M_f * V_m} \quad (1.5)$$

$$S_c = \frac{S_m * S_f}{S_m * V_f + S_f * V_m} \quad (1.6)$$

- Modèle de Hirsch

$$M_c = x * (M_m * V_m + M_f * V_f) + (1 - x) * \frac{M_m * M_f}{M_m * V_f + M_f * V_m} \quad (1.7)$$

$$S_c = x * (S_m * V_m + S_f * V_f) + (1 - x) * \frac{S_f * S_m}{S_m * V_f + S_f * V_m} \quad (1.8)$$

Avec :

- $M_c$ ,  $M_m$  et  $M_f$  sont les modules d'Young du composite, matrice et fibre, respectivement ;
- $S_c$ ,  $S_m$  et  $S_f$  sont les résistances à la traction du composite, matrice et fibre, respectivement ;
- $V$  est la fraction volumique de la fibre, et les indices c, f et m indiquent composite, fibre et matrice, respectivement.

### 1.4.3 Amélioration des comportements ductile et tenace de composites

La qualité de l'interface fibre-matrice est un paramètre significatif qui a une influence remarquable sur la ductilité et la ténacité des composites bois-polymère. Différentes méthodes de type physique ou chimique sont adoptées afin d'optimiser l'adhésion entre le renfort (hydrophile) et le thermoplastique (hydrophobe). Ces méthodes de traitement sont d'une efficacité inégale, aussi plusieurs catégories d'agent de couplage sont incorporées en raison de leur influence sur l'homogénéité des mélanges et par suite les divers critères du composite (Bledzki et al., 1996).

#### **1.4.3.1 Méthode de traitement physique des fibres naturelles**

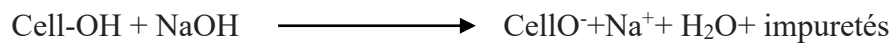
Les traitements physiques sont basés sur la modification des propriétés structurales et superficielles de la fibre, les changements introduits sur les renforts entraînent une amélioration importante de la liaison fibre-polymère (Ray et al., 1976). Les méthodes physiques telles que le calandrage, l'étirement et le traitement thermique peuvent être employées sans modifier la composition chimique des fibres. La décharge électrique (corona, plasma) est une autre façon de traitement physique. Ce processus modifie l'énergie de la surface des renforts cellulosiques. Dans le cas des fibres de bois, l'activation est assurée par l'augmentation de la quantité des groupes aldéhydes (Belgacem et al., 1994).

Plusieurs recherches ont montré l'effet des traitements physiques tels que le plasma et la corona sur les propriétés mécaniques comme la ductilité et la ténacité. L'utilisation de ce mode de traitement contribue à l'amélioration de la ductilité des composites bois-polymère avec des pourcentages de l'ordre de 5% à 7% (Belgacem et al., 1994, Dong et al., 1992). Le plasma est un gaz ionisé dont la densité des charges positives est égale à celle des charges négatives. Il peut exister selon une large gamme de température et de pression. Suivant le type et la nature des gaz utilisés, une variété des modifications de surface pourrait être obtenue. Durant le procédé du traitement plasma, plusieurs phénomènes peuvent être introduits tels que la réticulation superficielle, l'augmentation ou la diminution de l'énergie de surface et la création des radicaux libres réactifs (Belgacem et al., 1994). Les méthodes de décharge électrique sont développées afin d'être compatibles avec plusieurs types de polymères comme polystyrène, polyéthylène, polypropylène, etc. Ils sont utilisés avec succès pour modifier la surface des matériaux lignocellulosiques, diminuer la viscosité des composites polyéthylène-farine de cellulose à l'état fondu et améliorer les propriétés mécaniques des composites bois-polypropylène (Dong et al., 1992).

### 1.4.3.2 Méthodes de modifications chimiques des fibres naturelles

#### 1.4.3.2.1 Traitement alcalin des fibres naturelles

Le traitement alcalin est le plus utilisé pour améliorer l'adhésion entre la matrice et les fibres naturelles. Ce processus consiste à soumettre les fibres végétales à une interaction avec des solutions aqueuses assez concentrées. Généralement, les solutions de types bases fortes sont employées afin de réduire l'influence de l'humidité sur la stabilité dimensionnelle et optimiser les propriétés mécaniques des composites élaborés (Aboul-Fadl et al., 1985). Le traitement des fibres de cellulose par l'hydroxyde de sodium est aussi parmi les méthodes adoptées par plusieurs industries dans le but d'optimiser les performances mécaniques. Il participe à l'augmentation de la quantité de cellulose amorphe sur la surface du renfort. La réaction cellulose-hydroxyde de sodium est la suivante :



Les composites renforcés par des fibres traitées avec l'hydroxyde de sodium sont censés avoir des propriétés améliorées à condition qu'il n'y ait pas une formation d'une grande quantité en cellulose amorphe (Mwaikambo et al., 2000). Des études ultérieures ont mis l'accent sur l'effet de l'élimination de la lignine et l'hémicellulose par le traitement alcalin sur les propriétés mécaniques et physiques des composites bois-polymère. La lignine et l'hémicellulose sont des entités amorphes qui affectent les caractéristiques de traction des composites. Lorsqu'elles sont dissoutes, la région interfibrillaire devient moins dense et moins rigide et les fibrilles sont plus capables de se réorganiser dans le sens de la déformation. En outre, certains auteurs ont signalé la variation de la cristallisation des fibres de coco et de lin après les traitements alcalins. L'augmentation du taux de cristallisation des fibres traitées se manifeste par l'extraction des extractibles, ce qui conduit à un meilleur empilage des chaînes de cellulose.

Ray et al., (2001) ont étudié les effets des fibres de jute traitées par la solution alcaline sur les propriétés mécaniques des composites de résine vinylester. Ils ont constaté que ce traitement améliore plusieurs performances, tels que le module d'Young, le module d'élasticité en flexion et la résistance à la flexion. Gassan et Bledzki (1999) ont mentionné l'influence du même traitement sur les propriétés mécaniques des composites jute/époxy. Ils ont montré que la morphologie de la surface des fibres est devenue plus rugueuse ce qui a altéré l'adhésion entre les composantes du mélange. Reddy et Bhaduri (1990) ont identifié l'effet du traitement alcalin (hydroxyde de sodium et hydroxyde de potassium) sur les propriétés et la structure cristalline des fibres, ils ont trouvé que l'accessibilité des fibres du jute traitées par des solutions à une concentration élevée a augmenté alors que leurs cristallisations ont diminué. Van de Weyenberg et al., (2003) ont étudié l'influence d'un traitement constitué par une combinaison de deux solutions différentes, époxy diluée et une solution alcaline, sur la surface des fibres naturelles. Grâce à ce procédé, les propriétés de flexion sont améliorées d'une façon significative. Valadez-Gonzalez et al., (1999) ont partagé les mêmes résultats que les autres études, en utilisant des fibres d'Henequen traitées par la solution alcaline. Les composites élaborés suite à ce traitement ont présenté un comportement plus ductile que les autres composites chargés par des fibres non traitées.

#### *1.4.3.2.2 Les agents de couplage*

L'amélioration du couplage entre les fibres et les polymères est une méthode de modification chimique qui optimise l'adhérence interracial entre ces deux matériaux. Dans le cas où les matériaux ne sont pas compatibles, il est souvent possible de réduire cette incompatibilité en incorporant un autre matériau (agent de couplage) qui est caractérisé par une compatibilité avec les deux constituants. Les fibres naturelles sont fortement polarisées, elles sont intrinsèquement incompatibles avec les thermoplastiques hydrophobes. Par conséquent, les scientifiques ont innové une

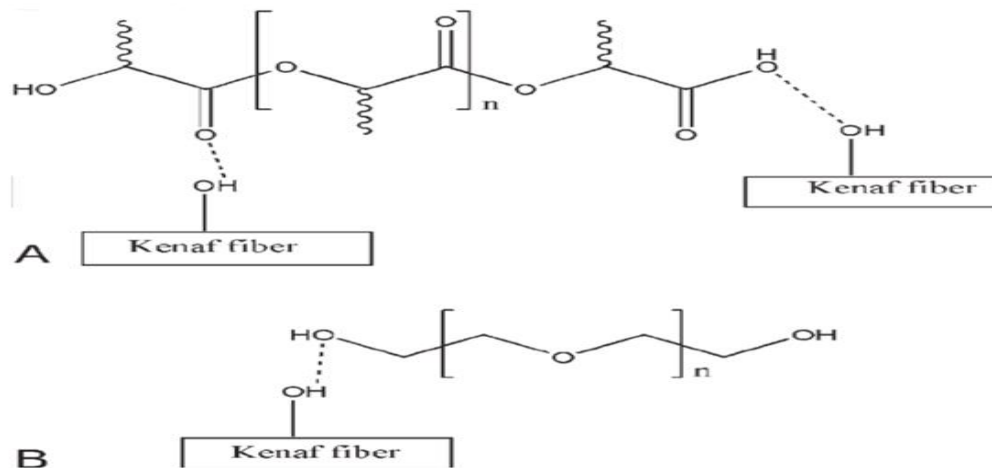
variété d'agents de couplage afin de favoriser la compatibilité entre le renfort et la matrice (Maldas et al., 1989).

Jusqu'à nos jours, le développement d'une théorie définitive pour améliorer la liaison entre les fibres et les polymères par des agents couplage désigne un problème complexe. Le raisonnement par la théorie principale de la liaison chimique seule reste insuffisant. Afin de résoudre ce problème, la considération des nouveaux concepts semble être nécessaire pour comprendre la morphologie de l'interface, les réactions acide-base à l'interface qui auront lieu, les phénomènes de mouillage et l'énergie de surface (Maldas et al., 1989).

### **1.4.3.3 Modifiant au choc**

#### *1.4.3.3.1 les Plastifiants*

Un plastifiant est un additif ajouté à la formulation du matériau afin d'augmenter sa déformabilité et de faciliter sa mise en œuvre. L'incorporation des plastifiants dans un mélange diminue l'enchevêtrement, les interactions intermoléculaires et la friction entre les chaînes. Paradoxalement, un phénomène d'anti plastification peut se produire dans le cas où le dosage des deux plastiques polymère/plastifiant ne s'effectue pas selon les normes. La plastification se manifeste par une modification des propriétés thermiques et mécaniques d'un polymère. Elle implique l'abaissement de la rigidité à la température ambiante, abaissement de la température à laquelle des déformations importantes peuvent être effectuées sous l'effet des petites forces, augmentation de l'allongement à la rupture et amélioration de la ténacité jusqu'à la température de service la plus basse. Ces résultats peuvent être obtenus en mélangeant le polymère avec un composé à faible poids moléculaire, où en introduisant dans le polymère d'origine un comonomère qui réduit la cristallisation et augmente la flexibilité (Taib et al., 2010).



**Figure 1.11 : Réaction possible entre (A) chanvre/PLA et (B) chanvre/PEG (Taib et al., 2010)**

Taib et al., (2010) ont constaté que la matrice PLA est compatible et capable d'interagir avec les fibres de chanvre. La présence de PEG pourrait avoir amélioré quelques propriétés telles que l'allongement à la rupture et la résistance à l'impact des composites PLA/KF. Cela a été soutenu par des performances plus ductile et plus tenace du composite plastifié ainsi que par les résultats de MEB. La présence de PEG a amélioré la résistance aux chocs des composites. Cependant, l'ampleur de l'amélioration n'était pas assez significative pour confirmer que l'utilisation du PEG en tant que plastifiant dans les composites est une méthode efficace pour améliorer la déformation des composites.

L'incorporation des additifs du type plastifiant entraîne une amélioration importante des comportements ductile et tenace d'un composite bois polymère. Sailaja et al., (2008) ont évalué les effets de l'agent de couplage sur les propriétés mécaniques et thermiques des composites de polypropylène et de farine de soja modifiée par un plastifiant. La farine de soja plastifiée (PSF) a été préparée en mélangeant 48% de FS avec 33% de glycérol et 19% d'eau distillée puis chauffée à 70°C durant une heure dans un bain d'eau. Les mélanges PP/PSF présente une meilleure résistance aux chocs

que les mélanges PP/SF. Cependant, pour les deux cas, il est évident que la résistance à l'impact diminue lorsque le chargement en SF ou PSF augmente.

#### *1.4.3.3.2 Élastomère*

Une partie des modifications apportées à la résine a été orientée vers l'amélioration de la ténacité et la résistance aux chocs des thermoplastiques via une copolymérisation, une polymérisation greffée ou par mélange avec des modificateurs d'impact. Il est courant d'augmenter la ductilité des thermoplastiques tels que le PP en incorporant une quantité mineure d'élastomère. L'addition d'une quantité d'élastomère au mélange préparé est considérée parmi les éclectismes innovés qui ont eu le plus de réussite sur l'amélioration de la ductilité et la ténacité des polymères. Les particules de caoutchouc initient et contrôlent la croissance de l'engouement, qui consiste en un réseau interpénétrant de vides et des fibrilles de polymère extrêmement minces. Elles changent continuellement de structure ce qui pourrait donc absorber l'énergie de choc. Il est également bien connu que la taille des particules d'élastomère dispersées a une influence significative sur l'énergie de choc des thermoplastiques renforcés au caoutchouc (Wu 1985).

L'utilisation de matrices intrinsèquement résistantes telles que les polymères modifiés au caoutchouc est un moyen d'augmenter la ténacité et la ductilité des composites bois-polymère (Park et Balatinecz 1997, Oksman et Clemons 1998, Wu et al., 2000, Xie et al., 2002). En conséquence, les additifs élastomères augmentent la résistance aux chocs mais réduisent la rigidité. La ténacité d'un matériau peut être améliorée en augmentant sa capacité à se déformer d'une manière plastique (Michler 1999).

La modification de la résine avec des élastomères a été réalisée pour des composites renforcés par des fibres inorganiques. Deux approches ont été utilisées pour compenser la perte de résistance au choc provoquée par l'addition de fibre de carbone à une matrice thermoplastique : 1) Modifier la résine par l'addition de l'élastomère, et 2) augmenter la longueur des fibres de renforcement. Les résultats ont montré que la

résistance au choc avec entaille Izod peut être améliorée d'une manière significative par l'ajout d'élastomère ou de fibres plus longues (Kim et al., 1992). La résine époxy a été modifiée avec divers modificateurs, tels qu'époxy/caoutchouc, pour la mise au point de composites renforcés de fibres de carbone de haute résistance et de haute ténacité (Kim et al., 1992). Le copolymère séquencé styrène-butadiène-styrène (SBS) et éthylène/propylène/diène (EPDM) ont été utilisés comme représentant des deux classes d'élastomères dans les composites de PP remplis de talc (Stamhuis 1984). Les résultats ont montré que l'équilibre résistance/rigidité du PP présenté par Izod, la résistance au choc avec entaille et le module de flexion peuvent être considérablement améliorés par l'incorporation simultanée d'une charge (à savoir le talc) et d'élastomères. Une autre tentative a été faite pour améliorer la résistance au choc du PP en ajoutant de l'EPDM et du carbonate de calcium, en soulignant l'importance de la taille et de la dispersion des particules de charge dans la modification de la résine.

Les élastomères sont constitués par des chaînes macromoléculaires de longueurs variables. Chaque chaîne contient plusieurs motifs de monomères, de l'ordre des centaines ou des milliers, qui sont enchaînés entre eux à travers des liaisons. Elle est généralement sous forme de pilotes statistiques. La cohésion d'un élastomère est le résultat des deux types d'interaction; physique ou chimique. Les interactions physiques sont des enchevêtrements moléculaires alors que celles chimiques sont effectuées par le processus de vulcanisation (Akiba et Hashim 1997).

Dans la plupart des études, une teneur en caoutchouc (proportion varie entre 5 et 20 %) est ajoutée sous forme d'une couche dispersée dans le polymère. Les composites bois-polymère élaborés sont caractérisés par une résistance à la fracture et un allongement à la rupture plus élevés que ceux fabriqués uniquement par un polymère. Néanmoins, il aura une perte remarquable au niveau des modules et de résistance à la traction.

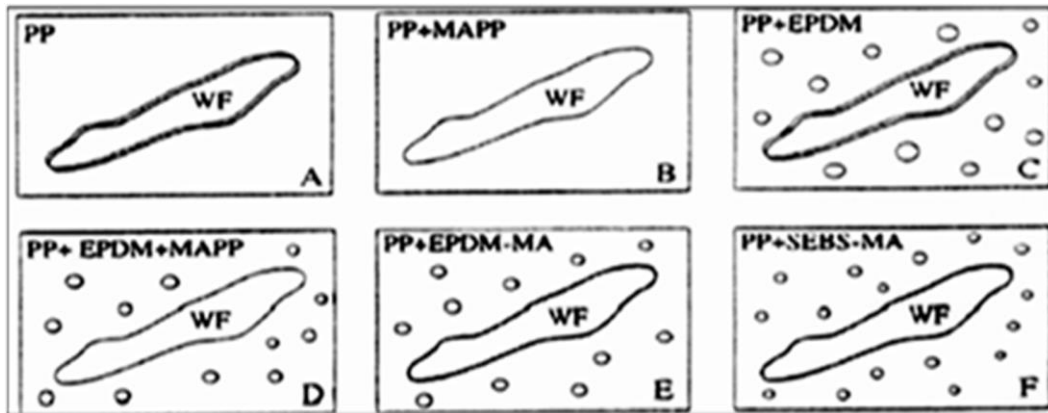
Dalvåg et al., (1985), ont utilisé dans leur recherche plusieurs types d'élastomères en tant qu'additifs, des fibres lignocellulosiques et deux matrices thermoplastiques différentes : polypropylène (PP) et polyéthylène de haute densité (PEHD). Les divers élastomères utilisés sont :

- Copolymère éthylène-acétate de vinyle (EVA),
- Polyéthylène chloré (CPE),
- Élastomère thermoplastique éthylène/propylène (TPO),
- Polyéthylène modifié avec un ionomère (Surlyn),
- Élastomère liquide de butadiène-acrylonitrile (NBR).

L'incorporation d'élastomère a amélioré la résistance à l'impact pour la totalité des mélanges préparés. Dans le même contexte, Dalvåg et al., (1985) ont identifié l'influence des élastomères cités ci-dessus en les insérant dans le PEHD chargé par 30% (en masse) de fibre de cellulose. Les résultats obtenus suite à cette étude facilitent le classement de ces élastomères. De même, ils ont trouvé des résultats relativement satisfaisants par l'incorporation du Surlyn et EVA. Malgré son efficacité pour l'amélioration de la ductilité et la ténacité, l'utilisation du NBR entraîne une diminution assez marquée au niveau des valeurs du module et de la résistance à la traction (Dalvåg et al., 1985). On peut mentionner Sain et al., (1993) pour leur recherche avec différents types d'élastomère, en tant qu'additifs. Ils ont examiné l'effet de la EVA (agents modifiants au choc) et du caoutchouc modifié par des radicaux bromobutyle (BIIR) sur des composites de polypropylène chargé par la farine de bois.

Oksman et ses collaborateurs ont choisi des élastomères constitués par des blocs de SBS styrène-butadiène styrène (Oksman et Lindberg 1995), styrène-éthylène-butadiène-styrène (SEBS) et un autre modifié avec l'anhydride maléique (SEBS-MA) (Oksman et Lindberg 1998) afin d'améliorer l'adhésion entre la fibre de bois et le polymère. La concentration du SBS utilisé a une grande influence sur le taux

d'amélioration de la ductilité, une concentration de 5% (en masse) ou plus permet d'avoir une augmentation de la résistance à la traction et de l'allongement à la rupture. Pour les composites modifiés par le SEBS-MA, les chercheurs ont montré que la quantité et la concentration de caoutchouc incorporé, la résistance au choc et l'élongation à la rupture sont proportionnelles. Plus qu'on augmente la teneur d'élastomère plus que la ductilité et la ténacité s'améliorent. Cette augmentation est reliée à une quantité d'additifs critique, à partir de laquelle il aura des effets indésirables. La résistance à la traction a eu une valeur optimale obtenue par l'incorporation d'une concentration égale à 4 %. Oksman et Clemons (1998) ont aussi analysé les effets des différents modificateurs d'impact sur les propriétés mécaniques des composites de polypropylène chargés par des fibres de bois, les agents modifiants au choc sont les suivants: éthylène/propylène/diène (EPDM), SEBS-MA et EPDM modifié à l'anhydride maléique (EPDM-MA). Le polypropylène modifié à l'anhydride maléique est ajouté comme un agent couplant afin d'améliorer l'adhésion entre les fibres et la matrice. Les microstructures trouvées sont présentées à la figure 1.17. Les schémas (a) et (c) montrent que l'adhésion entre la fibre et la matrice est faible. La figure (b) présente l'effet du MAPP sur la compatibilité du mélange et (d)-(f), expliquant l'interphase qui a eu lieu autour de la fibre. La totalité des modificateurs d'impact a amélioré la résistance à l'impact. Les résultats les plus pertinents correspondent aux mélanges chargés par les élastomères modifiés, ce genre d'additifs contribuent à la formation d'une interphase entre les fibres et la matrice qui peut diminuer la concentration des contraintes appliquée. Le MAPP n'a pas d'influence sur la résistance à l'impact, cependant il provoque une diminution d'allongement à la rupture. L'incorporation du MAPP avec les élastomères n'a pas apporté des modifications significatives sur la ductilité et la ténacité.

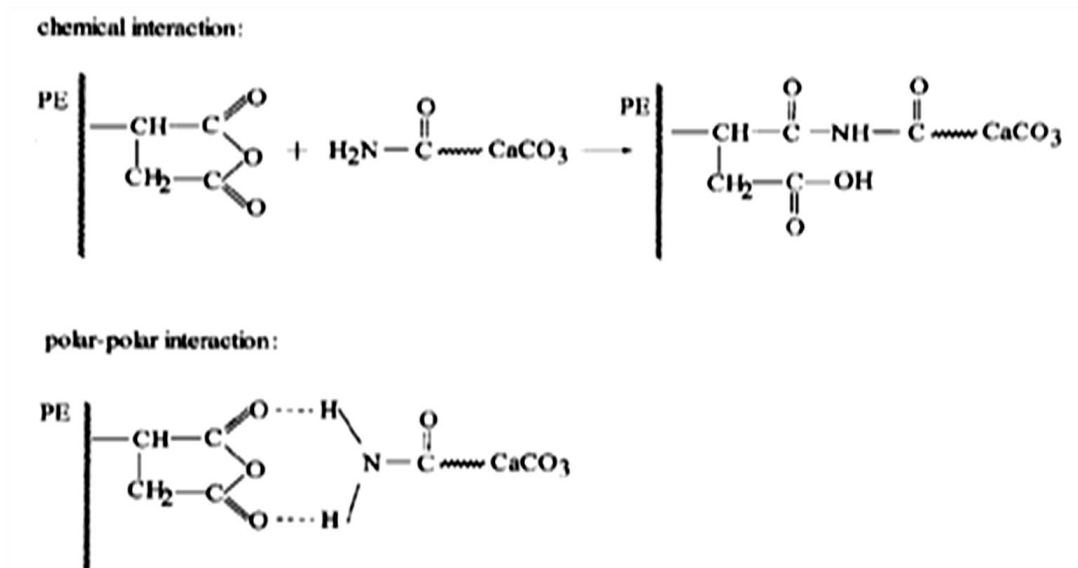


**Figure 1.12 : Différentes microstructures des composites de PP et fibres de bois (40%) avec modifiants au choc (10%) et agent couplant (2% de MAPP) (Oksman et Clemons 1998)**

#### 1.4.3.4 Les additifs inorganiques

Les propriétés inhérentes du polypropylène doivent encore être améliorées afin d'atteindre les niveaux de performance souhaités. Pour remédier à ce problème, il a été possible d'ajouter une autre catégorie de charge, celle de type inorganique, pour améliorer les propriétés physico-mécaniques. Le polypropylène renforcé par le talc est utilisé dans les applications d'automobiles en raison de sa rigidité et ses importantes performances à haute température. Plusieurs charges inorganiques sont ajoutées dans des mélanges contenant le polypropylène comme le carbonate de calcium ( $\text{CaCO}_3$ ), le mica et les fibres de verre.

Rahma et Fellahi (2000) ont analysé l'effet de l'ajout d'un pourcentage de carbonate de calcium sur les propriétés mécaniques du composite polypropylène/AA-g-PP. Le talc est un autre additif utilisé dans le domaine des composites. Plusieurs chercheurs ont essayé de l'incorporer dans les matrices thermoplastiques pour améliorer les propriétés physiques et mécaniques. Son caractère hydrophobe lui permet d'être le plus exploité surtout dans les composites bois-polymère et les panneaux de fibre.



**Figure 1.13 : Représentation schématique des différentes interactions interfaciales du PEHD/CPE/CaCO<sub>3</sub> (Wang et al., 1997)**

Leong et al., (2004) ont comparé les propriétés mécaniques et les interactions interfaciales du polypropylène chargé par différents additifs : le talc, le kaolin et le carbonate de calcium. Ils ont étudié l'effet de la variation du pourcentage de chaque additif sur l'allongement à la rupture du polypropylène. Dans les majorités des travaux, l'incorporation de ce renfort a entraîné des baisses significatives de l'allongement. Cela indique que l'addition de cette catégorie d'additif modifie le mode de la défaillance du PP, du comportement ductile au comportement fragile. La réduction de la déformabilité du PP peut être attribuée à un agent de charge étendu ou une agglomération, conduisant à une homogénéité insuffisante. Néanmoins, l'ajout d'une faible quantité de charges organiques augmente la résistance mécanique des composites et surtout la stabilité dimensionnelle.

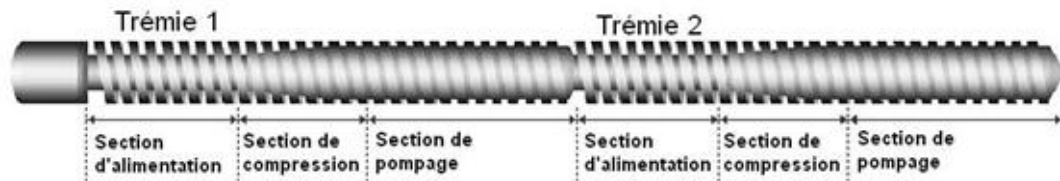
#### 1.4.4 Les techniques plasturgistes

Diverses techniques de production des composites bois-polymère, dont les fibres sont orientées d'une manière aléatoire, sont utilisées dans l'industrie de la plasturgie.

Il s'agit notamment de la méthode de pulvérisation, où la résine et les fibres sont pulvérisées sur le moule simultanément. La coulée centrifuge, où le polymère et les renforts sont déposés à l'intérieur d'un moule à cylindre qui tourne à une vitesse bien définie. L'extrusion et le moulage par injection : la fibre et le polymère sont fondus et mélangés puis écoulés à travers une filière d'extrusion pour donner la forme désirée.

#### **1.4.4.1 Extrusion**

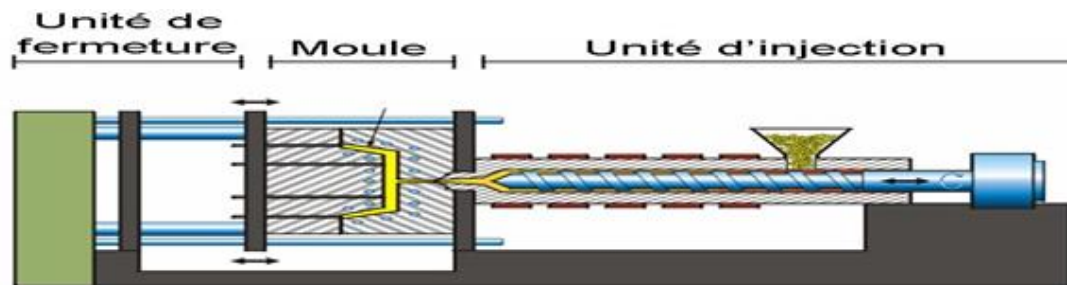
Le processus d'extrusion est le plus courant, il est similaire à la compression de la pâte dentifrice ou à la fabrication du spaghetti. La production par extrusion nécessite une grande pression afin de forcer la masse fondue à travers la matrice, car la viscosité a augmenté suite à l'addition des fibres. Une extrudeuse est constituée d'une ou deux vis d'Archimède tournant en continu à l'intérieur d'un fourreau chauffé par des résistances électriques. Dans le cas où le modèle de l'extrudeuse serait de type bi-vis, elle peut être co-rotative ou contrarotative, intercalées ou non, elle permet d'avoir un mélange uniforme. Ce genre d'extrudeuse est caractérisé par des vis entremêlées, le mouvement de rotation pousse le matériau vers l'avant avec un faible frottement. La température est contrôlée extérieurement (Todd 2000). Le profil des vis se divise en trois zones de géométries différentes : l'alimentation, la compression et le pompage. Chacune des zones assure une fonction bien déterminée. La zone d'alimentation permet la plastification du polymère. Ensuite, le mélange va être comprimé dans la deuxième où il subit un dégazage pour éliminer les bulles d'air et améliorer la qualité du matériau extrudé. Enfin, le composite est homogénéisé dans la zone de pompage. La filière représente la sortie de l'extrudeuse, c'est une pièce interchangeable dont la forme détermine celle de l'objet (Todd 2000).



**Figure 1.14 : Profil d'une vis d'une extrudeuse à double alimentation (Gosselin 2005)**

#### 1.4.4.2 Injection

Le moulage par injection est un procédé de transformation des polymères utilisé dans la fabrication des pièces en composites bois-polymère. Une grande pression doit être appliquée afin d'injecter un polymère à l'état fondu dans la cavité du moule. Un excès en masse fondue est ajouté pour remédier au problème de retrait pendant la solidification.



**Figure 1.15 : Schéma d'une presse à injection (Gosselin 2005)**

Le procédé du moulage par injection peut être employé pour fabriquer une grande variété de produits en plastiques avec une excellente tolérance. Concernant les composites renforcés, seules les fibres courtes orientées de manière aléatoire peuvent être utilisées dans ce processus, l'orientation des fibres dans le composite est déterminée par l'écoulement de la masse fondue lors du remplissage de la cavité du moule. L'incorporation de fibres courtes dans un polymère moulé par injection augmente la résistance, les modules d'élasticité et la résistance à la chaleur tout en diminuant la déformation (Gosselin 2005).

## CHAPITRE II

### MATÉRIELS ET MÉTHODES

#### 2.1 Originalité de la recherche

L'originalité de la recherche a porté sur l'influence des additifs élastiques comme les élastomères et le traitement des fibres par le glycérol sur le comportement ductile et tenace des composites. Ce travail se distingue également par l'utilisation des fibres krafts, la solution du glycérol pour plastifier les fibres et l'addition d'un modificateur d'impact SEBS-MA. Il est basé sur l'étude de la possibilité d'augmenter l'allongement à la rupture et la résistance au choc en même temps ainsi que le glissement entre le polypropylène et les fibres par la combinaison du traitement et l'addition d'un élastomère dans la même formulation.

#### 2.2 Objectifs

L'objectif général de ce projet est d'améliorer la ténacité et la ductilité des composites bois-polypropylène. Les objectifs spécifiques sont divisés en quatre parties.

- Le premier objectif est d'établir une analyse comparative sur les comportements ductile et tenace des composites selon le type de fibre utilisée, fibre kraft et fibre bouleau blanc;
- Le deuxième objectif est d'élucider les facteurs qui régissent les comportements ductile et tenace des composites et étudier l'effet des élastomères sur la ductilité et la ténacité;
- Le troisième est l'étude des propriétés thermiques, morphologiques et la stabilité dimensionnelle des composites après le traitement des fibres par glycérol;

- La dernière partie est concentrée sur l'effet du traitement des fibres par le glycérol et l'ajout d'une quantité en élastomère au même mélange sur la ductilité et la ténacité;

### **2.3 Hypothèse de recherche**

Dans le cadre de cette étude, les différents types de fibres incorporées seront représentés par les variations des propriétés chimiques et morphologiques ainsi que de leurs essences. En effet, l'ensemble des hypothèses suivantes ont été adoptées :

- L'incorporation d'une quantité du SEBS-MA dans le PP améliore la ténacité et entraîne des allongements à la rupture plus importants;
- Les mélanges à base de la farine plastifiée par le glycérol présentent un allongement à la rupture plus important et une meilleure résistance aux chocs;
- La ductilité et la ténacité des CBP extrudés se différencient suivant la nature et la morphologie des fibres utilisées.
- Le traitement des fibres par une solution plastifiante et l'incorporation d'une quantité d'élastomère permet plus d'allongement et de déformation. L'application de ces différentes approches peut conduire à des mélanges plus ductiles et plus tenaces.

### **2.4 Méthodologie**

Ce projet de recherche s'inscrit dans un cadre scientifique expérimental. Différents mélanges sont préparés et caractérisés par des tests mécaniques, physiques, FTIR, thermiques et morphologiques. Selon les résultats obtenus, il a été possible de recourir à la modélisation pour présenter les modèles trouvés à la fin de chaque expérience. Afin d'atteindre les objectifs du projet, les tâches de démarche ont été divisées en deux voies différentes, l'une est basée sur la préparation des mélanges nécessaires et l'autre est concentrée sur la caractérisation et l'étude des différentes performances.

Le schéma ci-dessous (figure 2.1) présente les différentes étapes ainsi que le protocole scientifique admis afin d'élaborer et caractériser les composites bois-polypropylène étudiés.

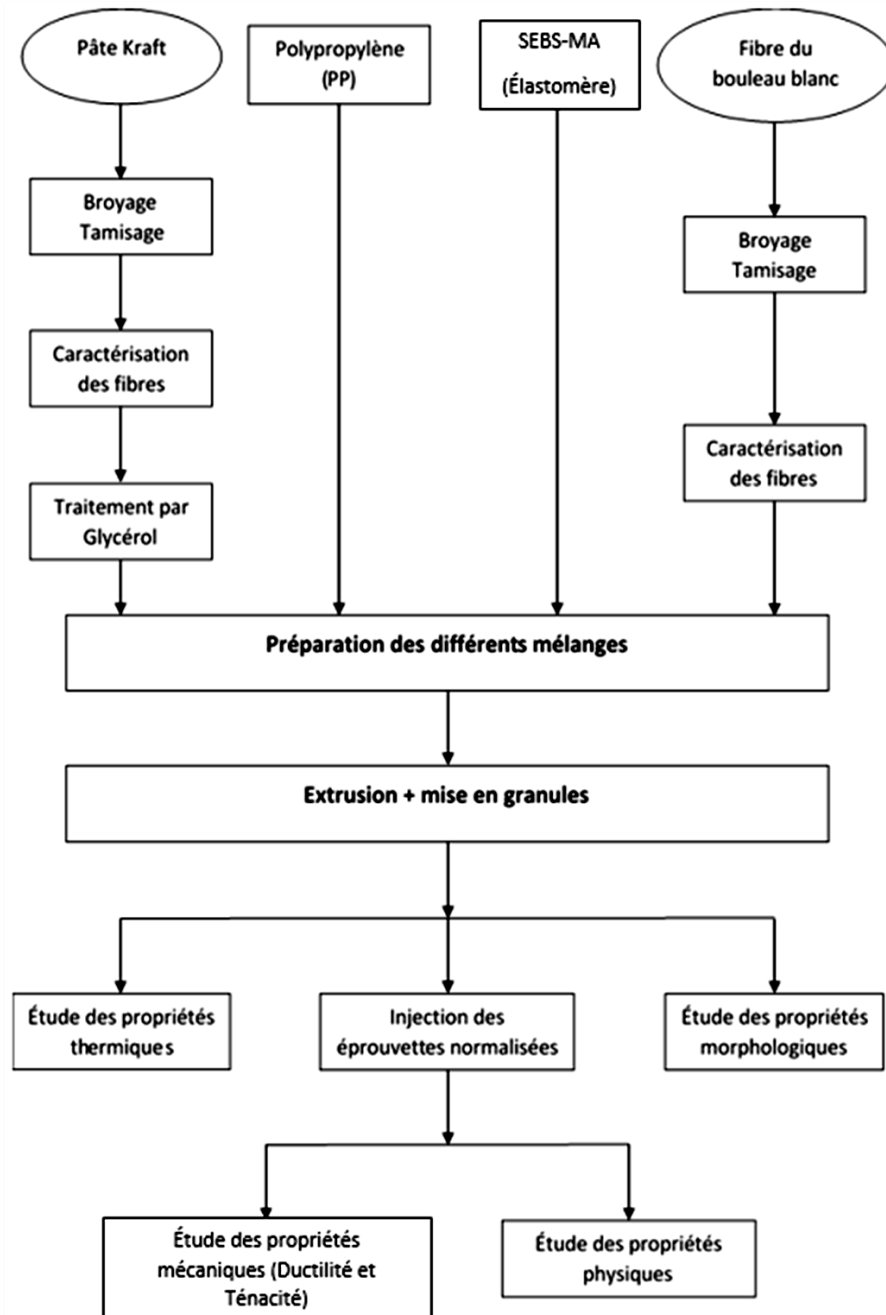
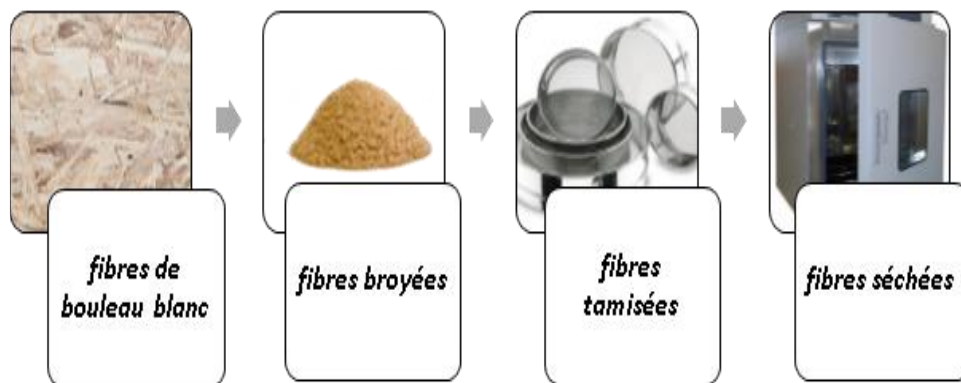


Figure 2.1 : Protocole méthodologique adopté

## 2.5 Matériel

### 2.5.1 Préparation des fibres

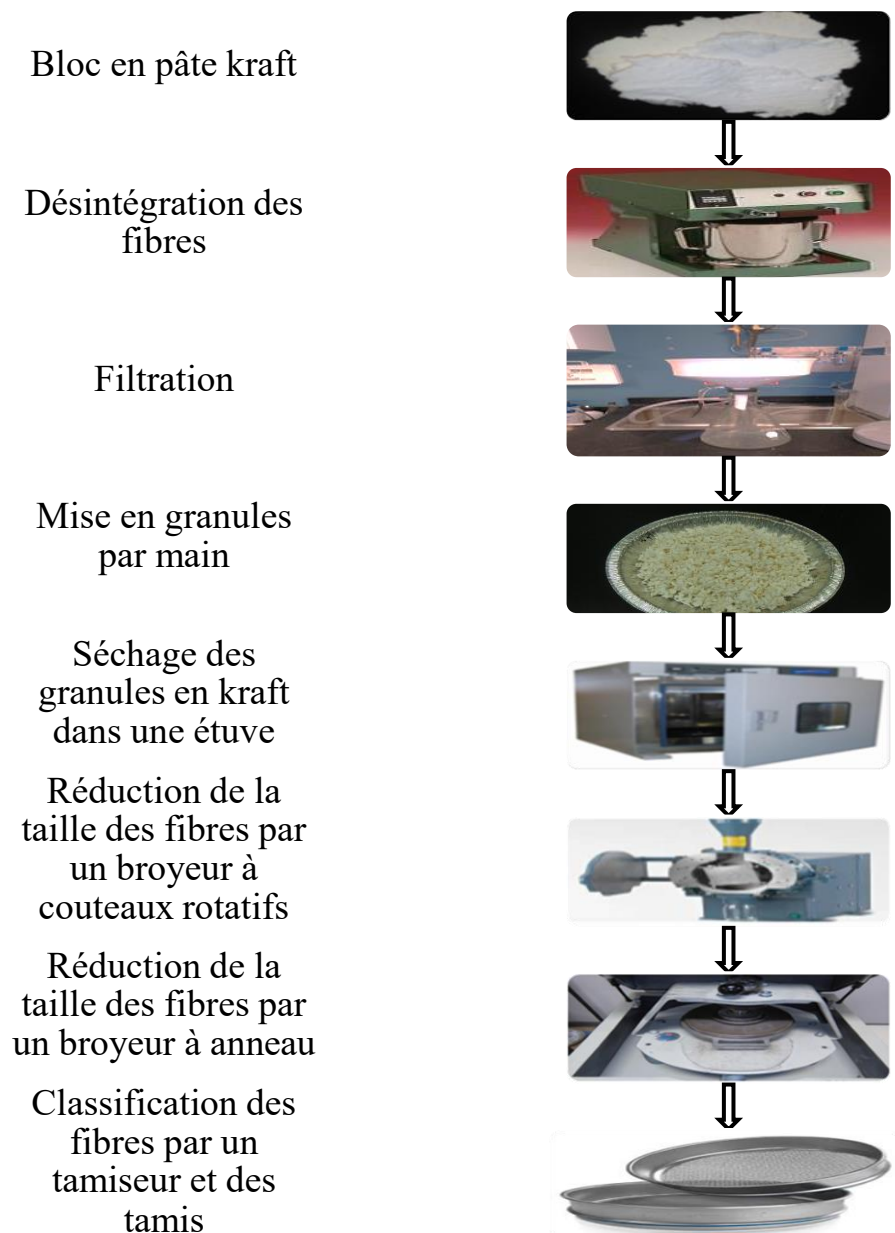
Les fibres incorporées dans la matrice polypropylène sont des fibres bouleau blanc et des fibres kraft. Les fibres de bouleau sont fournies sous forme des copeaux de tailles différentes. Elles ont été broyées selon deux étapes, en utilisant un broyeur de grande puissance pour réduire la taille et par suite elles sont ramenées à une classe de longueur désirée par la réduction mécanique dans un petit broyeur à couteaux rotatifs de marque Thomas Willey modèle 4.



**Figure 2.2 : Préparation des fibres de bouleau blanc**

Les fibres de pâte kraft sont fournies sous forme des blocs durs. Celles-ci proviennent du groupe NBSK (usine Saint-Félicien), elles sont désintégrées, filtrées et mises sous forme des petits granules. Les granules en fibre kraft sont placées dans l'étuve afin de réduire la teneur en humidité et faciliter l'opération de broyage. La réduction de la taille se fait selon deux stades, en utilisant des broyeurs de différentes catégories, le broyeur à couteaux rotatifs (Thomas Willey, modèle 4) et le broyeur à anneau. Les fibres ainsi broyées sont tamisées dans un tamiseur vibrant de laboratoire (M.S.Tyler) de marque RO-TAP modèle RX-29 selon la norme ISO 3310 pour garantir l'uniformité de leurs tailles. Cette étape consiste à déposer une quantité de 100 g dans un tamis pour garder seulement les fibres les plus fines qui ont

une granulométrie inférieure ou égale à 106  $\mu\text{m}$ . La farine obtenue est placée dans l'étuve une autre fois pour contrôler la teneur en humidité durant 24h et enfin gardée dans des sacs plastiques pour préparer les mélanges nécessaires.



**Figure 2.3 : Processus de préparation des fibres kraft (Laboratoire Biomatérial UQAT & CTRI)**

### 2.5.2 Caractérisation des propriétés des fibres

Les propriétés morphologiques des différentes fibres sont déterminées par l'analyseur optique de la qualité de fibre Kajaani FS300<sup>TM</sup> de la Metso. La caractérisation anatomique des fibres est assurée par le traitement des images prises pendant l'analyse. Les essais sont faits selon la norme TAPPI271, ils sont basés sur la dilution d'une faible quantité de fibres, de l'ordre de quelques grammes, dans l'eau distillée et les analysées en prenant des images par la veine de la cellule de mesure. Cet appareil mesure la longueur, l'ondulation et la masse linéique des fibres (Li et al., 2011).



**Figure 2.4 : Analyseur des fibres Metso FS300<sup>TM</sup> du laboratoire de biomatériaux de l'UQAT**

L'analyseur de la qualité de fibre permet de calculer la moyenne arithmétique de la longueur, c'est-à-dire le contour de la ligne centrale (Robertson et al., 1999). La longueur arithmétique peut être exprimée selon la moyenne arithmétique  $L_n$  par l'équation 2.1:

$$L_n = \frac{\sum_{k=1}^N n_k * L_k}{\sum_{k=1}^N n_k} \quad (2.1)$$

**Avec:**

$L_n$  : Longueur moyenne en nombre (mm) ;

$n_k$  : Nombre de fibre dans la classe k ;

$L_k$  : Longueur moyenne de la classe k (mm).

**Tableau 2.1 : Longueur ( $L_n$ ), diamètre ( $D_n$ ) et ratio  $L_n/D_n$  pour les différentes fibres**

Taille de fibre	$L_n$ (mm)	$D_n$ ( $\mu\text{m}$ )	$L_n/D_n$
Farine de pâte kraft (<106 $\mu\text{m}$ )	0,26	37,65	6,9
Farine de Bouleau blanc (<106 $\mu\text{m}$ )	0,28	41,91	6,68

### 2.5.3 Caractéristiques du polypropylène

Le thermoplastique sélectionné dans cette recherche est le PP dont le nom commercial est PLR0005A. C'est un homopolymère produit sous forme de granules dont les caractéristiques sont illustrées ci-dessous :

**Tableau 2.2 : Les caractéristiques du PP fournies par le fabricant.**

Caractéristique	valeur	Unité
Masse volumique	0,903	$\text{g/cm}^3$
Indice de fluidité (230°C/2,16 kg)	20	$\text{g/10min}$
Point de fusion	165	°C
Module d'élasticité en flexion	215000	psi
Résistance à l'impact	0,5	$\text{ft.lb/in}^2$

### 2.5.4 Agent de couplage

Afin d'améliorer l'adhésion entre le polymère hydrophobe et les fibres hydrophiles, un pourcentage du polypropylène modifié à l'anhydride maléique (MAPP) a été incorporé. Il est fourni en poudre de couleur blanche sous le nom commercial Fusabond AT 2305A par la compagnie Dupont. Il est utilisé à la fois comme un lubrifiant et un agent de couplage pour avoir un bon état de surface et une meilleure interaction entre les fibres de bois et le PP. Le tableau 2.3 présente les caractéristiques du MAPP utilisé.

**Tableau 2.3 : Les caractéristiques du MAPP fournies par le fabricant.**

Caractéristique	valeur	Unité
Masse volumique	0,903	g/cm <sup>3</sup>
Indice de fluidité (190°C/1 kg)	49	g/10min
Point de fusion	162	°C

### 2.5.5 Additifs

L'élastomère utilisé dans cette étude est le styrène-éthylène/ butylène-styrène modifié à l'anhydride maléique (SEBS-MA), c'est un copolymère tri blocs linéaires à base de styrène, d'éthylène et du butadiène avec une teneur en polystyrène de 13%. Il est fourni en Amérique du Nord par l'entreprise Kraton sous le nom commercial FG1924G. Ce genre d'élastomère est utilisé comme un modificateur d'impact des thermoplastiques et des composites de différents types de renforts. Il peut également être utilisé comme ingrédient dans la formulation d'adhésifs, de produits d'étanchéité et de revêtements.

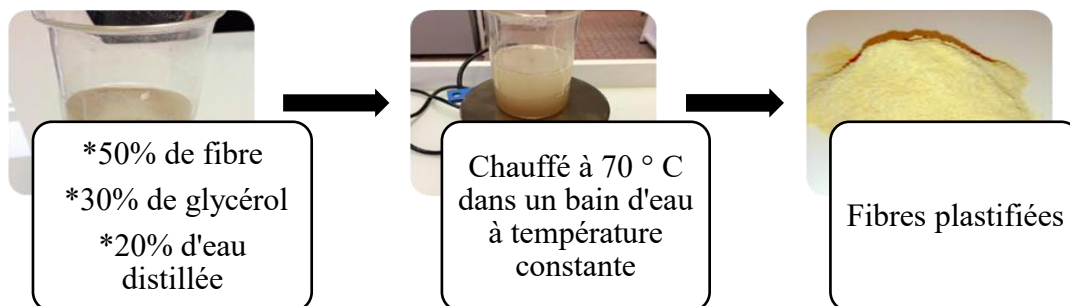
**Tableau 2.4 : Les caractéristiques du SEBS-MA fournies par le fabricant.**

Caractéristique	valeur	Unité
Ratio styrène/caoutchouc	43/87	-
Masse volumique	0,9	g/cm <sup>3</sup>
Indice de fluidité (230°C/5 kg)	40	g/10min
Dureté	49	Shore A (10sec)
Résistance à la traction	120	MPa
Allongement à la rupture	750	%

## 2.6 Méthode

### 2.6.1 Traitement des fibres de kraft

La farine de kraft plastifiée (FKP) est préparée en mélangeant 50% de FK avec 30% de glycérol et 20% d'eau distillée puis chauffée dans un bain d'eau à une température de 70°C durant 60 minutes. La FKP résultante est séchée dans une étuve puis stockée dans des sacs en polyéthylène.



**Figure 2.5 : Traitement de la farine de kraft**

## 2.6.2 Préparation de la matrice

Le PP et le SEBS-MA sont deux types de polymères à différentes caractéristiques, ils n'ont pas ni les mêmes densités ni les mêmes indices de fluidité, leurs additions et mises en mélange restent difficiles. Plusieurs chercheurs ont créé des nouvelles techniques pour améliorer la dispersion du SEBS-MA dans le PP telles que les extrudeuses à double alimentation et la création des vis de différents profils (Clemos 2010, Kelidi et al., 2012). Pour améliorer la dispersion du SEBS-MA dans la matrice, il a été décidé de réduire la taille du polypropylène. Le broyeur Retsch a été utilisé pour obtenir la farine de polypropylène. Après la préparation des mélanges constitués seulement de PP et élastomère selon les pourcentages étudiés, les mélanges résultants ont été passés trois fois successives dans l'extrudeuse pour avoir une bonne homogénéisation.

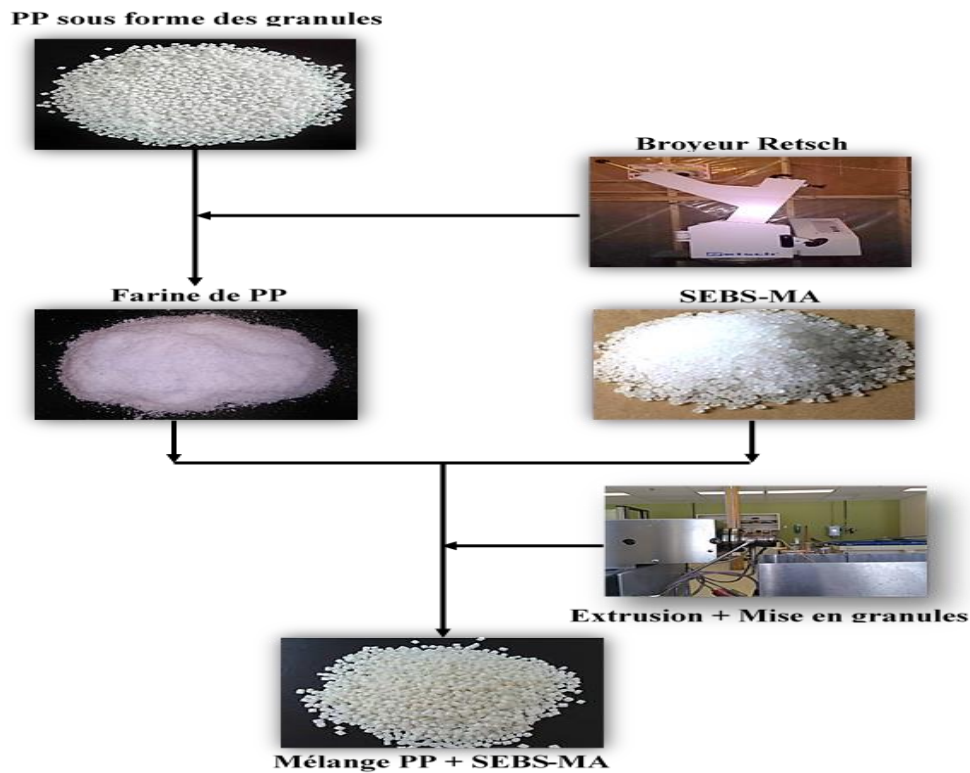
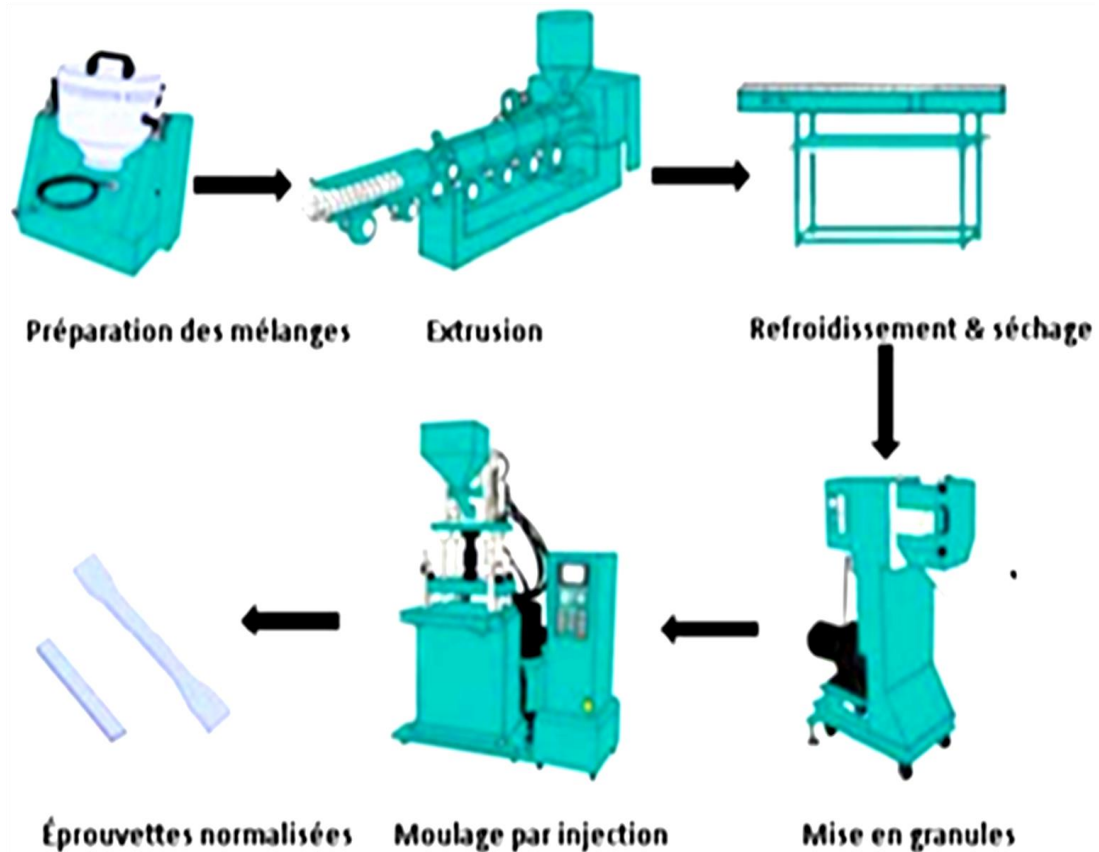


Figure 2.6 : Préparation des granules en PP & SEBS-MA

### 2.6.3 Techniques de mise en forme des composites

La technique de mise en forme des composites bois-polymère adoptée dans ce projet est basé sur la préparation des mélanges, l'extrusion, mises en granule et enfin l'injection.



**Figure 2.7 : Processus d'élaboration des éprouvettes en bois-polymère (Wu et al., 2016)**

Le tableau 2.5 présente la composition de tous les mélanges étudiés. Afin d'obtenir les éprouvettes normalisées, il a fallu au début élaborer les formulations sous forme des petits granules. Pour cela, l'extrusion par une extrudeuse bisvis (HAAKE Rheomex OS) et la mise en granules par un broyeur à couteaux rotatifs ont été utilisées.

**Tableau 2.5 : Composition des matériaux produits.**

Code de composite	Composition du matériau (% massique)					
	Matrice PP	Fibre bouleau blanc	Fibre kraft	Fibre kraft traitée	MAPP	SEBS-MA
TS1	100	0	0	0	0	0
TS2	90	0	0	0	0	10
TS3	80	0	0	0	0	20
CFBOP01	67	30	0	0	3	0
CFBOP02	57	40	0	0	3	0
CFBOP03	47	50	0	0	3	0
CFKNT01	67	0	30	0	3	0
CFKNT02	57	0	40	0	3	0
CFKNT03	47	0	50	0	3	0
CFKTP01	67	0	0	30	3	0
CFKTP02	57	0	0	40	3	0
CFKTP03	47	0	0	50	3	0
CFKNTEP11	57	0	30	0	3	10
CFKNTEP12	47	0	40	0	3	10
CFKNTEP13	37	0	50	0	3	10
CFKNTEP21	47	0	30	0	3	20
CFKNTEP22	37	0	40	0	3	20
CFKNTEP23	27	0	50	0	3	20
CFKTEP31	47	0	0	30	3	20
CKFTEP32	37	0	0	40	3	20
CKFTEP33	27	0	0	50	3	20

Dans le but de réussir l'opération d'extrusion, le profil de la température des différentes zones des vis de l'extrudeuse a été choisi après l'étude de la dégradation des matières utilisées par la thermogravimétrie. Le choix de température minimise la dégradation thermique de la fibre de bois et garantir une fluidité au mélange.

**Tableau 2.6 : Profil de température dans l'extrudeuse.**

Zone	1	2	3	4
Température (°C)	170	175	180	190

À la sortie de l'extrudeuse, l'extrudât, visqueux, traverse une filière cylindrique qui lui attribue sa forme finale dans un bain qui le refroidisse par la circulation d'eau froide et un autre par l'air en pression. Ensuite, la granulation a été réalisée avec un broyeur à disque rotatif (figure 2. 9).



**Figure 2.8 : Produit de l'extrudeuse bis vis**



**Figure 2.9 : Mise en granule**

**Tableau 2.7 : Condition de mise en granules.**

<b>Code de composite</b>	<b>Vitesse (rpm)</b>	<b>Débit (kg/h)</b>	<b>Couple maximal (Nm)</b>	<b>Tfusion (°C)</b>
<b>CFBOP01</b>	50	1,85	2,8	187,5
<b>CFBOP02</b>	60	1,8	3	187
<b>CFBOP03</b>	100	1,7	3,3	187
<b>CFKNT01</b>	92	3,72	2,49	180,2
<b>CFKNT02</b>	98	3,96	3,2	179,3
<b>CFKNT03</b>	62	5,88	4,25	180,1
<b>CFKTP01</b>	68	4,32	3,785	181,8
<b>CFKTP02</b>	72	3,12	3,93	181,1
<b>CFKTP03</b>	100	3,48	4,42	178,1
<b>CFKNTEP11</b>	78	4,44	2,2	171,6
<b>CFKNTEP12</b>	78	4,32	3,1	175,2
<b>CFKNTEP13</b>	78	3,8	3,6	177,7
<b>CFKNTEP21</b>	78	3,72	2,1	175,3
<b>CFKNTEP22</b>	78	3,78	2,5	176,8
<b>CFKNTEP23</b>	78	4,02	3,79	177,7
<b>CFKTEP31</b>	100	3,02	2,43	181,3
<b>CFKTEP32</b>	100	3,48	3,54	179,2
<b>CFKTEP33</b>	100	3,12	4,32	175,2

Après l'opération de mise en granules, les mélanges ont été gardés dans un réfrigérateur de conditionnement 48 heures à une température de  $23^{\circ}\text{C} \pm 2^{\circ}\text{C}$  et une humidité de  $50\% \pm 5\%$  avant la phase d'injection. La presse à injection utilisée est fournie par la compagnie Ningbo Haitian Huayuan Machinery Co Ltd en Chine et du modèle MA600 II. Les caractéristiques sont illustrées au-dessous dans le tableau 2.8 :

**Tableau 2.8 : Propriétés de la presse d'injection.**

<b>Paramètre</b>	<b>Unité</b>	<b>Valeur</b>
<b>Diamètre de vis</b>	mm	24
<b>Volume d'injection calculé</b>	$\text{cm}^3$	50
<b>Capacité d'injection</b>	g	46
<b>Taux de vitesse d'injection</b>	g/s	57
<b>Capacité de plastification</b>	g/s	6
<b>Pression d'injection maximale</b>	MPa	243
<b>Vitesse des vis</b>	r/min	179
<b>Puissance de chauffage à l'entrée</b>	kW	0-3000
<b>Force de serrage</b>	kN	4,7
<b>Puissance du moteur de la pompe</b>	kW	600
		11

Les granules constitués de PP et de fibre de bois ont été mélangés dans la presse selon un profil de température présenté dans le tableau 2.9 :

**Tableau 2.9 : Profil de température des différentes zones de la presse.**

<b>Zone</b>	<b>Buse</b>	<b>C (avant)</b>	<b>C (milieu)</b>	<b>Arrière</b>
<b>Température (°C)</b>	160	170	170	170

Les échantillons injectés sont des éprouvettes normalisées dont les formes se diffèrent selon le type d'essais. Les paramètres d'injection varient suivant la composition des granules, ils sont présentés par le tableau 2.10.

**Tableau 2.10 : Paramètre d'injection**

	<b>Temps d'injection (s)</b>	<b>Temps de maintien (s)</b>	<b>Vitesse d'injection (tr/min)</b>	<b>Pression d'injection (bar)</b>
CFBOP01	11	10	171	50
CFBOP02	11	10	172	52
CFBOP03	11	10	175	55
CFKNTP01	15	9	172	48
CFKNTP02	16	10	172,5	49
CFKNTP03	17	13	172,5	51
CFKTP01	14	8	173,5	72
CFKTP02	16	11	173,5	79
CFKTP03	15	14	174	64
CFKNTEP11	10	9	171,5	49
CFKNTEP12	14	10	171,5	54
CFKNTEP13	11	12	172,5	52
CFKNTEP21	11	11	172,4	61
CFKNTEP22	15	11	172,4	75
CFKNTEP23	16	13	171,4	81
CFKTEP31	15	11	171,4	59
CFKTEP32	15	11	170,8	67
CFKTEP33	15	13	171,4	57

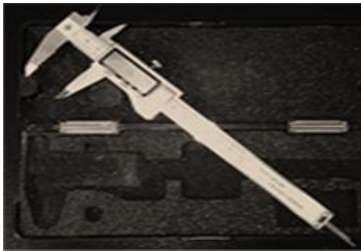
### 2.6.4 Caractérisation des composites bois-polymère élaborés

Les éprouvettes sont gardées dans des sacs étanches et mis dans le laboratoire à environnement contrôlé, à une température de  $23^{\circ}\text{C} \pm 2^{\circ}\text{C}$  et une humidité de  $50\% \pm 5\%$  durant deux semaines. Pour étudier le comportement mécanique telles que la ténacité et la ductilité, 3 types d'essais ont été sélectionnés : la traction, la résistance à l'impact et la flexion. Le comportement physiques et évalué par la stabilité dimensionnelle, les essais d'immersion dans l'eau distillée sont réalisés selon les normes ASTM en vigueur. Le tableau 2.11 présente les différentes normes utilisées. La stabilité thermique des composites est mesurée par des essais de thermogravimétrie (TGA) et calorimétrie différentielle à balayage (DSC).

**Tableau 2.11 : Normes utilisées pour la caractérisation des composites bois-polymère.**

<b>Essai ou mesure</b>	<b>Norme</b>	<b>Domaine d'application</b>
<b>Immersion dans l'eau</b>	ASTM D 570	Matériaux à base de bois
<b>Flexion trois-points</b>	ASTM D 790	Plastiques-plastiques renforcés
<b>Impact Izod</b>	ASTM D 256	Plastiques-plastiques renforcés
<b>Traction simple</b>	ASTM D 638	Plastiques-plastiques renforcés
<b>Calorimétrie différentielle à balayage (DSC)</b>	ASTM D 3417	Plastiques
<b>Thermogravimétrie (TGA)</b>	ASTM E 113198	Plastiques-plastiques renforcés

Les tests de caractérisations ont été réalisés dans des conditions ambiantes de 30% d'humidité relative et une température de 20°C. Les mesures de dimensions des éprouvettes sont faites par un pied à coulisse et un micromètre, dont la résolution est de l'ordre de  $\pm 0,005$  mm, et les masses en utilisant une balance de haute précision, environ  $\pm 0,005$  g. Les figures 2.10, 2.11 et 2.12 présentent les matériels utilisés dans le laboratoire de biomatériaux de l'UQAT.



**Figure 2.10 : Pied à coulisse**



**Figure 2.11 : Micromètre**



**Figure 2.12 : Balance électronique**

#### 2.6.4.1 Étude des propriétés physiques

##### 2.6.4.1.1 Masse volumique

Chacun des matériaux est caractérisé par sa propre valeur de masse volumique, c'est une grandeur physique intrinsèque qui présente une quantité de masse par unité de volume. Concernant les composites, la détermination de la masse volumique se fait en se basant sur l'équation suivante:

$$\rho_c = \omega_r \cdot \rho_r + (1 - \omega_r) \cdot \rho_m \quad (2.2)$$

*Avec*

$\rho_r$  : Masse volumique du renfort;

$\omega_r$  : Le taux massique de renfort;

$\rho_m$  : La masse volumique de la matrice.

Pour les composites bois-polymère, la relation entre la masse volumique et la masse ajoutée sous l'effet d'humidité doit être prise en considération. La formule est définie

par le rapport entre la masse du matériau, quels que soient l'état anhydre ou humide, et leur volume aux mêmes conditions.

$$\rho_i = \frac{m_i}{v_i} \quad (2.3)$$

*Avec*

$\rho$  : Masse volumique de l'échantillon à l'état i;

$m_i$  : Masse de l'échantillon à l'état i;

$v_i$  : Volume de l'échantillon à l'état i.

#### 2.6.4.1.2 Densité

La densité est une propriété intrinsèque définie comme étant le rapport de la masse volumique du matériau sur la masse volumique de l'eau. La méthode destinée pour calculer la densité des composites bois polymère :

- La densité anhydre ( $\rho_o$ ) :

$$\rho_i = \frac{\frac{m_o}{v_o}}{\rho_e} \quad (2.4)$$

- La densité basale ( $\rho_b$ ) :

$$\rho_b = \frac{\frac{m_o}{v_s}}{\rho_e} \quad (2.5)$$

- La densité humide ( $\rho_h$ ) :

$$\rho_h = \frac{\frac{m_o}{v_h}}{\rho_e} \quad (2.6)$$

- La densité apparente ( $\rho_a$ ) :

$$\rho_a = \frac{\frac{M}{V}}{\rho_e} \quad (2.7)$$

**Avec**

$\rho_e$  : Masse volumique de l'eau ( $1\text{g/cm}^3$ ) à  $4^\circ\text{C}$ ;

$m_o$  : masse du composite à l'état anhydre;

$v_o$  : volume du composite à l'état anhydre;

$v_h$  : volume du composite à l'état saturé en eau;

$v_s$  : volume du composite à l'état humide;

$M$  : la masse d'une quantité de granules;

$V$  : le volume occupé par une quantité de granules.

**2.6.4.1.3 Teneur en humidité**

La teneur en humidité (H%) désigne la quantité d'eau absorbée par la matière suite aux changements des conditions enivrantes. La teneur en humidité correspond à la masse de l'eau absorbée par rapport à sa masse anhydre. Cette propriété est exprimée par:

$$H\% = \frac{M_{\text{eau}}}{M_o} * 100 = \frac{M_h - M_o}{M_o} * 100 \quad (2.8)$$

**Avec**

H(%) : Teneur en humidité;

$M_{\text{eau}}$  : Masse de l'eau absorbée;

$M_o$  : Masse du composite à la base anhydre;

$M_h$  : Masse du composite à l'état humide.

**2.6.4.1.4 Absorption d'eau**

L'absorption d'eau à une teneur en humidité est présentée par l'équation suivante:

$$A\% = \frac{M_{\text{eau}}}{M_i} * 100 = \frac{M_h - M_i}{M_i} * 100 \quad (2.9)$$

**Avec**

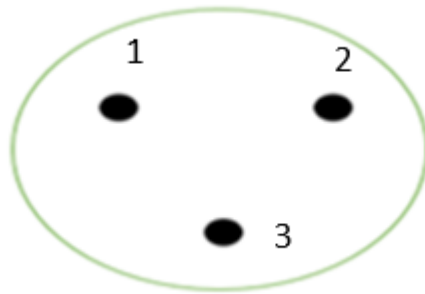
$A\%$  : Taux d'Absorption;

$M_{\text{eau}}$  : Masse de l'eau absorbée;

$M_i$  : Masse du composite à l'état initial;

$M_h$  : Masse du composite à l'état humide;

Le test consiste à submerger les échantillons dans l'eau distillée à 20°C et prendre les nouvelles mesures de masse et de dimension à la fin de chaque période de temps. La norme ASTM D 570 a présenté deux procédures pour fixer les durées des cycles d'immersion. Avant de débiter, il a été nécessaire de conditionner les éprouvettes pour garantir la précision de l'essai.

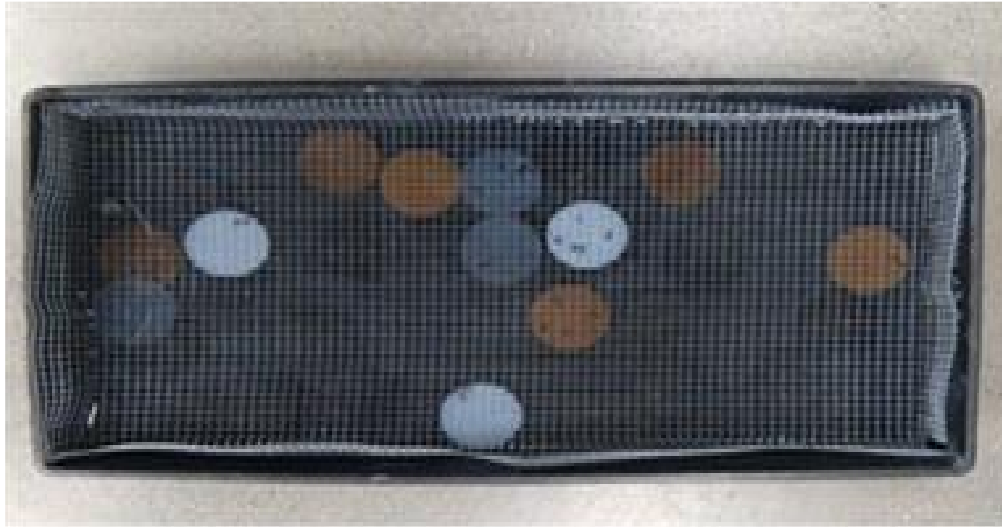


**Figure 2.13 : Mesure du gonflement**

L'épaisseur est mesurée à 3 points différents (numérotés de 1 à 3). À partir des mesures obtenues, les propriétés ci-dessous ont été étudiées.

- La teneur en humidité;
- Le gonflement volumique;
- L'absorption d'eau.

Le test a été réalisé dans un récipient rempli d'eau distillée muni d'une grille sur laquelle on a disposé les échantillons (figure 2. 14).



**Figure 2.14 : Test d'immersion dans l'eau**

#### **2.6.4.2 Étude des propriétés mécaniques**

Dans ce projet, les performances mécaniques sont quantifiées par diverses catégories de tests, telles que la flexion, l'impact et la traction afin d'évaluer la fiabilité des composites élaborés.

##### *2.6.4.2.1 Essais de traction*

L'essai de traction est un essai essentiel pour étudier les propriétés mécaniques des composites bois-polymère. Il consiste à appliquer une déformation à vitesse constante sur une éprouvette normalisée. Ce genre d'essai permet d'identifier la loi de comportement contrainte-déformation dans une direction choisie. Les tests de traction sont effectués par un appareil d'essai universel Zwick/Roell Z020 de capacité 20 kN selon la norme ASTM D638 dont la vitesse est maintenue constante à 1 mm/min. En d'autres termes, le but d'un essai de traction est de déterminer la variation du module d'Young ( $E$ ), la résistance à la traction ( $R_m$ ), la contrainte à la rupture ( $\sigma_r$ ) et la déformation à la rupture ( $\epsilon_r$ ). Elles sont évaluées à partir des courbes contrainte-déformation (Hodgkinson 2000).

- **Module d'Young:** Nommé aussi module de traction ou module d'élasticité. Trois options sont disponibles lors du calcul du module élastique à partir d'une courbe. La première est de prendre le module comme étant la pente de la tangente à la partie initiale de la courbe. La seconde est de construire une tangente à un niveau d'une déformation spécifié et la troisième est de sélectionner une sécante entre deux points donnés. Il désigne un critère de rigidité, les matériaux ayant des modules plus importants sont plus rigides (Hodgkinson 2000).

$$E = \frac{\sigma}{\varepsilon} \quad (2.10)$$

*Avec*

E : Module d'Young (MPa);

$\sigma$  : Contrainte (N/mm<sup>2</sup>);

$\varepsilon$  : Déformation.

- **Contrainte à la rupture:** Cette propriété est mesurée par le rapport entre la force qui a causé la rupture et la surface réelle de l'éprouvette à l'instant de défaillance. Elle présente l'intensité avec laquelle les réseaux atomiques du composite sont écartés ou comprimés les uns aux autres (Jacquot 2010).

$$\sigma_r = \frac{F}{S} \quad (2.11)$$

*Avec*

$\sigma_r$  : Contrainte à la rupture (MPa);

F : Force de traction lors de la rupture (N);

S : Section initiale (mm<sup>2</sup>).

- **Allongement à la rupture:** C'est une propriété intrinsèque du matériau, déterminée par un essai de traction. Elle correspond à la variation de la longueur entre deux repères calibrée sur l'éprouvette divisée par la longueur initiale de l'éprouvette. C'est une caractéristique sans dimension indiquée en pourcentage (Jacquot 2010).

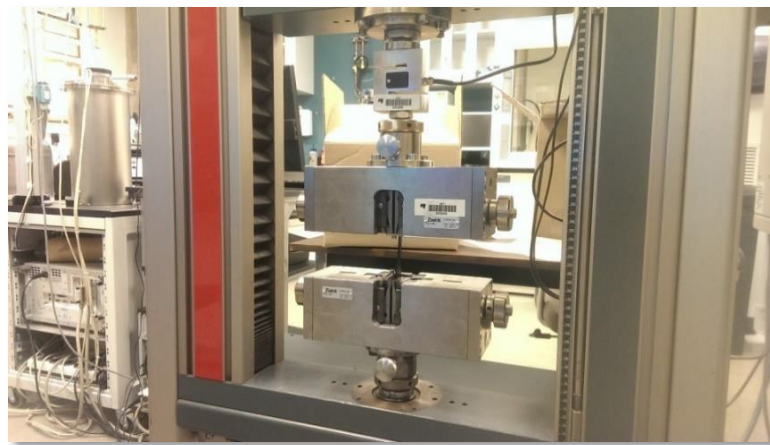
$$\varepsilon_r = \frac{\Delta l}{l_0} * 100 \quad (2.12)$$

*Avec*

$\Delta l = l - l_0$  : Allongement à la rupture (mm);

$l_0$  : Longueur initiale de l'éprouvette (mm);

$l$  : Longueur finale de l'éprouvette (mm).



**Figure 2.15 : Dispositif de traction du laboratoire de biomatériau de l'UQAT**

#### 2.6.4.2.2 Essais de flexion 3 points

Les propriétés mécaniques des composites élaborés sont envisagées par un essai de flexion. Il est basé sur la soumission d'une éprouvette normalisée, disposée sur deux appuis simples, à une force verticale. La charge appliquée au cours d'une caractérisation par flexion entraîne une combinaison des différentes contraintes élémentaires comme la compression, la traction et le cisaillement. Les tests de flexion sont réalisés selon la norme ASTM D790 sur une machine de type Zwick/Roelle (Z20). Les éprouvettes sont rectangulaires de dimensions 126 mm \* 12 mm et d'épaisseur 3,2 mm. La vitesse sélectionnée est constante et égale à 2 mm/min. L'espacement entre les appuis est de l'ordre de 80 mm comme il est indiqué dans la norme.



**Figure 2.16 : Test de flexion à 3 points au sein du laboratoire de biomatériau de l'UQAT**

Les grandeurs essentielles à mesurer par les tests de flexion sont le module d'élasticité (MOE) et le module à la rupture en flexion (MOR). Le module d'élasticité correspond au rapport entre une contrainte ( $\sigma$ ) appliquée au niveau de la zone élastique et la déformation correspondante ( $\gamma$ ). La formule est donnée par l'équation (2.13):

$$\text{MOE} = \frac{\sigma}{\gamma} \quad (2.13)$$

*Avec*

$\sigma$  : Charge ou contrainte (MPa);

$\gamma$  : Déformation.

#### 2.6.4.2.3 Essai d'impact

Les éprouvettes utilisées au cours de l'étude de la résistance à l'impact sont entaillées de dimensions 64 mm \* 12 mm et d'épaisseur 3,2 mm. Les tests sont exécutés selon

la méthode Charpy avec entaille, en se basant sur les exigences de la norme ASTM D256. La machine utilisée est de type Zwick IZOD constituée d'un bras lourd portant à son extrémité libre une masselotte, un étai pour fixer l'éprouvette ainsi qu'un cadran indicateur et un logiciel pour l'acquisition des résultats. La résilience ( $a_n$ ) pour une éprouvette avec entaille est présentée par l'équation (2.14).

$$a_n = \frac{A_n}{(b \cdot h)} \quad (2.14)$$

*Avec*

$A_n$  : L'énergie cinétique absorbée par l'éprouvette avec entaille au moment de l'impact (kJ);

$b$  : Largeur de l'éprouvette mesurée au centre de celle-ci en (m) ;

$h$  : L'épaisseur de l'éprouvette (m).



**Figure 2.17 : Dispositif de test d'impact au sein du laboratoire de biomatériau de l'UQAT**

### 2.6.4.3 Étude des propriétés thermiques

#### 2.6.4.3.1 Calorimétrie à balayage différentiel (DSC)

L'incorporation des fibres naturelles dans une matrice thermoplastique est à l'origine de la variation des propriétés thermiques. La DSC est un processus courant, destiné pour la quantification des caractéristiques thermiques des matériaux (Schick 2009). Cette technique permet d'étudier les phénomènes qui s'établissent au sein de l'échantillon lorsqu'il subit une variation de température. Le programme thermique choisi est fondé sur le chauffage et le refroidissement de la matière, la variation de la température contribue à l'échange de la chaleur qui favorise les transformations de la matière. La DSC est ainsi utilisée pour calculer le taux de cristallinité des composites bois-polymères, ainsi que les températures de fusion ( $T_f$ ), de cristallisation ( $T_c$ ), la transition vitreuse ( $T_g$ ) et les flux thermiques selon les principes de Boersma (Gill et al., 1993). Ce procédé est basé sur la mesure de l'énergie absorbée ou dégagée par l'échantillon durant un cycle de balayage en température. L'enthalpie de fusion ( $\Delta H_f$ ) est l'énergie nécessaire à la fusion, elle est calculée par une simple intégration du pic DSC en fonction du temps. Le taux de cristallinité ( $\chi_c$ ) des composites préparés est déterminé par la relation suivante :

$$\chi_c = \frac{\Delta H_f}{\Delta H_f^\circ} \cdot 100 \quad (2.15)$$

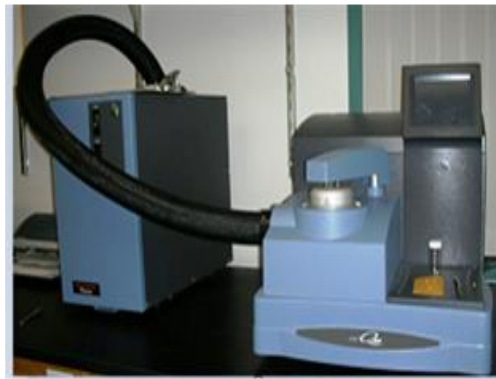
*Avec*

$\Delta H_f$ : Enthalpie de fusion de l'échantillon;

$\Delta H_f^\circ$ : Enthalpie de fusion du polymère cristallin à la température d'équilibre thermodynamique.

Cependant, dans cette étude le PP est chargé par des fibres naturelles de différentes essences, l'enthalpie de fusion de ce polymère doit être corrigée pour obtenir des valeurs précises. Le coefficient de correction  $\frac{1}{1-w_f}$  est introduit dans l'équation (2.15)

où  $\mathcal{W}_f$  désigne le taux de renfort. Les essais de calorimétrie différentielle à balayage sont réalisés suivant les exigences de la norme ASTM D3417 et en utilisant le calorimètre Q20 de TA Instruments du laboratoire de biomatériaux de l'UQAT. (Figure 2.18). La pan utilisée est de type hermétique dont la masse des échantillons varie entre 15 et 20 mg.



**Figure 2.18 : Calorimètre différentiel d'analyse du laboratoire de biomatériau de l'UQAT**

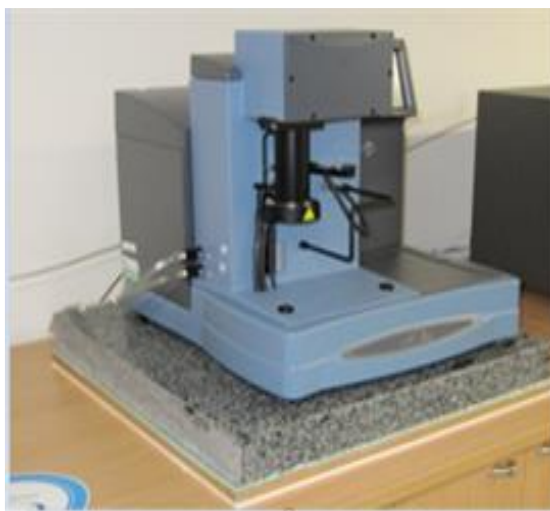
Le programme thermique choisi est composé de deux cycles successifs et identiques. Le tableau 2. 12 présente les différentes phases thermiques :

**Tableau 2.12 : Cycle thermique adopté**

<b>Phase 1</b>	Diminuer la température jusqu'à -20°C avec 10°C/min
<b>Phase 2</b>	Phase isotherme durant 5 min
<b>Phase 3</b>	Chauffer à 10°C/min jusqu'à 250°C
<b>Phase 4</b>	Phase isotherme durant 5 min
<b>Phase 5</b>	Refroidir jusqu'à -20°C avec 10°C/min
<b>Phase 6</b>	Phase isotherme durant 10 min
<b>Phase 7</b>	Chauffer à 5°C/min jusqu'à 250°C
<b>Phase 8</b>	Phase isotherme durant 10 min
<b>Phase 9</b>	Refroidir jusqu'à -20°C avec 5°C/min

#### 2.6.4.3.2 Thermogravimétrie

La thermogravimétrie est une technique qui vise à étudier la variation de masse d'un échantillon soumis à un programme de chauffage précise. Ce procédé est exploité pour étudier les différentes réactions chimiques qui s'établissent entre la substance et le milieu gazeux environnant. De plus, il permet d'analyser les différentes caractéristiques de matériau, comme la cinétique d'oxydation, l'absorption et l'hydratation (Rossini 1952). Pour réaliser ces tests, un analyseur thermogravimétrique de type TA Q500 a été utilisé. Ce dispositif permet de mesurer la perte de masse durant l'essai et la température de dégradation de chacune des entités. Concernant le réglage de la machine, les températures de chauffage ont été fixées entre 20°C et 700°C, le gaz vecteur est l'azote et le taux thermique est égal à 10°C/min.



**Figure 2.19 : Analyseur thermogravimétrique du laboratoire de biomatériau de l'UQAT**

L'analyse des courbes obtenues à la fin de chaque essai par le logiciel TA instrument et en utilisant la méthode des tangentes, nous permet de déterminer la température de

dégradation de la matrice, les fibres et les autres additifs. La pan utilisée est en aluminium dont la masse des échantillons varie entre 10 et 20 mg.

#### **2.6.4.4 Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier**

La spectroscopie FTIR est fondée sur l'absorbance d'un rayon infrarouge par les liaisons chimiques reliant les différents atomes de la matière. Chaque groupement fonctionnel, est caractérisé par sa propre réaction ce qui permet de déterminer la structure chimique de l'échantillon étudié (Huang et Huang 2010). Les résultats fournis par un spectre sont généralement de type qualitatif et ils permettent la détermination de toutes les longueurs d'onde absorbée par l'échantillon (Rodrigues et al., 2001, Pandey et Pitman 2003).



**Figure 2.20 : Spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier du laboratoire de biomatériau de l'UQAT**

Les spectres FTIR ont été obtenus au moyen d'un spectromètre IRTracer-100 (Figure 2.21). On a étudié les vibrations caractéristiques des liaisons et les fonctions chimiques à la surface pour le domaine infrarouge, entre  $4000\text{ cm}^{-1}$  et  $500\text{ cm}^{-1}$ .

#### **2.6.4.5 Microscopie à balayage électronique**

Cet instrument capable de fournir avec une haute précision et importante résolution, des détails sur l'aspect morphologique et la composition chimique de la matière. Elle

est basée sur le balayage de la surface du matériau par un faisceau électronique. L'interaction entre l'échantillon et le rayon généré par l'appareil produit une série de signaux comme la déflexion des électrons primaires, la création des électrons secondaires écartés de la surface. Concernant les composites bois-polymère, l'utilisation du MEB dans la caractérisation est essentiellement appliquée afin de prospector la morphologie des fibres, les faciès de brisure de l'éprouvette ou le mode d'interaction entre le renfort et la matrice polymérique (Hearle et Cross 1970).



**Figure 2.21 : microscopie électronique à balayage du laboratoire de microscopie de l'UQAT**

Dans ce projet, les composites sont caractérisés par un microscope Hitachi S-3500N numérique. Cet instrument est équipé par un spectromètre à dispersion d'énergie (EDS) qui assure la microanalyse élémentaire des phases minérales afin de connaître la stœchiométrie. Concernant l'observation au MEB, les échantillons sélectionnés sont au début métallisés, en créant une couche en or-palladium de 2,5 nm, par un pulvérisateur (Cressington 208HR), permettant un dépôt d'épaisseur homogène contrôlée sur toute la surface de l'échantillon. Une tension d'accélération de 3 kV a été appliquée, dans quelques cas elle a été diminuée jusqu'à 1 kV pour éviter les effets de champs sur les échantillons. Une distance de travail de 4 mm a été maintenue dans la plupart des observations. Le signal d'électrons secondaires a été majoritairement utilisé.

## CHAPITRE III

### RÉSULTATS ET DISCUSSION

#### 3.1 Chimie de surface

L'effet du traitement des fibres kraft par la solution plastifiante, glycérol, sur la chimie de surface est étudié par la spectroscopie infrarouge (FTIR). La différence entre les fibres non traitées et celles traitées est présentée par la figure 3.2 selon un intervalle de nombre d'onde qui varie de 4000 à 500  $\text{cm}^{-1}$ . Les deux spectres sont interprétés par l'intermédiaire des vibrations typiques illustrées par le tableau 3.1.

La superposition des deux spectres a montré que les fibres traitées et non traitées ont conservé la même allure avec des variations au niveau de la concentration de quelques groupements chimiques. Les pics correspondants à 3282  $\text{cm}^{-1}$  désignent la présence des groupements hydroxyles (-OH). Ils peuvent être issus de différents alcools tels que les alcools aliphatiques primaires ou secondaires du glucide ou la lignine, les alcools aromatiques de la lignine et les acides carboxyliques des extractibles. Ces identifications concordent avec ceux présentés par Bouafif et al., (2008). Les groupements hydroxyles sont aussi liés à la quantité d'eau absorbée par la fibre. La variation de l'humidité provoque une augmentation de la concentration de ces groupements (-OH) au niveau de la chimie de surface des fibres lignocellulosiques. Sur ces spectres, une augmentation du pic d'hydroxyle est observée après la modification. Cette augmentation est justifiée par la forte teneur en (-OH) dans la solution glycérol utilisée et la quantité d'eau distillée ajoutée durant la procédure du traitement. Ce comportement a également été signalé sur les fibres de bois par Verdaguer et Rodrigue (2014) et Raymond et Rodrigue (2014) après un traitement de mercerisations.

Les pics obtenus à  $2870\text{ cm}^{-1}$  ont montré l'existence des liaisons C-H aliphatiques symétriques et asymétriques, elles peuvent être associées au groupement méthylène/méthyle (Müller et al., 2003). Il confirme l'augmentation des groupes C-H à la surface des fibres après le traitement. Le pic autour de  $1732\text{ cm}^{-1}$  appartient à l'étirement des liaisons C=O (carbonyle) du groupe acétate des hémicelluloses et du carbonyle de la pectine et des cires (Mwaikambo et Ansell 2002, Lu et Oza 2013). Ce pic est considérablement resté le même après le traitement des fibres, ce qui indique qu'aucun retrait de ces éléments a eu lieu. Ce résultat concorde avec ceux présentés par Bouafif et al., (2008), ils ont montré que la vibration de l'ester carbonyle provient essentiellement de l'étirement des groupements carbonyles des acétyles existants dans l'hémicellulose et de l'aldéhyde carboxylique de la lignine.

L'ensemble des pics dans l'intervalle des bandes  $1539$  et  $1523\text{ cm}^{-1}$  (étirement C=C), sont généralement associés aux lignines (Kazayawoko et al., 1997). Il est devenu plus visible après la plastification du renfort, ne suggérant aucune élimination partielle ou totale de ce composant fibreux. Dans le même contexte, Bouafif et al., (2008) ont trouvé que les pics identifiés entre  $1608$  et  $1510\text{ cm}^{-1}$  correspondent à la vibration aromatique du groupement C=C dans la lignine. Le pic à  $1149\text{ cm}^{-1}$  appartient aux liaisons C-O-C (Kazayawoko et al., 1997, Kaczmar et al., 2011) et son augmentation suggère des quantités plus faibles au niveau de la chimie de fibre après le traitement glycérol. Les pics existants entre  $1014$  et  $1110\text{ cm}^{-1}$  justifient la présence des liaisons C-O. Ils sont liés aux groupements alcool, esters, éthers et l'acide carboxylique (Pavia et al., 2008). L'utilisation du glycérol comme un plastifiant provoque l'augmentation de la quantité de ce groupement. Ces résultats présentent la réciproque de ceux publiés par Ayadi (2018) avec le traitement thermique des fibres de l'épinette noire, il a montré une diminution suite à la dégradation de l'hémicellulose. L'application du traitement glycérol a abouti à l'apparition des pics à  $1110\text{ cm}^{-1}$  et  $915\text{ cm}^{-1}$ .

La faible intensité des pics à  $873\text{ cm}^{-1}$  et  $778\text{ cm}^{-1}$  correspondants au C-H aromatique sont d'autres preuves de la faible teneur en lignines (Mwaikambo et Ansell 2002, Jannah et al., 2009). Le traitement glycérol n'a pas présenté un effet important sur les deux pics mentionnés. Le pic correspondant à  $873\text{ cm}^{-1}$  est faiblement déphasé suite au traitement glycérol.

Les spectres FTIR des composites PP/fibre kraft/MAPP et PP/fibre kraft traitée/MAPP sont présentés sur la figure 3.3. La majeure différence entre les deux composites étudiés se manifeste au niveau de l'onde  $3309\text{ cm}^{-1}$  qui correspond au groupement hydroxyle. Cela est justifié par le traitement des fibres par la solution glycérol qui est riche en groupement OH.

L'hygroscopicité est en corrélation avec les groupements hydroxyles (-OH) (Tjeerdsma et Militz, 2005), l'augmentation de ces groupements peut expliquer la forte hygroscopicité des composites chargés par les fibres traitées. Étant donné que l'addition de MAPP et de SEBS-MA diminue le taux d'absorption de l'eau et que l'addition de SEBS-MA augmente considérablement la résistance au choc, il a été intéressant d'examiner le spectre infrarouge des composites chargés par des fibres traitées ou non traitées et modifiés par le SEBS-MA. Les spectres FTIR typiques sont illustrés à la figure 3.4.

L'interprétation des résultats a montré qu'aucune différence réelle peut être observée entre les deux spectres IR car les fibres exploitées, traitées ou non traitées, contiennent des groupes ester. Ainsi, la réaction d'estérification entre les groupes hydroxyle et l'anhydride maléique ne peut pas être vue par le FTIR (Qiu et al., 2004). Cependant, le pic d'absorption large de groupes hydroxyle libres situé entre  $3650$  et  $3000\text{ cm}^{-1}$  peut être facilement identifié. Le spectre a montré que le pic des groupes hydroxyle était abaissé en présence de MAPP, qui est l'indication de la réaction d'estérification. Lorsque le SEBS-MA a été ajouté en même temps que MAPP, le pic caractéristique correspondant au groupe hydroxyle a encore été aplati. En d'autres

termes, le spectre FTIR a montré que l'ajout d'un agent de couplage et l'élastomère modifié à l'anhydride ont abaissé le pic du groupe hydroxyle, ce qui indique que ces groupes chimiques ont réagi avec les groupes anhydride maléiques.

**Tableau 3.1 : Récapitulations des bandes d'absorption FTIR et leurs liaisons associées**

<b>Nombre d'onde (cm<sup>-1</sup>)</b>	<b>Liaison</b>	<b>Groupements</b>	<b>Références</b>
3200-2500	-O-H-	Alcools et phénols	(Bouafif et al., 2008, Verdaguer et Rodrigue 2014)
2800-3000	-C-H	Méthyl et groupe méthylène	(Müller et al., 2003)
1732	C=O	Aldéhydes, ester aliphatique et aromatique, groupe acétyle de l'hémicellulose	(Mwaikambo et Ansell 2002, Bouafif et al., 2008, Lu et Oza 2013)
1523-1539	-C=C-	Alcène et aromatiques (vibration aromatique liée à la lignine)	(Kazayawoko et al., 1997, Bouafif et al., 2008)
1149	C-O-C	Ester	(Kaczmar et al., 2011)
1014-1110	-C-O	Alcools	(Pavia et al., 2008)
778-873	C-H	Déformation aromatique	(Jannah et al., 2009)

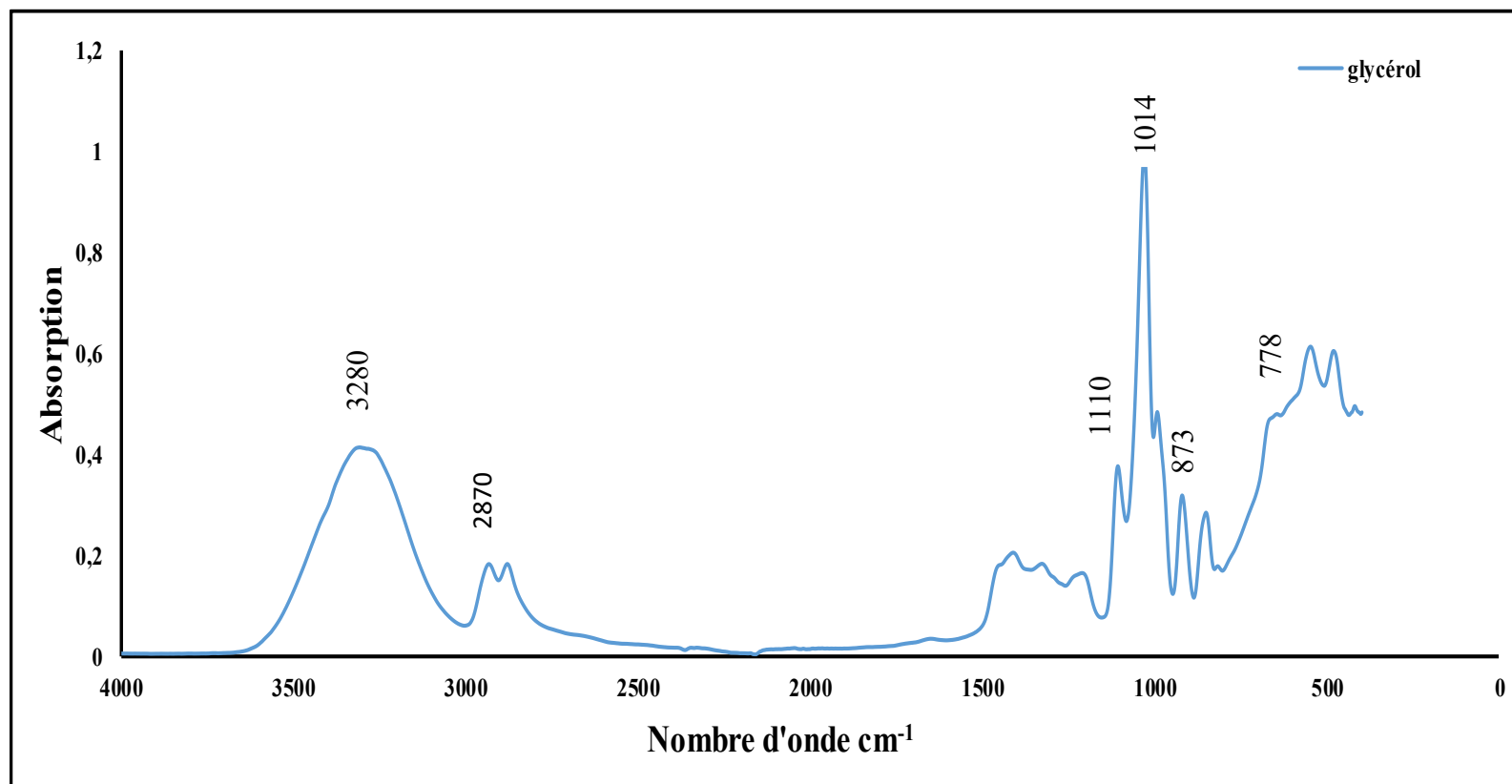


Figure 3. 1 : Spectre du glycérol

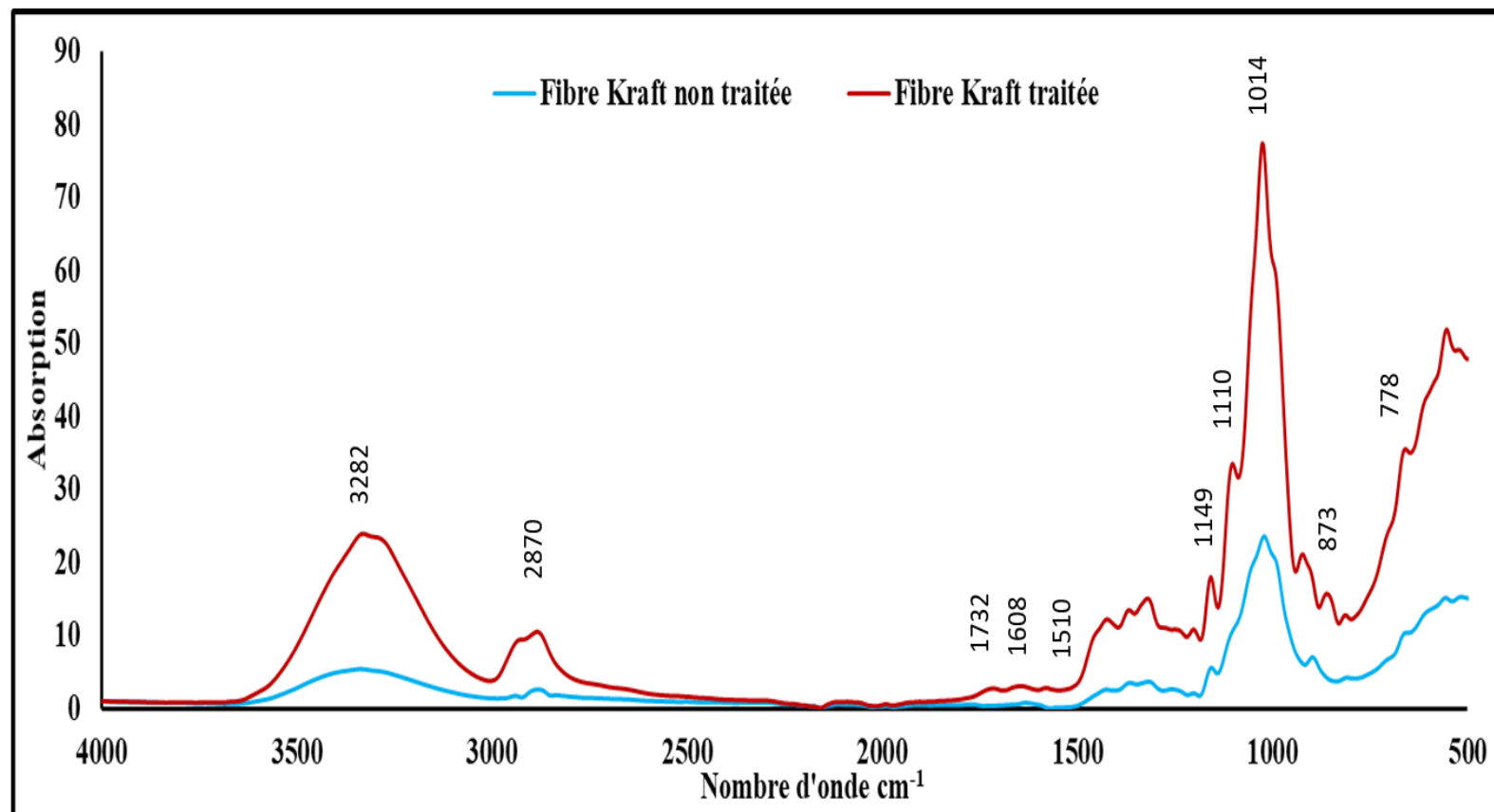


Figure 3.2 : Spectre des fibres kraft non traitées et des fibres kraft traitées par glycérol

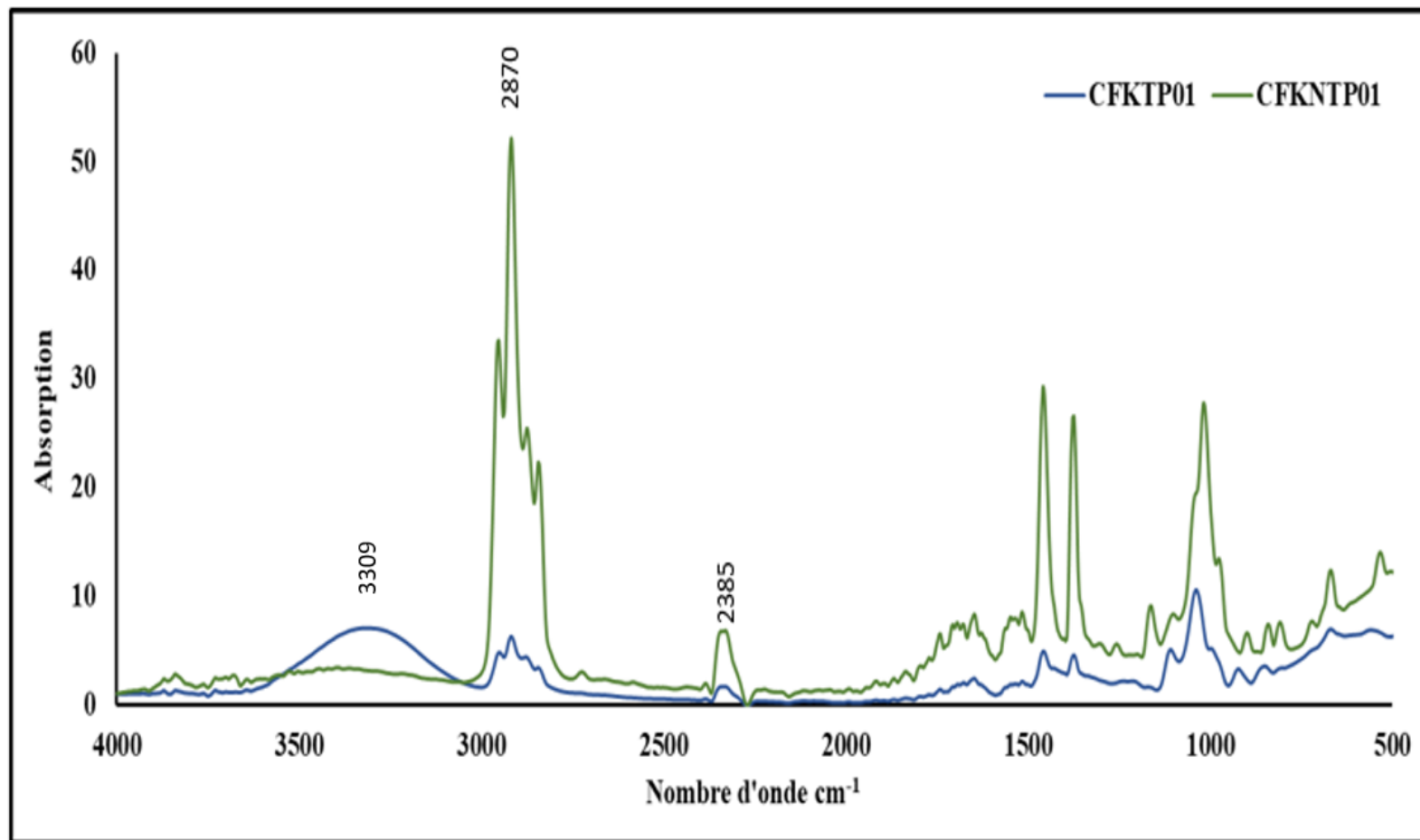


Figure 3.3 : Spectres FTIR des CBP à base de PP remplis avec des fibres kraft traitées par glycérol et autres non traitées

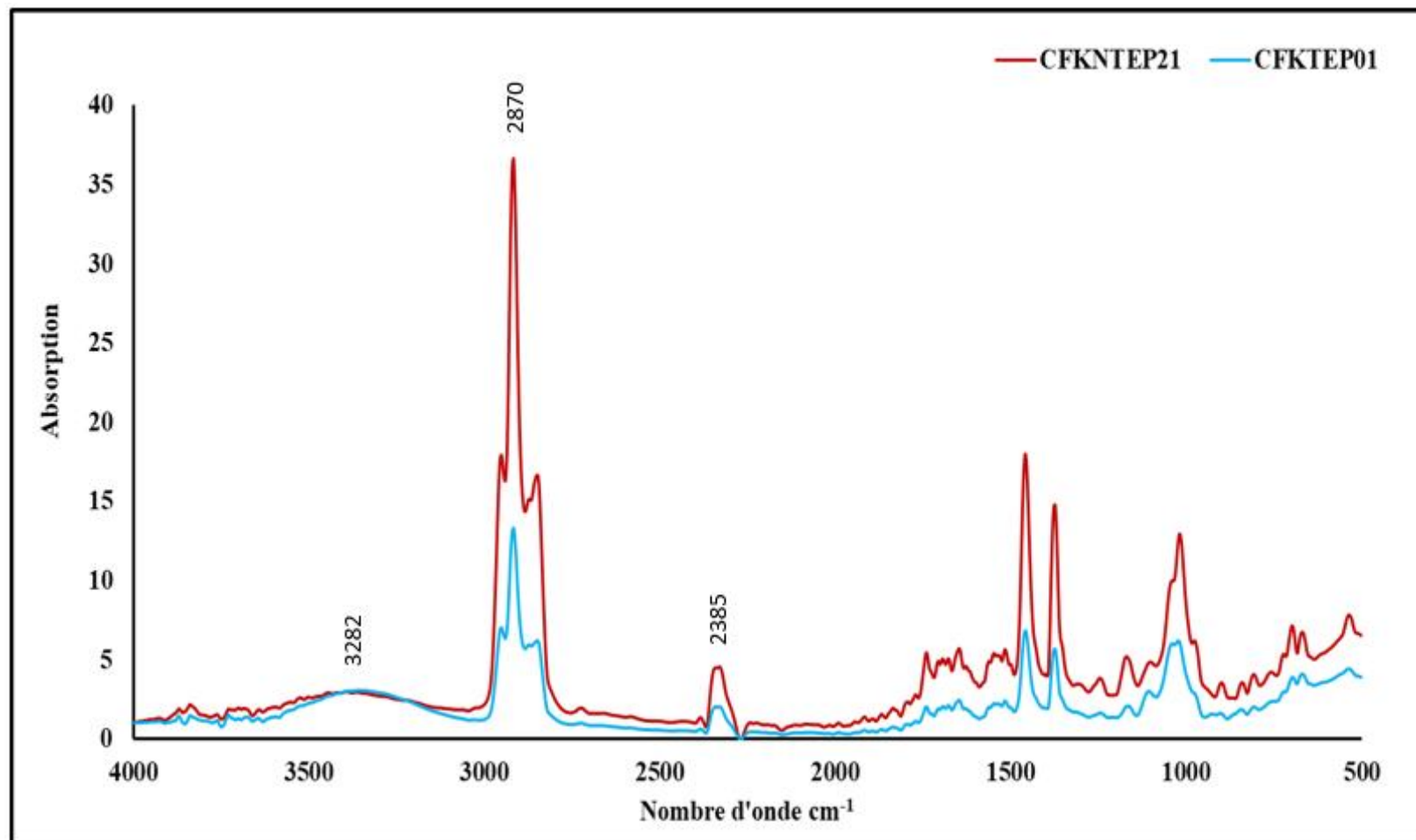
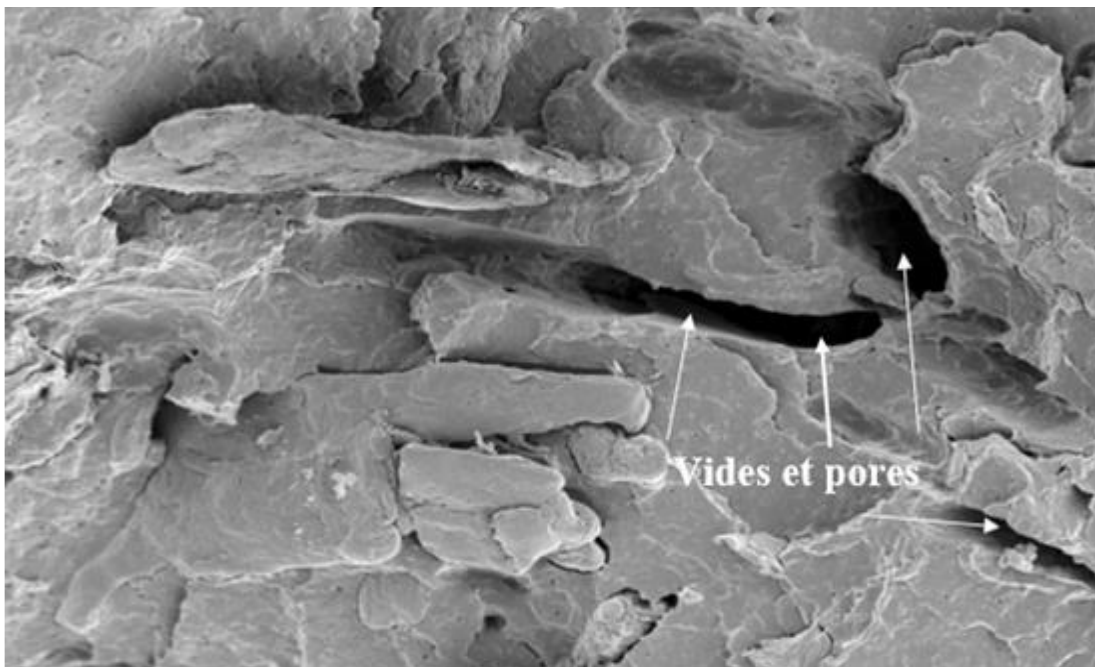


Figure 3.4 : Spectres FTIR des CBP à base de PP remplis avec des fibres kraft traitées par glycérol et autres non traitées et modifiés par 20% (en masse) de SEBS-MA

### 3.2 Caractérisation morphologique

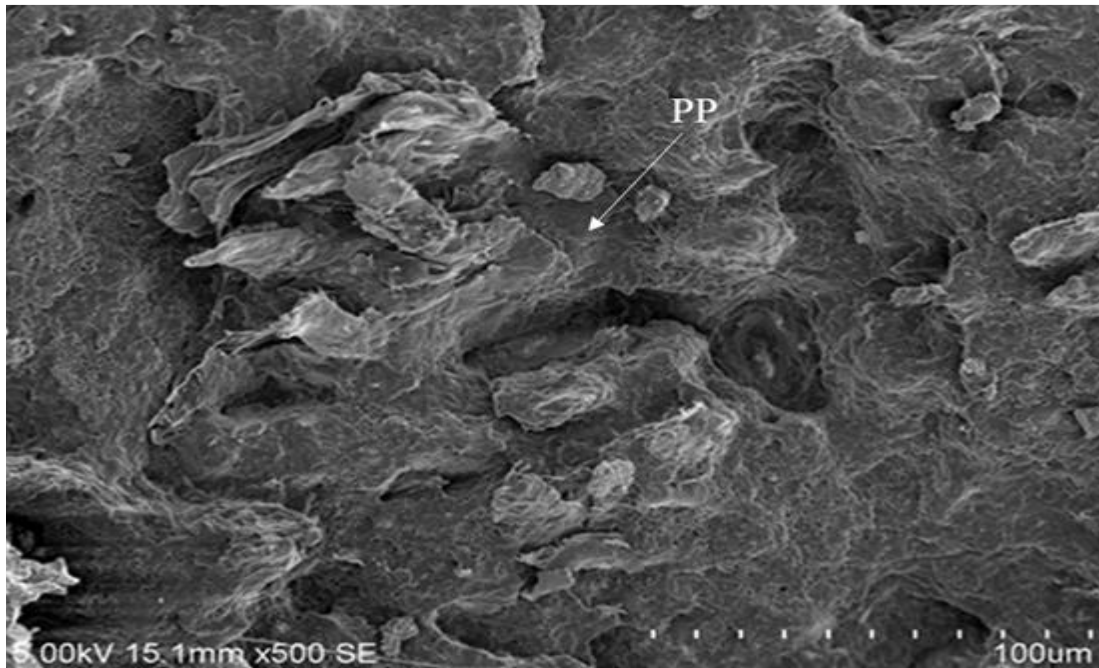
L'examen des surfaces de fracture des composites au microscope électronique à balayage a permis d'identifier l'effet du SEBS-MA et le MAPP sur la morphologie du mélange. La taille des particules du SEBS-MA et la région interfaciale entre la matrice PP et le bois ont été étudiées.

La figure 3.5 montre la microstructure du composite sans SEBS-MA et MAPP. L'observation microscopique a montré des particules de bois noyées dans la matrice polymérique. Les particules ne sont pas cassées et elles sont entourées par des vides indiquant une faible interaction entre la surface du bois et la matrice. Oksman et Lindberg (1998) ont trouvé les mêmes résultats pour des composites PEBD/fibre de bois moulé par injection. Ils ont montré que la particule de bois est noyée dans la matrice PEBD et qu'il existe des vides entre les composantes du mélange, indiquant une mauvaise adhérence entre les surfaces.



**Figure 3.5 : Image de Microscopie électronique à balayage (MEB) du (PP; 30% fibre kraft non traitée)**

La figure 3.6 a présenté la microstructure du composite avec MAPP. La microstructure est différente de celle de la figure 3.5. En général, il est plus difficile de différencier les particules de bois et la matrice PP. Cela peut suggérer que les particules de bois sont enduites, probablement par la matrice, et que la défaillance se produit le plus souvent dans la matrice et non sur les surfaces de remplissage.

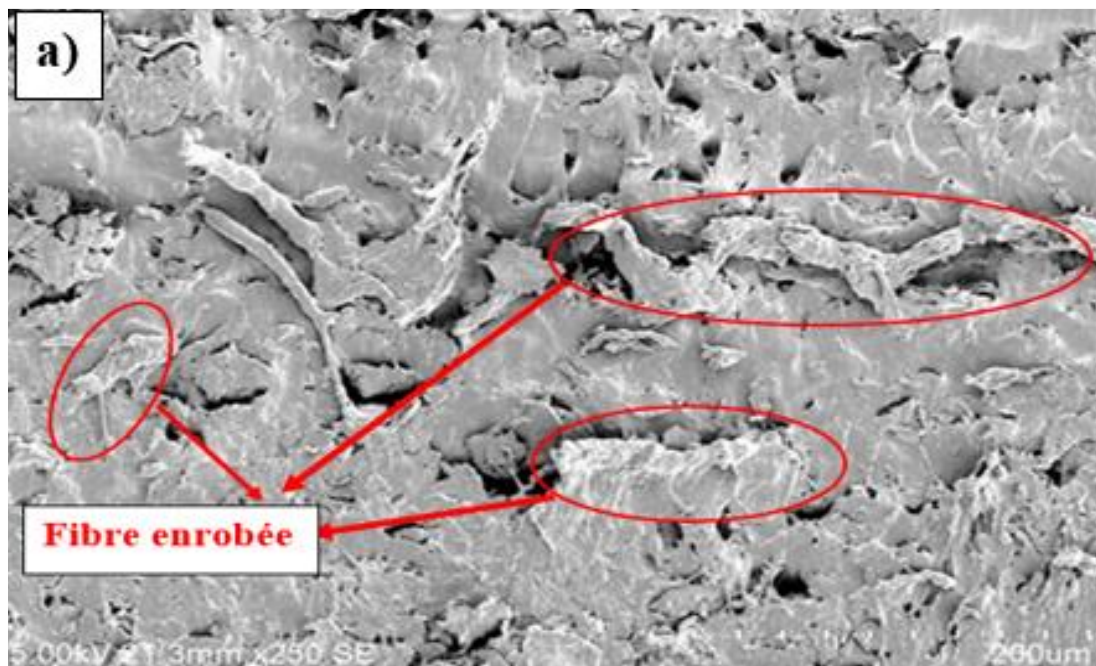


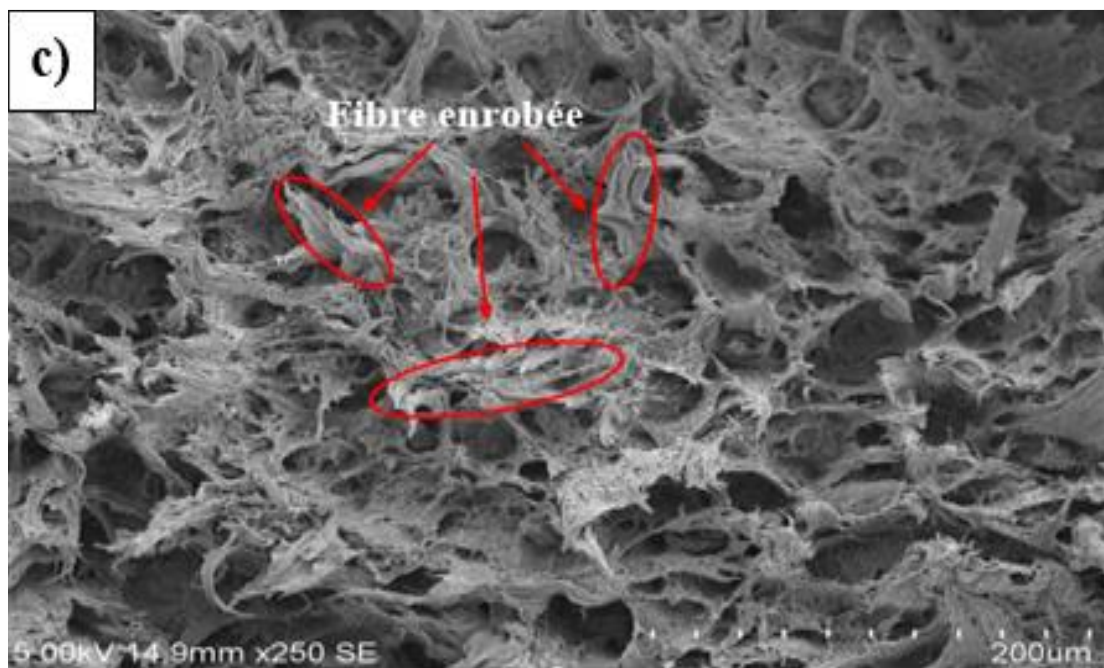
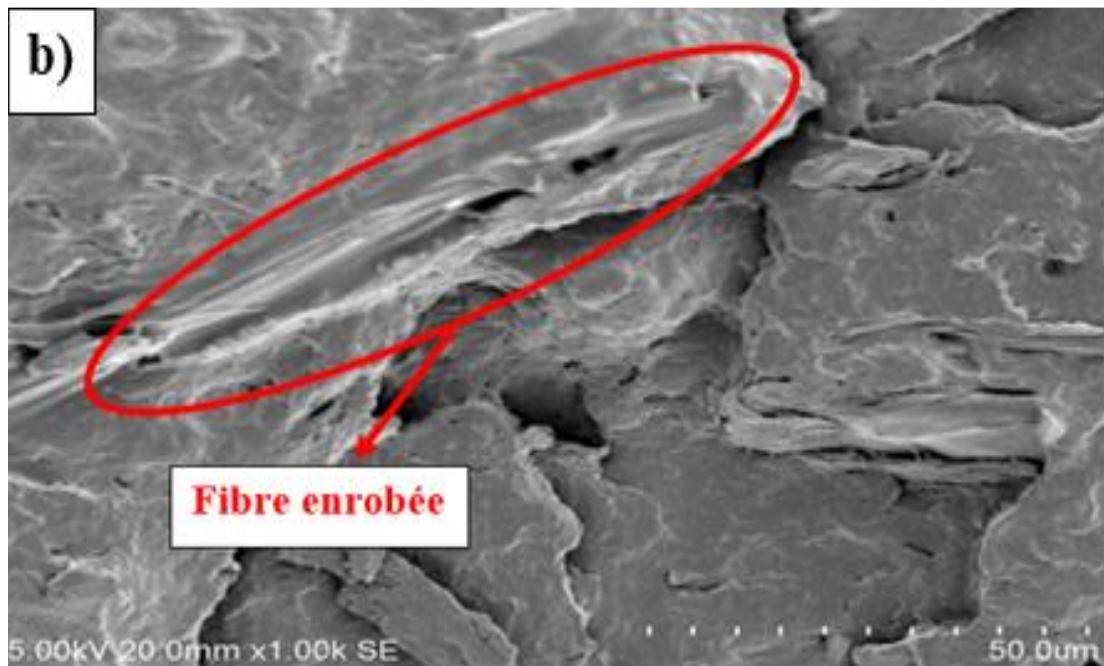
**Figure 3.6 : Image de Microscopie électronique à balayage (MEB) du (PP; 30% fibre kraft non traitée; 3% MAPP)**

La faible adhérence est justifiée par l'existence des vides autour des particules de bois et des endroits où les particules se sont retirées. L'amélioration de l'adhérence entre la fibre et la matrice était attendue suite à l'addition d'une quantité de MAPP (Oksman et Clemons 1997).

Les figures 7 a), 7 b) et 7 c) ont montré la morphologie des composites modifiés par le SEBS-MA et le MAPP simultanément. Il y a une bonne adhérence entre les fibres de kraft et la matrice PP/SEBS-MA dans les micrographies. Aucun vide autour de la surface des particules de bois n'est présenté et la propagation de fracture a souvent

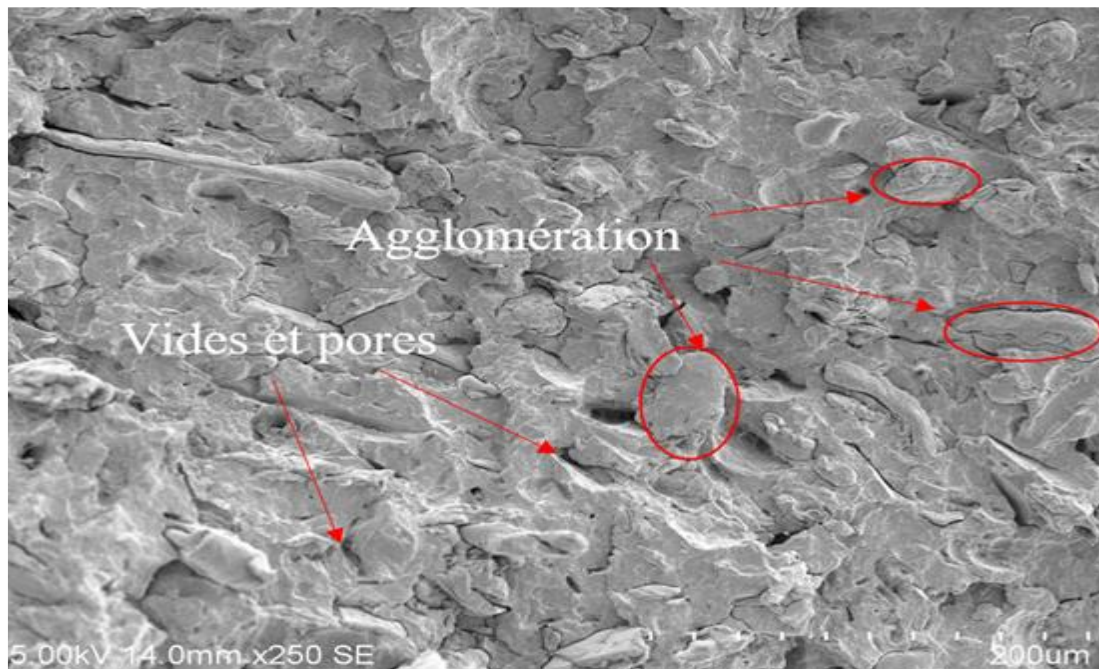
traversé la fibre. Il est difficile de mesurer la taille des particules de la phase élastomère (SEBS-MA) en raison de la bonne adhérence entre la matrice et le SEBS-MA. Ces résultats concordent avec ceux partagés par Oksman et Lindberg (1998), ils ont trouvé que l'incorporation de 5% (en masse) en SEBS-MA a provoqué une bonne adhérence entre le PP et la fibre enrobée par le SEBS-MA. Les mêmes résultats sont obtenus pour des composites PP/fibre de bois modifiés uniquement par le EPDM-MA et autres par le EPDM-MA le MAPP simultanément (Oksman et Clemons 1997). L'incorporation des différents types d'élastomère présente une influence sur la propagation des fractures, elles sont effectuées au niveau de la particule de bois dans les deux cas, ce qui justifie l'amélioration de l'adhérence.





**Figure 3.7 : Image de Microscopie électronique à balayage (MEB) du (PP; 30% fibre kraft non traitée; 20% SEBS-MA; 3% MAPP)**

L'étude précédente de la microscopie électronique des composites PP/fibre kraft traitée par glycérol a montré une faible adhérence entre la matrice et les particules de bois.



**Figure 3.8 : Image de Microscopie électronique à balayage (MEB) du (PP; 30% fibre kraft traitée; 3% MAPP)**

La figure 3.8 présente la morphologie des mélanges à 30% de fibres traitées. Dans le cas courant, l'incorporation de 3% du MAPP reste insuffisante pour remédier aux différents défauts comme les agglomérations, les vides et les pores. D'autres recherches ont été basées sur l'étude de la variation de la quantité du MAPP sur l'adhésion entre le polypropylène et les fibres de bois traitées par glycérol. Sailaja et al., (2008) ont montré que l'addition de 7% (en masse) de MAPP augmente la résistance à la traction, aux chocs, ainsi que l'allongement à la rupture des composites chargés par des fibres de soya plastifiées par glycérol.

### 3.3 Étude des propriétés physiques

Dans cette partie, on a envisagé l'effet de la variation du pourcentage des différents types de fibres incorporées sur l'absorption d'eau, la contribution du traitement des fibres kraft par la solution plastifiante glycérol sur la modification de l'aptitude hygroscopique de la charge lignocellulosique et finalement identifier l'influence de la nature de l'interaction entre l'élément élastique (SEBS-MA) et les fibres après divers cycle d'immersion dans l'eau distillée.

#### 3.3.1 Résultats détaillés des propriétés physiques

L'absorption d'eau des composites a été testée après 48, 336, 672 et 1334 heures d'immersion dans l'eau distillée. L'analyse de variance des gonflements en épaisseur et gain en masse est exposée dans le tableau 3.2.

**Tableau 3.2 : Résultats des analyses de variance (valeur F) pour les propriétés physiques**

Source de variabilité	Absorption d'eau	
	Gonflement en épaisseur	Gain massique
Type de fibre (A)	19,658***	5,511*
% de fibre (B)	88,274***	102,401***
Traitement glycérol (C)	390,787***	336,941***
% d'élastomère (D)	57,656***	23,262***
(B) x (C)	21,105***	12,408***
(B) x (D)	7,853**	0,674ns
(C) x (D)	0,104ns	0,091ns

\* : significatif à 0,05 ; \*\*\* : significatif à 0,0001 ; ns : non significatif

L'étude de variance est constituée par deux analyses. La première consiste à identifier l'effet des différents types de fibre sur l'absorption d'eau, en terme de gain massique et gain en épaisseur. Il a été notable que l'incorporation des fibres de différentes catégories, fibre bouleau blanc et fibre kraft, a induit une variation significative sur l'augmentation d'épaisseur et de la masse. Le reste des sources de variabilités, % de fibre, traitement glycérol, % d'élastomère et durée d'immersion ont montré des résultats significatifs à 0,0001. À la lumière de ces constatations, et en considérant que les composites chargés seulement par des fibres kraft (aucun traitement appliqué et sans addition d'un additif élastique) comme des témoins, on a lancé une deuxième analyse pour identifier la nature d'interaction entre tous les facteurs, quelle que soit pour le traitement glycérol, l'addition du SEBS-MA et l'augmentation de leur teneur dans la formulation. Toutes les interactions entre deux facteurs étudiés sont significatives (Tableau 3.2), sauf pour celle qui englobe le traitement par glycérol et la variation de la teneur en élastomère.

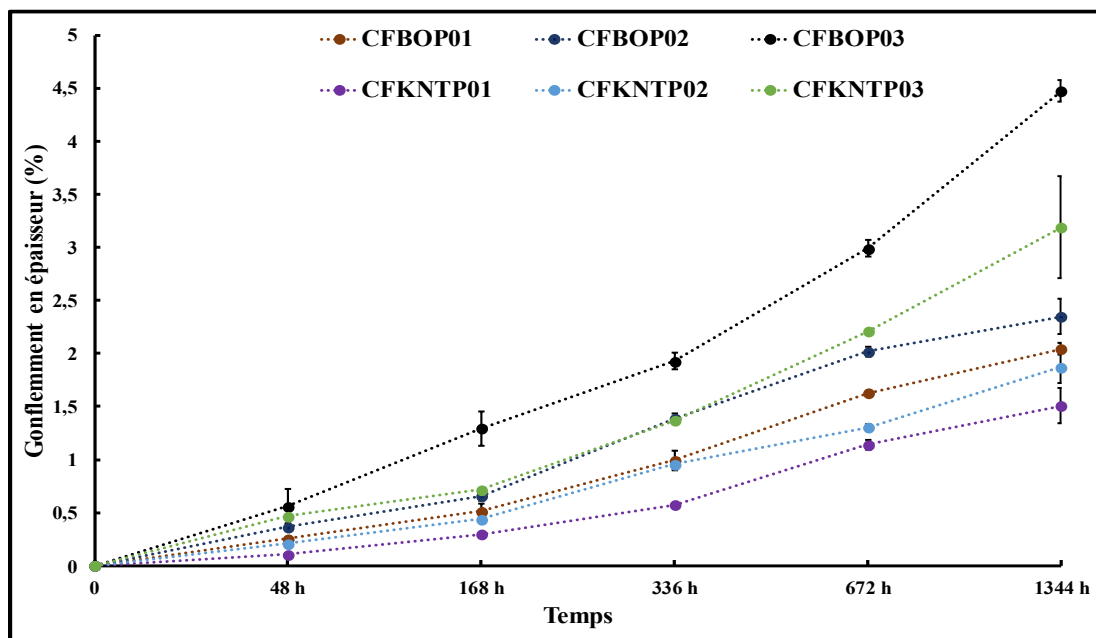
### **3.3.2 Effet de la quantité et le type de fibre sur le comportement physique du PP**

Dans cette partie, on a envisagé l'effet de l'augmentation des teneurs en renfort lignocellulosique ainsi que la différence entre l'incorporation des fibres kraft ou bouleau blanc dans le PP sur la stabilité dimensionnelle. Les figures 3.9 et 3.10 présentent le gonflement massique et en épaisseur en fonction de la durée d'immersion dans l'eau pour les composites renforcés par différentes teneurs en fibres kraft et bouleau blanc. Généralement, le même comportement a été observé avec les deux types de composites, les échantillons ont absorbé plus d'eau au cours des premiers cycles (0-24 h).

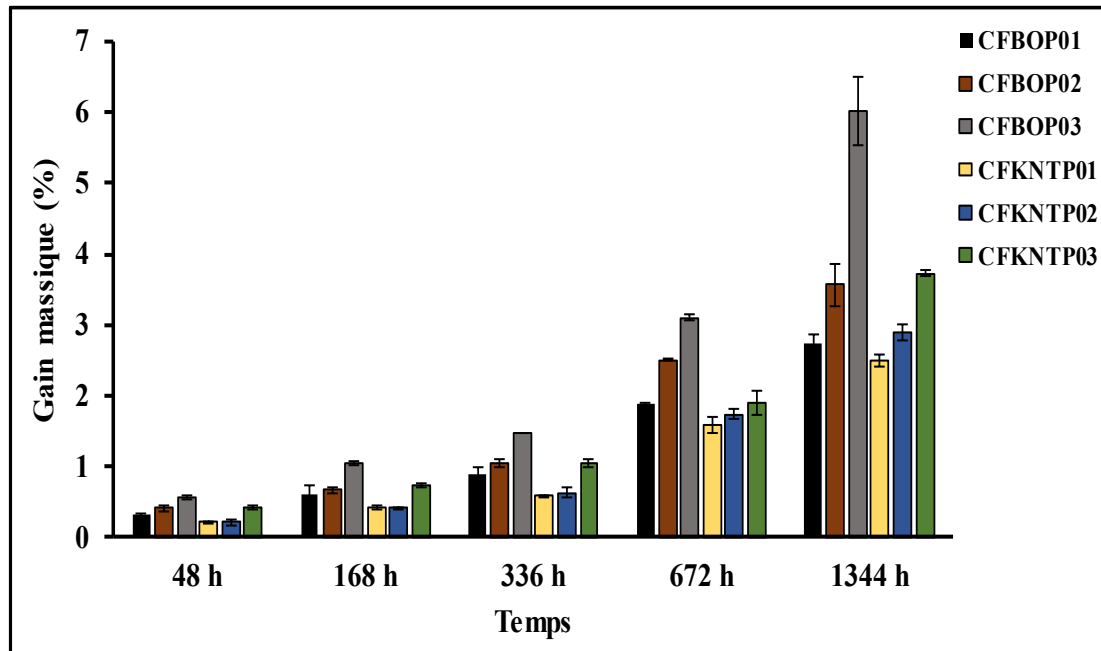
Comme il est mentionné ci-dessus, le caractère hydrophile des fibres naturelles est le responsable à l'absorption d'eau, et par conséquent les composites à haute teneur en fibre ont présenté une augmentation en masse et en épaisseur élevées. Ces interprétations concordent avec d'autres travaux, Espert et al., (2004) ont montré que

l'augmentation du pourcentage de cellulose incorporé dans deux types de matrices, PP pur et PP recyclé, provoque la diminution de la stabilité dimensionnelle. Les formulations à haute teneur en fibre bouleau blanc ont subi une variation dimensionnelle plus prononcée. De même, Migneault et al., (2014) ont partagé des résultats similaires sur la variation du pourcentage des différents types de fibres telles que le bouleau blanc, les pâtes kraft et CTMP, les boues de désencrage et les écorces.

Les deux mélanges chargés par les fibres bouleau blanc et fibre kraft sont caractérisés par des comportements hygroscopiques différents. Les composites à base des fibres bouleau blanc ont présenté des augmentations en épaisseur et en masse plus élevées que celles des composites chargés par les fibres kraft. Pour des composites à 50% de fibre et après 1334h d'immersion, ceux chargés par les fibres kraft ont un gain massique et en épaisseur de l'ordre de 3,72% et 3,26% respectivement. Cependant, les mélanges à base des fibres bouleau blanc ont montré des variations plus élevées, aux environs de 6,01% et 4,47%.



**Figure 3.9 : Effet de la variation du type et de la teneur en fibre sur le gonflement en épaisseur**



**Figure 3.10 : Effet de la variation du type et de la teneur en fibre sur le gain massique**

La composition chimique et la variation de la teneur en composantes de base, cellulose, lignine et éminemment l'hémicellulose sont à l'origine de cette différence. L'hygroscopicité des matériaux lignocellulosiques est hautement corrélée avec leurs groupes hydroxyles accessibles. Les molécules d'eau sont attachées à ces groupes par des liaisons hydrogène. L'hémicellulose est une composante sensible à l'humidité. Cela est justifié par la quantité des groupes hydroxyles disponibles à sa surface qui sont plus importants que ceux de la cellulose et la lignine (Das et al., 2000).

Les fibres kraft ont subi différents traitements chimiques et thermiques durant le processus d'élaboration. Cette transformation est basée sur l'extraction des diverses composantes chimiques telles que l'hémicellulose et les extractibles (Migneault et al., 2014). L'élimination de l'hémicellulose était probablement la principale raison de la réduction à la fois des groupes hydroxyles et l'hygroscopicité des fibres. Ces résultats sont justifiés par les recherches de Hosseinaei et al., (2012), ils ont attesté que

l'extraction des hémicelluloses améliore la stabilité dimensionnelle des composites PP/fibre de bois.

En outre, la dispersion des fibres dans la matrice polymérique influe progressivement la sensibilité des composites contre l'humidité. Cette corrélation avec les études de dispersion des fibres, suggère qu'une bonne dispersion des fibres conduit à des faibles vitesses d'absorption d'humidité. La structure chimique des fibres kraft permet d'avoir une dispersion idéale par rapport les fibres bouleau blanc (Peltola et al., 2014). En comparant les modes de réaction des deux renforts exploités, l'adhésion PP/fibres kraft est plus vigoureuse et uniforme que celle du PP/fibre bouleau blanc.

Les mélanges contenant des fibres kraft présentent moins d'agglomération. Plus les agglomérats sont visibles, plus l'absorption d'eau est élevée. Ceci conduit à un matériau incohérent avec des fissures et des vides qui favorise la pénétration d'eau. Cette caractéristique justifie que les dimensions des échantillons en PP/fibre bouleau blanc sont moins stables, présentant des augmentations plus importantes suite à la variation de l'humidité. Le comportement physique des composites étudiés est en corrélation avec la longueur des fibres incorporées. Les analyses de morphologie effectuées par Kajaani FS300<sup>TM</sup> de la Metso ont montré que les deux types de fibre, kraft et bouleau blanc, sont de différentes longueurs et diamètres. La quantité d'eau absorbée par les composites chargés avec 50% des fibres longues (bouleau blanc) est jusqu'à 38% plus élevée que celle absorbée par des mélanges chargés avec des fibres courtes (fibre kraft). Ceci est un effet essentiellement indésirable et suggère que les fibres courtes sont plus appropriées pour les composites destinés à être utilisés dans des environnements humides. Ces fibres courtes peuvent être revêtues facilement avec un film en polypropylène hydrophobe. La présence de vides dans les composites chargés par des fibres longues est justifiée par la faible interaction entre les différentes composantes. Ces constatations concordent avec les travaux du Migneault et al., (2014) et Migneault (2007).

### **3.3.3 Effet de l'incorporation des fibres kraft plastifiées et des modificateurs d'impact sur le comportement hydrique du PP**

Les figures 3.11-3.16 présentent les gains en masse et en épaisseur des divers mélanges élaborés à base des fibres kraft. Couramment, la cinétique d'absorption d'eau pour les échantillons modifiés par 20% de SEBS-MA suit la loi de Fick (absorption d'eau initiale linéaire suivie d'une absorption lente jusqu'au point de saturation). Toutefois l'échantillon modifié par 20% d'élastomère a présenté une vitesse d'absorption lente et presque constante. La quantité d'eau absorbée par les composites a été calculée par la différence de masse entre les échantillons exposés à l'eau et ceux conditionnés. Les résultats de l'immersion des éprouvettes dans l'eau distillée sont illustrés par Annexe 1.

Les composites élaborés sont caractérisés par différents comportements physiques. Cette diversité est justifiée par la différence des approches adoptées afin de modifier l'interaction entre le fibre kraft et la matrice polymérique. Pour toute catégorie de composite, l'incorporation d'une teneur en fibre kraft au sein du PP a diminué la résistance du matériau à la variation de l'humidité. L'effet de chaque modification ; traitement glycérol, modificateur d'impact ou combinaison des deux dans le même mélange, est détaillé ci-dessous.

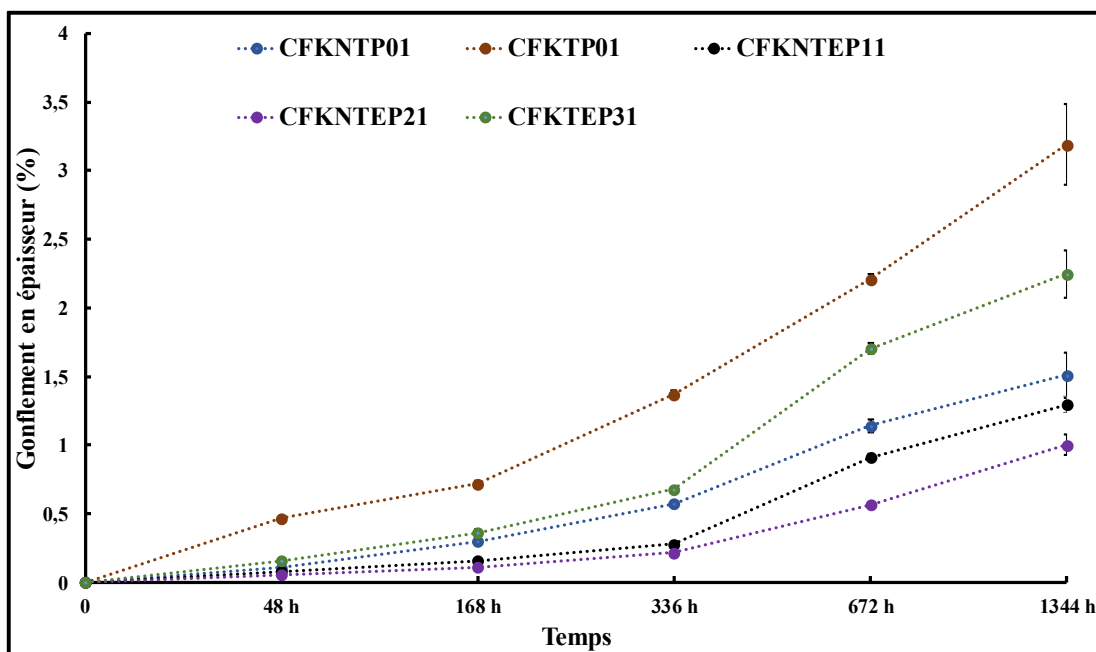


Figure 3.11 : Évolution du gonflement en épaisseur des différents types de composite à 30% de fibre kraft

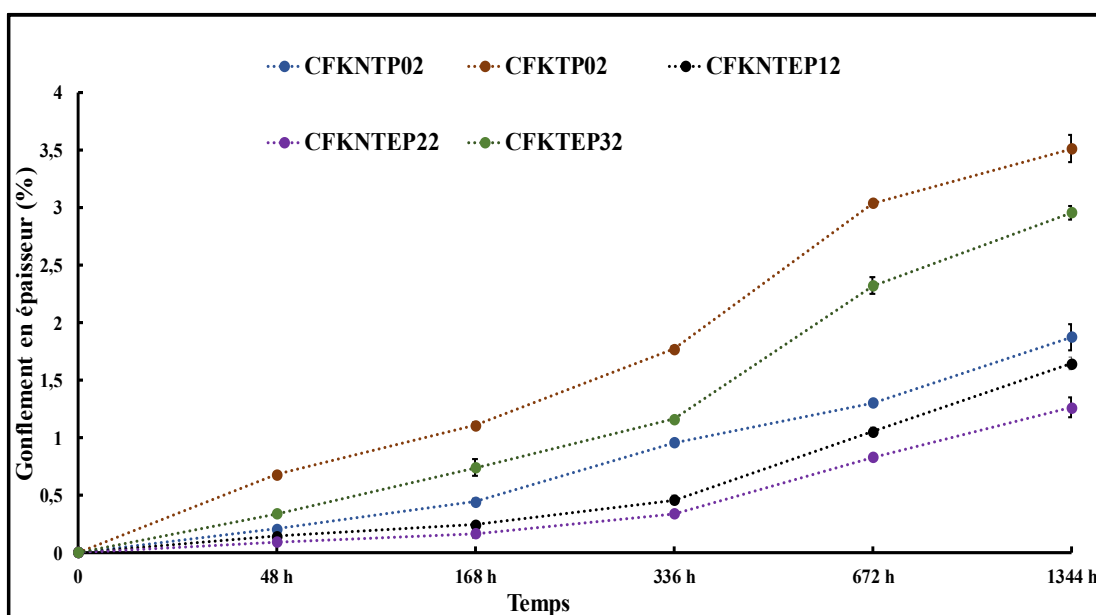


Figure 3.12 : Évolution du gonflement en épaisseur des différents types de composite à 40% de fibre kraft

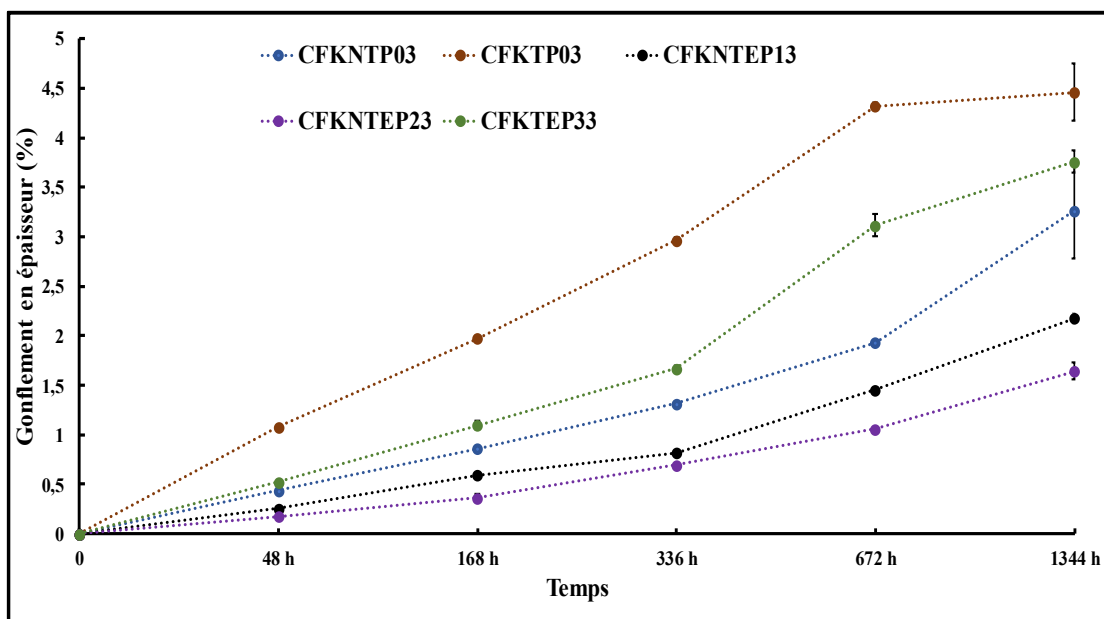


Figure 3.13 : Évolution du gonflement en épaisseur des différents types de composite à 50% de fibre kraft

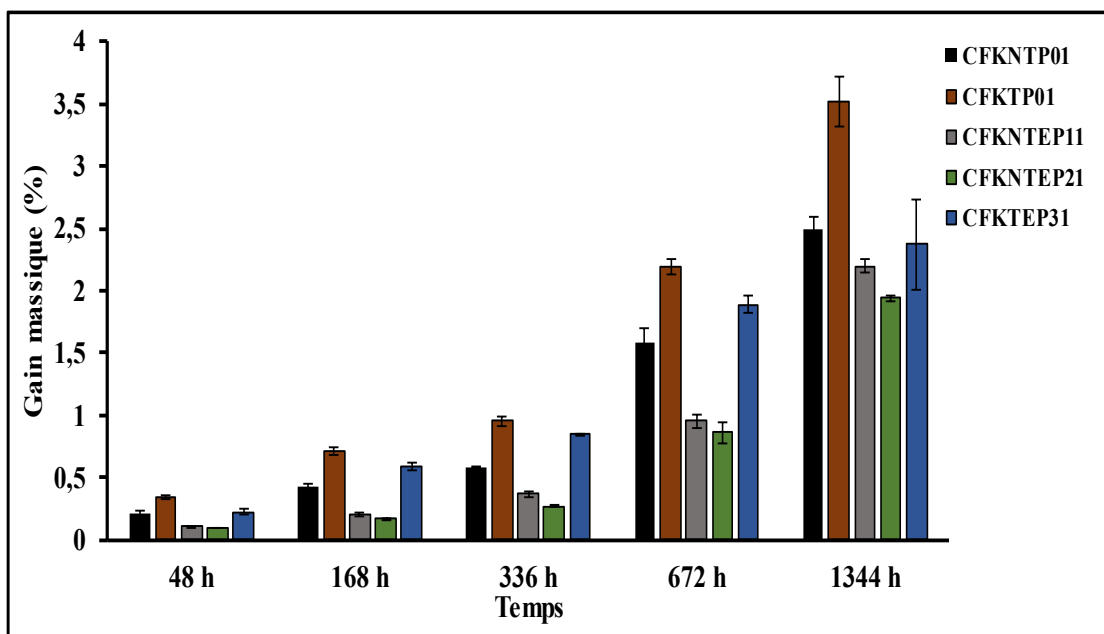


Figure 3.14 : Évolution du gain massique des différents types de composite à 30% de fibre kraft

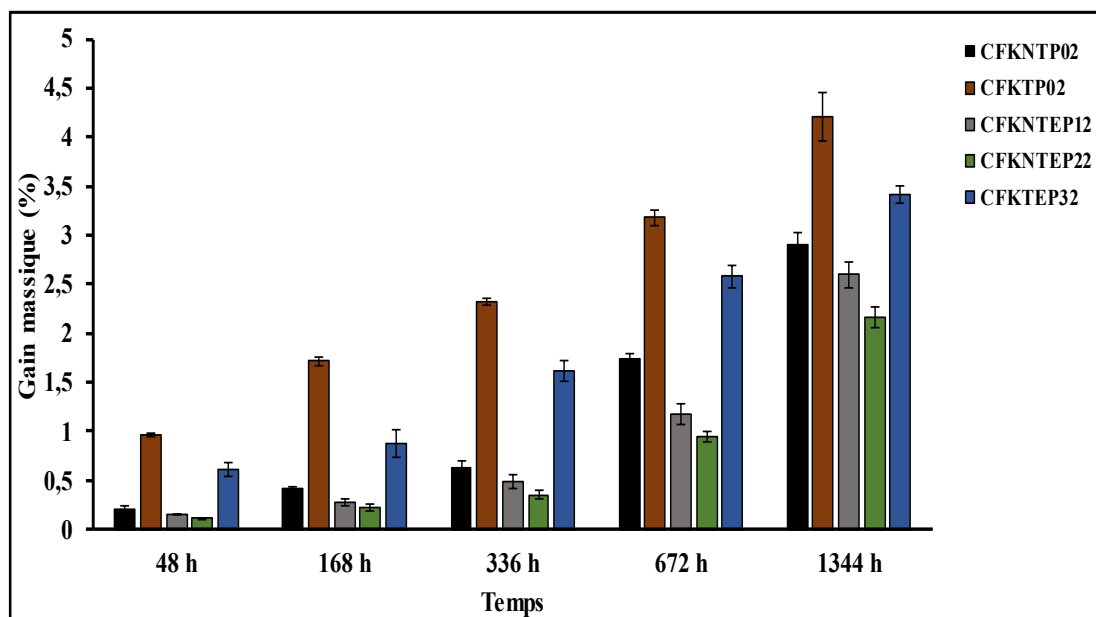


Figure 3.15 : Évolution du gain massique des différents types de composite à 40% de fibre kraft

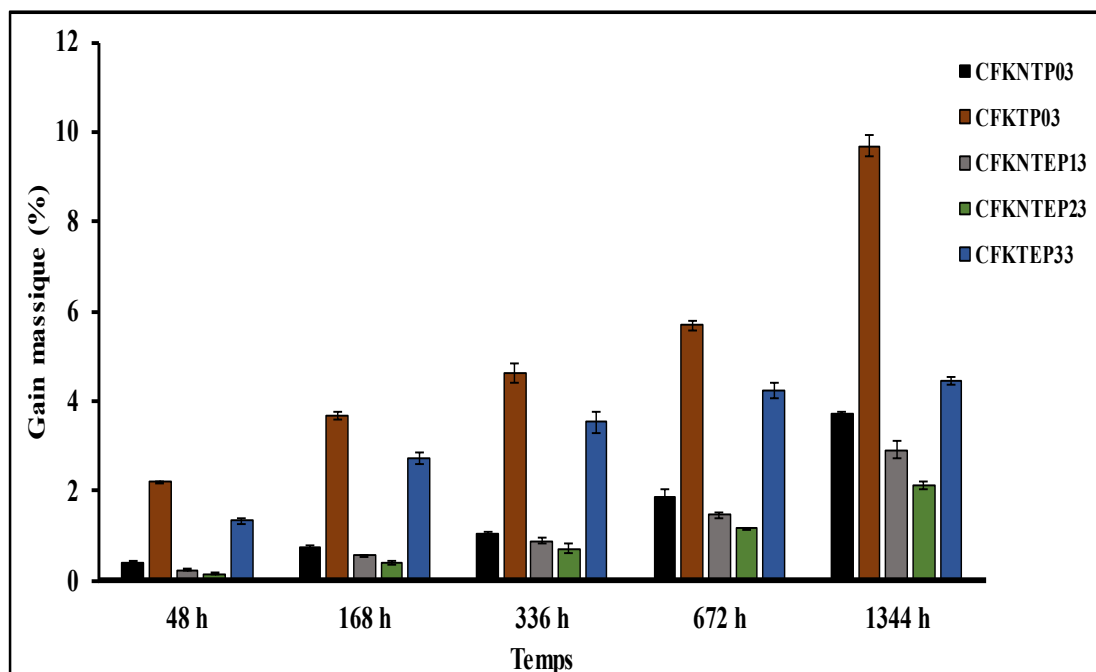


Figure 3.16 : Évolution du gain massique des différents types de composite à 50% de fibre kraft

### 3.3.3.1 Effet du traitement de fibre par glycérol

Les figures 3.11-3.16 ont montré que l'augmentation de la quantité de fibre traitée incorporée dans le PP présente une augmentation du gain en masse et en épaisseur. L'effet du traitement glycérol, est identifié par la comparaison du comportement hygroscopique des composites chargés par les fibres kraft modifiées chimiquement (traitées par glycérol) et ceux à base des fibres kraft non modifiées. Les résultats obtenus ont montré que cette catégorie est caractérisée par une grande sensibilité à l'humidité. Les gains massiques du mélange à 50% de fibre traitée par glycérol et celui à 50% de fibre non traitée ont atteint 9,68% et 3,72%, respectivement. De même pour les gains en épaisseurs, les échantillons chargés par des fibres traitées ont présenté des variations plus élevées de l'ordre de 4,46%.

La solution glycérol est riche en groupes hydroxyle ( $-OH$ ). L'utilisation de ce plastifiant pour le traitement de la charge lignocellulosique engendre l'accumulation des groupes hydroxyles ouverts qui ont tendance à se lier avec les molécules d'eau. Cette condition a prouvé que les mélanges chargés par des fibres plastifiées ont la capacité d'absorber plus d'eau que les autres échantillons. En outre, la plastification des fibres kraft par le glycérol a influé la morphologie de surface des composites et l'adhésion entre le renfort et la matrice. Les agglomérations de fibres ont provoqué la formation de plusieurs défauts dans la structure telles que les vides et les microfissures. À la lumière de ces propriétés, cette catégorie de composite a présenté une aptitude sensible au contact avec l'humidité. Ces résultats sont similaires à ceux publiés par Forssell et al., (1997), ils ont étudié l'effet de la teneur en glycérol sur le comportement hygroscopique des poudres amidon-glycérol mélangées à l'état fondu.

### **3.3.3.2 Effet de l'incorporation du MAPP et SEBS-MA sur la stabilité dimensionnelle**

Pour le PP et les mélanges PP/SEBS-MA (10% et 20% en masse), l'absorption d'eau est nulle en raison de la nature hydrophobe des thermoplastiques. L'évolution du gain en épaisseur et en masse en fonction du temps d'immersion pour les composites renforcés avec 30%, 40% et 50% (en masse) de fibre kraft et modifiés par 10% et 20% de SEBS-MA est illustrée par les figures 3.11-3.16.

Concernant ces échantillons, l'absorption d'eau s'est avérée augmenter proportionnellement avec le temps d'immersion. En comparant les composites standards (PP/fibre kraft/MAPP) et ceux qui contiennent de l'élastomère, il a été évident que l'addition de cette matière dans la formulation améliore la stabilité dimensionnelle après 1334 h d'immersion dans l'eau distillée. La nature d'interaction définie par l'enrobage de la fibre kraft avec le SEBS-MA a limité le contact entre les groupes hydroxyle qui ont la capacité de réagir avec les molécules H<sub>2</sub>O, réduisant ainsi la quantité d'eau absorbée et la variation d'épaisseur. L'élément élastique utilisé est constitué par plusieurs blocs chimiques. Les groupes maléiques modifiés à l'anhydride fournis par le SEBS-MA ont favorisé l'interaction et l'adhésion ce qui a limité la présence des fissures superficielles et les vides.

L'augmentation de la teneur en élastomère favorise la résistance des mélanges PP/fibre kraft contre la variation de l'humidité. Pour des échantillons à 50% de fibre et après 1334h d'immersion, le gain massique et en épaisseur sont réduits de 32% en augmentant le pourcentage du SEBS-MA de 10% à 20%.

L'addition du 3% de MAPP dans la formulation de tous les composites a eu un effet sur le comportement hydrophile des fibres lignocellulosiques. Il améliore la liaison interfaciale entre le renfort et la matrice et limite la pénétration de l'eau à travers l'interface, il peut également réduire l'hygroscopicité de la fibre kraft lorsqu'il réagit

avec les groupes hydroxyles (Joseph et al., 2002). Les mêmes interprétations sont partagées par Thwe et Liao (2002) dans leur travail où un agent de couplage modifié à l'anhydride maléique (MAPP) a été introduit dans un polymère renforcé par des fibres de bambou. Ils ont montré que l'absorption d'humidité par le composite due à l'immersion dans l'eau a diminué. Ceci peut être attribué à l'augmentation de l'adhérence interfaciale.

### **3.3.3.3 Effet de la combinaison du traitement de fibre et l'incorporation du SEBS-MA sur la stabilité dimensionnelle**

Comme il a été mentionné ci-dessus, l'utilisation des élastomères a diminué la quantité d'eau absorbée tandis que le traitement des fibres par glycérol a eu un effet réciproque. La combinaison de ces deux méthodes dans une même formulation a provoqué la création d'une aptitude intermédiaire. La comparaison des résultats obtenus a confirmé que cette catégorie de composite reste toujours sensible à la variation de l'humidité. Le phénomène d'encapsulation par le SEBS-MA a isolé partiellement les fibres traitées qui ont tendance d'absorbé de l'eau. Temporairement, l'encapsulation par élastomère a effectivement servi comme étant une barrière isolante de la diffusion d'humidité, mais le composite est toujours inévitablement perméable. Durant une longue période du temps, les molécules d'eau ont pénétré et ont été absorbées par la fibre kraft, causant le décollement, les microfissures et la délamination dans l'échantillon. Il semble que l'eau peut dégrader la liaison entre l'agent de couplage (MAPP) et les fibres kraft traitées par glycérol et faciliter la pénétration de l'eau à travers l'interface. Le traitement de fibres kraft par cette solution plastifiante n'a pas amélioré la durabilité des mélanges en altérant la liaison fibre/matrice et en créant les voies pour la pénétration de l'eau à cause de l'agglomération du renfort.

### **3.4 Études des propriétés thermiques**

Les propriétés thermiques des composites PP/fibres de bois/SEBS-MA/MAPP ont été étudiées par la TGA et la DSC. La stabilité thermique est évaluée par des courbes thermogravimétriques, en analysant les changements de la température de début de perte de masse. Toutes les courbes de TGA ont montré une tendance de perte de masse vers des températures plus basses lorsque la teneur en fibres augmente. Les résultats obtenus ont prouvé que l'incorporation d'un additif élastique a présenté une augmentation de la stabilité thermique. Les propriétés des échantillons étudiées par DSC permettent d'achever des indications sur la microstructure des composites, qui peut être directement liée aux propriétés mécaniques du matériau. L'addition du SEBS-MA a eu un effet sur la température de fusion de PP. Une légère variation de la température de cristallisation a été observée, ce qui est dû au fait que l'incorporation du SEBS-MA qui a limité les mouvements des chaînes de PP.

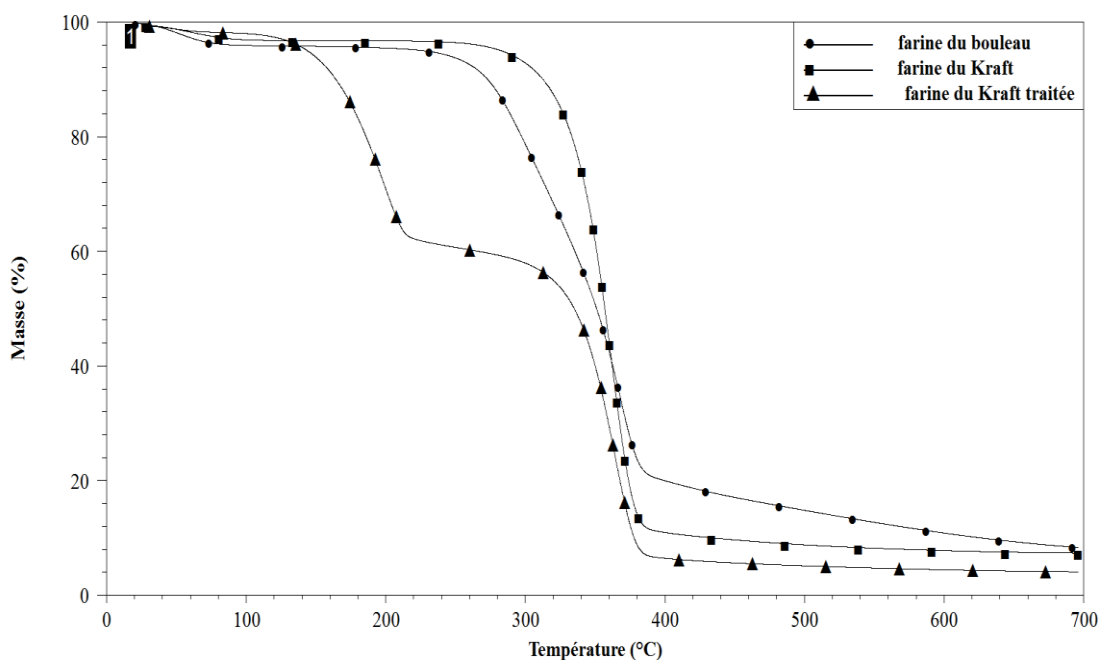
#### **3.4.1 Étude des propriétés thermiques par la thermogravimétrie**

##### **3.4.1.1 Propriétés thermiques des fibres exploitées**

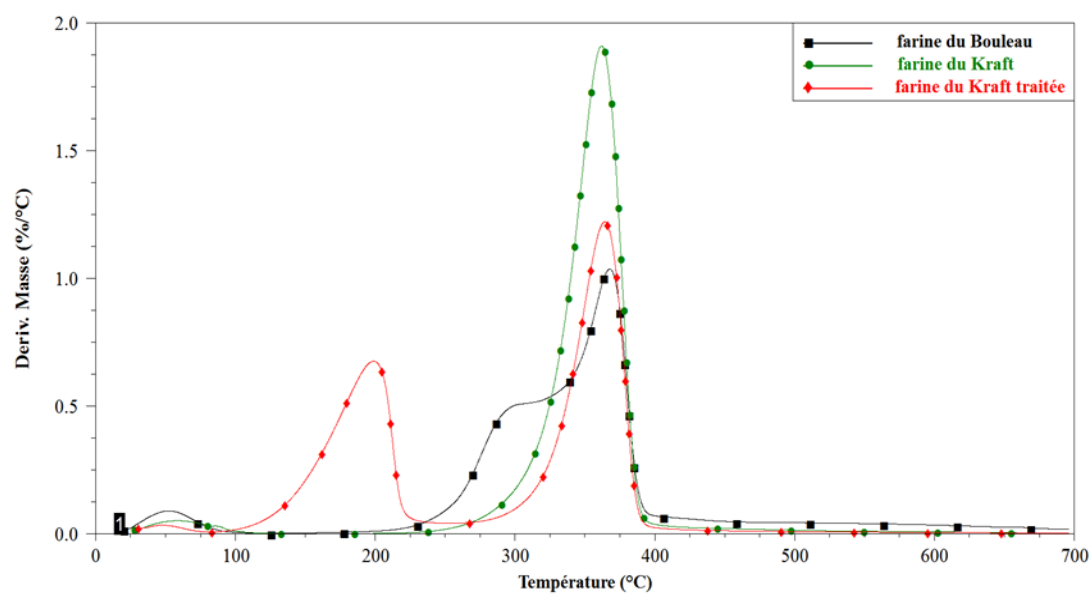
Dans cette partie la TGA est utilisée afin d'identifier l'effet de l'augmentation de température sur la structure des fibres de bois. La perte de masse n'augmente pas uniformément avec le temps ou avec l'augmentation de la température. Les annexes 4 et 5 ont montré que pour différentes températures (25°C, 50°C, 65°C et 80°C) et pendant les premières minutes, la perte de masse a été importante aux environs de 7%. Cette variation en masse est expliquée par le dégagement d'eau non liée (Zhang et al., 2005). À des températures légèrement supérieures à 100°C et inférieures à 200°C, la perte de masse pour les deux types de fibres devient presque constante, ce qui confirme que la plus grande partie de l'humidité peut être éliminée en moins de 8 minutes (Annexes 4 et 5). Pour les fibres de bouleau blanc, un peu plus de masse est dégradée avant 250°C en raison des hautes teneurs en composés volatils tels que la résine de bois et les produits d'extraction (Migneault et al., 2014). Le résultat obtenu

concorde avec d'autres travaux rapportés dans la littérature, Zhang et al., (2005) ont démontré que l'humidité des fibres lignocellulosiques est éliminée durant une courte durée, même à des températures relativement basses (150, 175°C). Aussi ils ont mentionné que pour des températures inférieures à 150°C, la dégradation des fibres est limitée et pour des températures supérieures à 225°C, des composants plus volatils sont libérés.

La figure 3.17 présente le comportement thermique des différentes fibres traitées par glycérol ou non traitées. Pour celles non traitées, il a été clair qu'à partir des températures supérieures à 250°C, les fibres de bois commencent à être sévèrement dégradées et la perte de masse augmente de nouveau à cause de la dévolatilisation et la dégradation thermique des différents composants. Des résultats de TGA similaires ont été rapportés dans plusieurs études (Rizvi et Park 2000, Rizvi et al., 2001, Rizvi et al., 2002). Généralement, la perte de masse des fibres lignocellulosiques par la dégradation thermique se produit en trois étapes distinctes, correspond aux trois composantes de base du bois. Kim et al., (2006) ont montré que la dégradation des hémicelluloses, de la lignine et de la cellulose s'est effectuée entre 180 et 350°C, 250 et 500°C, et 275 et 350°C, respectivement.



**Figure 3.17 : Analyses thermogravimétriques (TGA) de la farine de bouleau blanc, farine kraft et farine kraft traitée**



**Figure 3.18 : Courbes des dérivées thermogravimétriques (DTG) de la farine de bouleau blanc, farine kraft et farine kraft traitée**

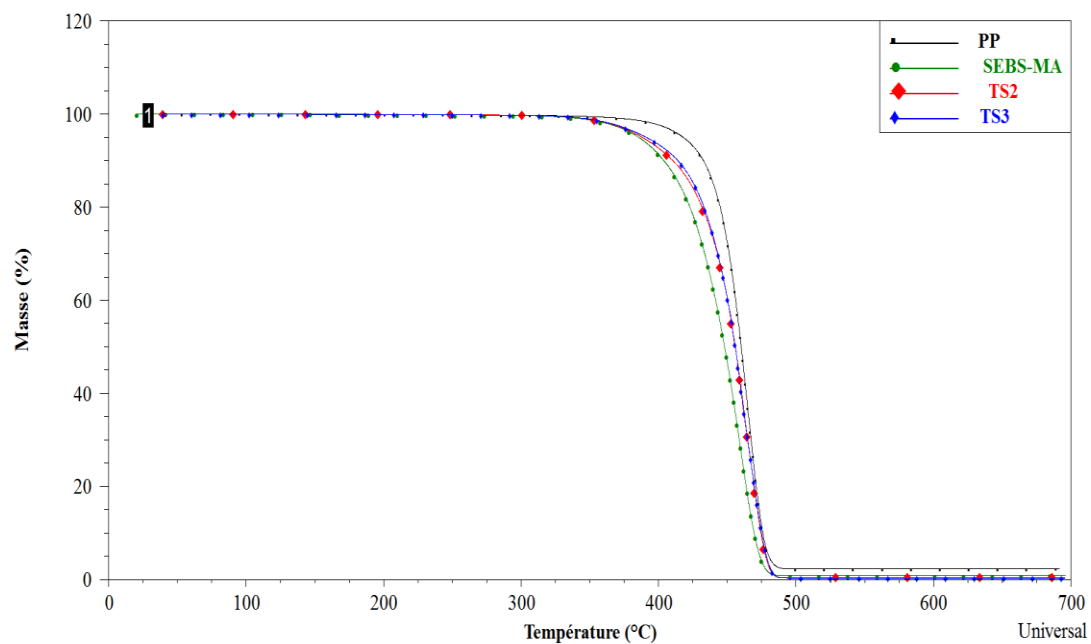
Les courbes des fibres de bouleau blanc et de kraft non traitée sont caractérisées par une large zone de pyrolyse. Cette étape prend lieu entre 260°C et 400°C, où les polymères du bois se décomposent (Migneault et al., 2014). La dégradation des fibres kraft commence à 275°C, 25°C de plus que les fibres bouleau blanc. Cette catégorie de fibre a déjà subi des traitements thermiques et chimiques durant les processus de mise en pâte. Elles sont caractérisées par une faible teneur en lignine et en hémicellulose, ce qui les rend plus stables thermiquement. Pendant la décomposition de la lignine, des liaisons relativement faibles se rompent à une température plus basse. Cependant, le clivage des liaisons plus fortes dans les cycles aromatiques se produit à une température plus élevée (Azwa et al., 2013). Pour une faible teneur en lignine, la dégradation commence à des températures plus élevées, mais les fibres n'ont pas la résistance à l'oxydation assurée par les anneaux aromatiques (Manfredi et al., 2006). Ce résultat est défendu par Migneault et al., (2014) qu'ont mentionné une variation remarquable pour le début de dégradations entre différents types de pâtes (TMP et kraft), les boues de désencrages et les fibres des bois.

Semblable à d'autres modes de traitement, la solution glycérol induit des variations remarquables pour le comportement thermique des fibres kraft. Les analyses appliquées ont montré que ces fibres peuvent subir des changements importants en raison du greffage partiel des groupements du glycérol sur leurs surfaces. La figure 3.17 présente l'effet du traitement glycérol sur la stabilité thermique des fibres kraft. Après la vaporisation d'eau, les fibres ont été dégradées selon deux étapes. La première a commencé à partir de 110°C jusqu'à 300°C, elle a correspondu à la déperdition du glycérol qui est caractérisé par une dégradation massive entre 135°C et 225°C. La seconde transition (la plage de température varie entre 300 et 400°C) est liée à la dégradation des substances cellulosiques (Azwa et al., 2013).

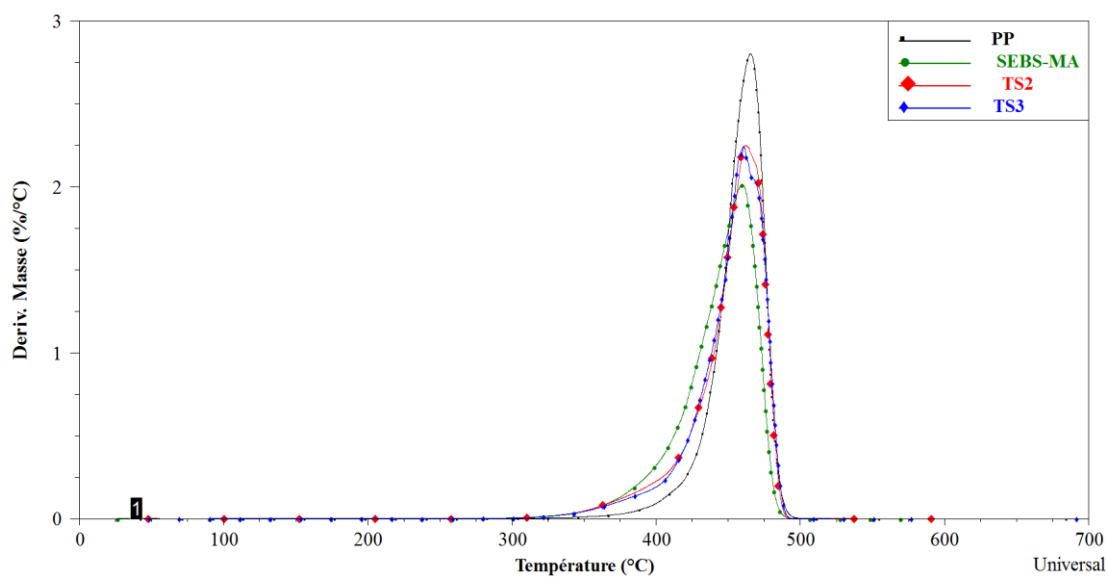
Les pics DTG correspondants sont de différentes largeurs. Cette variation est expliquée par la différence de la structure chimique et la quantité des diverses entités chimiques. Les composés volatils tels que les extractibles se décomposent à des températures variant de 20 à 100°C, avec un pic de 70°C. Concernant les fibres du bouleau blanc, la dégradation des hémicelluloses a eu lieu entre 260 et 310°C, avec un maximum de pic aux environs de 295°C. La thermogravimétrie différentielle des fibres kraft ne présente pas des pics pour l'hémicellulose, cette faible teneur les rend plus résistantes à l'augmentation de la température. La décomposition de la cellulose se diffère selon le type de fibre, elle varie entre 250 et 400°C pour les fibres kraft avec un maximum de pic égal à 250°C et de 325 à 400°C pour les fibres bouleau blanc, en gardant le même maximum du pic. Ces résultats concordent avec ceux du Migneault et al., (2014) qui ont montré que les fibres bouleau blanc et la pâte kraft sont constituées par des teneurs en cellulose, hémicellulose et lignine différentes. La variation de la forme et la position des pics d'une fibre à une autre confirment que les fibres exploitées dans cette étude n'ont pas présenté la même sensibilité thermique (Wolcott et Englund 1999).

#### **3.4.1.2 Propriétés thermiques des mélanges thermoplastiques PP/SEBS-MA**

Le comportement thermique des élastomères est similaire à celui des thermoplastiques. L'incorporation de cette matière dans le polypropylène se manifeste par la création d'un matériau à une attitude intermédiaire. L'exploitation de ce mélange (PP/SEBS-MA) dans certaines applications doit être confirmée par des études de TGA afin d'évaluer le mode de dégradation et les produits dégagés par l'augmentation de température. La perte de masse en fonction de la température (TGA) et leurs thermogrammes dérivés (DTG) pour PP, SEBS-MA, TS2 et TS3 ont été présentés par les figures 3.19 et 3.20.



**Figure 3.19 : Analyse thermogravimétrique (TGA) du PP vierge, SEBS-MA et les mélanges PP/SEBS-MA**



**Figure 3.20 : Courbes des dérivées thermogravimétriques (DTG) du PP vierge, SEBS-MA et les mélanges PP/SEBS-MA**

La stabilité thermique a été évaluée en analysant les changements de la température de début et de fin de perte. Les paramètres de dégradation thermique des composites TS2 et TS3 sont listés dans le tableau 3.3, avec ceux des thermoplastiques correspondants.

**Tableau 3.3 : Propriétés thermiques des thermoplastiques utilisés.**

	T <sub>d</sub> (°C)	T <sub>f</sub> (°C)	T <sub>DTG max</sub>	Perte (%)
<b>PP</b>	435,06	477,19	465,38	97,43
<b>SEBS-MA</b>	408,08	473,04	460,08	98,91
<b>TS2</b>	424,01	478,27	462,42	99,38
<b>TS3</b>	422,92	478,69	460,57	99,38

T<sub>d</sub> : Température de début de la dégradation ; T<sub>f</sub> : Température de fin de la dégradation ; T<sub>DTG max</sub> : Température du pic maximal

Les résultats obtenus ont montré que le PP est plus stable que le SEBS-MA. Le début de dégradation du PP a eu lieu en retard d'environ 27°C par rapport au SEBS-MA. Ceci se justifie par la différence de la composition chimique des deux matériaux, surtout l'existence des composantes plus sensibles à l'augmentation de la température telles que l'éthylène et le butadiène dans la formulation du SEBS-MA. Selon les pics de la thermogravimétrie différentielle (DTG) (figure 3.15), la décomposition thermique du PP, SEBS-MA, TS2 et TS3 peuvent être décrites par une réaction en seule étape (Migneault et al., 2014).

Les courbes thermogravimétriques des mélanges TS2 et TS3 sont presque coïncidentes, montrant un seul processus de perte de masse et commençant à environ 424°C sous l'atmosphère d'azote. La variation de la teneur en SEBS-MA de 10 à 20% n'a pas présenté un effet visible sur le comportement thermique des mélanges préparés.

Les figures 3.18 et 3.20 ont indiqué que les pics DTG des fibres sont plus larges que ceux des thermoplastiques utilisés. Cette variation est expliquée par la différence de

la composition chimique entre les fibres et les thermoplastiques. Il a été évident que les renforts lignocellulosiques sont formés par plusieurs polymères avec des températures de dégradation disjointes (Bouafif et al., 2009, Migneault et al., 2014) tandis que le PP et le SEBS-MA ont un seul groupement chimique qui se répète.

### 3.4.1.3 Étude du comportement thermique des composites élaborés

Les paramètres primordiaux étudiés par l'analyse thermogravimétrique (TGA) des divers composites sont répertoriés dans le tableau 3.4.

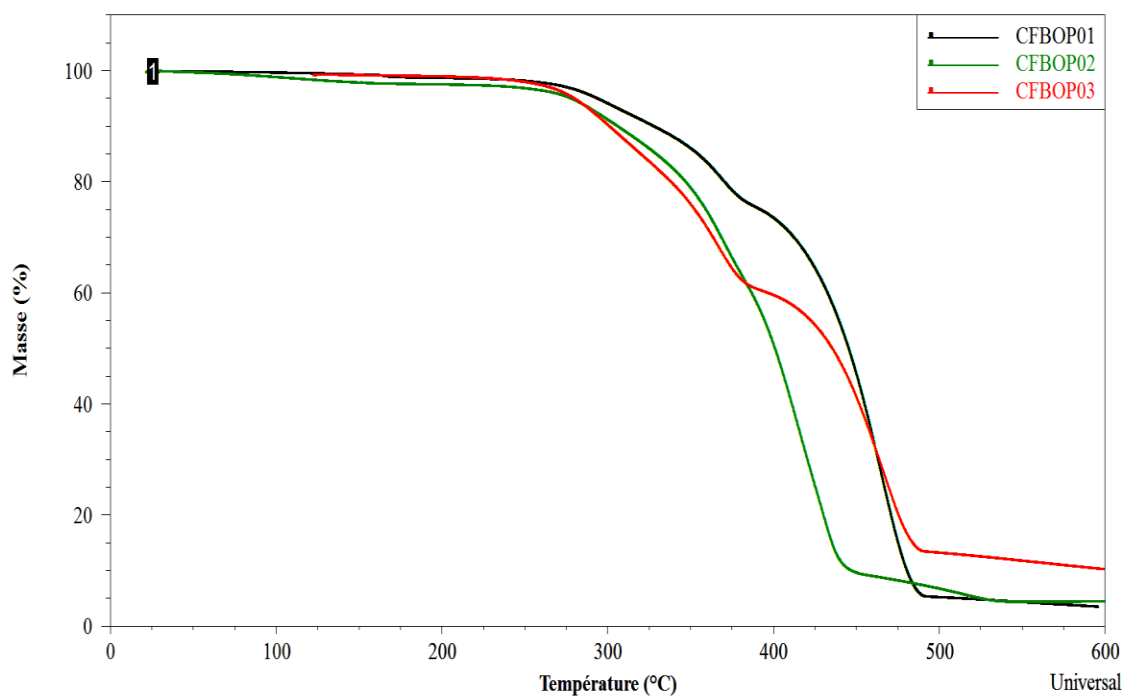
**Tableau 3. 4 : Propriétés thermiques des composites**

Code	T <sub>d</sub> (°C)	T <sub>f</sub> (°C)	PM (%)	R <sub>T600(°C)</sub> (%)
CFBOP01	276,58	482,27	93,29	3,70
CFBOP02	274,03	439,6	92,95	4,60
CFBOP03	273,06	482,36	85,84	10,44
CFKNTP01	316,89	483,47	96,34	3,76
CFKNTP02	313,04	486,02	93,48	5,51
CFKNTP03	302,33	399,81	92,45	4,7
CFKTP01	244,04	479,26	94,7	0,72
CFKTP02	235,74	476,99	93,74	1,12
CFKTP03	186,73	477,40	95,41	2,17
CFKNTEP11	316,72	475,8	95,98	2,20
CFKNTEP12	309,78	481,77	94,86	4,50
CFKNTEP13	300,78	482,01	93,15	5,81
CFKNTEP21	317,66	477,35	96,3	2,33
CFKNTEP22	308,48	472,24	93,92	3,27
CFKNTEP23	307,02	478,82	92,61	5,53
CFKTEP31	253,64	478,11	95,12	0,66
CFKTEP32	253,08	480,39	93,24	1,50
CFKTEP33	257,81	479,83	92,39	1,61

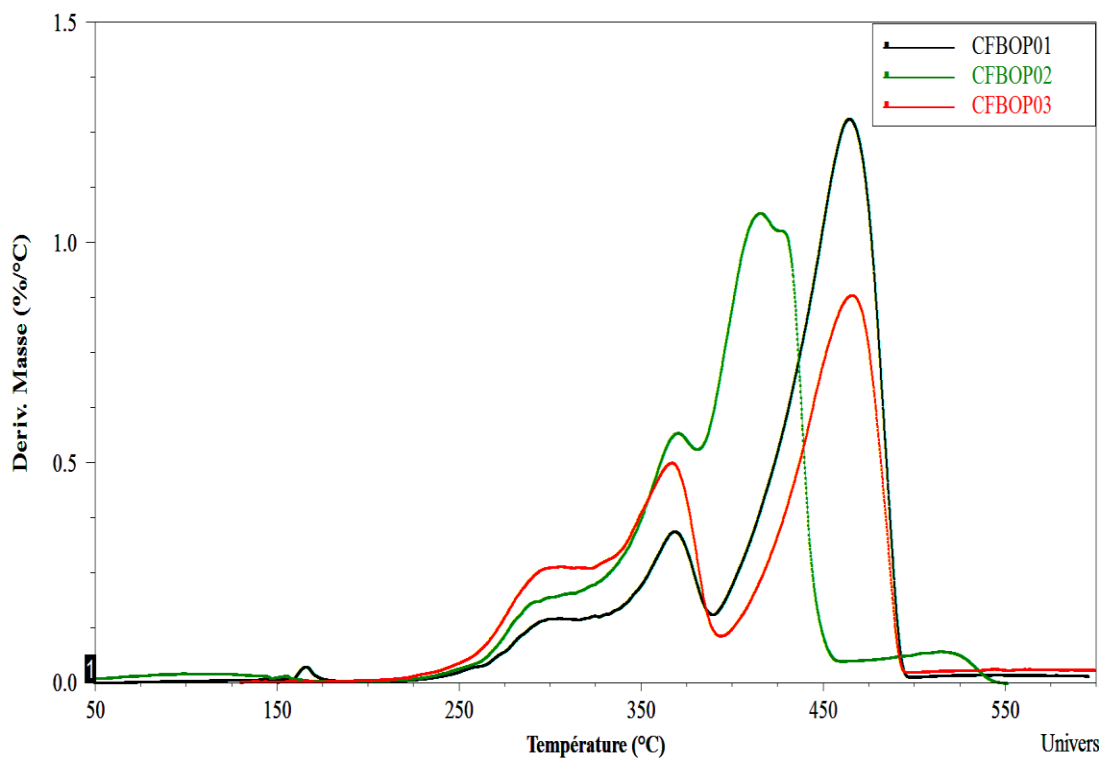
T<sub>d</sub> : Température de début de la dégradation ; T<sub>f</sub> : Température de fin de la dégradation ; PM : Perte de masse entre T<sub>d</sub> et T<sub>f</sub> ; R<sub>T600°C</sub> : Masse résiduelle à 600°C.

### 3.4.1.3.1 Étude du comportement thermique des composites PP/fibre bouleau blanc/MAPP

Les figures 3.21 et 3.22 présentent les courbes TGA et DTG des composites élaborés par des fibres bouleau blanc. La variation des pourcentages des renforts incorporés a été à l'origine de la différence des comportements thermiques des mélanges et leurs modes de réaction suite à l'augmentation de la température. Les thermogrammes n'ont enregistré aucune perte de masse significative à 100°C, liée à l'évaporation de l'humidité.



**Figure 3.21 : Analyse thermogravimétrique des mélanges PP/Fibre bouleau blanc/ MAPP à différentes teneurs en fibre**



**Figure 3.22 : Courbes des dérivées thermogravimétriques (DTG) des mélanges PP/Fibre bouleau blanc/MAPP à différentes teneurs en fibre**

Les profils de décomposition des composites PP/fibres bouleau blanc/MAPP sont caractérisés par trois stades de dégradation. Le premier a été identique pour les trois formulations, il est attribué à la dégradation de l'hémicellulose et la lignine (Kim et al., 2006). La deuxième étape a correspondu aussi à la dégradation des composants du bois (dégradation de la lignine et la cellulose), elle a commencé à 274°C. La dernière étape de dégradation est équivalente à la décomposition du PP et le reste des fibres de bois, elle a eu lieu à 480°C. Le pic correspondant à cette dégradation est très prononcé pour les composites CFBOP01 qui contiennent plus de PP. Le même mode de dégradation a été également rapporté pour d'autres polymères renforcés par des fibres lignocellulosiques (Srebrenkoska et al., 2008, Rosa et al., 2009).

En général, toutes les traces de TGA ont montré un déplacement de la perte de masse vers des températures plus basses comme le pourcentage de fibre a augmenté. À 50% de fibres, la dégradation thermique du composite a débuté aux environs de 273°C et la perte de masse s'est poursuivie avec une vitesse plus élevée que celle des composites à 30 et 40% de fibre. Les paramètres illustrés dans le tableau 3.4 ont mentionné que l'ajout de fibres a marginalement diminué les températures de début et de fin de la décomposition et a augmenté la masse résiduelle mesurée à 600°C. Les résultats obtenus sont conformes à ceux trouvés par Wielage et al., (1999), ils ont montré que les taux de décomposition sont devenus plus importants lors de l'ajout des fibres naturelles à la matrice PP.

Concernant l'effet de l'incorporation des fibres sur les propriétés thermiques du PP, il a été clair que les températures de début et fin de dégradation ont eu une diminution remarquable. En effet, l'addition des particules de bois a réduit la stabilité thermique de la matrice polymérique (Olsson et Salmén 2004, Beckermann et Pickering 2008). Ceci s'explique par les forces de cisaillement et de frottement élevées subies par les composites lors du mélange (système discontinu), qui produisent une rupture dans la chaîne du polymère et entraînant une diminution de la stabilité thermique (Dahiya et Rana 2004, George et al., 2012).

#### *3.4.1.3.2 Étude du comportement thermique des composites PP/fibre kraft/MAPP*

Les caractéristiques thermogravimétriques des composites PP/fibre kraft/MAPP peuvent être quantifiées par plusieurs paramètres, liés aux plages de température des différentes étapes de dégradation. Les annexe 7 et 8 présentent le comportement thermique des composites chargés par des fibres kraft à différents rapports massiques (67/30/3, 57/40/3, 47/50/3).

Les données du tableau 3.4 ont montré deux étapes de perte de masse pour les composites élaborés. Contrairement au PP vierge, dont le processus de décomposition a présenté une unique dégradation, la décomposition des composites PP/fibre

kraft/MAPP se fait en deux stades, 315-386°C et 393-514°C, enregistrant des pertes massiques de 2 à 3% et de 93 à 95%, respectivement.

Les masses résiduelles à 600°C pour les trois mélanges sont respectivement 3,71%, 5,51% et 4,7% alors qu'elle est à l'environ de 0,4% pour le PP pur. Cela peut être expliqué par la faible température de dégradation thermique des fibres kraft. Cependant, cette étude a confirmé que la résistance thermique des composites contenant des fibres kraft est supérieure à celle du PP pur. La présente constatation semble être en accord avec celle rapportée par Averous et Boquillon (2004) qui ont trouvé que l'ajout de la charge cellulosique a amélioré la résistance thermique des bio-composites.

L'annexe 7 illustre les différents pics correspondant à toutes les dégradations qui ont eu lieu. Les courbes des divers composites sont constituées par deux pics de différentes largeurs. Ces pics correspondent à la dégradation de la cellulose et le polymère (PP). Pour les composites chargés par 30 et 40 % de fibre, les allures des courbes sont proches et la dégradation s'effectue de la même façon. Les légères variations sont dues à la différence des teneurs des différentes matières. Le pic correspondant à la dégradation de la cellulose est plus étroit pour les mélanges à 30% de fibre que ceux à 40%. La formulation à haute teneur en fibre (50% en masse) présente deux pics d'air similaires. Ceci est justifié par l'égalité des pourcentages de chaque matière dans le mélange. Le pic correspondant à la dégradation du PP présente une petite poche avant d'atteindre le maximum, cette forme peut être attribuée à la dégradation du MAPP. Il est caractérisé par une résistance thermique plus faible que le polypropylène et supérieure à celle des fibres lignocellulosiques. L'effet de l'agent de compatibilité sur le comportement thermique est plus prononcé pour les composites à haute teneur en fibre.

#### *3.4.1.3.3 Effet du traitement des fibres kraft par glycérol sur le comportement thermique des composites*

Les courbes TGA des composites PP/fibre kraft traitée/MAPP sont représentées par les annexes 9 et 10. Comme il a été constaté avec les composites chargés par des fibres kraft non traitées, la perte de masse due à la dégradation thermique s'est produite en deux étapes distinctes. Cependant, une autre étape supplémentaire est observée au début de la caractérisation, entre 180 et 220°C qui correspond à la décomposition du glycérol. La caractérisation de cette solution par thermogravimétrie (Annexe 6), a montré que la dégradation a eu lieu entre 180 et 240°C. La deuxième et la troisième dégradation peuvent être attribuées respectivement à la décomposition de cellulose (Kim et al., 2006, Shebani et al., 2009) et à la dégradation des liaisons C-C de la matrice thermoplastique (PP).

Les températures de début et fin dégradation des composites CFKTP sont illustrées dans le tableau 3.4. Les mélanges contenant 50% de fibre ont commencé à se dégrader à 186,73°C alors que les autres à base de 30% et 40% de fibre ont eu une dégradation à des températures plus importantes, 244,1 et 235,7°C, respectivement. Par conséquent, les mélanges chargés par la faible teneur en fibre traitée sont légèrement plus stables thermiquement que les autres.

Les courbes du dérivé de masse sont constituées par trois pics de différents largeurs. L'allure du pic correspondant à la dégradation du glycérol est identique pour les différentes formulations, confirmant l'application de même condition de traitement sur toutes les fibres. La variation des quantités des diverses composantes (PP, fibre kraft traitée et MAPP) se manifeste par l'altération des formes des pics. Pour une charge en fibre kraft de 50%, la courbe DTG a montré trois pics différents. La première dégradation correspond au glycérol représentée par un maximum à 250°C. Un large pic à 362°C pour la dégradation de la matière cellulosique dû au clivage des unités glucosidiques, tandis que la décomposition du (-C-C-) a eu lieu avec un

maximum de pic à 463°C. L'augmentation de la teneur en fibre traitée est qualifiée par une baisse des températures de dégradation accompagnée d'une perte de masse plus importante. Ceci indique une meilleure interaction entre les composants du mélange. Ces résultats concordent avec ceux de Sailaja et al., (2008) qui ont étudié l'effet du traitement glycérol sur la dégradation des composites PP/fibre de soja, ils ont constaté que la dégradation s'effectue en trois étapes. La première étape vers 155°C est due à la décomposition du plastifiant (glycérol). La seconde étape à 310°C due à la décomposition de FS (Fibre de Soja), tandis que la troisième étape à 460°C est attribuée à la dégradation de PP.

#### *3.4.1.3.4 Effet de l'incorporation d'un additif élastique (SEBS-MA) sur le comportement thermique des composites PP/fibres kraft*

Les courbes TGA et celles des DTG des composites à 10% et 20% de SEBS-MA sont montrées sur les annexes 11-14. Les graphiques obtenus n'ont pas enregistré des pertes remarquables à 100°C, à cause du séchage des fibres avant l'extrusion. En général, toutes les traces de TGA montrent un déplacement de la perte de masse vers des températures plus basses suite à l'augmentation de la teneur en fibre.

Les courbes TGA ont clarifié deux régions distinctes de perte de masse qui sont reflétées par deux pics (maximum) en DTG impliquant qu'au moins deux stades de dégradation se produisent dans le mélange. La dégradation initiale au stade I résulte principalement la décomposition des fibres kraft, tandis que la phase II est due à la combinaison PP/SEBS-MA. Il a été clairement observé, à partir des paramètres calculés, que la dégradation des échantillons se déplace vers une température plus faible lorsque la charge en fibre kraft augmente. L'ajout du SEBS-MA au composite ne présente pas un effet significatif sur la première étape de la décomposition. Pour les composites à 30 % de fibre, en ajoutant 10 % du SEBS-MA, la température de début de dégradation ne varie pas d'une façon remarquable. Elle a augmenté de 316°C pour les composites sans élastomère à 316,72°C. Les mêmes interprétations

restent valables pour les composites à 40% et 50% de fibre. La variation de la teneur en SEBS-MA de 10% à 20% se manifeste par la fluctuation des paramètres de dégradation. Cette variation peut être justifiée par la nature d'interaction entre les différents blocs constitutifs du SEBS-MA et les fibres kraft. Les fibres enrobées par cet additif deviennent plus stables thermiquement. En effet, l'intervalle de température pour la première étape de décomposition ne correspond pas seulement à la décomposition de la fibre kraft, mais est également typique pour la dégradation du PP. Le tableau 3.5 résume les caractéristiques des deux étapes de décomposition.

L'augmentation de la teneur en élastomère dans les formulations étudiées présente une diminution de la température de début de dégradation des fibres. La perte de masse entre le début et la fin de dégradation est devenue plus importante que celle des composites à 10% de SEBS-MA. Ces deux constatations justifient la meilleure interaction chimique entre les différents composants.

#### *3.4.1.3.4 Effet de l'incorporation d'un additif élastique (SEBS-MA) sur le comportement thermique des composites PP/fibres kraft traitées par glycérol*

Semblable à d'autres solutions plastifiantes, le traitement des fibres kraft par glycérol induit la variation des propriétés de la chimie de surface. L'utilisation de TGA a montré que l'incorporation de ces fibres traitées dans un système bi-matrice PP/SEBS-MA est spécifiée par des changements importants en raison de l'interaction chimique entre les différentes matières. Les annexes 15 et 16 présentent les analyses TGA et DTG des composites PP/SEBS-MA/fibres kraft traitées. Les courbes obtenues ont montré que la décomposition des fibres a commencé à environ 150°C. Cette perte de masse correspond à l'évaporation de la quantité d'eau ajoutée durant la procédure du traitement. Les composites se dégradent en trois étapes différentes. Le tableau 3.6 illustre les diverses températures de dégradation maximale ainsi les pertes de masse équivalentes ( $T_{DTG \max}$  : température correspondante au maximum du pic).

**Tableau 3.5 : Effet de l'incorporation du SEBS-MA sur les propriétés thermiques des composites**

<b>Mélange</b>	<b>T<sub>DTG max</sub> 1<sup>ère</sup> décomposition</b>	<b>Perte de masse 1<sup>ère</sup> décomposition (%)</b>	<b>T<sub>DTG max</sub> 2<sup>ème</sup> décomposition</b>	<b>Perte de masse 2<sup>ère</sup> décomposition (%)</b>
<b>CFKNTEP11</b>	351,3	19,7	457,9	54,1
<b>CFKNTEP12</b>	351,5	22,2	467,1	46,1
<b>CFKNTEP13</b>	349,8	35,7	467,2	43,6
<b>CFKNTEP21</b>	350,7	21,5	461,7	64,6
<b>CFKNTEP22</b>	351,6	30,5	461,8	57,1
<b>CFKNTEP23</b>	348,5	30,8	464,7	53,2

**Tableau 3. 6 : Effet de l'incorporation du SEBS-MA sur les propriétés thermiques des composites chargés par des fibres traitées**

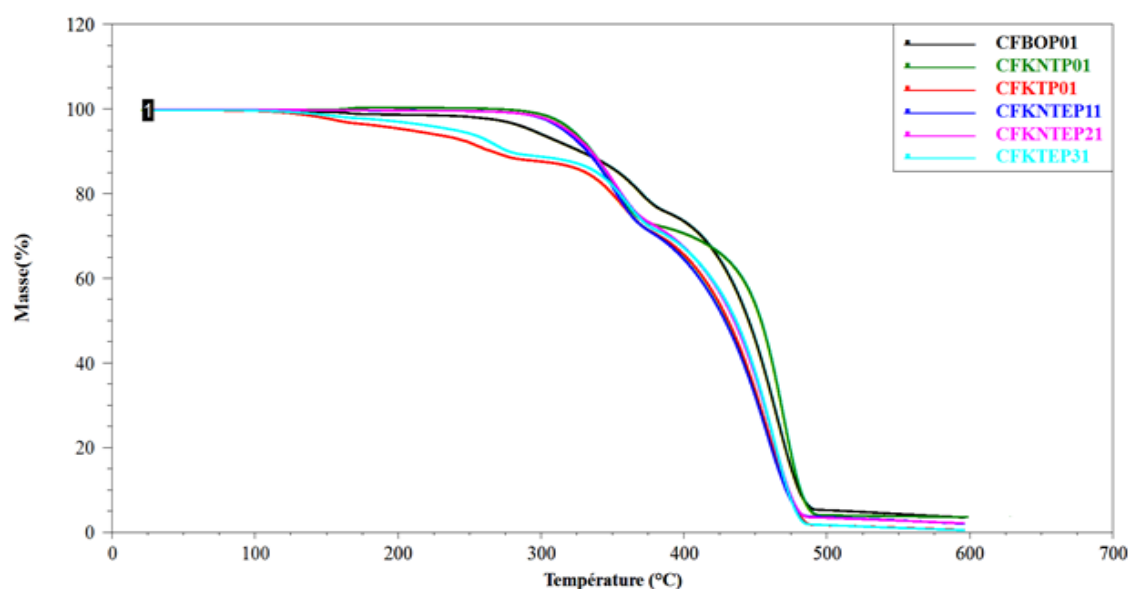
Mélange	T <sub>DTG max</sub> 1 <sup>ere</sup> décomposition	Perte de masse 1 <sup>ere</sup> décomposition (%)	T <sub>DTG max</sub> 2 <sup>ème</sup> décomposition	Perte de masse 2 <sup>ere</sup> décomposition (%)	T <sub>DTG max</sub> 3 <sup>ere</sup> décomposition	Perte de masse 3 <sup>ere</sup> décomposition (%)
CFKTEP31	267,8	9,9	359,2	17,2	463	70,3
CFKTEP32	263,7	12,9	357,4	20,5	465,5	63,5
CFKTEP33	267,2	17,3	357,6	25,6	464,6	54,6

La première étape de dégradation est présentée par une perte de masse d'environ 10% à une température maximale de 100°C. Elle correspond au dégagement total de l'eau distillée utilisée durant le traitement et à la dégradation du glycérol. La dégradation des fibres kraft est établie dans une deuxième décomposition, entre 200 et 400°C. Elle désigne le stade majeur pour les composites chargés par haute teneur en fibre. Une troisième étape est détectée à partir de 400°C, représente la dégradation des thermoplastiques utilisés (PP/SEBS-MA). Généralement la dégradation de deux matières différentes s'effectue selon deux stades. Néanmoins, la décomposition du PP et SEBS-MA se manifeste par un seul pic. Ça peut être justifiée probablement par l'amélioration de la dispersion des particules d'élastomère (SEBS-MA) dans la matrice (PP) suite à la préparation des granules constituées par PP/SEBS-MA avant l'incorporation de la matière lignocellulosique. Finalement, une dernière dégradation a eu lieu au-dessus de 500°C. Elle correspond à la formation des résidus des plastiques. Ces résultats concorde avec celles du Yucheng (2008) et Ait-kheddach (2013), les deux chercheurs ont mentionné que la dégradation thermique des fibres de bois débute à 250°C.

#### *3.4.1.3.5 Comparaison entre les différents comportements thermiques des composites*

Dans cette partie, on a envisagé les diverses causes de la variation du comportement thermique des composites élaborés. L'incorporation des fibres de différentes essences (feuillus ou résineux) ou mode d'élaboration (pâte kraft, CTMP) dans une matrice polymérique présente un écart vif au niveau des propriétés thermiques des produits finis. Le traitement du renfort lignocellulosique par des solutions chimiques (acide, base, plastifiante...) contribue à un changement fluctuant au niveau de la résistance à la chaleur. Les additifs exploités dans le domaine des composites bois-polymère sont classés selon plusieurs catégories. La nature de la liaison chimique créée entre la fibre et le polymère suite à l'incorporation de ces matériaux, participe à la variation du comportement thermique des mélanges en les comparant à d'autres conventionnels. En effet plusieurs agents de couplage font des sujets de recherche afin d'améliorer la

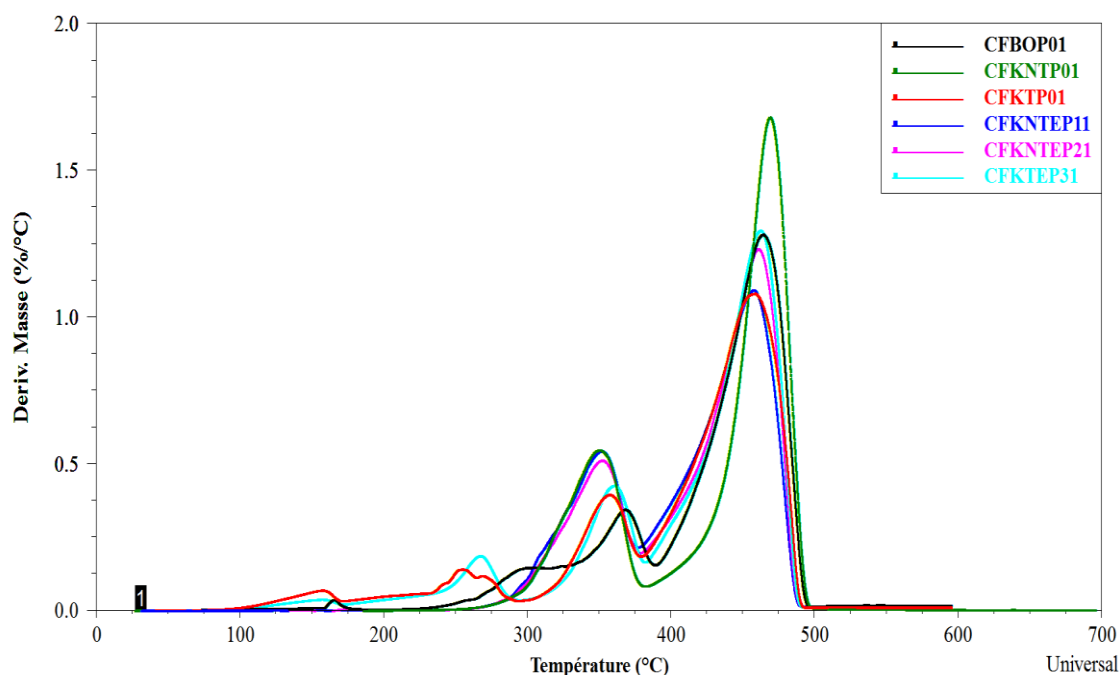
résistance au feu, les paramètres de dégradation thermique ainsi que les propriétés mécaniques (Hadidane 2015). Les figures 3.23 et 3.24 illustrent le comportement thermique des différents types de composite à 30% de fibre.



**Figure 3. 23 : Analyse thermogravimétrique des différents types de mélange à 30% de fibre**

Les composites chargés par des fibres bouleau blanc et ceux par des fibres kraft ne présentent pas le même comportement thermique. La dégradation thermique des échantillons contenant des fibres bouleau blanc a commencé à environ 276°C, cependant, la dégradation thermique des autres chargés par les fibres kraft a débuté à 316°C. Les composites PP/fibre bouleau blanc se dégradent à des températures plus basses en raison de la présence des constituants thermiquement instables tels que les hémicelluloses et les pectines, tandis que les composites PP/fibre kraft sont plus stables suite à l'élimination de ces composantes. Différentes études ont partagé des résultats similaires concernant l'effet des différentes entités chimiques de la fibre lignocellulosique sur le comportement thermique des composites. Beckermann et Pickering (2008) ont identifié la variation des paramètres de dégradation suite à

l'incorporation des fibres de chanvre non traitées et d'autres traitées par la solution NaOH dans une matrice PP.



**Figure 3. 24 : Courbes des dérivées thermogravimétriques (DTG) des différents types de mélanges a 30% de fibre**

Ils ont montré que l'extraction des extractibles, l'hémicellulose et la matière volatile par des solutions chimiques a rendu les composites plus stables thermiquement. De même Beg et Pickering (2008) ont mené une étude sur la stabilité thermique des composites armés par des fibres blanchies telles que les fibres kraft et d'autres non blanchies présentant les mêmes interprétations. Les teneurs résiduelles en lignine et en hémicellulose diminuent avec cette modification, ce qui améliore la stabilité thermique. En outre, les composites PP/bouleau blanc présentent une grande quantité de résidus ( $R_{T600}$ ) en raison de la haute teneur en lignine qui se transforme en charbon à la fin de la dégradation.

À des températures avoisinant les 244°C, les échantillons chargés par les fibres kraft traitées avec le glycérol commencent à se dégrader. Ce phénomène a eu lieu suite à la

dégradation de la solution plastifiante utilisée (glycérol) qui est sensible à l'augmentation de la température. En comparant les comportements thermiques des composites chargés par les fibres kraft traitées et ceux chargés par des fibres non traitées, on remarque que le traitement du renfort par un plastifiant conduit à la diminution de la température de début de dégradation. Malgré la dégradation du glycérol en premier stade, une quantité supplémentaire reste greffée sur la surface des fibres en raison de la haute viscosité de cette solution. Cette condition exige une température plus importante afin d'avoir la dégradation de la cellulose. Cela a été confirmé par l'analyse des thermogrammes obtenus, la décomposition des celluloses commence à l'environ de 317°C pour les mélanges à base des fibres non traitées alors qu'elle est de l'ordre de 331°C pour ceux à base des fibres traitées. Ces observations sont en accord avec d'autres projets où la matière lignocellulosique est traitée par des solutions de retardement de feu ou des revêtements ignifuges (Méziane 2011, Matouk 2012).

Les modificateurs d'impact tel que le SEBS-MA peuvent affecter la morphologie du PP chargé par des fibres lignocellulosiques selon trois manières différentes: (I) la phase élastomère peut exister en tant que troisième phase séparée dans la matrice PP, (II) l'élastomère peut encapsuler partiellement ou complètement la charge (former une interphase), ou (III) une condition mixte de (I) et (II) (Oksman et Clemons 1998). L'étude de la morphologie par le MEB a montré que l'incorporation du SEBS-MA dans les formulations entraîne l'enrobage des fibres kraft. Cette condition se concorde avec la deuxième hypothèse citée ci-dessus, elle induit des fibres revêtues par une matière plus résistante à l'augmentation de température que la fibre même. L'effet de l'élastomère sur le comportement thermique des composites PP/fibre kraft/MAPP se présente par une variation au niveau de la température de première dégradation. La décomposition des échantillons contenant du SEBS-MA débute à l'environ de 318°C et supérieure à celle des mélanges non chargés par l'élastomère. La création d'une couche autour de la fibre par le modificateur d'impact (SEBS-MA) élimine les vides

entre la matrice thermoplastique et la matière lignocellulosique et rendre le composite plus stable thermiquement.

La variation de la teneur en élastomère présente un faible impact sur le comportement thermique. Une faible augmentation de la température de dégradation a été détectée suite à l'augmentation de la teneur en SEBS-MA de 10% à 20%. L'effet de l'élastomère est limité malgré l'intensification du pourcentage dans les formulations préparées. L'encapsulation de la charge reste partielle et ça demande une quantité plus importante pour observer une amélioration plus importante. Plusieurs recherches ont recommandé l'incorporation d'une quantité de charge inorganique pour améliorer de plus le comportement thermique des élastomères thermoplastiques (Paglicawan et al., 2010).

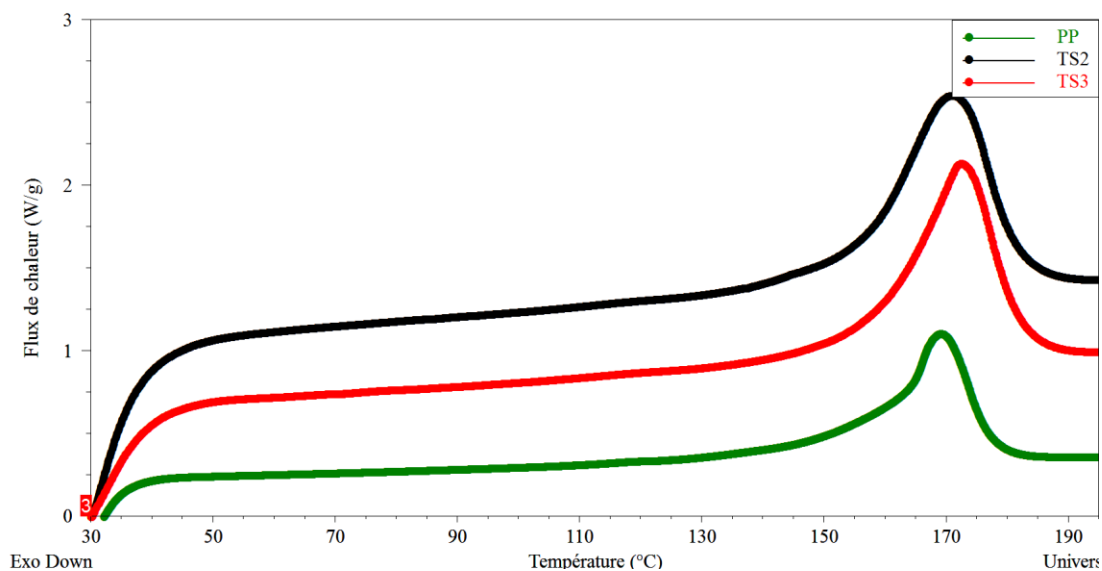
Concernant les composites à base des fibres traitées par glycérol et chargés par l'élastomère, on a constaté que le comportement thermique se diffère par rapport aux autres à base des fibres kraft non traitée et chargé par 20% du SEBS-MA. Il a été évident que l'addition d'une quantité du SEBS-MA provoque une amélioration significative au niveau de la dégradation du glycérol suite à l'enrobage des fibres traitées. L'utilisation d'une matière élastique modifiée à l'anhydride tel que le SEBS-MA, contribue à une bonne adhérence entre les surfaces des différentes composantes. Le SEBS-MA a formé une interphase entre la farine de bois et le polypropylène, l'addition du MAPP dans la même formulation rend l'adhérence est encore plus forte (Oksman et Clemons 1997). Ces conditions sont à l'origine de la réduction de la dégradation du glycérol durant les opérations d'extrusion et d'injection. Les mêmes interprétations sont valables pour la comparaison des différents composites à 40% et 50% de fibres (Annexe 17-20).

### **3.4.2 Étude des propriétés thermiques par analyse calorimétrique différentielle à balayage**

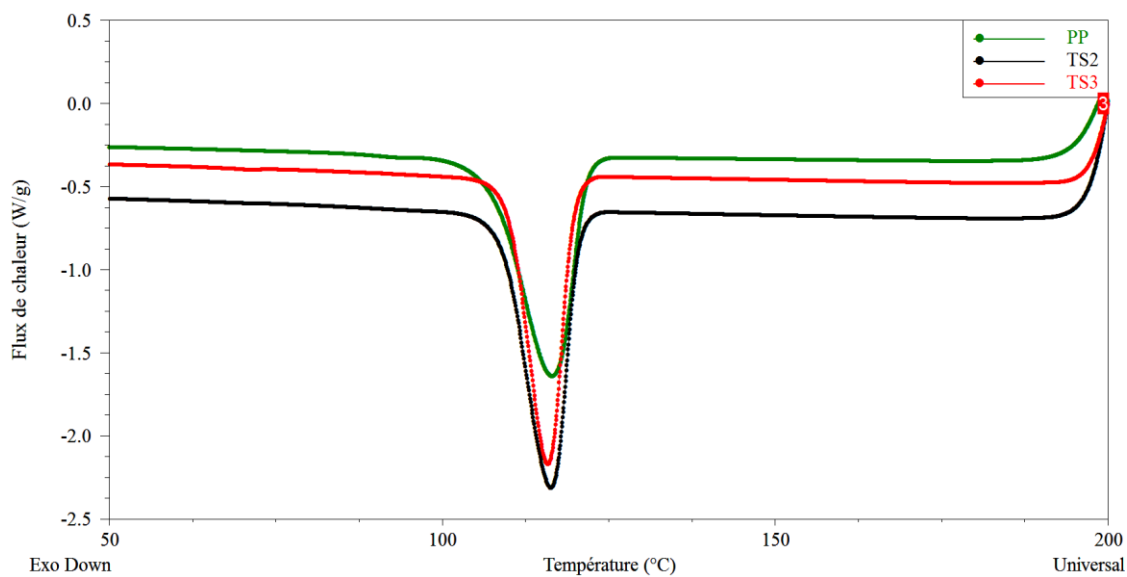
#### **3.4.2.1 Influence de l'incorporation et la variation de la teneur en SEBS-MA sur les propriétés thermiques de PP**

Le mélange de deux ou plusieurs polymères de différentes propriétés est une alternative appliquée afin d'obtenir de nouveaux matériaux polymères avec des propriétés ordonnées et adaptées (Clemons 2010). Les élastomères thermoplastiques SEBS-MA sont des matériaux intéressants pour diverses applications, en raison de leur excellent équilibre entre leur aptitude au traitement et les propriétés thermophysiques. Dans le présent travail, une seule structure de copolymère tri bloc styrène-éthylène-butylène-styrène modifié (SEBS-MA linéaire) a été mélangée avec le polypropylène (PP). La cristallisation du polypropylène (PP) dans les mélanges PP/SEBS-MA est étudiée par des mesures d'analyse calorimétrique différentielle à balayage (DSC). L'analyse des pics exothermiques en termes de nucléation et de cristallisation, la distribution de la taille des cristallites et la cristallinité ont révélé des différences au niveau de la morphologie du composant PP dans le mélange.

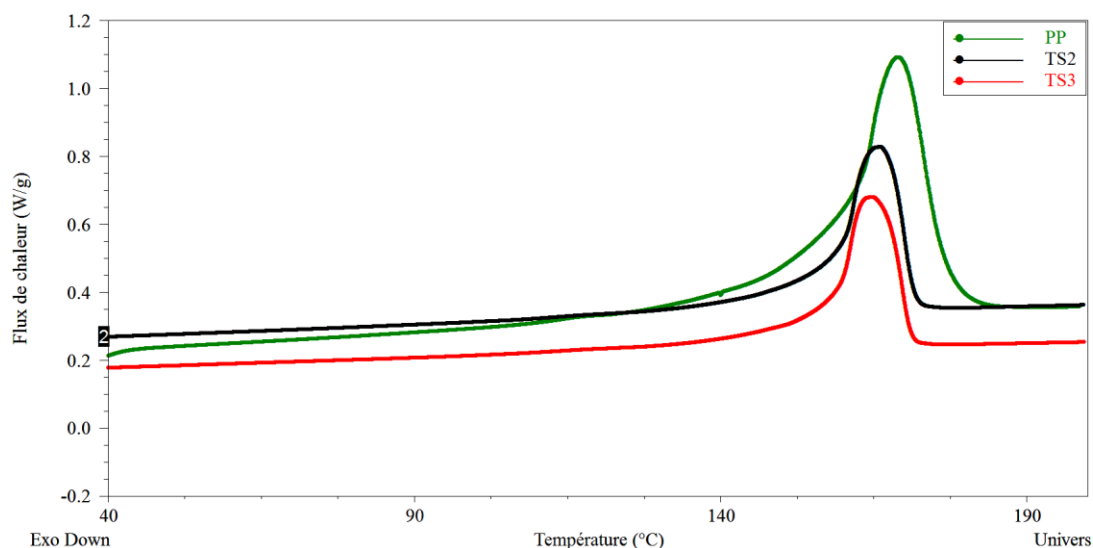
Les figures 3.25-27 présentent les thermogrammes du premier cycle de fusion, cycle de refroidissement et deuxième cycle de fusion des thermoplastiques utilisés et les mélanges correspondants. La température de fusion ( $T_f$ ), la température de cristallisation ( $T_c$ ), l'enthalpie de fusion ( $\Delta H_f$ ), l'enthalpie de cristallisation ( $\Delta H_c$ ) et le degré de cristallinité ( $\chi_c\%$ ) de diverses compositions sont résumés dans le tableau 3.7.



**Figure 3.25 : Thermogrammes de premiers cycles de fusion du PP, SEBS-MA et les mélanges PP/SEBS-MA**



**Figure 3.26 : Thermogrammes de refroidissement du PP, SEBS-MA et les mélanges PP/SEBS-MA**



**Figure 3.27 : Thermogrammes de deuxièmes cycles de fusion du PP, SEBS-MA et les mélanges PP/SEBS-MA**

Le premier cycle de fusion peut fournir des informations sur le comportement thermique.

**Tableau 3.7 : Propriétés de fusion et cristallisation du PP, SEBS-MA et les mélanges PP/SEBS-MA.**

	$T_f$ (°C)	$T_c$ (°C)	$\Delta H_f$ (J/g)	$\Delta H_c$ (J/g)	$\chi_c$ (%)
<b>PP</b>	169,2	116,5	109,9	100,1	53,2
<b>TS2</b>	170,9	116,3	60,8	73,3	32,3
<b>TS3</b>	172,5	115,7	52,9	69,7	31,6

Le thermogramme de chauffage du PP vierge présente un seul pic de fusion endothermique à 169,2°C, correspond à la fusion de la phase cristalline  $\alpha$ . Selon des études antérieures (Panaitescu et al., 2012), le point de fusion du PP est indiqué à 165°C attribué à la phase  $\alpha$  avec un petit épaulement proche de 159°C accordé à la fusion de la phase  $\beta$  qui est thermodynamiquement moins stable. Les résultats

illustrés dans le tableau 3.7 ont indiqué que l'incorporation de SEBS-MA dans la matrice PP a légèrement augmenté la température de fusion du PP. Des résultats similaires ont également été rapportés par Ohlsson et al., (1998) et Ishak et al., (2008) dans le cas de PA6/PP/SEBS-g-MA. Ils ont constaté que l'addition de cette catégorie d'élastomère n'a pas modifié la température de fusion du PA6 et a légèrement amplifié la température de fusion du PP. De même, Jose et al., (2006) ont mentionné des effets identiques sur la fusion de PP, suite à l'ajout d'une faible teneur en SEBS-g-MA. La réaction chimique interfaciale entre l'anhydride maléique présent dans le SEBS-MA et le PP est susceptible de se produire dans la phase moins cristalline (phase riche en  $\beta$ ) et par conséquent n'apportera pas des changements appréciables sur le comportement de fusion. Ce résultat concorde avec les recherches effectuées par Jose et al., (2006), ils ont prouvé que la réaction entre la partie amorphe du PP, PA6 et le SEBS-MA a été à l'origine de la variation de la température.

L'addition du SEBS-MA dans la matrice polypropylène a faiblement diminué la température de cristallisation du PP. La réduction de la température de cristallisation peut être attribuée à un phénomène de comptabilisation généré par l'augmentation des interactions entre le SEBS-MA et le PP. Ces résultats sont en coïncidence avec ceux rapportés par Marco et al., (1997). Ils ont mis l'accent sur l'effet du groupement modifié à l'anhydride, fourni par le SEBS-MA sur l'amélioration de l'adhésion entre le PP et le PA6. Ishak et al., (2008) et Ohlsson et al., (1998) ont également rapporté des constatations identiques dans le cas des mélanges PA6/PP/SEBS-MA et PA6/PP/organo-argile/SEBS-MA, ils ont trouvé que l'ajout du SEBS-MA a légèrement diminué la température de cristallisation de PP.

L'augmentation de la teneur en SEBS-MA se manifeste par la diminution de la température de cristallisation, on a constaté que plus le pourcentage de SEBS-MA augmente plus la température de cristallisation devient faible. La diminution de  $T_c$  pour TS2 (PP/SEBS-MA (10%)) et TS3 (PP/SEBS-MA (20%)) par rapport au PP

pur, pourrait être le résultat de la faible activité de nucléation du SEBS-MA. Panaitescu et al., (2012) ont identifié l'effet de deux additifs, NS et SEBS, sur la température de cristallisation. Il a été évident que l'addition du SEBS a entraîné une faiblesse de la  $T_c$  du PP par rapport au NS, cela est dû à la différence de l'effet de nucléation de chacune de ces matières. Chacun des blocs du SEBS-MA a un effet spécifique sur la cristallisation et la fusion du PP. Cette différence est identifiée par la comparaison de cette recherche courante, par d'autre basée sur l'étude de l'influence du SBS ou SEBS sur le comportement thermique du PP.

Abreu et al., (2005) ont montré que l'incorporation du SBS a déplacé la température de cristallisation des mélanges contenant le PP, à des valeurs plus élevées que le SEBS. L'influence du SEBS-MA en tant qu'agent de nucléation peut être liée à ses blocs de styrène qui ont des segments plus souples que le polypropylène. Les blocs styrène fonctionnent comme des noyaux et induisent les segments de macromolécules PP à s'organiser en tant qu'unité tridimensionnelle à une température moins élevée (Abreu et al., 2005). Le bloc de polyoléfine ou le segment EB du SEBS-MA a une affinité ou une compatibilité élevée avec les macromolécules de PP. A l'état fondu, cela conduit probablement à une meilleure dispersion du bloc styrène dans la matrice PP, ce qui peut entraîner la diminution de la température de cristallisation.

L'enthalpie de fusion est influée par l'addition du SEBS-MA à la matrice polypropylène en différents teneurs (tableau 3.7). On a constaté que ce paramètre diminue avec la diminution de la teneur en polypropylène. Ces résultats concordent avec ceux rapportés par Van der Wal et al., (1999), ils ont prouvé que l'enthalpie de fusion de la matrice PP dans le mélange PP/EPDM reste constante jusqu'à une teneur de 30% en EPDM. Pour les formulations à haute teneur (plus que 30% en volume), les mélanges ont présenté une enthalpie de fusion légèrement plus basse.

Les résultats de DSC du deuxième cycle de fusion sont présentés par la figure 3.27. Le PP vierge a montré un pic plus étroit et plus net que les formulations TS2 et TS3,

indiquant que le SEBS-MA n'a pas eu la tendance à se diffuser dans la matrice PP et à entraver la transformation des chaînes du PP à une structure plus cristalline. Comme il est indiqué dans le tableau 7, il est évident que l'addition de SEBS-MA dans la matrice PP a conduit à une diminution de la cristallinité. Ce résultat peut être attribué à la présence d'un enchevêtrement physique formé à l'interface PP/SEBS-MA qui peut empêcher la formation de cristaux (Tseng et al., 2001, Ishak et al., 2008). Un résultat similaire a également été rapporté par Tjong et al., (2005) sur des nanocomposites PP/SEBS-g-MA/organo-argileux. Ils ont trouvé que l'incorporation de SEBS-g-MA a réduit le degré de cristallinité du PP. Néanmoins, Wilhelm et Felisberti (2003) ont rapporté dans leurs études que le SBS et le SBS-g-MA n'affectaient pas la cristallinité de l'i-PP. Le PP se cristallise dans des conditions hors équilibre ( $T_c \neq T_m$ ) comme les autres polymères semi-cristallins. L'addition de SEBS-MA conduit à une diminution de super-refroidissement, suggérant une cristallisation plus difficile du PP. Mendentia-García et al., (2013) ont montré que le SEBS-MA a ralenti la cristallisation du PP à cause de leur faible capacité de nucléation. En revanche, ils ont trouvé que le SEBS accélère la nucléation, car leurs microparticules séparées fonctionnent également comme agents de nucléation.

### **3.4.2.2 Influence de l'incorporation des fibres de bouleau blanc, kraft et kraft traitées par glycérol sur la cristallinité du PP**

#### *3.4.2.2.1 Influence des fibres de bouleau blanc sur la cristallinité du PP*

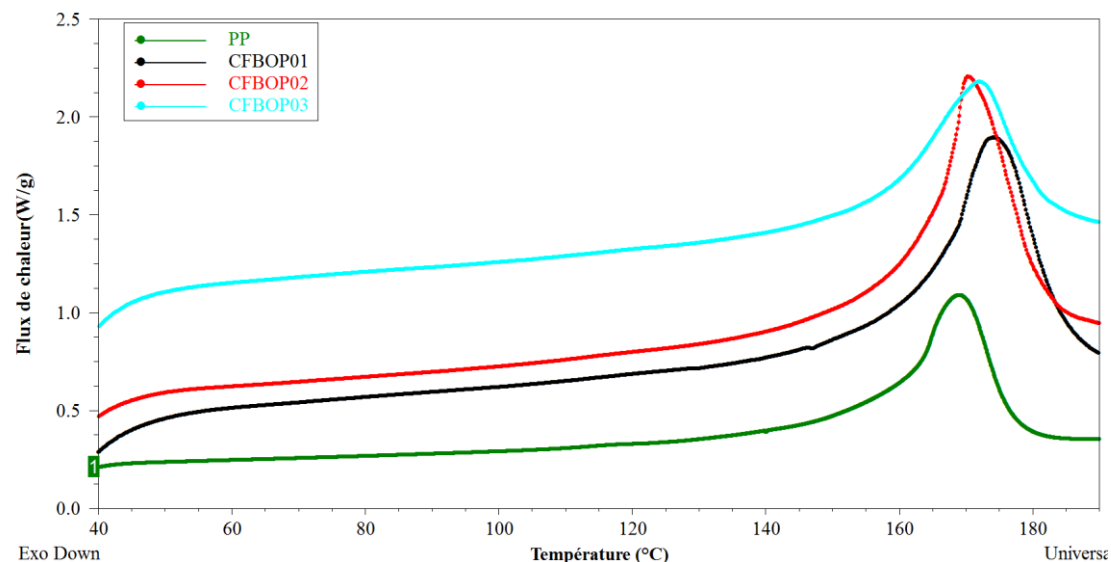
Les résultats de la température de fusion ( $T_f$ ), la température de cristallisation ( $T_c$ ), l'enthalpie de cristallisation ( $\Delta H_c$ ), l'enthalpie de fusion ( $\Delta H_f$ ) et le taux de cristallinité ( $\chi_c$  %) sont indiqués dans le tableau 3.8.

**Tableau 3.8 : Propriétés de fusion et cristallisation des mélanges PP/fibre bouleau blanc/MAPP.**

	$T_f$ (°C)	$T_c$ (°C)	$\Delta H_f$ (J/g)	$\Delta H_c$ (J/g)	$\chi_c$ (%)
<b>PP</b>	169,22	116,48	110	100,1	53,14
<b>CFBOP01</b>	174,11	122,38	36,71	46,43	26,21
<b>CFBOP02</b>	170,31	123,83	33,86	39,87	28,42
<b>CFBOP03</b>	171,92	121,21	30,99	38,08	31,54

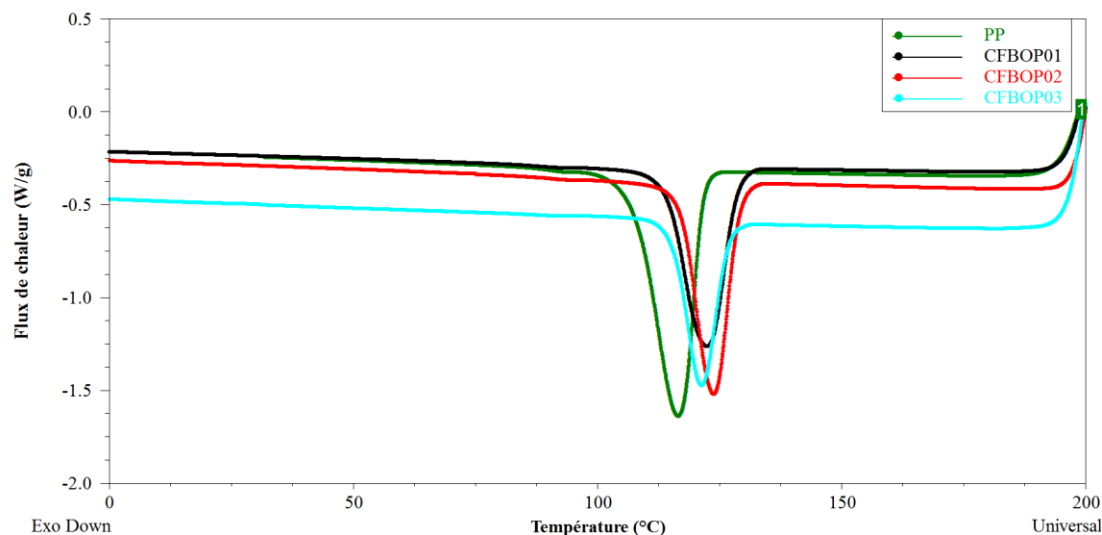
La figure 3.29 a montré les cycles de fusion du PP vierge et des composites PP/bouleau blanc/MAPP à différentes teneurs en fibres. Le PP est caractérisé par un seul pic de fusion endothermique se produit à 169,22°C. Les composites PP/bouleau blanc/MAPP ont montré une température de fusion légèrement plus élevée (1-4°C) que celle du PP. Il a été suggéré que la différence des propriétés thermiques entre les composites et la matrice polymérique se manifeste par un retard de la température apparent pendant la mesure (Quillin et al., 1993). L'analyse des endothermes de fusion des composites élaborés, révèle une forme de courbe pseudo identique. Généralement, l'apparition des pics multiples est due à l'existence d'une structure multiphasique ou des processus de recristallisation et de réorganisation, auront lieu pendant le chauffage (Hristov et Vasileva 2003).

Dans certaines études, le thermogramme du PP vierge présente un deuxième pic de fusion de l'ordre de 120°C. Il est attribué à la fusion des unités d'éthylène du PP, ségréguant en tant que deuxième phase dans les composites (Petrović et al., 1996). L'addition du MAPP entraîne la disparition de ce pic (Hristov et Vasileva 2003). On pourrait supposer que la deuxième phase disparue aurait été préférentiellement localisée là où le polymère est le plus faible, reliant les limites de sphérulite adjacentes par co-cristallisation (Lustiger et al., 1998).



**Figure 3.28 : Thermogrammes de premier cycle de fusion des mélanges PP/Fibre bouleau blanc/MAPP**

Les exothermes de refroidissement de la matrice thermoplastique et les composites chargés par les fibres de bouleau blanc sont illustrés sur la figure 3.29. Pour la plupart des mélanges, on a constaté une augmentation de la température de cristallisation de l'ordre de 6°C. Les résultats obtenus ont indiqué que la cristallisation devient plus importante suite à l'incorporation et l'augmentation de la teneur en fibre (Felix et Gatenholm 1994, Son et al., 2000). Cela est justifié par le comportement des fibres lignocellulosiques qui agissent comme des sites de nucléation hétérogène, induisant la cristallisation de la matrice (Bouafif et al., 2009). L'incorporation d'une faible quantité de charges dans la matrice thermoplastique réduit progressivement le taux de cristallinité. La valeur de cette propriété passe de 53,14% pour le PP pur à 26,21% pour les composites à 30% de fibres. L'augmentation du pourcentage de fibre incorporée provoque l'amélioration de la cristallinité du mélange, mais ça reste toujours limitée et inférieure à celle du plastique.



**Figure 3.29 : Thermogrammes de refroidissement des mélanges PP/Fibre bouleau blanc/MAPP**

Les enthalpies de fusion et de cristallisation présentent la même tendance. L'augmentation de la teneur en fibre ajoutée à la matrice et les valeurs des enthalpies varient en sens inverse. L'addition de 30 % de fibres a provoqué une diminution significative pour ces deux paramètres de l'ordre de 60% pour la fusion et 55% pour la cristallisation par rapport à la matrice. Les résultats obtenus sont similaires à d'autres recherches antérieures qui ont mentionné que les enthalpies (fusion ou cristallisation) diminuent avec l'augmentation de la quantité de fibres dans la formulation (Joseph et al., 1999, Bouafif et al., 2009).

#### 3.4.2.2.2 Influence des fibres de kraft sur la cristallinité du PP

Tous les échantillons ont présenté des pics de fusion et de cristallisation claires et à des valeurs différentes. Cependant, les valeurs de la température de transition vitreuse ( $T_g$ ) ont été difficiles à identifier et à évaluer à partir des thermogrammes. L'étude de l'effet de l'incorporation des fibres kraft sur la transition vitreuse des thermoplastiques reste limitée car la transition a eu lieu sur une large plage de température (Ljungberg et Wesslen 2002). Les valeurs de la température de fusion

( $T_f$ ), la température de cristallisation ( $T_c$ ), l'enthalpie de cristallisation ( $\Delta H_c$ ), l'enthalpie de fusion ( $\Delta H_f$ ) et le taux de cristallinité ( $\chi_c$  %) sont illustrés dans le tableau 3.9. Les pics de première fusion et ceux de la cristallisation sont représentés par les annexes 21 et 22, respectivement.

**Tableau 3.9 : Propriétés de fusion et cristallisation des mélanges PP/Fibre kraft/MAPP.**

	$T_f$ (°C)	$T_c$ (°C)	$\Delta H_f$ (J/g)	$\Delta H_c$ (J/g)	$\chi_c$ (%)
<b>PP</b>	169,2	116,5	100,1	110,1	53,2
<b>CFKNTP01</b>	169,6	121,1	56,6	58,4	40,4
<b>CFKNTP02</b>	171,6	122,5	52,9	51,2	42,8
<b>CFKNTP03</b>	169,9	120,4	34,7	39,9	34,9

Les pics de cristallisation des composites PP/fibre kraft/MAPP sont déplacés à des températures plus élevées que le PP vierge. Cette variation suggère que les fibres krafts ont agi comme des agents de nucléation. Ces résultats concordent avec d'autres travaux publiés (Borysiak 2007). Chen et Yan (2013) ont identifié l'effet de l'incorporation des fibres kraft sur la cristallinité de la matrice PEHD. Ils ont constaté que cette catégorie de fibre, modifiée ou non, augmente la température de cristallisation ainsi que le taux de cristallisation des mélanges. Les résultats mentionnés ci-dessus ont clarifié que la variation de la température de cristallisation s'accompagne avec la variation de la cristallinité des composites. Le mélange à 50% de fibre présente la faible température de cristallisation, avec une augmentation d'environ 4,08°C par rapport à celle du PP vierge. Il est caractérisé par la structure la moins cristalline que les autres formulations.

L'annexe 21 illustre les graphiques du premier cycle de chauffage pour les mélanges élaborés ainsi que la matrice PP pur. On a observé des pics endothermiques et symétriques pour tous les mélanges étudiés. Ces pics correspondent à la fusion de la phase cristalline  $\alpha$  du PP, ils présentent un maximum à 169,22°C pour le PP et varie entre 169,69 et 171,62°C pour les mélanges extrudés. Une quantité de kraft (30% en masse) produit un déplacement du pic de fusion à des températures proches à celle du PP vierge. L'augmentation de la teneur en fibre incorporée, de 30% à 40%, présente la température de fusion la plus élevée de l'ordre de 171,62°C. Néanmoins, l'excès de kraft (50% en masse) réduit la température de fusion qui est devenue faible en les comparant avec celles des autres composites. Ce résultat concorde avec ceux publiés par Chen et al., (2011), ils ont montré que l'excès de la matière lignocellulosique (50-70% en masse) réduit la température de fusion du PP. En outre, les deux figures présentées ci-dessus ont montré que les enthalpies  $\Delta H_f$  et  $\Delta H_c$  sont devenues faibles suite à l'augmentation de la teneur en fibre incorporée et la diminution de la quantité du polymère (Tufan et al., 2016). Les mêmes interprétations restent valables pour le taux de cristallinité. Les CBP à haute teneur en fibre (50% en masse) présentent des valeurs plus faibles que les autres formulations, cette diminution est due à l'augmentation des régions amorphes et les vides dans la structure.

#### *3.4.2.2.3 Influence du traitement des fibres kraft par glycérol sur la cristallinité du PP*

Les mesures de DSC ont été effectuées afin d'étudier l'effet du traitement glycérol sur le degré de cristallinité dans les échantillons. La  $T_f$ , la  $T_c$ , la  $\Delta H_c$ , la  $\Delta H_f$  et le  $\chi_c$  % sont illustrés dans le tableau 3.10.

Les annexes 23 et 24 illustrent les thermogrammes du premier cycle de chauffage et de cristallisation, respectivement. Concernant les composites PP/fibre kraft traitée/MAPP, la température de cristallisation  $T_c$  est évolué à des valeurs plus élevées en augmentant le pourcentage de fibre ajoutée.

**Tableau 3.10 : Propriétés de fusion et cristallisation des mélanges PP/Fibre kraft traitée par glycérol/MAPP.**

	$T_f$ (°C)	$T_c$ (°C)	$\Delta H_f$ (J/g)	$\Delta H_c$ (J/g)	$\chi_c$ (%)
<b>PP</b>	169,22	116,48	100,1	110	53,14
<b>CFKTP01</b>	171,72	118,06	49,94	58,54	35,66
<b>CFKTP02</b>	171,2	118,71	45,95	52,31	32,81
<b>CFKTP03</b>	171,32	118,65	36,41	49,66	37,06

Les mesures de  $T_c$  des composites sont plus importantes que celles des polymères purs. Cela indique que la vitesse de cristallisation des polymères est plus rapide dans les processus non isothermes par rapport aux composites (Lee et Wang 2006). L'augmentation de  $T_c$  pourrait être due à l'effet de nucléation des fibres traitées. En particulier, la liaison chimique entre la matrice polymérique PP et la fibre kraft produite par le traitement glycérol pourrait encore améliorer la nucléation de la matrice. La température de fusion  $T_f$  a subi la même variation que la température de cristallisation, l'incorporation et l'augmentation de la quantité de fibre a entraîné une légère augmentation pour les deux paramètres. La variation de la teneur en fibre ne présente pas le même effet sur les enthalpies. Il a été évident que la  $\Delta H_c$  a diminué en augmentant la quantité des fibres kraft traitées. Le mouvement moléculaire du polymère pourrait être restreint par l'ajout de charge ce qui est à l'origine de la chute des enthalpies. Ce résultat concorde avec d'autres travaux, où les fibres sont traitées par différentes solutions plastifiantes, des lubrifiants ou d'autres composés inorganiques comme le silane (Bengtsson et Oksman 2006).

#### 3.4.2.2.4 Effet de l'incorporation et la variation du SEBS-MA sur la cristallinité du PP/fibre kraft/MAPP

Comme il est mentionné ci-dessus, l'ajout des fibres et des additifs élastiques au sein d'une matrice PP se manifeste par des variations de différentes intensités pour la totalité des paramètres évalués. L'incorporation de ces matières simultanément, présente une variation sur les enthalpies de fusion et de cristallisation. Les valeurs de  $T_f$ ,  $T_c$ ,  $\Delta H_c$ ,  $\Delta H_f$  et  $\chi_c$  % sont résumées dans le tableau 3.11

**Tableau 3.11 : Propriétés de fusion et cristallisation des mélanges PP/Fibre kraft/SEBS-MA/MAPP.**

	$T_f$ (°C)	$T_c$ (°C)	$\Delta H_f$ (J/g)	$\Delta H_c$ (J/g)	$\chi_c$ (%)
<b>PP</b>	169,2	116,4	100,1	110,1	53,2
<b>CFKNTEP11</b>	169,3	120,9	46,9	51,5	39,5
<b>CFKNTEP12</b>	169,4	121,1	40,3	44,4	41,1
<b>CFKNTEP13</b>	169,8	121,5	31,6	32,1	40,8
<b>CFKNTEP21</b>	170,3	120,1	43,9	47,3	44,7
<b>CFKNTEP22</b>	169,8	121,1	31,9	29,5	41,2
<b>CFKNTEP23</b>	168,4	121,1	22,8	24,5	40,5

Les résultats ont montré une remarquable réduction de la cristallinité en introduisant des fibres de kraft et du SEBS-MA dans la matrice thermoplastique. La cristallinité du PP est influée aussi par la variation de la teneur en élastomère. La diminution est beaucoup plus prononcée pour les composites à haute teneur en fibre (50% en masse) et en élastomère (20% en masse). Les annexes 25 et 26 présentent les courbes du premier cycle de fusion et de cristallisation des composites extrudés.

La température de fusion  $T_f$ , pour les divers systèmes, est représentée par le tableau 3.11. La  $T_f$  de PP pur était de l'ordre de  $169,22^\circ\text{C}$ . L'incorporation de la fibre kraft et le SEBS-MA dans la même formulation provoquent l'augmentation de la température de fusion. Cette variation reste limitée de l'ordre de  $0,5$  à  $1^\circ\text{C}$ . Le mélange à plus haute teneur en fibre et en élastomère désigne un cas exceptionnel, il présente une température de fusion plus faible que celle du PP. La diminution de la température de fusion pourrait être due à la présence des vides et des pores dans la structure du composite (Lee et al., 2008).

Au fur et à mesure que le chargement en fibre et en SEBS-MA a augmenté, la température de cristallisation a subi une augmentation. La variation de la quantité d'élastomère dans les mélanges PP/fibre kraft ne présente pas un grand effet sur la température de cristallisation. Par exemple, la  $T_c$  du composite chargé avec 50% de fibre et 20% d'élastomère a légèrement diminué par rapport à celle du composite dont la teneur en élastomère est 10%.

L'enthalpie de fusion  $\Delta H_f$  du PP était de  $100,1$  J/g. Les valeurs  $\Delta H_f$  des composites avec une charge en fibre varie de 30 à 50% et une quantité d'élastomère diminuent (aussi bas que  $23$  J/g), indiquant que moins d'énergie était nécessaire pour faire fondre le polypropylène. Ce phénomène implique que la fusion du polymère est devenue plus facile lors de l'hybridation avec des fibres kraft et le SEBS-MA (Lee et al., 2008). D'une manière similaire à l'enthalpie de fusion  $\Delta H_f$ , l'addition du SEBS-MA (10-20% en masse) et des fibres kraft à la matrice PP a montré une diminution pour l'enthalpie de cristallinité  $\Delta H_c$ .

#### *3.4.2.2.5 Effet de la combinaison de l'incorporation du SEBS-MA et le traitement des fibres par glycérol sur la cristallinité du PP*

La combinaison du traitement des fibres par glycérol et l'incorporation des additifs élastiques tels que le SEBS-MA ont influé la cristallinité de la matrice PP. La

température de fusion et de cristallisation ainsi que les enthalpies correspondantes sont illustrées dans le tableau 3.12. Les caractéristiques étudiées ont subi des variations suite à l'augmentation du pourcentage des fibres traitées incorporé dans le système bi-matrice (PP/SEBS-MA).

**Tableau 3.12 : Propriétés de fusion et cristallisation des mélanges PP/fibre kraft traitée par glycérol/SEBS-MA/MAPP.**

	$T_f$ (°C)	$T_c$ (°C)	$\Delta H_f$ (J/g)	$\Delta H_c$ (J/g)	$\chi_c$ (%)
<b>PP</b>	169,22	116,48	110	100,1	53,14
<b>CFKTEP31</b>	169,92	119,48	46,95	47,58	47,79
<b>CFKTEP32</b>	169,72	117,45	32,65	36,92	47,74
<b>CFKTEP33</b>	169,67	114,78	26,9	25,79	45,7

L'addition du SEBS-MA (20% en masse) et le traitement des fibres kraft par le glycérol, dans la même formulation se manifeste par une faible variation de la  $T_f$  des composites. Ce résultat suggère que l'addition du SEBS-MA a abouti à des interfaces tertiaires dans les composites et que l'agent plastifiant (glycérol) ajouté a agi comme agent dispersant dans les interfaces. Ces résultats concordent avec ceux du Lee et al., (2008), dans le cas où ils ont utilisé le talc et le silane pour traiter les fibres. Ils ont montré que l'agent inorganique a enrobé la fibre lignocellulosique telle qu'il est prouvé dans la présente étude par le SEBS-MA.

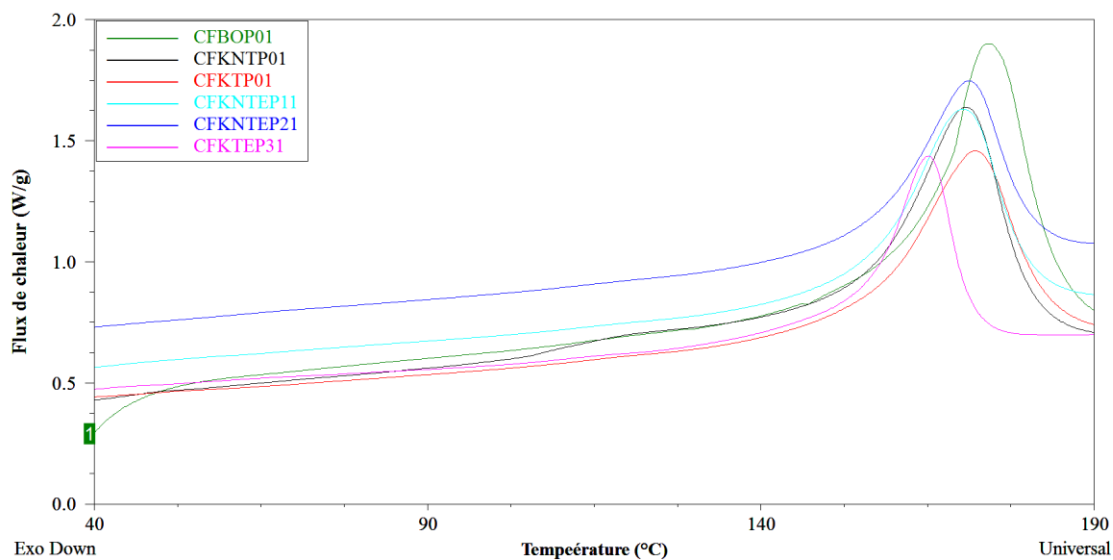
Comme il a été mentionné dans des études antérieures, l'augmentation de la teneur en fibre incorporée a augmenté la température de cristallinité. Cependant, cette augmentation n'a été pas totalement en accord avec les résultats présentés par le tableau 3.12. Les composites chargés par 30% de fibre kraft traitée sont caractérisés par une température de cristallisation plus élevée que celle du PP vierge. L'incorporation de 40% de la même charge a présenté une température plus faible que celle du mélange à 30%, mais reste supérieure à la température de cristallisation

du PP. Pour les formulations à 50% de fibre, la température de cristallisation a présenté une diminution, elle est devenue inférieure à 116,48°C, la Tc du PP.

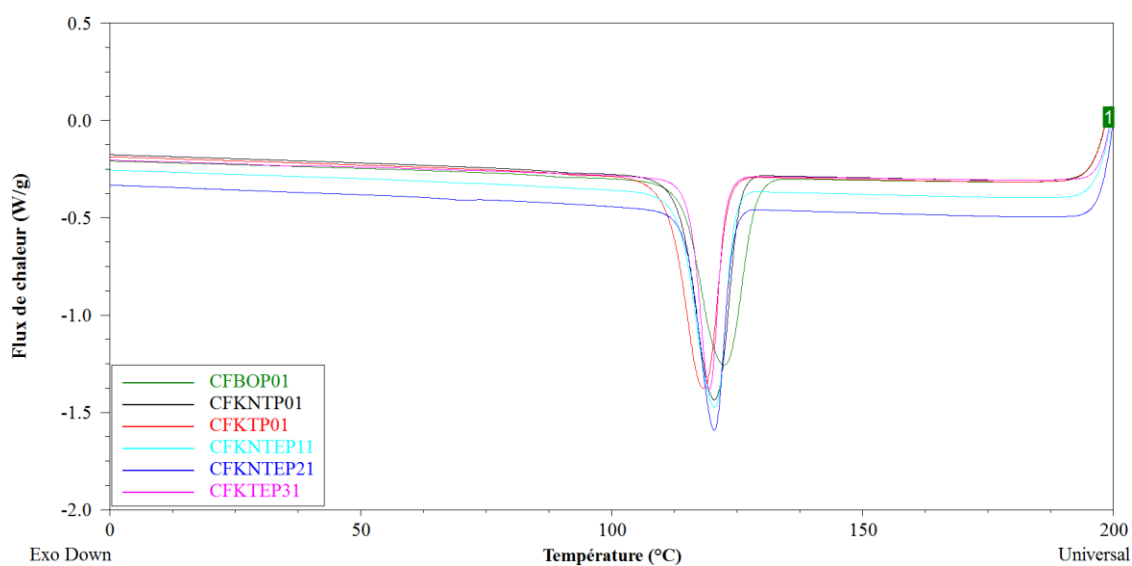
Les annexes 27 et 28 présentent les thermogrammes du premier cycle de fusion et de cristallisation des mélanges étudiés. Les enthalpies de fusion et de cristallisation ont présenté une tendance similaire suite à la variation de la teneur en fibre traitée (30-50%). Il a été constaté que ces paramètres ont diminué progressivement après l'incorporation d'une quantité de fibre au sein de système PP/SEBS-MA/MAPP. Le mélange CFKTEP33, chargé par 20% d'élastomère et 50% de fibre traitée, est caractérisé par les plus faibles enthalpies. En comparant ces résultats par ceux de la matrice PP, on constate que la diminution est de l'ordre de 75%. L'endotherme de fusion du CFKTEP33 est plus faible que ceux des autres échantillons. Ceci est la preuve d'un plus faible degré de cristallinité dans les échantillons chargés par haute teneur en fibre traitée.

#### **3.4.2.3 Étude de la différence de cristallinité du PP entre les divers composites élaborés**

Dans cette partie, on a pris les mélanges chargés avec 30% de fibres pour identifier la différence entre les composites chargés par des fibres de bouleau blanc et des fibres kraft, l'effet de l'incorporation et la variation du pourcentage du SEBS-MA, le traitement du renfort par la solution plastifiante (glycérol) ainsi que la combinaison de l'addition d'élastomère et le traitement de fibre dans la même formulation. Les figures 3.30 et 3.31 présentent les comportements du premier cycle de fusion et la cristallisation de chaque catégorie.



**Figure 3.30 : Thermogrammes de premier cycle de fusion des diverses catégories de composites chargés par 30% de fibre**



**Figure 3.31: Thermogrammes de refroidissement des diverses catégories de composites chargés par 30% de fibre**

L'indice de cristallinité du PP dans les composites à 30% de fibres bouleau blanc était de 26,21%, ce pourcentage a augmenté à 40,39% pour les composites à 30% de fibres

kraft. Cela peut être dû au retrait de la lignine amorphe et de l'hémicellulose de la fibre, permettant un meilleur tassement des microfibrilles de cellulose, et constituant un meilleur substrat pour la croissance des cristaux. Beg et Pickering (2008) ont montré les mêmes résultats pour des mélanges de PP/fibre blanchie et PP/fibre non blanchie, la composition chimique des fibres blanchies permet d'avoir des composites plus cristallins. Plusieurs travaux dans la littérature ont illustré l'effet des divers types de fibres sur la cristallinité de la matrice polymérique. La comparaison des différents résultats permet d'identifier que la structure chimique du renfort lignocellulosique contribue à la fluctuation de la cristallinité des produits élaborés.

Pour les composites chargés par des fibres traitées par glycérol et non traitées, la cristallisation a commencé à des températures proches, mais les composites PP/fibre traitée ont atteint la température de cristallisation avant les composites à base des fibres non traitées. Chen et Yan (2013) ont éprouvé des constatations identiques par la comparaison de la cristallinité des composites PEHD/fibres non traitées et PEHD/fibres traitées par l'argile. De plus, les deux catégories de composites ont pris les mêmes durées de temps afin de terminer le processus de cristallisation. Cependant, les fibres traitées et non traitées, caractérisées par une grande longueur, ont réduit la mobilité de la chaîne du polymère du PP et le glycérol greffé sur la surface des fibres a rendu l'adhérence entre la charge et la matrice encore faible. Les facteurs ci-dessus ont abouti à un niveau de cristallinité inférieur à celui des composites à fibres traitées. Ils présentent le niveau de cristallinité le plus bas par rapport aux autres composites. L'ajout d'une quantité de MAPP dans la formulation des composites chargés par les fibres traitées agit sur le processus de cristallisation. La température maximale de fusion des composites dont les fibres sont traitées est légèrement inférieure à celle des composites chargés par des fibres non traitées. Comme il a été illustré dans la littérature (Chen et Yan 2013), l'addition d'un agent de couplage (MAPP, MAPE...) provoque une cristallisation à des températures plus élevées. Malgré cette évolution, l'effet reste limité et la température de cristallisation

est inférieure à celle des composites chargés par des fibres non traitées. Le MAPP a rendu les fibres traitées plus compatibles avec la matrice polymérique (Chen et Yan 2013), ce qui a augmenté la densité de nucléation à la surface de la fibre et la trans-cristalline pourrait avoir lieu à l'interphase fibre-matrice (Zou et al., 2009).

Au chargement en fibre kraft de 30%, l'addition de 10% de SEBS-MA aux combinaisons PP/fibre kraft/MAPP a conduit à des valeurs de  $\Delta H_f$  et  $\Delta H_c$  plus élevées que celles des combinaisons avec 20% de SEBS-MA. Les mélanges modifiés par l'élastomère présentent des taux de cristallinité plus faibles que ceux des composites témoins. Il a été évident que la cristallinité diminue également avec l'augmentation de la quantité de SEBS-MA ajoutée aux échantillons. Il devrait être implicite que les particules de SEBS-MA peuvent être une autre raison possible pour la diminution de  $T_c$  du composite. L'influence de ce genre d'additifs sur les propriétés thermiques des composites se divise en deux voies. Selon le mode de réaction entre les matières, des augmentations ou diminutions sont constatées. Dans cette étude, l'enrobage des fibres par l'élastomère (SEBS-MA) contribue à la limitation de leurs effets comme étant des agents de nucléation (Oksman et al., 1998). Plusieurs recherches ont partagé des résultats différents (Šmit et Radonjič 2000, Saujanya et al., 2001), cependant, il a été adopté que l'effet synergique des deux matières, fibres de bois et caoutchouc, sur la cristallisation de la matrice n'a pas été significatif. La  $\Delta H_f$  est plus faible dans les échantillons chargés par les fibres traitées et contenant de l'élastomère que dans les autres. Ceci est la preuve d'un plus faible degré de cristallinité dans ces mélanges. La cristallinité a diminué suite à la combinaison du traitement des fibres par le glycérol et l'addition du SEBS-MA dans la même formulation. Les mêmes interprétations sont valables pour la comparaison des différents composites à 40% et 50% de fibres (Annexe 29-32).

### 3.5 Étude des propriétés mécaniques des composites élaborés

Les essais mécaniques tels que la traction, la flexion et l'impact ont démontré que les mélanges constitués par les fibres kraft présentent des comportements plus ductile et tenace. L'incorporation du SEBS-MA en différentes proportions entraîne une amélioration significative au niveau de la déformation mécanique. Les liaisons chimiques établies entre les fibres de kraft et le PP, suite au traitement glycérol, ont affecté les caractéristiques physico-mécaniques des composites élaborés. Néanmoins, la combinaison des deux alternatives, l'incorporation d'un élastomère et le traitement des fibres par glycérol, dans le même mélange permet d'obtenir des composites particularisés par le comportement le plus tenace et le plus ductile. Les résultats des performances mécaniques sont illustrés par l'annexe 2.

#### 3.5.1 Analyse et discussion des résultats

Afin de déterminer s'il existe une différence statistiquement significative entre les valeurs des propriétés mécaniques résultant de l'application d'une ou plusieurs modifications, une analyse à sens unique de Variance (ANOVA) a été réalisée. L'analyse appliquée est constituée par deux parties : la première consiste à identifier l'effet du type de fibre exploitée, fibre de bouleau blanc et fibre kraft, ainsi que la variation de sa teneur et la deuxième a été effectuée afin de savoir l'influence des diverses variables (traitement des fibres par glycérol, proportion d'élastomère) sur les propriétés mécaniques. Les analyses statistiques ont été réalisées selon un modèle linéaire général multivarié avec un niveau de signification de  $\alpha=0,05$ ,  $\alpha=0,01$  et  $\alpha=0,0001$ . Le modèle linéaire général est fondé sur l'utilisation des méthodes des moindres carrés afin d'estimer et évaluer l'évolution des propriétés.

Le modèle pour l'analyse de la première partie est le suivant :

$$Y_i = A + B + A * B \quad (3.1)$$

Avec :

$Y_i$  : Module d'Young

Module de rupture en traction

Résistance à la traction

Allongement à la rupture

Énergie à la rupture

Énergie d'impact

Module d'élasticité en flexion

Module de rupture en flexion

Déformation maximale en flexion

A : Proportion de fibres

B : Type de fibre

Le modèle de la deuxième partie est constitué par trois variables avec  $Y_i$  désigne les mêmes paramètres :

$$Y_i = A + B + C + A * B + A * C + B * C + A * B * C \quad (3.2)$$

Où:

A : Proportion de fibres

B : Traitement Glycérol

C : Proportion d'élastomère

**Tableau 3.13 : Résultats des analyses de variance (valeur F) pour les propriétés mécaniques des composites PP/fibre bouleau blanc/MAPP et PP/fibre kraft/MAPP**

Source	Traction					Énergie d'impact	Flexion		
	MOE	Rm	MOR	$\epsilon$ -Fmax (%)	W		MOE	Fmax	$\epsilon$ -Fmax
<b>Type de fibre (A)</b>	372,14***	159,61***	124,6***	180,1***	153,53***	3,69*	155,06***	314,01***	80,25***
<b>Proportion de fibre (B)</b>	611,42***	120,94***	140,53***	107,88***	79,24***	5,64**	418,01***	277,84***	167,54***
<b>(A)*(B)</b>	16,67***	45,22***	24,96***	35,40***	36,28***	11,83***	14,33***	5,13*	7,34**

\* : significatif à 0,05; \*\* significatif à 0,01; \*\*\*significatif à 0,0001; ns : non significatif

**Tableau 3.14 : Résultats des analyses de variance (valeur F) pour les propriétés mécaniques des composites modifiés**

Source	Traction					Énergie d'impact	Flexion		
	MOE	Rm	MOR	$\epsilon$	W		MOE	Fmax	$\epsilon$ -Fmax
<b>Proportion de fibre (A)</b>	1719,9***	41,13***	37,3***	914,1***	712,1***	131,6***	944,23***	64,8***	12,4***
<b>Traitement glycérol (B)</b>	1125,1***	1882***	7320***	192,2***	152,2***	958,87***	1079,1***	1159***	9,53**
<b>Proportion d'élastomère (C)</b>	7891,3***	8821***	3975***	2550***	1005***	3339***	6246,3***	8636,6***	180***
<b>(A)*(B)</b>	1393,2***	220,5***	152,4***	92,15***	4,32*	53,11***	551,75***	429,28***	1,73 ns
<b>(A)*(C)</b>	287,58***	19,2***	27,55***	324,9***	161,9***	43,07***	170,51***	56,97***	12,6***
<b>(B)*(C)</b>	1478***	4046***	1136***	366,6***	78,57***	998,6***	1211,5***	2345,1***	0,083ns
<b>(A)*(B)*(C)</b>	374,31***	115,74***	13,37***	88,36***	23,22***	24,64***	161,873***	229,25***	2,393ns

\* : significatif à 0,05; \*\* significatif à 0,01; \*\*\*significatif à 0,0001; ns : non significatif

### 3.5.2 Étude des propriétés mécaniques des mélanges PP/SEBS-MA

Les propriétés mécaniques en traction des mélanges PP/SEBS-MA sont présentées par les figures 3.32-3.34.

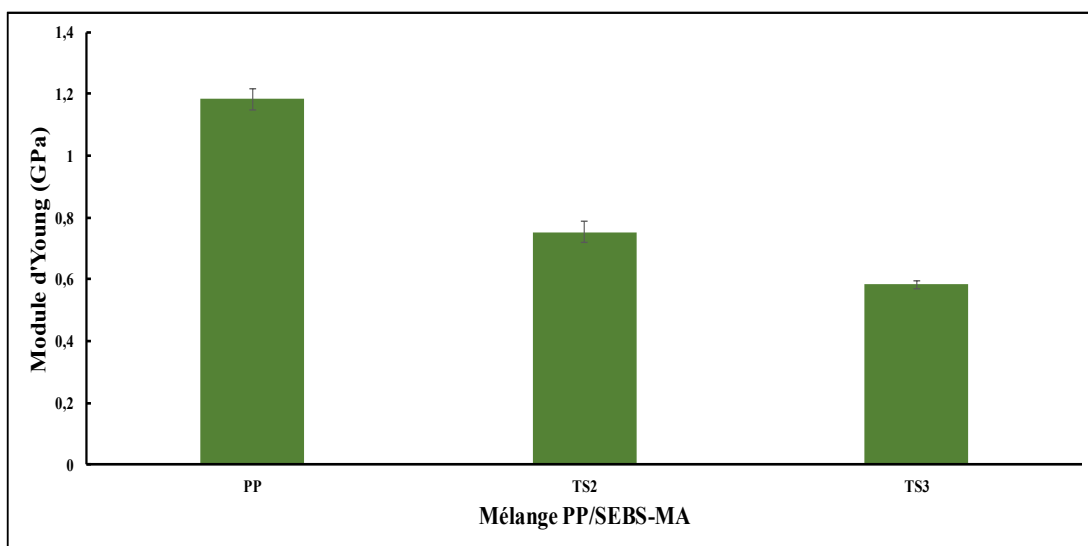


Figure 3.32 : Variation du module d'Young des mélanges PP/SEBS-MA

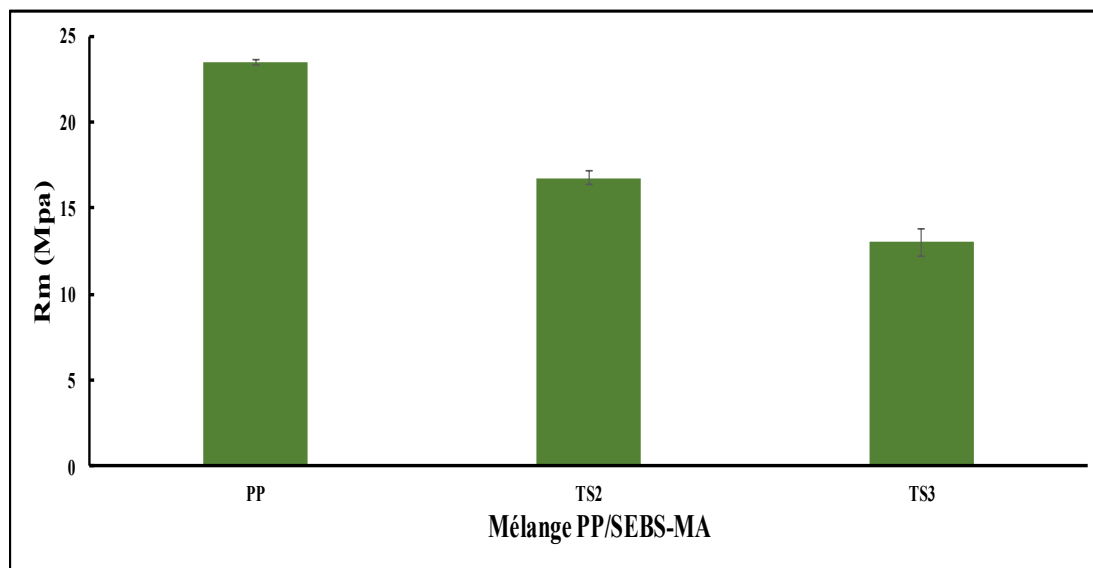
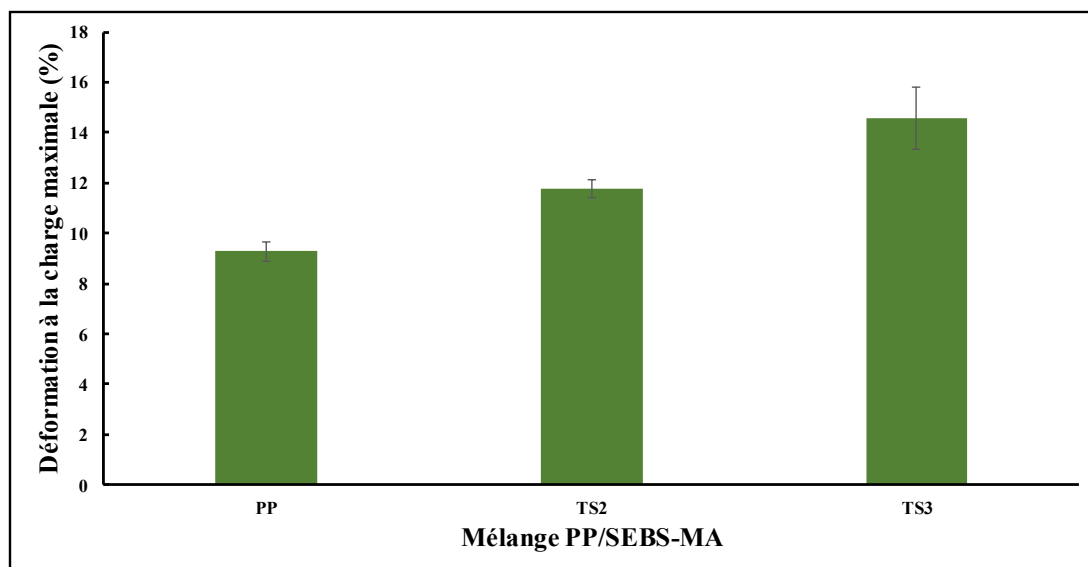


Figure 3.33 : Variation de la résistance maximale à la traction des mélanges PP/SEBS-MA



**Figure 3.34 : Variation de la déformation à la charge maximale des mélanges PP/SEBS-MA**

Les propriétés mécaniques du PP non chargé et des mélanges PP/SEBS-MA sont résumées dans l'annexe 3. Les trois échantillons étudiés ont présenté des performances mécaniques différentes, le PP ayant des modules d'élasticité et des résistances (traction et flexion) beaucoup plus supérieurs, mais aussi des déformations à la charge maximale et une énergie d'impact plus faibles que les mélanges chargés par le SEBS-MA. L'ajout de 10% de SEBS-MA a réduit les modules des mélanges. Les réductions des modules ont été d'environ 30% dans les essais de traction et d'environ 25% dans les essais de flexion. Le PP vierge présente un module d'Young d'environ 1,5 GPa tandis que les modules des formulations TS2 et TS3 sont limités à 0,75 et 0,58 GPa respectivement. Ceci est une limitation de l'utilisation d'élastomères comme agents de compatibilité dans les mélanges plastiques.

La diminution des modules d'Young ou d'élasticité en flexion est proportionnelle aux quantités relatives du SEBS-MA dans les mélanges. Les échantillons chargés par 20% sont moins rigides et plus ductiles que les autres. La résistance maximale à la traction a présenté le même sens d'évolution que le module d'Young. La matrice thermoplastique est plus résistante que les mélanges contenant du SEBS-MA. Les résultats obtenus ont montré que la résistance du PP est 23,49 MPa. Les formulations fabriquées avec 10 et 20% d'élastomère ont de faibles résistances, la moyenne de  $R_m$  est égale à 16,74 MPa et 12,99 MPa, respectivement. Contrairement à la résistance à la traction et le module d'élasticité, la déformation à la charge maximale est devenue plus importante par l'incorporation du SEBS-MA.

Le PP pur peut atteindre une déformation à la charge maximale de l'ordre de 9,28% alors que les composites TS2 et TS3 ont la capacité de se déformer jusqu'à 11,7 et 14,52% respectivement. La variation des propriétés mécaniques est justifiée par la nature d'additif exploité, le SEBS-MA est un matériau ductile et élastique qualifiés par leur souplesse et leur aptitude de se déformer sans rupture brutale. Ces résultats concordent avec ceux publiés par Clemons (2010), il a prouvé que l'addition du EPDM au sein du PP ou PEHD a diminué la rigidité alors qu'il a augmenté l'allongement à la rupture.

Les caractéristiques en flexion du PP vierge et les mélanges PP/SEBS-MA sont présentées par les figures 3.35-3.37. L'incorporation de la matière élastique a entraîné la variation du module d'élasticité de la matrice thermoplastique. Il a été évident que l'addition d'un additif ayant une rigidité inférieure a provoqué la diminution du module d'élasticité par rapport au PP vierge. Cette diminution est proportionnelle à la quantité d'élastomère incorporée. Le mélange à haute teneur en SEBS-MA (20%) a présenté un module d'élasticité de l'ordre de 0,68 GPa plus faible que le PP pur et le PP/ SEBS-MA (10%) qui sont de l'ordre de 0,99 et 0,78 GPa.

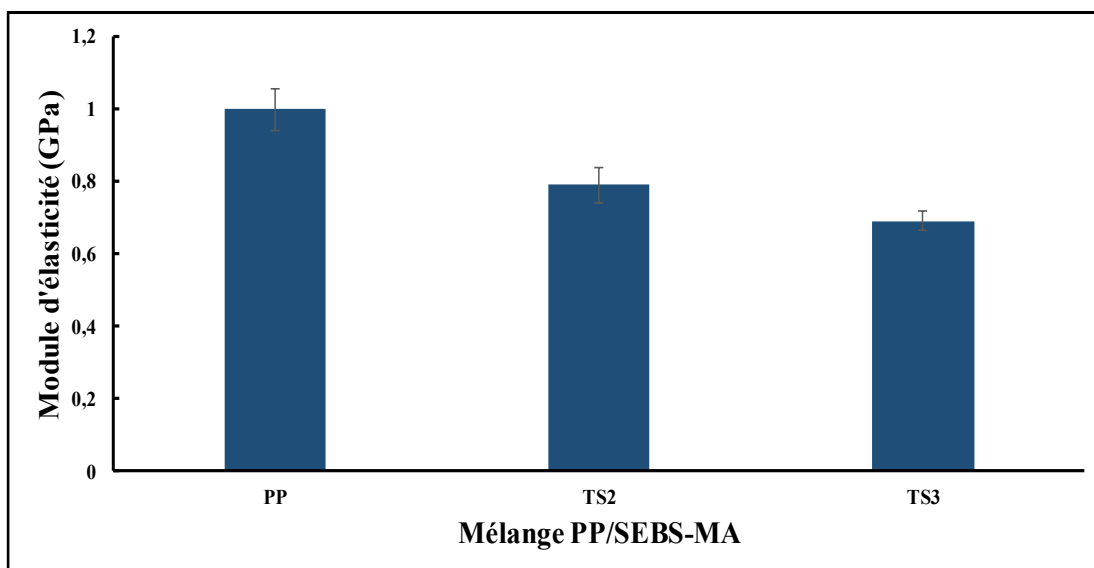


Figure 3.35 : Variation du module d'élasticité en flexion des mélanges PP/SEBS-MA

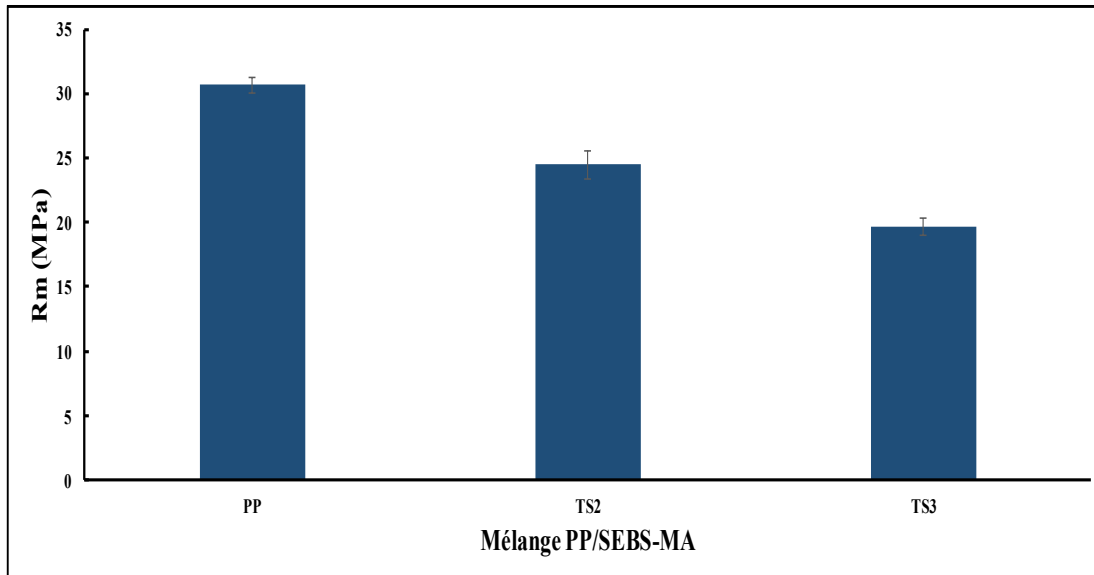
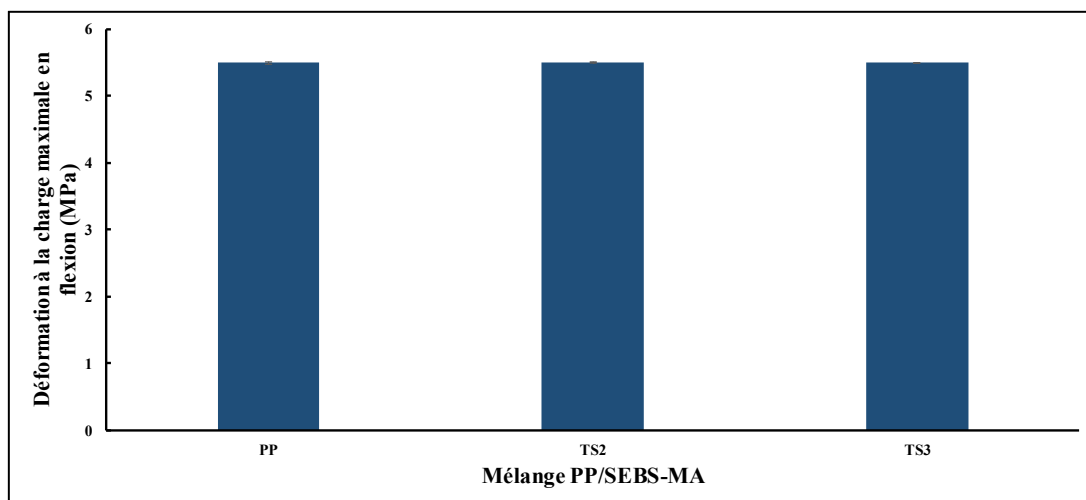


Figure 3.36 : Variation de la résistance maximale des mélanges PP/SEBS-MA



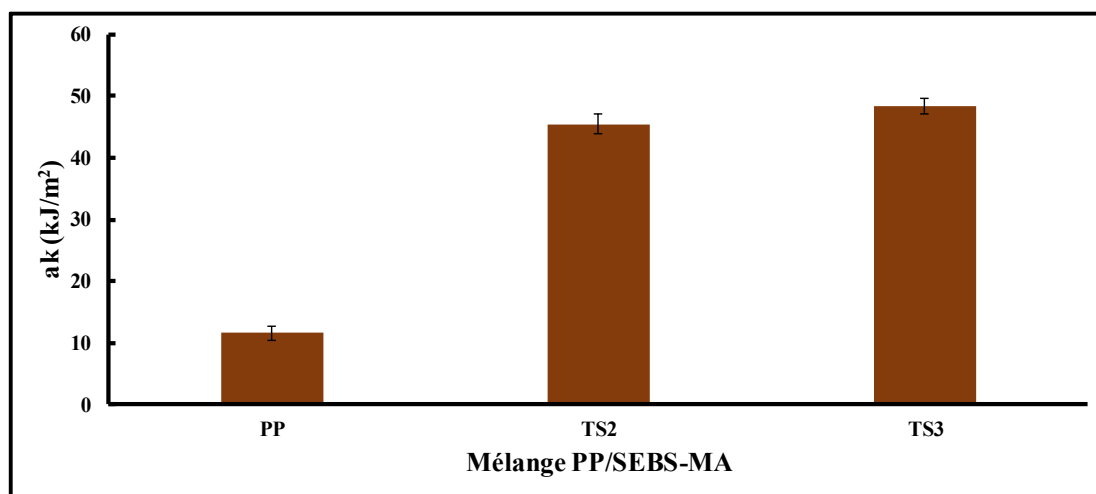
**Figure 3.37 : Variation de la déformation à la charge maximale en flexion des mélanges PP/SEBS-MA**

Ardekani et al., (2014) ont trouvé les mêmes résultats. Ils ont montré que la diminution du module lors de l'addition de SEBS-g-MA est attendue, car il présente des modules de traction et de flexion inférieures à ceux des polyoléfines.

Des constatations similaires ont été publiées pour diverses études avec l'utilisation des différentes matières que le PP et le SEBS-MA. Dehghani et al., (2013) ont mentionné la diminution de la rigidité du rPET suite à l'addition du SEBS-g-MA, cela reste justifié par la différence des caractéristiques mécaniques entre la matrice et l'additif. La résistance maximale en flexion a présenté la même tendance que la rigidité. L'incorporation d'un élément élastique a rendu les mélanges moins résistants. Les échantillons à 20% de SEBS-MA sont moins résistants que ceux à 10%. Des observations similaires ont été rapportées par Yu et al., (2004) sur les formulations rPET/SEBS-g-MA.

La résistance à la flexion a diminué et l'allongement à la rupture a augmenté avec une réduction de la limite d'élasticité. Concernant la déformation à la charge maximale, l'incorporation et la variation de la teneur en élastomère n'ont aucun effet et les

valeurs sont de l'ordre de 5,49 MPa. Pour les tests d'impact avec entaille, toutes les éprouvettes ont été rompues pendant le test. Les valeurs de la résistance à l'impact du mélange sont présentées dans l'annexe 3.



**Figure 3.38 : Variation de la résistance à l'impact des mélanges PP/SEBS-MA**

Des augmentations de la résistance au choc du mélange ont été observées avec l'incorporation de SEBS-MA. La figure 3.38 présente le traçage de la résistance aux chocs pour les différents mélanges thermoplastiques. L'énergie absorbée au choc des mélanges à 20% d'élastomère est de l'ordre de 48,42 kJ/m<sup>2</sup> tandis que le mélange à 10% d'élastomère et le PP vierge sont moins résistants au choc et présentent des valeurs aux alentours de 45,41 kJ/m<sup>2</sup> et 11,54 kJ/m<sup>2</sup>, respectivement. L'amélioration des performances d'impact est l'une des principales raisons de l'ajout d'élastomères aux polymères. Des études antérieures ont vérifié que l'incorporation de l'élastomère provoque l'augmentation à la fois de la contrainte d'initiation de la rupture et l'énergie de propagation de la fissure (Van der Wal et al., 1999, Sudár et al., 2014).

Comme avec la déformation à la charge maximale dans les essais de traction, l'énergie d'impact entaillée a été considérablement augmentée avec l'ajout d'une importante quantité en SEBS-MA, plus que 10%. L'effet de cette catégorie

d'élastomère est similaire à d'autre, comme le EPDM, EPDM-MA, PL éthylène-propylène et SEBS (Van der Wal et al., 1999, Sudár et al., 2014). L'addition du SEBS-MA peut améliorer la résistance aux chocs des thermoplastiques jusqu'à 132%. Ce n'est pas surprenant en raison du comportement caoutchouteux des élastomères. Ils peuvent également jouer le rôle de modificateur d'impact en plus d'être un agent de compatibilité.

Ardekani et al., (2014) ont trouvé des améliorations significatives de la résistance au choc des mélanges rPET/SEBS-MA, ces constatations pourraient être attribuées à la formation d'un réseau interpénétré entre les deux composants. En raison des interactions chimiques, certaines chaînes du PP entrent dans la phase SEBS-MA, formant un réseau interpénétré, ce phénomène améliore la comptabilisation et diminue la tension interfaciale entre PP et la phase SEBS-MA. Le comportement élastique du modificateur d'impact a entraîné une augmentation considérable de l'allongement à la rupture et la ténacité, mais il a abaissé la limite d'élasticité et la rigidité du mélange (Zhang et al., 2010).

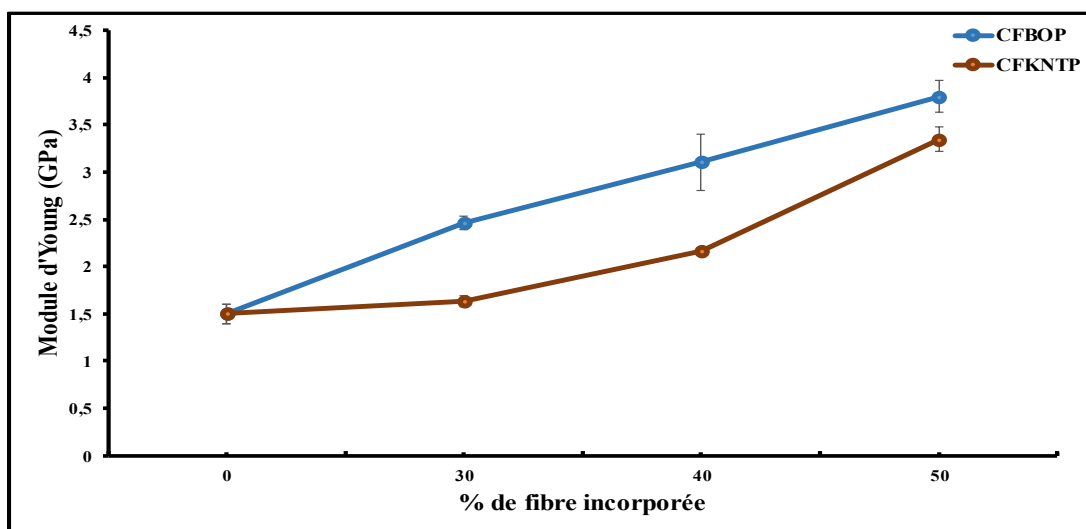
### **3.5.3 Étude des propriétés mécaniques des composites par traction**

Les résultats de traction pour tous les échantillons sont résumés par les différentes figures 3.39-3.43 et l'annexe 2. Dans cette partie on a envisagé divers paramètres tels que le module d'Young, la résistance à la traction, l'allongement à la rupture, le module de rupture et l'énergie à la rupture. L'interprétation des résultats de traction est structurée selon l'effet de chaque facteur comme la variation de la teneur en fibre, le type de fibre, le traitement glycérol et l'addition d'un additif élastique.

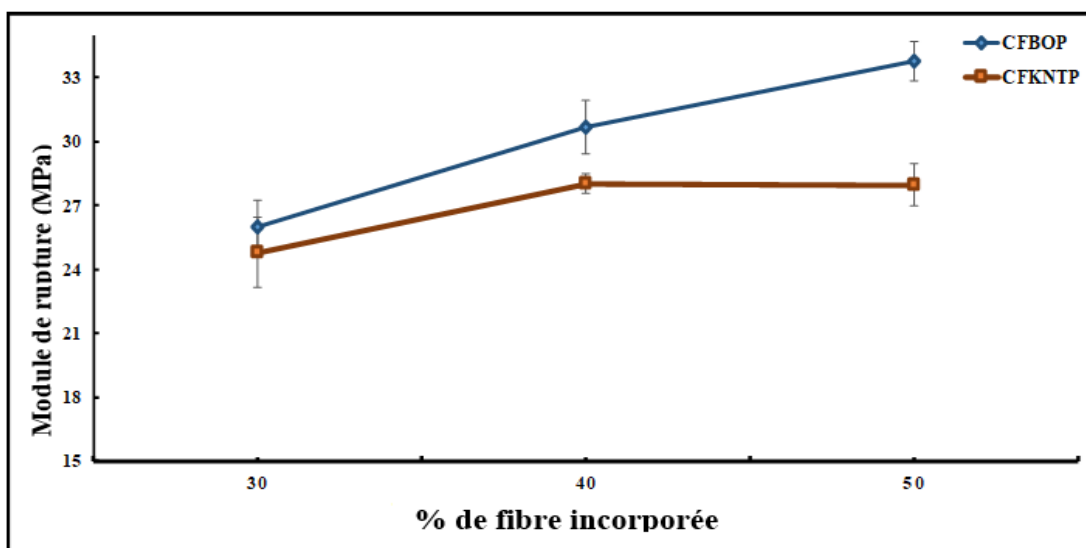
#### **3.5.3.1 Effet d'augmentation de la teneur en fibre de différentes catégories**

Dans cette partie, on a étudié les performances mécaniques des deux types de composites chargés par des fibres de bouleau blanc et fibres kraft. L'objectif principal est de sélectionner les fibres qui nous permettent d'avoir les mélanges les plus

ductiles. Les figures ci-dessous ont présenté la variation des modules, d'Young et de rupture, les résistances maximales et l'allongement à la rupture en fonction de la teneur en fibre incorporée.



**Figure 3.39 : Variation du module d'Young des composites chargés par des fibres kraft et bouleau blanc en fonction de la teneur en fibre**



**Figure 3.40 : Variation du module de rupture en traction des composites chargés par des fibres kraft et bouleau blanc en fonction de la teneur en fibre**

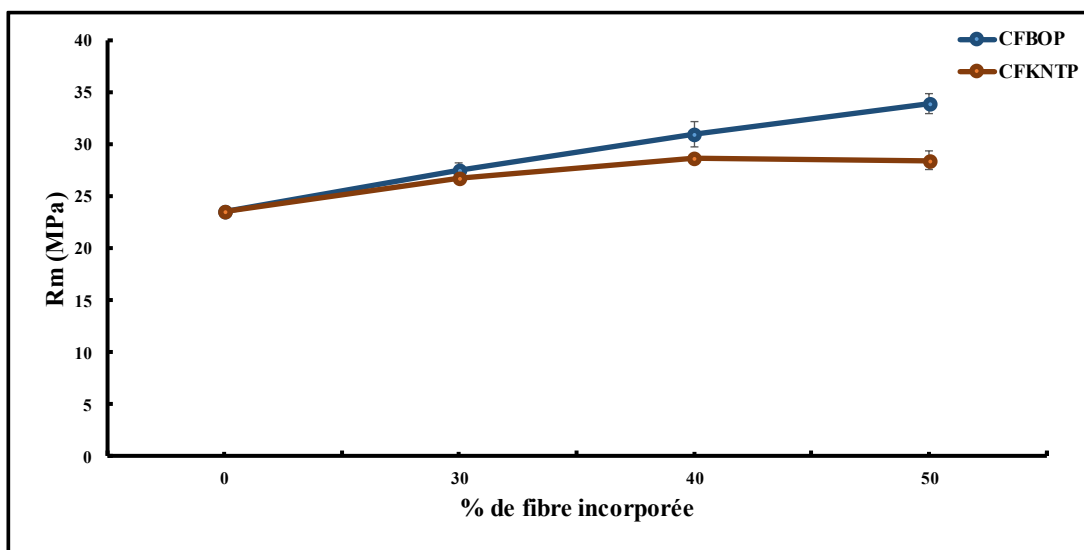


Figure 3.41 : Variation de la résistance maximale des composites chargés par des fibres kraft et bouleau blanc en fonction de la teneur en fibre

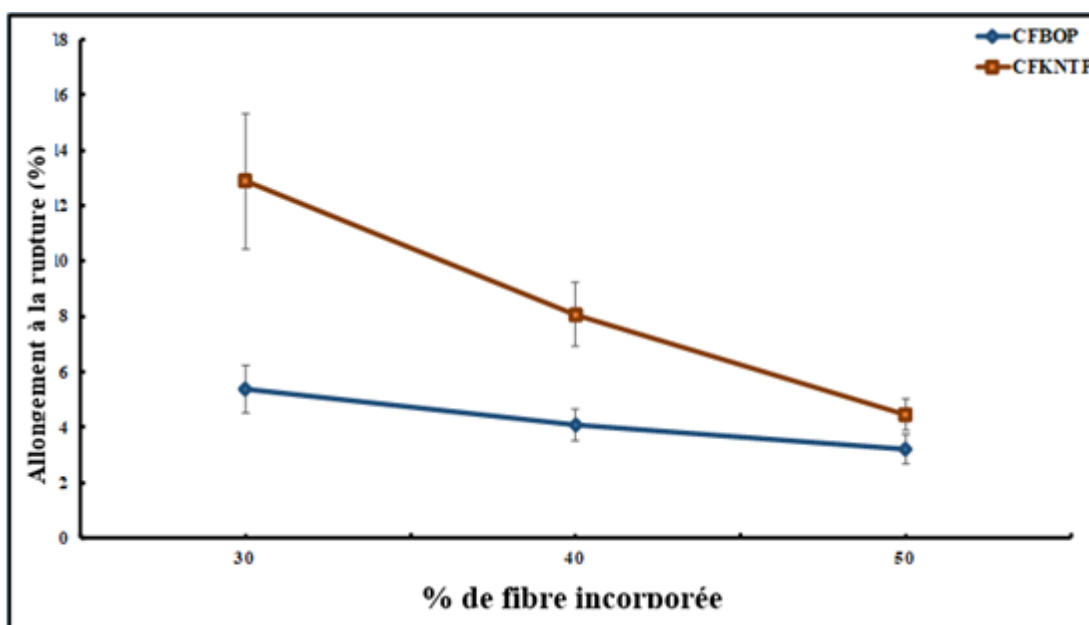
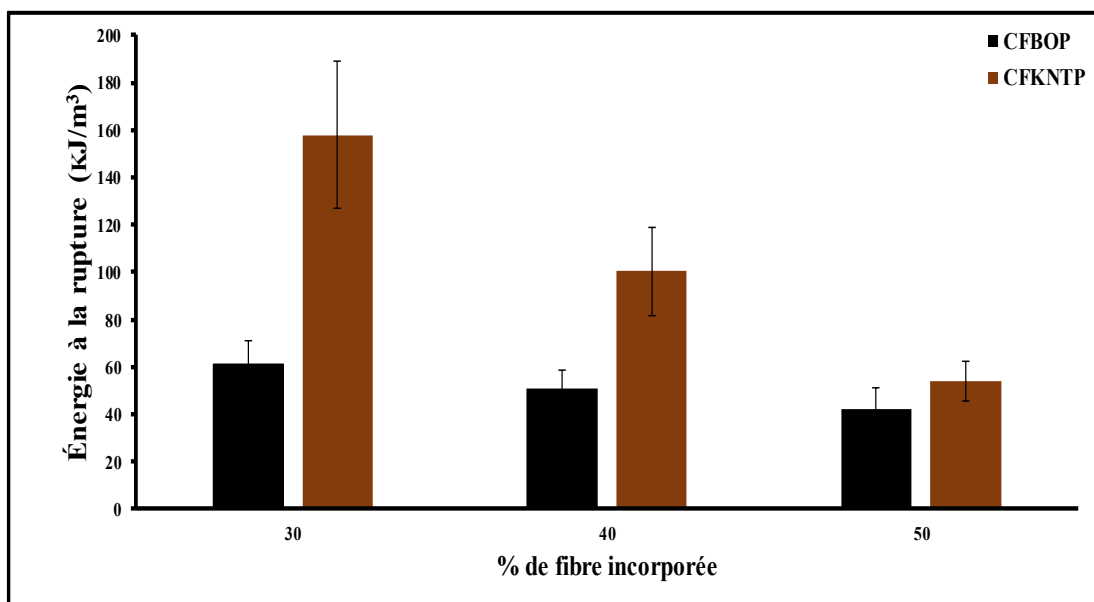


Figure 3.42 : Variation d'allongement à la rupture des composites chargés par des fibres kraft et bouleau blanc en fonction de la teneur en fibre



**Figure 3.43 : Variation de l'énergie de rupture des composites chargés par des fibres kraft et bouleau blanc en fonction de la teneur en fibre**

Le module d'Young du PP pur a été de 1,5 GPa (figure 3.39). À mesure que les teneurs en fibre des deux types sélectionnés, kraft ou bouleau blanc, ont augmenté, le module de traction est augmenté aussi. Avec des pourcentages de renfort variables de 30 à 40%, le module de traction a augmenté de 2,46 à 3,8 GPa pour les mélanges chargés par des fibres bouleau blanc et de 1,6 à 3,4 GPa pour ceux à base des fibres kraft. Ces résultats sont justifiés par différentes études, Lee et al., (2008) ont prouvé le même comportement des composites PLA/fibre de bois suite à l'augmentation de la teneur en renfort de 10 à 40%. La proportionnalité du module d'Young et la teneur en fibre de bois est toujours vérifiée quel que soit le type du polymère, l'essence du renfort ou la nature des additifs ajoutés. En outre, Dikobe et Luyt (2017) ont mentionné que la présence de la matière lignocellulosique et l'augmentation de leur teneur ont entraîné une augmentation continue du module d'Young de la matrice hybride PP/HDPE, tandis que celui des formulations MAPP/HDPE a subi une augmentation limitée.

Les fibres de bois et ses dérivés sont caractérisés par des modules de traction plus élevés que la plupart des polyoléfines, et par suite l'incorporation d'une faible quantité, devrait augmenter la rigidité du composite.

De même que le module de traction, une augmentation significative du module de rupture a été constatée par rapport à celui du PP non chargé. Le module de rupture a évolué de 26,01 à 33,76 MPa pour les composites PP/bouleau blanc et de 24,78 à 27,95 MPa pour les mélanges PP/fibre kraft. L'incorporation d'une quantité de fibre de bouleau blanc (30% en masse) a entraîné une augmentation de la résistance à la rupture. Les composites à haute teneur en charge (50% en masse) ont présenté la résistance la plus importante, environ 33,87 MPa.

Pour les différentes masses de fibre incorporée, une amélioration de la rigidité se produit avec une diminution de la limite d'élasticité. En général, les charges ayant une rigidité plus élevée que la matrice réduisent l'allongement à la rupture. Pour le PP vierge, l'allongement à la rupture est de  $549 \pm 54\%$ . Il a été clair que ce paramètre pour tous les composites était significativement réduit par l'incorporation des fibres. Ceci est dû à une déformabilité limitée de l'interface entre la fibre et la matrice. Cependant, l'allongement à la rupture était nettement plus élevé dans les composites renforcés par les fibres kraft que dans les composites remplis avec les fibres bouleau blanc.

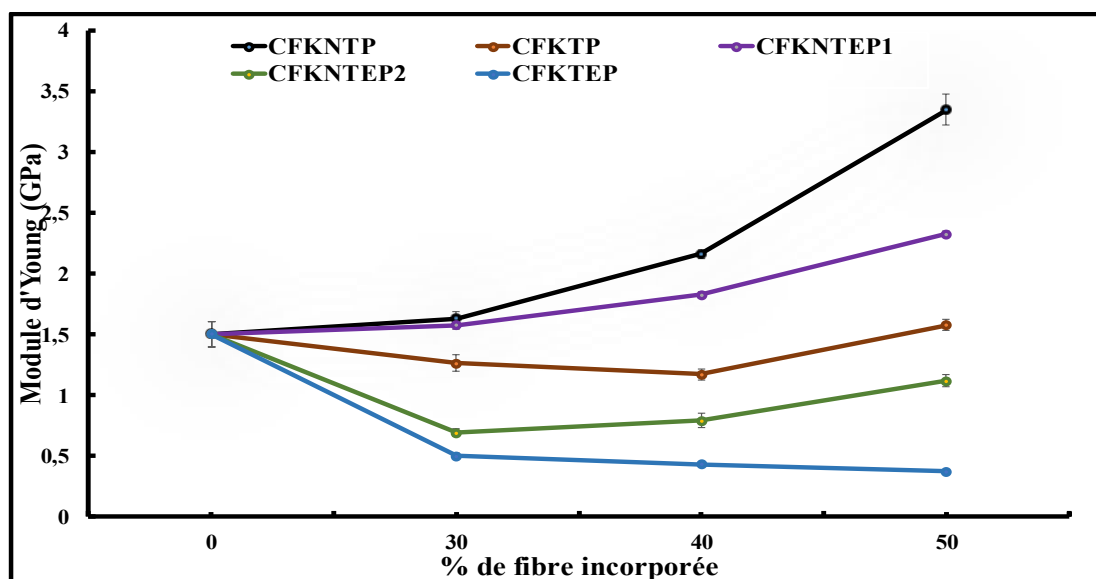
Le Digabel et al., (2004) ont trouvé les mêmes variations des modules et d'allongement à la rupture pour des composites PP/Résidu lignocellulosique à différentes teneurs en charge. L'énergie à la rupture a présenté le même aspect que l'allongement à la rupture. L'incorporation du renfort a provoqué une chute de cette énergie. Le manque d'adhérence interfaciale, due aux polarités opposées entre la matrice polymérique et les fibres de bois est le facteur responsable à ces propriétés mécaniques.

Les composites chargés par chacune des fibres, bouleau blanc ou kraft, n'ont pas présenté les mêmes comportements. Pour les différentes quantités de charges, les composites chargés par les fibres bouleau blanc ont été qualifiés par une rigidité plus élevée que ceux chargés par les fibres kraft. Le module d'Young des composites PP/fibre bouleau blanc a augmenté de 2,4, 3,1, et 3,8 GPa pour les diverses teneurs en fibre 30%, 40% et 50%, tandis qu'il a présenté des valeurs inférieures pour les composites PP/fibre kraft. Ces résultats sont en contradiction avec ceux publiés par Migneault et al., (2014) qu'ont montré que les composites chargés par les fibres kraft sont plus rigides à cause de la haute teneur en cellulose. Dans cette étude, deux raisons peuvent être à l'origine de ces résultats, soit les défauts structuraux comme les agglomérations, les vides et les pores causés par la faible homogénéisation, où les différences des diamètres, des largeurs ainsi que les ratios correspondants des fibres (Tableau 2.1).

Le module de rupture et la résistance à la traction ont suivi la même tendance que le module d'Young, les composites à base des fibres bouleau blanc sont les plus résistants et rigides que ceux chargés par les fibres kraft. L'allongement à la rupture a montré également une variation significative selon la catégorie des fibres ajoutées. Les fibres kraft ont produit des composites plus ductiles que les autres. Cette constatation concorde avec celle de Migneault et al., (2014) qui ont mentionné que l'augmentation de la teneur en fibre kraft incorporée au sein d'une matrice PEHD a permis d'avoir des échantillons plus ductiles que ceux, renforcés par les fibres bouleau blanc. Concernant la variation de l'énergie à la rupture, les mélanges PP/fibre kraft ont présenté des valeurs plus importantes que les mélanges PP/fibre bouleau blanc, pour les différentes teneurs en fibres.

### 3.5.3.2 Effet du traitement des fibres par glycérol et l'incorporation d'additif élastique SEBS-MA sur les propriétés en traction des mélanges PP/Kraft

L'étude des composites témoins a montré que les mélanges chargés par des fibres kraft sont plus ductiles que ceux remplis avec des fibres bouleau blanc. Dans cette partie on a choisi d'évaluer l'effet du traitement glycérol et la variation de la quantité d'élastomère incorporée sur le comportement ductile et la déformation des composites PP/fibre kraft. La combinaison de toutes les variables de composition a abouti à un grand nombre de composites. En conséquence, on s'abstient de présenter tous les résultats et concentrons l'attention sur des matériaux sélectionnés. Dans la première section, nous décrivons les propriétés de structure et de traction, tandis que le mécanisme de déformation et de rupture est analysé en détail dans la partie suivante. Les figures 3.44-3.48 ont illustré la variation des propriétés mécaniques en traction entre divers composites modifiés par le traitement, l'addition d'agent élastique ou les deux simultanément.



**Figure 3.44 : Variation du module d'Young des composites chargés par des fibres kraft (modifiés par traitement glycérol ou additifs élastiques) en fonction de la teneur en fibre**

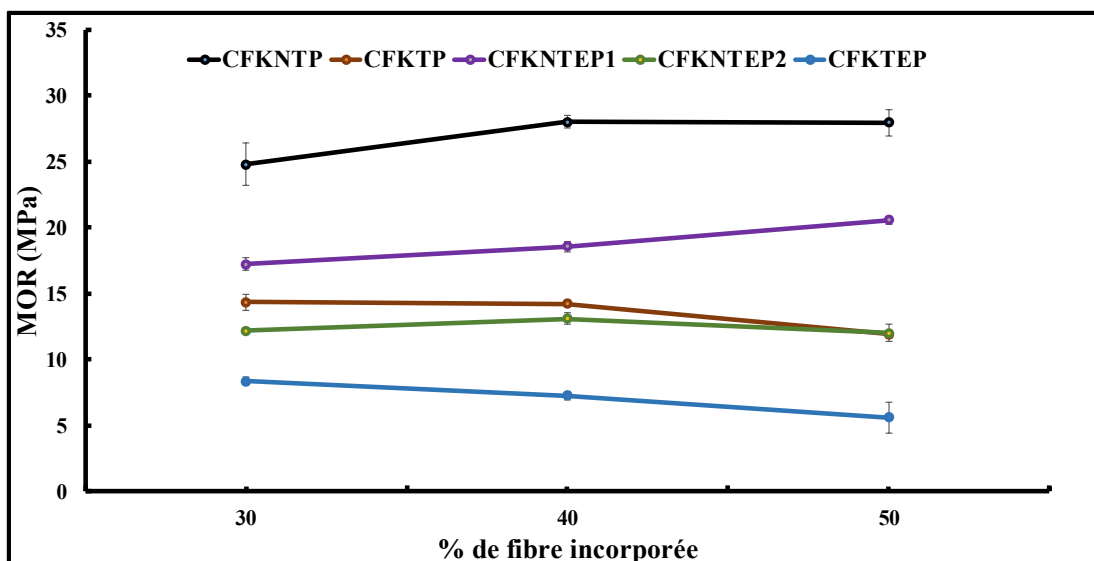


Figure 3.45 : Variation du MOR en traction des composites chargés par des fibres kraft (modifiés par traitement glycérol ou additifs élastiques) en fonction de la teneur en fibre

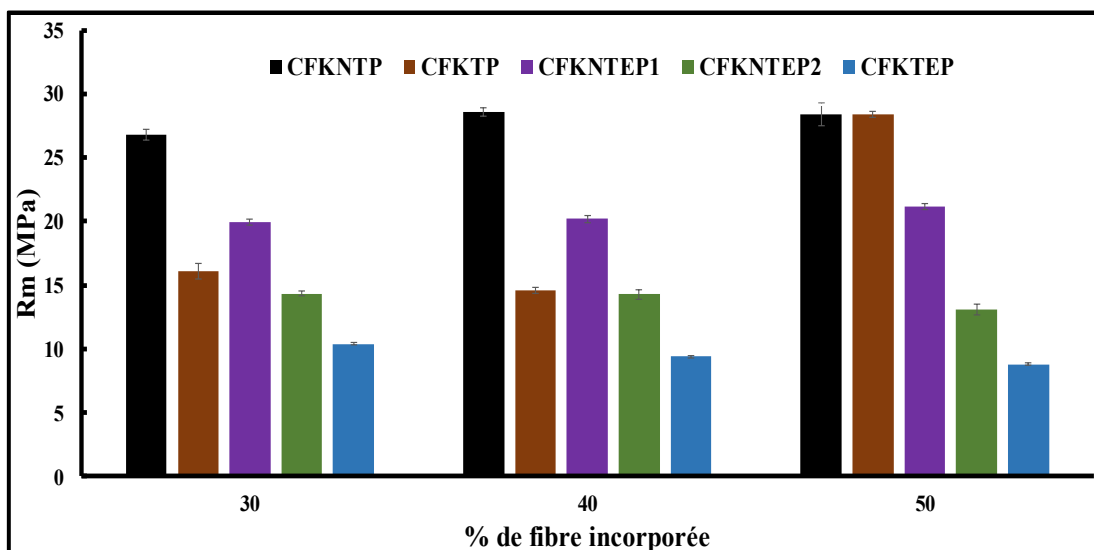
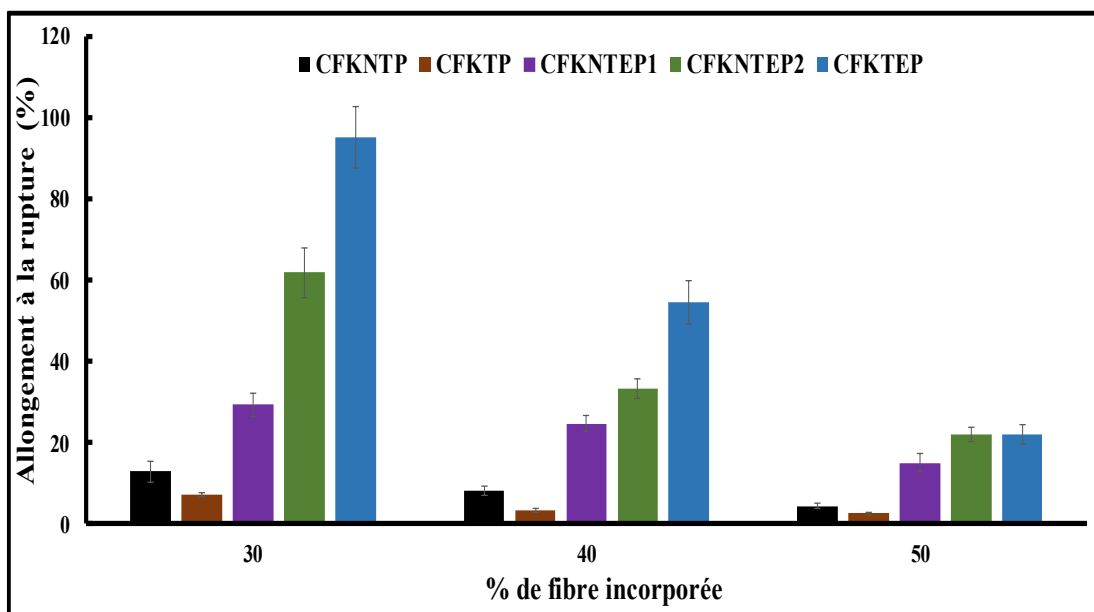
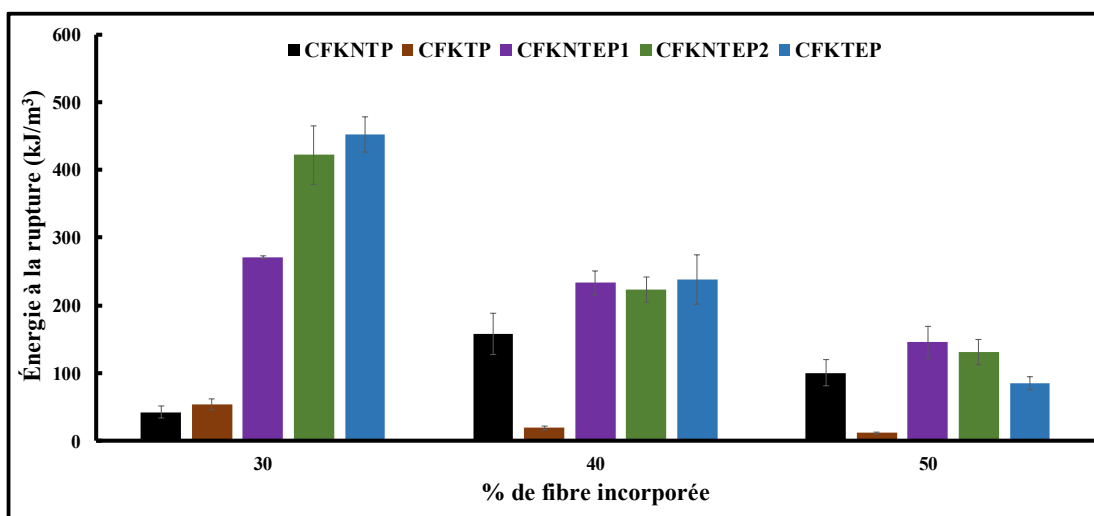


Figure 3.46 : Variation de la résistance maximale en traction des composites chargés par des fibres kraft (modifiés par traitement glycérol ou additifs élastiques) en fonction de la teneur en fibre



**Figure 3.47 : Variation d'allongement à la rupture en traction des composites chargés par des fibres kraft (modifiés par traitement glycérol ou additifs élastiques) en fonction de la teneur en fibre**



**Figure 3.48 : Variation de l'énergie de rupture des composites chargés par des fibres kraft (modifiés par traitement glycérol ou additifs élastiques) en fonction de la teneur en fibre**

L'incorporation et la variation de la quantité d'élastomère (SEBS-MA) ont eu un effet significatif sur les propriétés sélectionnées. La figure 3.43 présente l'empreinte de 10 et 20 % de SEBS-MA sur la rigidité des composites PP/fibre kraft. Il n'a été pas surprenant que l'ajout d'élastomères ayant un module d'Young plus faible a réduit la rigidité des composites. La variation du pourcentage d'élastomère dans la formulation a présenté une variation fluctuante du module d'Young. On a constaté que l'addition de 20% d'élastomère a diminué le module à des valeurs inférieures à celles du PP vierge, tandis qu'il a été encore bien supérieur pour les mélanges à 10%. Les mélanges à 30% de fibre et 10% d'élastomère ont présenté des valeurs de l'ordre de 1,57 GPa. L'augmentation de la teneur en fibre à 40 et 50% a provoqué une amélioration significative aux alentours 1,8 et 2,32 GPa, respectivement. L'amplification du pourcentage d'élastomère à 20% s'est manifestée par une diminution de 50% du module d'Young pour les trois teneurs en fibre. Clemons (2010) a trouvé les mêmes résultats pour différents mélanges, il a montré que l'ajout d'une matière élastique comme l'EPDM, EPDM-MA et SEBS-MA a diminué le module d'élasticité des composites à une seule matrice PP, PEHD ou bi-matrice (hybride) PP/PEHD. Pareillement, Keledi et al., (2012) ont mentionné que le module du polypropylène a été fortement augmenté avec l'addition de la farine de bois qui est plus rigide, alors que le MAPP n'a eu aucun effet sur le module. Ils ont trouvé que l'ajout des élastomères plus flexibles a abaissé les modules, bien que les composites soient encore considérablement plus rigides que le polypropylène non chargé.

Les composites à base des fibres traitées sont moins rigides que ceux chargés par les fibres non traitées. Ces résultats sont plus prononcés pour les échantillons à haute teneur en fibre (50%) qui ont présenté des valeurs aux environs de 1,17 GPa tandis que l'incorporation des fibres non modifiées a abouti à des modules d'Young proche de 3,34 GPa. Cela est justifié par la faible adhésion entre les composantes du mélange et les agglomérations de la charge kraft plastifiée. L'utilisation de 3% seulement d'agent de couplage, peut être à l'origine de cette diminution. Le traitement glycérol a

rendu les fibres kraft plus polaires et l'interaction renfort-matrice plus difficile. Sailaja et al., (2008) ont étudié l'effet de la variation de la teneur en MAPP sur la propriété mécanique des composites PP/fibre de bois traitée par glycérol. Ils ont constaté une amélioration de l'adhésion à partir d'un pourcentage de 9% de MAPP.

Les courbes du module d'Young des mélanges PP/SEBS-MA/fibre kraft traitée/MAPP sont représentées sur la figure 3.44. La rigidité de cette catégorie de mélange a diminué lorsque la quantité de fibre traitée augmente. L'incorporation des fibres plastifiées dans une matrice hybride (PP/SEBS-MA) a présenté des composites moins rigides que les autres échantillons qui font partie de l'étude. Contrairement aux autres mélanges, l'incorporation des fibres plastifiées par glycérol a présenté un autre sens d'évolution du module d'Young en augmentant la teneur en fibre. Les mélanges à 30% ont présenté des modules de 0,49 GPa, alors qu'ils sont limités à 0,43 et 0,37 GPa pour ceux chargés par 40 et 50% de fibres.

Une tendance similaire est observée pour les modules de rupture et la résistance maximale des mélanges comme les montrent les figures 3.45 et 3.46. La résistance des composites élaborés a augmenté avec l'augmentation de la teneur en fibres. Ce résultat concorde avec plusieurs études (Bouafif et al., 2009, Ashori et Nourbakhsh 2010). Cette amélioration, suite à l'augmentation de la quantité des fibres, est attestée par les caractéristiques des fibres qui sont plus résistantes que la matrice PP. Les composites à base des fibres kraft traitées sont moins résistants que ceux chargés par des fibres kraft traditionnelles. L'effet du traitement glycérol sur la résistance à la traction est beaucoup prononcé pour les mélanges à 40% de fibre. Elle est limitée à 14,6 MPa tandis que les fibres non modifiées ont contribué à la production des composites avec une résistance aux alentours de 28,59 MPa. Cependant, l'augmentation de la teneur en fibre traitée jusqu'à 50% a augmenté la résistance de 90% par rapport à celle des échantillons à 40% de fibre. Les interprétations suivantes viennent appuyer les recherches de Migneault et al., (2014) et Beg (2007), ils ont partagé des résultats similaires où ils ont conclu qu'en augmentant le pourcentage des

fibres de 10% à 60%, la résistance augmente. Néanmoins, Soucy (2007) a également publié que l'incorporation d'un pourcentage de fibres supérieure à 60% provoque la diminution des performances mécaniques comme la résistance à la traction. En outre, Koubaa et al. (2004) ont aussi confirmé que l'augmentation de la teneur en renfort lignocellulosique entraîne une amélioration pertinente pour certaines propriétés mécaniques comme la rigidité et la résistance, mais une faible quantité de charges provoque une baisse de la ductilité et la ténacité.

En augmentant la quantité de renfort de 30% à 50% dans le système PP/SEBS-MA, une amélioration de la résistance à la traction a eu lieu. Les composites riches en matière élastique, 20%, sont moins résistants que les mélanges à base de 10% de la même matière. Ils ont présenté des valeurs de 14,34, 14,25 et 13,08 MPa pour des teneurs en fibre égales à 30, 40 et 50% respectivement. Cette diminution s'explique par la faible résistance du modificateur d'impact ajouté à la formulation du composite par rapport à celle du PP vierge et de la fibre kraft. Ces résultats concordent avec ceux publiés par Keledi et al., (2012), ils ont montré que l'addition d'EPDM ou SEBS-MA a réduit les résistances à la traction et a abaissé la limite d'élasticité des composites PP/fibre de bois. La combinaison du traitement des fibres par glycérol et l'incorporation de 20% du SEBS-MA a abouti à des composites moins résistants avec une diminution de l'ordre de 158% pour les trois teneurs en fibres.

Concernant l'allongement à la rupture et l'énergie correspondante, les mélanges élaborés ont présenté des comportements différents. L'incorporation d'une faible quantité de fibre au sein du PP a réduit l'allongement à la rupture ainsi que l'énergie d'impact. Le MAPP a généralement eu un effet négatif sur l'allongement en raison de la plus grande adhérence entre la farine de kraft et le polypropylène, limitant la mobilité des polymères. Les élastomères ont augmenté le rendement du polypropylène, ce qui a entraîné un allongement plus élevé. L'addition du 10% d'élastomère a amélioré cette propriété d'une manière significative allant jusqu'à

30% pour les composites à 30% de fibre. La variation de la teneur du SEBS-MA à des quantités plus importantes (20%) se manifeste par l'augmentation de l'aptitude des composites à se déformer et s'allonger. Les mélanges à 30% de fibre sont devenus plus ductiles et ils se déforment jusqu'à 62%. Ces résultats se concorde avec ceux trouvés par Oksman et Clemons (1997), ils ont montré que les allongements sont plus importants avec les mélanges modifiés par SEBS-MA comparés aux autres traditionnels ou modifiés par l'incorporation du EPDM-MA. Ces augmentations sont probablement le résultat de l'encapsulation partielle des fibres par les élastomères qui a été plus efficace pour réduire les conséquences des contraintes créées par les particules de farine de bois.

Les effets des élastomères, de l'agent de couplage (MAPP) et de leurs combinaisons sur l'allongement à la rupture du polypropylène chargé par différents types de fibre de bois ont été le sujet de plusieurs recherches. Les fibres de bois ont augmenté la rigidité des mélanges PP et PP/SEBS-MA. Oksman et al., (1998), ont montré que la déformation des composites PP/fibre de bois est améliorée par l'addition d'une faible quantité de modificateurs d'impact, de l'ordre de 5%. L'ampleur de cette augmentation dépend de la teneur en bois et en élastomère et de l'étendue de l'enrobage de la charge lignocellulosique par la matière élastique (SEBS-MA). Le mécanisme de rupture des composites PP/SEBS-MA/fibre de kraft est plus compliqué que celui des systèmes monophasés, en raison des concentrations de contraintes, des problèmes d'incompatibilité et de l'hétérogénéité (Pukansky et al., 1989, Gupta et al., 1991, Long et Shanks 1996). À de faibles niveaux d'addition, les élastomères peuvent soit exister en tant que phase séparée dans la matrice de polypropylène ou encapsule partiellement ou complètement la charge (Pukansky et al., 1989, Long et Shanks 1996). La comparaison des mélanges modifiés par l'élastomère à ceux non traités a attesté que l'ajout d'élastomères a réduit le module et la résistance à la traction. Cette réduction reste limitée dans le cas des échantillons contenant du SEBS-MA, qui a démontré une certaine capacité à agir comme agent de couplage. L'application de

l'agent de couplage MAPP a entraîné une augmentation de l'adhérence interfaciale (Renner et al., 2010) et se traduit par un fort renforcement tant en absence qu'en présence de SEBS-MA.

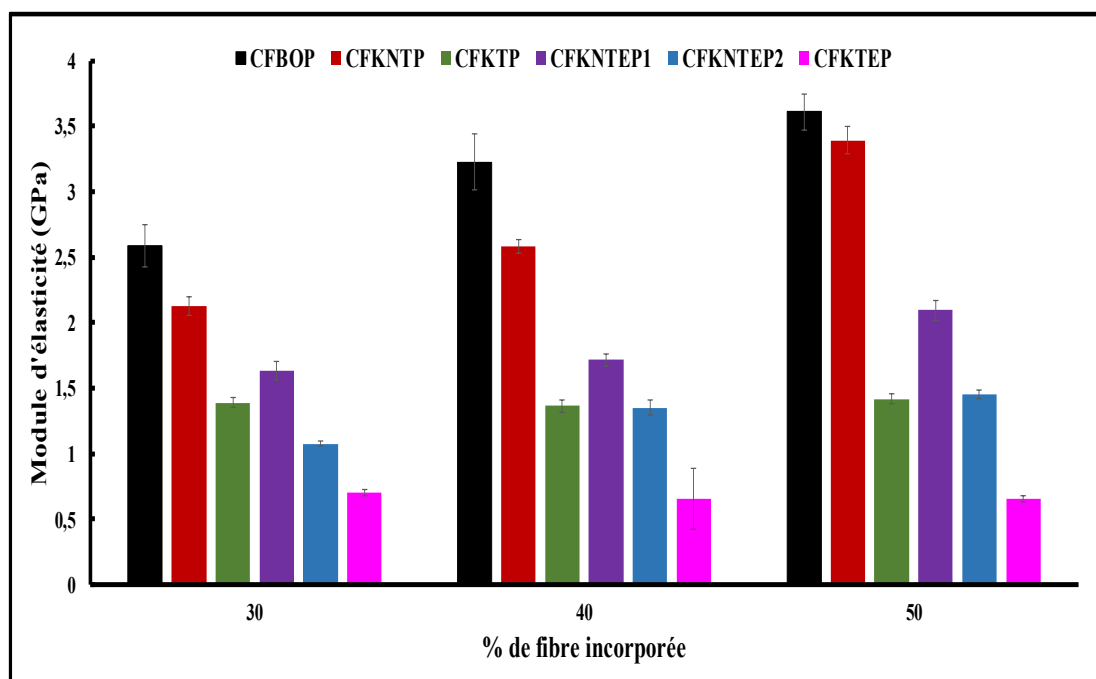
La présence du composant élastomère provoque également la diminution de la contrainte de limite élastique. Ces résultats se concordent avec les travaux de Sudár et al., (2014), ils ont constaté que l'incorporation des différents types d'élastomère avec ou sans MAPP se manifeste par la diminution de la rigidité des composites.

Le traitement des fibres kraft par glycérol a contribué à la production des composites moins ductiles. Il a été constaté que les allongements à la rupture et les énergies correspondantes ont diminué progressivement par rapport aux échantillons PP/fibre kraft. Le traitement des fibres kraft par la solution glycérol a favorisé la formation des agglomérations, ce qui a créé des déficiences au niveau de la structure interne des composites. Généralement, les défauts sont des vides et des pores présentant une orientation non uniforme des fibres. En cas d'une déformation, les contraintes vont se localiser à ces zones et la défaillance de l'éprouvette sera brutale. Les mélanges chargés par 30% de fibre traitée ont présenté la déformation la plus élevée de 7,12%, alors que les valeurs des composites à 50% de la même catégorie de fibre sont limitées à 2,60%. L'application d'un traitement glycérol a provoqué une diminution de 43,97%, 57,72% et 41,28% pour les trois teneurs en fibre 30%, 40% et 50% en les comparant par ceux chargés avec des fibres non traitées.

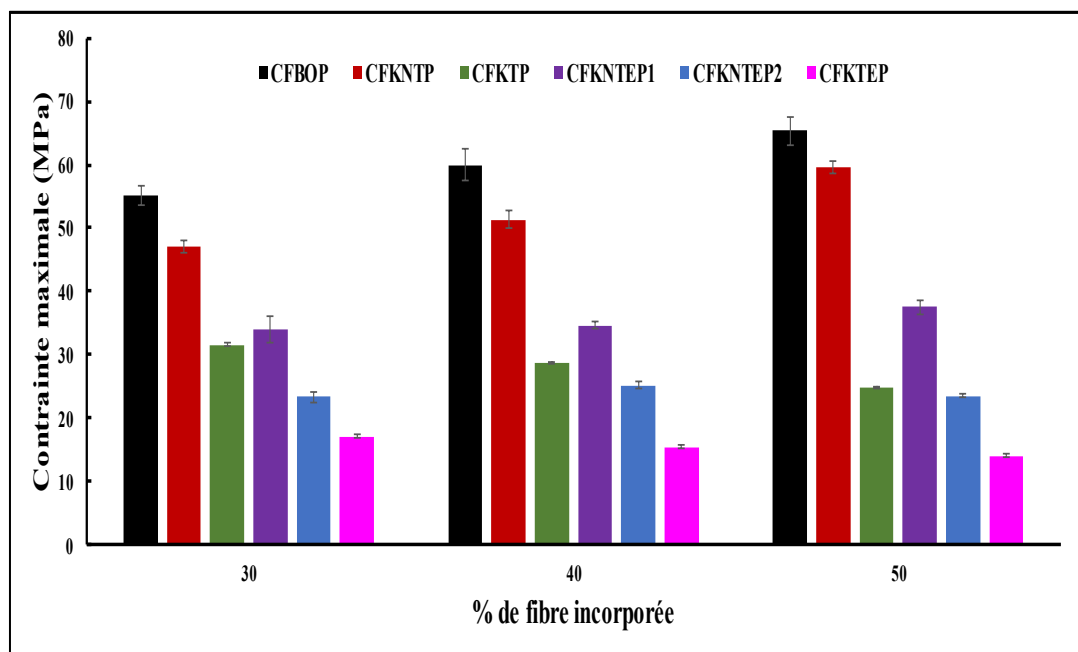
Les composites PP/SEBS-MA/fibre kraft plastifiée présentent le comportement le plus ductile. L'encapsulation des fibres plastifiées par le SEBS-MA a augmenté le glissement entre la charge et la matrice ce qui nous a amené à des allongements plus importants, 95%, 54%, et 22% pour des mélanges à 30%, 40% et 50% de fibre.

### 3.5.4 Étude des propriétés mécaniques par flexion

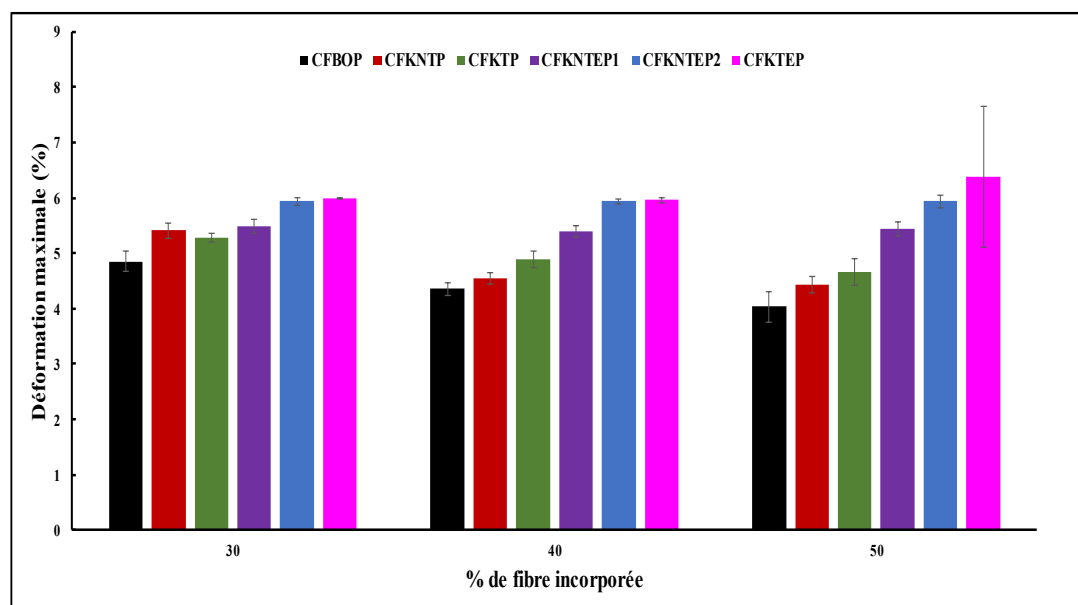
L'évaluation du comportement mécanique des échantillons par flexion est basée sur l'étude des trois propriétés, module d'élasticité en flexion, contrainte maximale et la déformation correspondante. Les figures 3.49-3.51 ont présenté la variation de ces caractéristiques en fonction de la quantité de fibre incorporée pour les diverses catégories de composites. La figure 3.49 illustre le module d'élasticité en flexion (MOE) en fonction de la proportion des fibres. Pour les deux types de fibre, kraft ou bouleau blanc, les analyses des résultats ont a montré que le module d'élasticité en flexion a augmenté avec l'augmentation de la teneur en fibres. Ces résultats concordent avec plusieurs travaux de diverses études antérieures (Li et al., 2004, Schirp et Wolcott 2007) qui ont affirmé que le remplissage des thermoplastiques par des fibres de bois tend à accroître le MOE en flexion.



**Figure 3.49 : Module d'élasticité en flexion des composites en fonction du pourcentage de fibre incorporée**



**Figure 3.50 : Contraite maximale en flexion des composites en fonction de la proportion des fibres**



**Figure 3.51 : Déformation à la contrainte maximale en flexion des composites en fonction de la proportion des fibres**

D'une façon générale et pour les diverses teneurs en fibre, les composites chargés par des fibres bouleau blanc ont montré un module d'élasticité en flexion supérieur à ceux renforcés par des fibres kraft. Le défibrage des deux catégories de fibres est effectué selon la même procédure. Cependant, la caractérisation par Metso a montré qu'elles sont de différentes longueurs et diamètres. À cet égard, les résultats obtenus pourront être expliqués par les différences morphologiques des fibres bouleau blanc que celles des fibres kraft. La différence entre les composites à base des fibres de bouleau blanc et ceux à base des fibres kraft est plus prononcée pour une teneur en fibre de 40%. L'addition du bouleau blanc au sein du PP a montré un module d'élasticité de 3,2 GPa, tandis que l'incorporation des fibres kraft a abouti à une diminution de rigidité de 2,58 GPa. Ce comportement concorde avec ceux des composites étudiés par Bouafif et al., (2009) et Migneault et al., (2009).

L'augmentation de la quantité des fibres traitées par glycérol au sein du PP ne partage pas le même effet sur le module d'élasticité en flexion. Le module des mélanges chargés par 30% de fibre traitée est de 1,38 GPa alors que les mélanges chargés par 40% de fibre présentent des modules de 1,36 GPa. Les composites chargés par des fibres plastifiées sont caractérisés par des valeurs du module inférieur à ceux remplis par des fibres kraft non traitées. Cette diminution est attestée par la formation des agglomérations du renfort durant l'opération d'injection.

Dans le même contexte, Stark et Rowlands (2003) ont montré que, le facteur de forme des fibres lignocellulosiques, indépendamment de la taille, a un effet significatif sur la rigidité et la résistance. En comparant globalement les histogrammes des mélanges modifiés par l'addition du SEBS-MA à ceux non modifiés, il a été clair que la matière élastique a diminué la rigidité des échantillons.

En outre, on a constaté que les valeurs de modules des composites contenant 10% en SEBS-MA sont supérieurs à ceux des autres mélanges à 20% du même additif.

L'incorporation des fibres traitées dans une matrice hybride (PP/SEBS-MA) a abouti à des composites moins rigides. En effet, l'augmentation de la teneur en fibres kraft traitées, en allant de 30 %, 40%, jusqu'à 50%, les MOE en flexion a diminué. Ces résultats ne sont pas en accord avec ceux publiés par Bendahou et al., (2007) qui ont mentionné que le module d'élasticité en flexion augmente avec l'augmentation de la quantité de fibre incorporée sauf au-delà d'un seuil de concentration où une faible diminution est remarquée. Ils ont prouvé qu'un pourcentage élevé des fibres favorise l'incompatibilité entre le polymère et les fibres et affaiblit l'adhésion entre les deux matières.

La figure 3.51 illustre la déformation en flexion correspondante à la contrainte maximale. La déformation maximale présente une légère variation entre les différentes formulations étudiées. Elle varie entre 4,03% et 6,38%. Les composites chargés par des fibres kraft traitées et modifiés par 20% d'élastomère sont caractérisés par une déformation maximale supérieure à celles des composites témoins. La variation de la teneur en fibre kraft non traitée pour les composites à 20% de SEBS-MA n'a aucun effet sur cette déformation, les différents mélanges obtenus ont des valeurs de déformation similaires de 5,93%. Une faible diminution de la déformation maximale est détectée pour les mélanges contenant 50% de fibres bouleau blanc comparativement à ceux chargés par 30% et 40% de mêmes fibres. Concernant les composites témoins, chargés uniquement par des fibres de bouleau blanc ou fibre kraft, la déformation maximale diminue avec l'augmentation de la teneur en fibre. Ces résultats sont en accord avec plusieurs travaux, Arrakhiz et al., (2013), Godard et al., (2008), Steckel et al., (2007) et Migneault (2007) ont montré

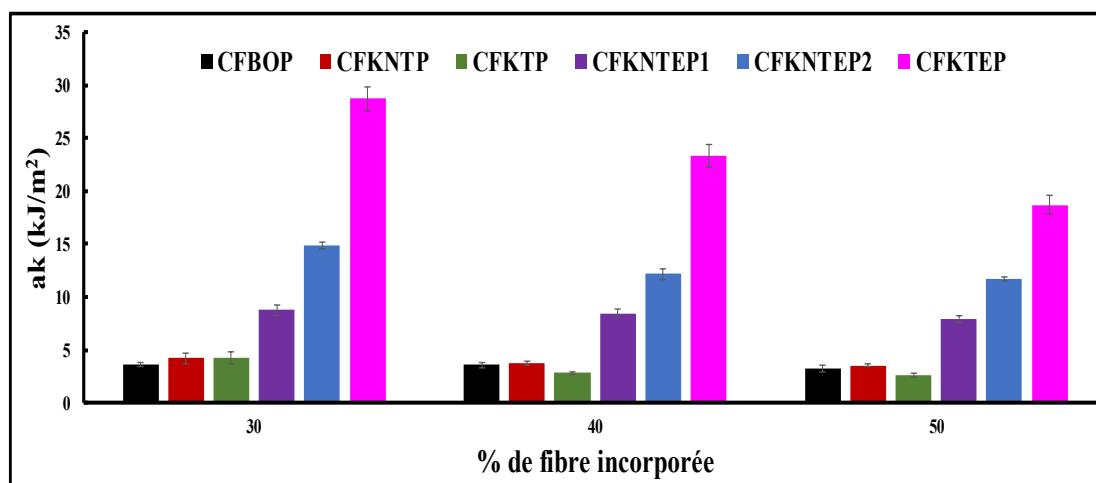
que l'augmentation de la quantité de fibre réduit significativement la déformation des composites bois-polymère.

Pour les composites sans traitement (CFBOP et CFKNTP), la contrainte maximale en flexion augmente lorsque la teneur en fibres augmente. Pour ces deux types de composites, quel que soit le pourcentage de fibre incorporée, les valeurs des contraintes maximales sont proches. Cela peut être expliqué par l'homogénéité des deux systèmes qui ont subi les mêmes étapes de production. Le reste des composites ne partagent pas un mode d'évolution identique, les mélanges remplis par des fibres kraft traitées, modifiés par l'addition d'élastomère à différentes quantités ou les deux au même mélange ne présentent pas une augmentation de la contrainte maximale suite à l'augmentation de la teneur en fibre.

### **3.5.5 Étude des propriétés mécaniques par essai d'impact**

Bien que l'accent a été mis sur l'amélioration des performances de ductilité, des propriétés de résistance à l'impact entaillé ont également été étudiées afin de donner une indication sur la ténacité des composites. L'annexe 2 et la figure 3.52 présentent les résistances aux chocs du polypropylène chargé par des fibres conventionnelles ainsi que les différents mélanges modifiés. L'addition des fibres, kraft ou bouleau blanc, au polypropylène a entraîné une perte de résistance aux chocs. Ceci n'est pas surprenant étant donné la faible compatibilité et la grande taille des particules de bois. L'ajout de MAPP a aidé à compenser une partie de la réduction de cette caractéristique en raison d'un meilleur transfert de contrainte entre la fibre et la matrice. Cependant, ces améliorations ont été limitées par le faible rapport d'aspect de la farine de bois. Pour les différentes teneurs en fibre, 30%, 40% et 50% les composites chargés par des fibres kraft sont plus résistants aux chocs que ceux chargés par des fibres de bouleau blanc. Cette différence est plus prononcée pour des faibles pourcentages de renfort, les mélanges à 30% de fibre kraft ont présenté une énergie de 4,19 kJ/m<sup>2</sup> tandis que les mélanges à la même teneur en fibre bouleau

blanc sont caractérisés par une énergie absorbée au choc de  $3,61\text{kJ/m}^2$ . Cela est expliqué par la structure chimique de chacune des fibres exploitées. L'extraction de l'hémicellulose a rendu les fibres kraft plus performantes et favorise leurs aptitudes de produire des composites plus cristallins, toutes en améliorant l'adhésion et la liaison interfacial avec la matrice polymérique (Migneault et al., 2014).

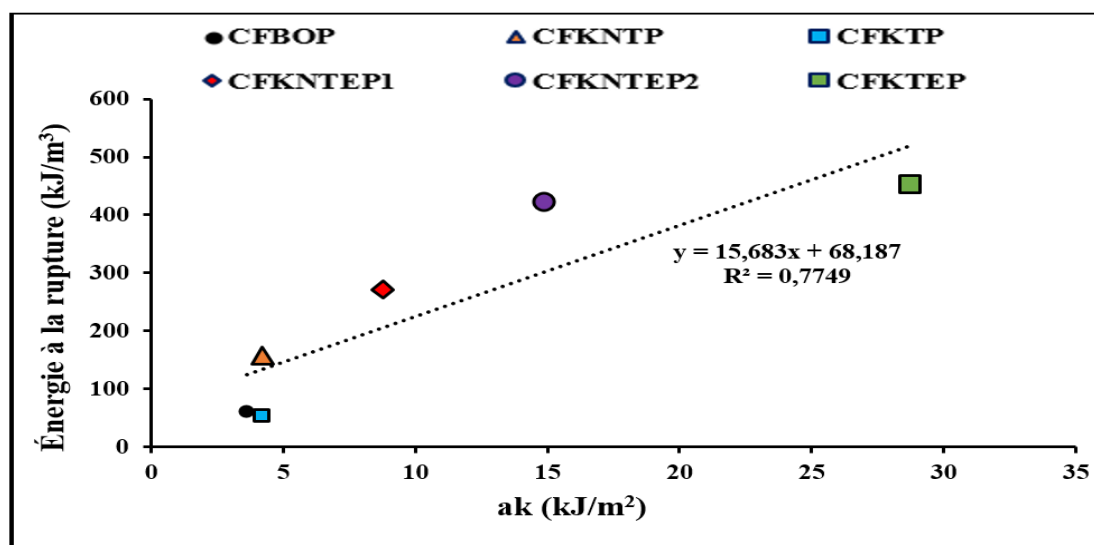


**Figure 3.52 : Résistance à l'impact des composites chargés par des fibres kraft et bouleau blanc en fonction de la teneur en fibre**

À partir des résultats obtenus, on a constaté que les échantillons à base de fibres kraft traitées sont moins résistants à l'impact. L'augmentation de la teneur en fibre traitée a réduit significativement la ténacité du mélange. La variation de la teneur en fibre traitée de 30% à 50% a diminué l'énergie absorbée aux chocs avec un taux de 38%. Les CBP élaborés à partir des fibres traitées ou non à 40% ont des résistances aux chocs comparables. La moyenne du ak des mélanges à base des fibres kraft non traitées est de  $2,79\text{ kJ/m}^2$ . La diminution est expliquée par les défauts de la structure du composite suite à la formation des agglomérations de fibre et la faible adhésion entre les composantes. Pour d'autres travaux comme ceux publiés par Sailaja et al., (2008), ils ont réussi de remédier

aux problèmes de l'adhésion et de l'agglomération suite au traitement glycérol par l'augmentation de la quantité d'agents de couplage MAPP vers 9%.

Comme l'addition de MAPP a offert de bonnes résistances à la traction et aux chocs, le niveau de charge de cet agent de couplage a été fixé à 3% en masse et la teneur en SEBS-MA a été modifiée de 10 à 20%. La résistance à l'impact des CBP contenant 3% en masse de MAPP et différentes quantités de SEBS-MA est présentée par l'annexe 2. L'objectif de cette partie est de montrer l'effet synergique des deux agents de couplage sur l'amélioration de la ténacité des composites PP/fibre kraft. Il a été perceptible que même si le module de traction et la résistance à la traction diminuent en présence de SEBS-MA, les réductions de propriétés sont faibles. Avec 10% en masse de SEBS-MA ajouté, le module de traction des CBP formulés avec 3% en masse de MAPP et 50% de fibre n'ont diminué que de 30,4%, tandis que la résistance à la traction n'a diminué que de 25,7%. Ces réductions de résistance et de module sont toutefois plus que compensées par de fortes augmentations de l'allongement à la rupture, énergie à la rupture et de la résistance au choc.



**Figure 3.53 : Variation de l'énergie à la rupture en fonction de la résistance à l'impact des différentes catégories de composites à 30% de fibre**

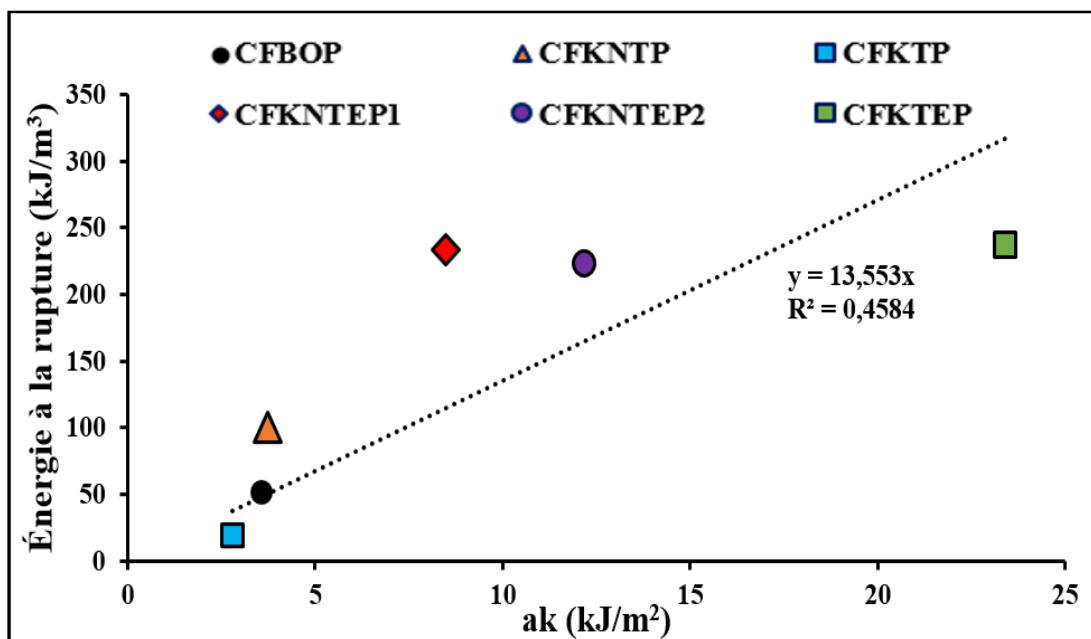


Figure 3.54 : Variation de l'énergie à la rupture en fonction de la résistance à l'impact des différentes catégories de composites à 40% de fibre

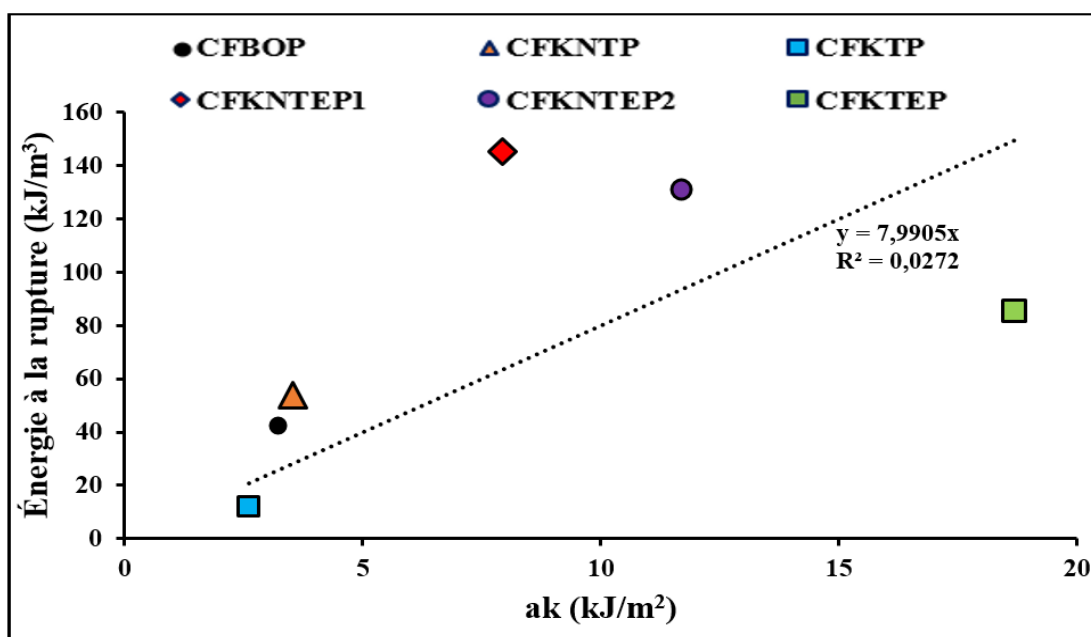


Figure 3.55 : Variation de l'énergie à la rupture en fonction de la résistance à l'impact des différentes catégories de composites à 50% de fibre

Les figures 3.53-55 présentent la variation de l'énergie à la rupture en fonction de la résistance à l'impact des différentes catégories de composites à 30, 40 et 50% de fibres. Pour les différents teneurs en fibres, les mélanges chargés avec des fibres kraft traitées par glycérol ont présenté les faibles valeurs d'énergie à la rupture et résistance à l'impact. Les composites modifiés par 20% de SEBS-MA sont caractérisés par des grandes énergies à la rupture mais des résistances à l'impact inférieures à celles des formulations constituées par des fibres kraft traitées et 20% d'élastomère.

En ajoutant seulement 10% de SEBS-MA à des mélanges chargés par 30% de fibre, l'énergie absorbée a augmenté de 4,19 à 8,76 kJ/m<sup>2</sup>, soit une augmentation de 108%. À des fins de comparaison, il convient de noter que la résistance aux chocs des échantillons à 50% de fibre est de 3,52 kJ/m<sup>2</sup>. En présence de 10% de SEBS-MA, cette valeur augmente à 7,93 kJ/m<sup>2</sup> et dépasse 16 kJ/m<sup>2</sup> lorsque 20% de la même matière est ajoutée à la formulation. Feng et al., (2001) ont constaté une augmentation identique de la résistance aux chocs avec ou sans entaille lors de l'ajout de 3% de MAPP à des formulations de PP et 50% de fibres kénaf.

L'utilisation de 3% de MAPP avec 20% de SEBS-MA semble donner un meilleur comportement ductile et tenace qu'avec l'utilisation de 3% de MAPP seul ou de la même quantité de cet additif avec 10% de SEBS-MA. Il convient de noter que le MAPP et le SEBS-MA ne peuvent pas réagir les uns avec les autres. Ils ne peuvent éventuellement concurrencer qu'au niveau de la réaction avec les groupes hydroxyles présents dans la farine de bois. Il en résulte une meilleure adhérence polymère-charge, quel que soit l'agent de couplage dominant.

Comme le bois a une structure poreuse, la plupart des groupes hydroxyles sont présents sur les surfaces intérieures. Ils ne sont que les groupes hydroxyles de surface qui participent à la réaction d'estérification. Compte tenu de ce fait et du fait que les deux agents de couplage sont ajoutés en différentes quantités (faible teneur en MAPP

et importante teneur en SEBS-MA), ils semblent agir indépendamment l'un de l'autre afin d'améliorer l'adhérence. En conséquence, on observe les caractéristiques de l'action de couplage des deux matériaux, y compris beaucoup plus l'action de renforcement de SEBS-MA lorsqu'il est en grande quantité. L'amélioration de la résistance à l'impact est obtenue suite à l'enrobage des fibres kraft par le modificateur d'impact SEBS-MA (Oksman et Clemons 1998). Diverses études ont montré que l'utilisation des élastomères modifiés à l'anhydride peut augmenter l'énergie absorbée aux chocs de 90% par rapport des composites non modifiés (Oksman et Clemons 1998).

La combinaison du traitement des fibres kraft par glycérol et l'addition des additifs élastiques à 20% a abouti à des mélanges plus tenaces que ceux chargés uniquement par des fibres kraft et 3% du MAPP. Les composites à 30% de fibre traitée et 20% de SEBS-MA désignent les mélanges les plus tenaces avec une énergie de 28,72 kJ/m<sup>2</sup>. En les comparant à celle des mélanges témoins, la superposition de ces deux approches présente une amélioration de 585,34%, 529,15% et 431,2% pour les composites à 30%, 40% et 50% de fibres, respectivement. Cette amélioration significative peut être expliquée par la nature d'interaction qui a eu lieu entre la particule de bois et le système bi-matrice PP/SEBS-MA.

## CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

### **Conclusions :**

L'objectif de cette étude est d'améliorer les comportements ductile et tenace des composites bois-polypropylène. Différentes interventions sont également adoptées afin d'augmenter la déformation et la résistance aux chocs. Les propriétés de fibre utilisée, la composition chimique ainsi que l'essence d'où elle est issue sont parmi les facteurs mis en jeu durant le déroulement de cette étude. À cet égard, deux types de renfort, bouleau blanc et fibre kraft sont exploités pour sélectionner la plus performante. Les deux autres alternatives envisagées sont l'effet des agents élastiques, nommés aussi des modificateurs d'impact, et les traitements des fibres par des solutions plastifiantes telles que le glycérol. Pour différentes catégories de mélange, l'extrusion est effectuée en utilisant le PP comme matrice, trois teneurs en fibres; 30, 40 et 50% et 3% agent de couplage (MAPP). L'objectif général et les objectifs spécifiques de cette étude ont été atteints.

Les propriétés mécaniques et physiques des fibres de bois varient considérablement. Ces performances sont déterminées par la composition chimique, la structure et le mode de production (pâte, boue...) qui dépend du type de fibre et de ses conditions de croissance. L'effet de ces différences est constaté suite à l'incorporation des fibres bouleau blanc et fibre kraft au sein du PP. Les composites chargés par des fibres kraft ont été moins sensibles à la variation de l'humidité que ceux chargés par des fibres bouleau blanc. L'étude de la stabilité dimensionnelle par immersion dans l'eau distillée a montré que l'utilisation des fibres kraft au lieu des fibres bouleau blanc a réduit le gain massique d'environ 26% pour des composites à 30% de fibre. La variation de la quantité de renfort rend cette différence plus prononcée, les composites à haute teneur en fibre (50% en masse) sont disqualifiés par un comportement moins stable. Pour ces diverses conditions, les formulations contenant

des fibres kraft présentent une résistance à l'absorption d'eau plus significatif que le cas des composites chargés par des fibres bouleau blanc. Un défi majeur pour les composites à matrice thermoplastique est la mauvaise adhérence inhérente entre la fibre hydrophile et la matrice hydrophobe. L'extraction de l'hémicellulose favorise l'interaction entre les fibres kraft et la matrice polymérique. Des composites avec une teneur en fibres allant jusqu'à 50% en masse sont plus ductiles et tenaces pour le kraft que les mélanges chargés par des fibres bouleau blanc. Une augmentation de plus de 39% pour l'allongement à la rupture et de 27% pour l'énergie à la rupture ont été obtenues en utilisant 50% en masse de fibre kraft que 50% en masse de fibre bouleau blanc. Cependant, une diminution a eu lieu pour les modules d'élasticité. Les mélanges obtenus par des fibres bouleau blanc sont plus rigides. Ils sont caractérisés par une augmentation de 12% pour le module d'Young et de 16% pour la résistance à la traction.

Le traitement des fibres par la solution plastifiante glycérol a augmenté la quantité des groupements hydroxyles ( $-OH$ ) sur la surface des fibres, ce qui a diminué sa cristallinité. La résistance à la traction et le module d'Young des composites chargés par 30% des fibres kraft traitées ont diminué respectivement de 26,78 MPa et 1,63 GPa à 16,78 MPa et 1,22 GPa par rapport aux mélanges chargés par la même teneur en fibre kraft non traitée. Les composites avec des fibres traitées ont montré une réduction dans toutes les performances mécaniques, mais ont présenté une amélioration pour les températures de dégradation thermique. Ceci suggère le potentiel d'utiliser un traitement glycérol pour améliorer la surface de la fibre et avoir une meilleure résistance thermique.

Le module E est amélioré de 70% lorsque la charge (50% en masse) est ajoutée au PP pur, mais des réductions ont été observées lorsque des élastomères sont ajoutés à ces systèmes composites. L'incorporation d'une quantité d'élastomère a entraîné une réduction de la résistance à la traction, du module d'élasticité en flexion, bien que peu de variation de la déformation maximale en flexion a été observée suite à

l'encapsulation des fibres kraft par cette matière. Le SEBS-MA a augmenté la ténacité, l'allongement à la rupture et la résistance aux chocs sont améliorés par rapport aux composites non modifiés. Ce genre de modificateur a une grande affinité pour la farine de bois et il a contribué à des augmentations des performances au choc plus pertinentes que celles obtenues avec d'autres adjuvants. Les résultats indiquent que SEBS-MA a agi à la fois en tant que compatibilisant et modificateur d'impact, ce qui entraîne une meilleure adhérence interfaciale, une meilleure résistance aux chocs et un allongement à la rupture plus élevé. Cependant, le module à la rupture a été plus faible et l'incapacité de transférer la contrainte de la matrice vers les particules des fibres de bois a confirmé que l'interphase formée par SEBS-MA entre la fibre et le PP est douce.

La stabilité dimensionnelle varie d'une approche à une autre. L'incorporation d'une teneur en élastomère dans la formulation a réduit significativement la quantité d'eau absorbée ainsi que les variations de masse et de volume. En passant de 10% à 20% de SEBS-MA, le gain massique ou volumique devient plus faible. Le traitement des fibres par glycérol a présenté un effet réciproque sur les propriétés physiques. Les fibres traitées sont devenues plus hydrophiles par la réticulation des groupements hydroxyles (-OH) sur leurs surfaces. Les composites chargés par cette catégorie de fibre ont été sensibles à la variation d'humidité. La combinaison des fibres traitées et l'ajout des additifs élastiques dans le même mélange sont caractérisés par un comportement intermédiaire, ce composite est plus hydrophobe que ceux à base des fibres traitées et moins stable que d'autres chargés par des fibres non traitées et modifiés par l'addition d'élastomère.

L'interaction entre la charge lignocellulosique et le modificateur d'impact a augmenté la stabilité thermique des composites. En outre, la cristallinité du PP dans les composites s'est avérée augmenter pour une teneur réduite en lignine et en hémicellulose en les comparant par celle du PP chargé par fibre bouleau blanc.

L'addition du SEBS-MA a favorisé la stabilité thermique, mais elle a diminué la cristallinité du PP.

Les composites contenant à la fois 20% de SEBS-MA et 30% des fibres traitées ont montré un allongement à la rupture noté de 638,52% supérieur à celui des composites témoins, mais la rigidité a été réduite de 69,5%. L'ajout du SEBS-MA et de MAPP simultanément aux composites PP / fibre kraft traitée a augmenté l'adhésion entre les différentes composantes du mélange. La chute des performances pour les composites chargés seulement par des fibres kraft non traitées est due à la nécessité d'une augmentation du pourcentage des agents de couplage. La résistance aux chocs est inférieure à celle où on a utilisé uniquement des modificateurs d'impact, elle a diminué de 13%. La microscopie électronique à balayage a montré que le SEBS-MA a eu une forte affinité pour les surfaces de bois et que le MAPP a amélioré encore l'adhérence entre les fibres kraft et le PP.

Ces résultats peuvent être résumés comme suit: Les SEBS-MA font des modificateurs d'impact efficaces dans les systèmes composites PP / fibre de bois et l'ajout de l'agent de compatibilité MAPP a un effet positif sur la rigidité du composite, la résistance à la traction et la résistance aux chocs entaillée. L'étude morphologique a montré que le MAPP a amélioré l'adhérence entre les fibres et le système hybride PP-SEB-MA. En les comparant par d'autres dans la littérature, les composites modifiés par SEBS-MA ont présenté la plus grande résistance aux chocs, l'allongement à la rupture et la résistance à la traction. Cet élastomère, SEBS-MA, a montré le meilleur potentiel pour être utilisé comme un modificateur de choc dans le système composite PP / fibre kraft, et l'utilisation de MAPP peut encore augmenter les performances mécaniques.

### **Implications pratiques :**

Les composites ductiles et tenaces sont demandés pour la fabrication des produits comme les planchers et les composantes des toitures (volige, chevron, enrayure, etc.) dont leur montage se fait par des vis ou des clous. Par ailleurs, grâce à un

comportement ductile, ces composites deviennent demandés aussi dans le domaine de la tuyauterie où une importante déformation est exigée. En outre, les domaines d'application des composites ductiles peuvent inclure aussi la fabrication des poutres qui puissent répondre aux exigences des applications structurales et qui résistent à des contraintes élevées avec une faible probabilité d'endommagement et de fracture.

### **Recommandations et futurs travaux :**

Les composites bois-plastique sont de plus en plus appliqués pour les applications structurales. Pour ces domaines, le moulage par extrusion et injection est la méthode de production préférée. Une meilleure liaison interfaciale entre la fibre et la matrice est nécessaire pour obtenir de meilleures propriétés mécaniques des composites. L'ajout d'agents de couplage est l'une des méthodes les plus efficaces pour les composites thermoplastiques renforcés de fibres de bois. Cependant, une quantité optimale d'agents de couplage fournit les propriétés mécaniques les plus élevées. Le mécanisme de liaison n'a pas été clairement compris; une analyse plus thermomécanique (par exemple DMA) est nécessaire pour comprendre le mécanisme de liaison entre la fibre et l'élastomère. Un traitement glycérol avec des études précises afin de bien choisir les paramètres de production (température et pression d'injection ainsi que d'extrusion) est recommandé pour être une méthode efficace à l'amélioration de la liaison interfaciale et par suite les performances mécaniques. Comme les composites chargés par des fibres kraft ont fourni de meilleures propriétés mécaniques (ductilité et ténacité) et meilleur stabilité dimensionnelle sous l'effet de l'immersion dans l'eau, il est préférable de produire des composites à faible teneur en lignine, hémicellulose et extractibles. L'incorporation des additifs élastiques tel que le SEBS-MA a contribué à la production des composites plus résistants à l'humidité. Ce mélange est recommandé dans les industries où aucune variation dimensionnelle n'est tolérée comme la tuyauterie ou dans la production des produits isolants comme l'enrobage des fils électriques. Une modélisation avancée est nécessaire

pour une meilleure compréhension de la façon dont les propriétés des composites changent avec différentes teneurs en fibres. Cependant, la plupart des modèles existants utilisent un paramètre d'ajustement. Le modèle « Règle modifiée de mélange » peut être utilisé dans ce contexte, qui comprend à la fois l'orientation des fibres et le facteur d'efficacité de longueur de fibre (en tant que facteur de transfert de contrainte entre la fibre et la matrice). Bien qu'il soit difficile de déterminer la résistance interfaciale au cisaillement entre les fibres de bois et PP, mais, il serait utile d'obtenir un meilleur modèle. Comme les méthodes conventionnelles (extrusion et moulage par injection) ont été utilisées pour la production de composites vierges et recyclés, ces méthodes et formulations peuvent être utiles pour la production de masse, bien qu'il soit préférable d'opter pour la production pilote avant de produire en masse.

## RÉFÉRENCES

- Aboul-Fadl, S., Zeronian, S., Kamal, M., Kim, M. et Ellison, M. (1985). Effect of mercerization on the relation between single fiber mechanical properties and fine structure for different cotton species. *Textile research journal* 55 (8), 461-469.
- Abreu, F., Forte, M. et Liberman, S. (2005). SBS and SEBS block copolymers as impact modifiers for polypropylene compounds. *Journal of Applied Polymer Science* 95 (2), 254-263.
- Adhikary, K. B., Pang, S. et Staiger, M. P. (2008). Dimensional stability and mechanical behaviour of wood-plastic composites based on recycled and virgin high-density polyethylene (HDPE). *Composites Part B: Engineering* 39(5): 807-815.
- Agrawal, C. et Pearsall, G. (1991). The fracture morphology of fast unstable fracture in polycarbonate. *Journal of materials science* 26(7): 1919-1930.
- Ait-Kheddache, A. (2013). *Traitement d'ignifugation du bois d'ingénierie par des revêtements intumescents*. Mémoire de maîtrise, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue. 112pp.
- Akiba, M. et Hashim, A. (1997). Vulcanization and crosslinking in elastomers. *Progress in polymer science* 22 (3), 475-521.
- Ardekani, S. M., Dehghani, A., Al-Maadeed, M. A., Wahit, M. U. et Hassan, A. (2014). Mechanical and thermal properties of recycled poly (ethylene terephthalate) reinforced newspaper fiber composites. *Fibers and Polymers* 15 (7), 1531-1538.
- Arrakhiz, F., El Achaby, M., Malha, M., Bensalah, M., Fassi-Fehri, O., Bouhfid, R., Benmoussa, K. et Qaiss, A. (2013). Mechanical and thermal properties of natural fibers reinforced polymer composites: Doum/low density polyethylene. *Materials & Design* 43 (2), 200-205.
- Astley, R., Harrington, J., Tang, S. et Neumann, J. (1998). *Modelling the influence of microfibril angle on stiffness and shrinkage in radiata pine*. Communications présentées au Microfibril angle in wood. Proc. IAWA/IUFRO Intn. Workshop on the significance of microfibril angle to wood quality, University of Canterbury: Christchurch, New Zealand. 272-295.

- Aucher, J. (2009). *Étude comparative du comportement composite à matrice thermoplastique ou thermodurcissable*. Thèse de doctorat, INSA de Rouen. 220 pp.
- Augier, L. (2007). *Étude de l'élaboration de matériaux composites PVC/bois à partir de déchets de menuiserie: formulation, caractérisation, durabilité et recyclabilité*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Toulouse, 241pp.
- Avat, F. (1993). *Contribution à l'étude des traitements thermiques du bois jusqu'à 300 C: transformations chimiques et caractérisations physico-chimiques*. Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, 237pp.
- Averous, L. et Boquillon, N. (2004). Biocomposites based on plasticized starch: thermal and mechanical behaviours. *Carbohydrate polymers* 56 (2), 111-122.
- Ayadi, R. (2018). *Potentiel des fibres de bois torréfiées pour la fabrication de composites de bois-polymère*. Mémoire de maîtrise, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue, 135pp.
- Azwa, Z., Yousif, B., Manalo, A. et Karunasena, W. (2013). A review on the degradability of polymeric composites based on natural fibres. *Materials & Design* 47 (2), 424-442.
- Baley, C. (2005). *Fibres naturelles de renfort pour matériaux composites*, Techniques Ingénieur, AM 5130.
- Beckermann, G. et Pickering, K. L. (2008). Engineering and evaluation of hemp fibre reinforced polypropylene composites: fibre treatment and matrix modification. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 39 (6), 979-988.
- Beg, M. D. H. (2007). *The improvement of interfacial bonding, weathering and recycling of wood fibre reinforced polypropylene composites*. Thèse de doctorat, The University of Waikato, 194pp.
- Beg, M. D. H. et Pickering, K. L. (2008). Accelerated weathering of unbleached and bleached Kraft wood fibre reinforced polypropylene composites. *Polymer degradation and stability* 93 (10), 1939-1946.
- Belgacem, M., Bataille, P. et Sapiéha, S. (1994). Effect of corona modification on the mechanical properties of polypropylene/cellulose composites. *Journal of Applied Polymer Science* 53 (4), 379-385.

- Bendahou, A., Dufresne, A., Habibi, Y. et Kaddami, H. (2007). Matériaux composites à base de fibres lignocellulosiques et de matrices thermoplastiques (PP et PEBD). *Le 8ème Colloque Franco-Roumain sur les Polymères, Young*, vol 54, 557-563.
- Bibo, G. et Hogg, P. (1996). The role of reinforcement architecture on impact damage mechanisms and post-impact compression behaviour. *Journal of materials science* 31 (5), 1115-1137.
- Bledzki, A. et Gassan, J. (1999). Composites reinforced with cellulose based fibres. *Progress in polymer science* 24 (2) 221-274.
- Bledzki, A., Izbicka, J. et Gassan, J. (1995). Kunststoffe-Umwelt-Recycling *Stettin, Poland* 27 (2), 145-152.
- Bledzki, A., Reihmane, S. et Gassan, J. (1996). Properties and modification methods for vegetable fibers for natural fiber composites. *Journal of Applied Polymer Science* 59 (8), 1329-1336.
- Borri, A., Corradi, M. et Speranzini, E. (2013). Reinforcement of wood with natural fibers. *Composites Part B: Engineering* 53: 1-8.
- Borysiak, S. (2007). Determination of nucleating ability of wood for non-isothermal crystallisation of polypropylene. *Journal of thermal analysis and calorimetry* 88 (2), 455-462.
- Bouafif, H., Koubaa, A., Perré, P. et Cloutier, A. (2009). Effects of fiber characteristics on the physical and mechanical properties of wood plastic composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 40 (12), 1975-1981.
- Bouafif, H., Koubaa, A., Perré, P., Cloutier, A. et Riedl, B. (2008). Analysis of among-species variability in wood fiber surface using DRIFTS and XPS: Effects on esterification efficiency. *Journal of Wood Chemistry and Technology* 28 (4), 296-315.
- Bouchereau, M. (1997). Génie Mécanique des caoutchoucs. *Apollor, INPL* 31 (5), 151-159.
- Bourbonnais, R. et Paice, M. G. (1992). Demethylation and delignification of kraft pulp by *Trametes versicolor* laccase in the presence of 2, 2'-azinobis-(3-ethylbenzthiazoline-6-sulphonate). *Applied Microbiology and Biotechnology* 36 (6), 823-827.

- Brahmakumar, M., Pavithran, C. et Pillai, R. (2005). Coconut fibre reinforced polyethylene composites: effect of natural waxy surface layer of the fibre on fibre/matrix interfacial bonding and strength of composites. *Composites Science and Technology* 65 (3-4), 563-569.
- Brémaud, I. (2006). *Diversité des bois utilisés ou utilisables en facture d'instruments de musique. Étude expérimentale des propriétés vibratoires en direction axiale de types de bois contrastés en majorité tropicaux. Relations à des déterminants de microstructure et de composition chimique secondaire*. Thèse de doctorat, Université Montpellier II-Sciences et Techniques du Languedoc, 324 pp.
- Cabral, H., Cisneros, M., Kenny, J., Vazquez, A. et Bernal, C. (2005). Structure–properties relationship of short jute fiber-reinforced polypropylene composites. *Journal of Composite materials* 39 (1), 51-65.
- Chen, F., Dai, H., Dong, X., Yang, J. et Zhong, M. (2011). Physical properties of lignin-based polypropylene blends. *Polymer composites* 32 (7), 1019-1025.
- Chen, J. et Yan, N. (2013). Mechanical properties and dimensional stability of organo-nanoclay modified biofiber polymer composites. *Composites Part B: Engineering* 47 (2), 248-254.
- Clemons, C. (2010). Elastomer modified polypropylene–polyethylene blends as matrices for wood flour–plastic composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 41 (11), 1559-1569.
- Clemons, C. M. (2000). Woodfiber-plastic composites in the United States–History and current and future markets. *The Proceedings of the 3rd International Wood and Natural Fibre Composites Symposium*, Kassel, Germany: 1-7
- Clemons, C. M., Giacomini, A. J. et Koutsky, J. A. (1997). Dynamic fracture toughness of polypropylene reinforced with cellulose fiber. *Polymer Engineering & Science* 37(6): 1012-1018.
- Colberg, M. et Sauerbier, M. (1997). Injection moulding of natural fibre-reinforced plastics. *Kunststoffe-Plast Europe* 87 (12), 1780-1782.
- Dahiya, J. et Rana, S. (2004). Thermal degradation and morphological studies on cotton cellulose modified with various arylphosphorodichloridites. *Polymer International* 53 (7), 995-1002.

- Dalvåg, H., Klason, C. et Strömwall, H.-E. (1985). The efficiency of cellulosic fillers in common thermoplastics. Part II. Filling with processing aids and coupling agents. *International Journal of Polymeric Materials* 11 (1), 9-38.
- Das, S., Saha, A., Choudhury, P., Basak, R., Mitra, B., Todd, T., Lang, S. et Rowell, R. (2000). Effect of steam pretreatment of jute fiber on dimensional stability of jute composite. *Journal of Applied Polymer Science* 76 (11), 1652-1661.
- Dehghani, A., Ardekani, S. M., Al-Maadeed, M. A., Hassan, A. et Wahit, M. U. (2013). Mechanical and thermal properties of date palm leaf fiber reinforced recycled poly (ethylene terephthalate) composites. *Materials & Design (1980-2015)* 52 (1), 841-848.
- Demir, H., Atikler, U., Balköse, D. et Tihminlioğlu, F. (2006). The effect of fiber surface treatments on the tensile and water sorption properties of polypropylene–luffa fiber composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 37 (3), 447-456.
- Dikobe, D. et Luyt, A. (2017). Thermal and mechanical properties of PP/HDPE/wood powder and MAPP/HDPE/wood powder polymer blend composites. *Thermochimica Acta* 654 (1), 40-50.
- Dittenber, D. B. et GangaRao, H. V. (2012). Critical review of recent publications on use of natural composites in infrastructure. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 43 (8), 1419-1429.
- Dong, S., Sapieha, S. et Schreiber, H. (1992). Rheological properties of corona modified cellulose/polyethylene composites. *Polymer Engineering & Science* 32 (22), 1734-1739.
- Eichhorn, S., Baillie, C., Zafeiropoulos, N., Mwaikambo, L., Ansell, M., Dufresne, A., Entwistle, K., Herrera-Franco, P., Escamilla, G. et Groom, L. (2001). Current international research into cellulosic fibres and composites. *Journal of materials science* 36 (9), 2107-2131.
- Ernst, H., Paris, P., Rossow, M. et Hutchinson, J. (1979). Analysis of load-displacement relationship to determine JR curve and tearing instability material properties. Fracture Mechanics: Proceedings of the Eleventh National Symposium on Fracture Mechanics: Part I, ASTM International
- Espert, A., Vilaplana, F. et Karlsson, S. (2004). Comparison of water absorption in natural cellulosic fibres from wood and one-year crops in polypropylene composites and its influence on their mechanical properties. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 35 (11), 1267-1276.

- Estournel-Pelardy, C. (2011). *Étude de la structure moléculaire de la matière organique des sols. Nouvelles stratégies de dégradation chimique*. Thèse de doctorat, Université de Poitiers, France, 229 pp.
- Feng, D., Caulfield, D. et Sanadi, A. (2001). Effect of compatibilizer on the structure-property relationships of kenaf-fiber/polypropylene composites. *Polymer composites* 22(4): 506-517.
- Felix, J. et Gatenholm, P. (1994). Effect of transcrystalline morphology on interfacial adhesion in cellulose/polypropylene composites. *Journal of materials science* 29 (11), 3043-3049.
- Felix, J. M. et Gatenholm, P. (1991). The nature of adhesion in composites of modified cellulose fibers and polypropylene. *Journal of Applied Polymer Science* 42 (3), 609-620.
- Fengel, D. et Wegener, G. (1983). *Wood: chemistry, ultrastructure, reactions*, Walter de Gruyter, 612pp.
- Fontanille, M. et Vairon, P. (1994). Polymérisation, traité plastiques et composites. *Techniques de L'ingénieur (A3 040)* 3040 (8), 252-259.
- Forsell, P. M., Mikkilä, J. M., Moates, G. K. et Parker, R. (1997). Phase and glass transition behaviour of concentrated barley starch-glycerol-water mixtures, a model for thermoplastic starch. *Carbohydrate polymers* 34 (4), 275-282.
- Francfort, G. et Marigo, J.-J. (2002). Vers une théorie énergétique de la rupture fragile. *Comptes Rendus Mécanique* 330(4): 225-233.
- Fu, S.-Y. et Lauke, B. (1996). Effects of fiber length and fiber orientation distributions on the tensile strength of short-fiber-reinforced polymers. *Composites Science and Technology* 56 (10), 1179-1190.
- Fu, S.-Y., Lauke, B., Mäder, E., Yue, C.-Y. et Hu, X. (2000). Tensile properties of short-glass-fiber-and short-carbon-fiber-reinforced polypropylene composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 31 (10), 1117-1125.
- Garceau, J., Chen, R., Danneault, C., Goel, K., Kokta, B. V., Koran, Z., Lavallée, H. C., Law, K. N., Lebel, R. G., Lemay, Y. et Rémillard, B. (1989). Pâtes mécaniques et chimico-mécaniques. *Section technique de l'ACPPP* 7 (10), 299.
- Gassan, J. et Bledzki, A. (1996). Composition of different natural fibers. *Die Angew Makromol Chem* 236 (10), 129-138.

- Gehring, F. (2013). *Étude du comportement mécanique et de l'endommagement de composites thermoplastiques renforcés de fibres courtes de chanvre: approche expérimentale et modélisation*. Thèse de doctorat, Université de Lorraine, 151 pp.
- George, G., Jose, E. T., Jayanarayanan, K., Nagarajan, E., Skrifvars, M. et Joseph, K. (2012). Novel bio-commingled composites based on jute/polypropylene yarns: Effect of chemical treatments on the mechanical properties. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 43 (1), 219-230.
- Gill, P., Sauerbrunn, S. et Reading, M. (1993). Modulated differential scanning calorimetry. *Journal of thermal analysis* 40 (3), 931-939.
- Godard, F., Vincent, M., Agassant, J.-F. et Vergnes, B. (2008). Étude du comportement rhéologique et des propriétés mécaniques de composites sciures de bois-polyéthylène haute densité. *Rhéologie* 13 (1), 9-21.
- Gontard, N., Guilbert, S. et CUQ, J. L. (1992). Edible wheat gluten films: influence of the main process variables on film properties using response surface methodology. *Journal of food science* 57 (1), 190-195.
- Gosselin, R. (2005). *Injection de mousses composites bois/plastiques d'origine postconsommation*. Mémoire de maîtrise, Faculté des Sciences et de Génie, Université Laval, Québec 23 (6), 124-129.
- Grellmann, W., Seidler, S., Gahleitner, M. et Nezbedova, E. (1998). Fracture toughness of polypropylene copolymers: influence of interparticle distance and temperature. *Polymer* 39(1): 75.
- Grellmann, W., Seidler, S. et Hesse, W. (2001). Procedure for determining the crack resistance behaviour using the instrumented Charpy impact test. *Deformation and Fracture Behaviour of Polymers*, Springer: 71-86.
- Gupta, A., Srinivasan, K. et Kumar, P. K. (1991). Glass fiber reinforced polypropylene/EPDM blends. II. Mechanical properties and morphology. *Journal of Applied Polymer Science* 43 (3), 451-462.
- Hadidane, M. M. (2015). *Effet des nanoparticules sur les caractéristiques des composites bois-polymère*. Mémoire de maîtrise, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue, 112 pp.
- Hashemi, S. et Williams, J. (1985). Crack sharpness effects in fracture testing of polymers. *Journal of materials science* 20(3): 922-928.

- Hashemi, S. et Williams, J. (1984). Size and loading mode effects in fracture toughness testing of polymers. *Journal of materials science* 19(11): 3746-3759.
- Hearle, J. et Cross, P. (1970). The fractography of thermoplastic textile fibres. *Journal of materials science* 5 (6), 507-516.
- Herrera-Franco, P. et Valadez-Gonzalez, A. (2004). Mechanical properties of continuous natural fibre-reinforced polymer composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 35 (3), 339-345.
- Hodgkinson, J. M. (2000). Mechanical testing of advanced fibre composites, *Elsevier*, 354 pp.
- Holbery, J. et Houston, D. (2006). Natural-fiber-reinforced polymer composites in automotive applications. *JOM Journal of the Minerals, Metals and Materials Society* 58 (11), 80-86.
- Hosseinaei, O., Wang, S., Enayati, A. A. et Rials, T. G. (2012). Effects of hemicellulose extraction on properties of wood flour and wood-plastic composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 43 (4), 686-694.
- Hristov, V. et Vasileva, S. (2003). Dynamic mechanical and thermal properties of modified poly (propylene) wood fiber composites. *Macromolecular Materials and Engineering* 288 (10), 798-806.
- Huang, A.-m. et Huang, L.-h. (2010). FTIR studies of masson pine wood decayed by brown-rot fungi. *Spectroscopy and Spectral Analysis* 30 (8), 2133-2136.
- Ishak, Z. M., Chow, W. et Takeichi, T. (2008). Influence of SEBS-g-MA on morphology, mechanical, and thermal properties of PA6/PP/organoclay nanocomposites. *European Polymer Journal* 44 (4), 1023-1039.
- Jacquot, B. (2010). Propriétés mécaniques des Biomatériaux utilisés en Odontologie. *Société Francophone des Biomatériaux Dentaires (SFBD)* 23 (4), 124-128.
- John, M. J. et Thomas, S. (2008). Biofibres and biocomposites. *Carbohydrate polymers* 71 (3), 343-364.
- Jose, S., Thomas, P. S., Thomas, S. et Karger-Kocsis, J. (2006). Thermal and crystallisation behaviours of blends of polyamide 12 with styrene-ethylene/butylene-styrene rubbers. *Polymer* 47 (18), 6328-6336.

- Joseph, P., Joseph, K. et Thomas, S. (1999). Effect of processing variables on the mechanical properties of sisal-fiber-reinforced polypropylene composites. *Composites Science and Technology* 59 (11), 1625-1640.
- Joseph, P., Rabello, M. S., Mattoso, L., Joseph, K. et Thomas, S. (2002). Environmental effects on the degradation behaviour of sisal fibre reinforced polypropylene composites. *Composites Science and Technology* 62 (10-11), 1357-1372.
- Kaczmar, J. W., Pach, J. et Burgstaller, C. (2011). The chemically treated hemp fibres to reinforce polymers. *Polimery* 56 (4), 157-162.
- Kalaprasad, G., Joseph, K., Thomas, S. et Pavithran, C. (1997). Theoretical modelling of tensile properties of short sisal fibre-reinforced low-density polyethylene composites. *Journal of materials science* 32 (16), 4261-4267.
- Karger-Kocsis, J. (2012). Polypropylene structure, blends and composites: Volume 3 composites, Springer Science & Business Media 227pp
- Karmarkar, A., Chauhan, S., Modak, J. M. et Chanda, M. (2007). Mechanical properties of wood-fiber reinforced polypropylene composites: Effect of a novel compatibilizer with isocyanate functional group. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 38 (2), 227-233.
- Kausch, H. et Béguelin, P. (2001). Deformation and fracture mechanisms in filled polymers. *Macromolecular Symposia*, Wiley Online Library: 79-87.169
- Kazayawoko, M., Balatinecz, J. et Matuana, L. (1999). Surface modification and adhesion mechanisms in woodfiber-polypropylene composites. *Journal of materials science* 34 (24), 6189-6199.
- Kazayawoko, M., Balatinecz, J. et Woodhams, R. (1997). Diffuse reflectance Fourier transform infrared spectra of wood fibers treated with maleated polypropylenes. *Journal of Applied Polymer Science* 66 (6), 1163-1173.
- Keledi, G., Sudár, A., Burgstaller, C., Renner, K., Móczó, J. et Pukánszky, B. (2012). Tensile and impact properties of three-component PP/wood/elastomer composites. *Express Polym Lett* 6 (3), 224-236.
- Keller, R. (1994). Le bois, matériau d'ingénierie, chapitre I: La constitution du bois, textes rassemblés par Philippe Jodin, ARBOLOR.
- Kim, H.-S., Kim, S., Kim, H.-J. et Yang, H.-S. (2006). Thermal properties of bio-flour-filled polyolefin composites with different compatibilizing agent type and content. *Thermochimica Acta* 451 (1-2), 181-188.

- Kohler, R. et Wedler, M. (1995). Technische verwertung von pflanzenfasern. *Landinfo*. 3 (12), 33-38.
- Kokta, B. V., Daneault, C. et Beshay, A. D. (1986). Use of grafted aspen fibers in thermoplastic composites: IV. Effect of extreme conditions on mechanical properties of polyethylene composites. *Polymer composites* 7 (5), 337-348.
- Kobayashi, T. et Niinomi, M. (1989). Evaluation of dynamic crack initiation and growth toughness by computer aided Charpy impact testing system. *Nuclear Engineering and Design* 111(1): 27-33.
- Kokta, B. V., Chen, R., Daneault, C. et Valade, J. L. (1983). Use of wood fibers in thermoplastic composites. *Polymer composites* 4(4): 229-232.
- Kuboki, T., Lee, Y., Park, C. et Sain, M. (2007). Effects of styrene–ethylene–butylene–styrene based additives on the mechanical properties of rice hull/polypropylene composites. *Polymer Engineering & Science* 47(7): 1148-1155.
- Koubaa, A. (1996). *Amélioration de la résistance des liaisons dans le papier et le carton par raffinage et par pressage et séchage simultanés*. Thèse de doctorat, Université du Québec à Trois-Rivières, 271 pp.
- Kritschewsky, G. (1985). Chemische technology von textilmaterialien. *Legprombitisdat*, Moskau 7 (3), 237-247.
- Kuboki, T., Lee, Y., Park, C. et Sain, M. (2007). Effects of styrene–ethylene–butylene–styrene based additives on the mechanical properties of rice hull/polypropylene composites. *Polymer Engineering & Science* 47 (7), 1148-1155.
- Lafaye, S. (2002). *Propriétés mécaniques de friction et de déformation des surfaces de polymères*. Thèse de doctorat, Université Louis Pasteur-Strasbourg I.165 pp.
- Landel, R. F. et Nielsen, L. E. (1993). Mechanical properties of polymers and composites, *CRC press*, 230pp
- Le Thi, T., Gauthier, H., Gauthier, R., Chabert, B., Guillet, J., Luong, B. et Nguyen, V. (1996). Realization of polypropylene/sisal fiber composites by reactive extrusion. *Journal of Macromolecular Science, Part A: Pure and Applied Chemistry* 33(12): 1997-2004.
- Lee, S.-Y., Kang, I.-A., Doh, G.-H., Yoon, H.-G., Park, B.-D. et Wu, Q. (2008). Thermal and mechanical properties of wood flour/talc-filled polylactic acid

- composites: Effect of filler content and coupling treatment. *Journal of Thermoplastic Composite Materials* 21 (3), 209-223.
- Leong, Y., Bakar, A., Ishak, Z., Ariffin, A. et Pukanszky, B. (2004). Comparison of the mechanical properties and interfacial interactions between talc, kaolin, and calcium carbonate filled polypropylene composites. *Journal of Applied Polymer Science* 91 (5), 3315-3326.
- Li, H., Law, S. et Sain, M. (2004). Process rheology and mechanical property correlationship of wood flour-polypropylene composites. *Journal of reinforced plastics and composites* 23 (11), 1153-1158.
- Li, T. et Li, R. (2001). A fracture mechanics study of polypropylene-wood flours blends. *Polymer-Plastics Technology and Engineering* 40(1): 1-21.
- Li, W., Li, R. et Tjong, S. (1998). Fracture toughness of elastomer-modified polypropylene: material characterisation. *Polymer Testing* 16(6): 563-574.
- Lin, Q., Zhou, X. et Dai, G. (2002). Effect of hydrothermal environment on moisture absorption and mechanical properties of wood flour-filled polypropylene composites. *Journal of Applied Polymer Science* 85 (14), 2824-2832.
- Liu, K., Takagi, H., Osugi, R. et Yang, Z. (2012). Effect of lumen size on the effective transverse thermal conductivity of unidirectional natural fiber composites. *Composites Science and Technology* 72 (5), 633-639.
- Long, Y. et Shanks, R. A. (1996). PP/elastomer/filler hybrids. II. Morphologies and fracture. *Journal of Applied Polymer Science* 62 (4), 639-646.
- Lu, J. Z., Wu, Q. et McNabb, H. S. (2007). Chemical coupling in wood fiber and polymer composites: a review of coupling agents and treatments. *Wood and fiber science* 32 (1), 88-104.
- Lu, N. et Oza, S. (2013). Thermal stability and thermo-mechanical properties of hemp-high density polyethylene composites: effect of two different chemical modifications. *Composites Part B: Engineering* 44 (1), 484-490.
- Lustiger, A., Marzinsky, C. et Mueller, R. (1998). Spherulite boundary strengthening concept for toughening polypropylene. *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics* 36 (12), 2047-2056.
- Maldas, D., Kokta, B. et Daneault, C. (1989). Influence of coupling agents and treatments on the mechanical properties of cellulose fiber-polystyrene composites. *Journal of Applied Polymer Science* 37 (3), 751-775.

- Maldas, D. et Kokta, B. (1991). Influence of maleic anhydride as a coupling agent on the performance of wood fiber-polystyrene composites. *Polymer Engineering & Science* 31(18): 1351-1357.
- Manfredi, L. B., Rodríguez, E. S., Wladyka-Przybylak, M. et Vázquez, A. (2006). Thermal degradation and fire resistance of unsaturated polyester, modified acrylic resins and their composites with natural fibres. *Polymer degradation and stability* 91 (2), 255-261.
- Marco, C., Ellis, G., Gómez, M., Fatou, J., Arribas, J., Campoy, I. et Fontecha, A. (1997). Rheological properties, crystallization, and morphology of compatibilized blends of isotactic polypropylene and polyamide. *Journal of Applied Polymer Science* 65 (13), 2665-2677.
- Matouk, A. (2012). Revêtements ignifuges pour des panneaux à lamelles orientées (OSB). Mémoire de maîtrise, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue (Canada).110 pp.
- Mendianta-García, M. B., Páramo-García, U., Díaz-Zavala, N. P., Robledo-Muñiz, J. G. et Rivera-Armenta, J. L. (2013). Thermal & morphological evaluation of linear and radial SEBS-polypropylene blends. *Polímeros* 23 (5), 597-601.
- Méziane, F. (2011). *Propriétés thermiques des lamelles de bois traitées par des agents de retardement de feu*. Mémoire de maîtrise, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue,130pp.
- Michaud, F. (2003). *Rhéologie de panneaux composites bois/thermoplastiques sous chargement thermomécanique: aptitude au postformage*. Thèse de doctorat, UNIVERSITÉ BORDEAUX I, 256pp.
- Migneault, S. (2007). *Effets de la longueur des fibres sur la formation et les propriétés des composites bois-plastiques*. Mémoire de maîtrise en ingénierie, Université du Québec en Abitibi-Témiscamingue.107 pp.
- Migneault, S., Koubaa, A., Erchiqui, F., Chaala, A., Englund, K. et Wolcott, M. P. (2009). Effects of processing method and fiber size on the structure and properties of wood-plastic composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 40 (1), 80-85.
- Migneault, S., Koubaa, A. et Perré, P. (2014). Effect of fiber origin, proportion, and chemical composition on the mechanical and physical properties of wood-plastic composites. *Journal of Wood Chemistry and Technology* 34 (4), 241-261.

- Mohanty, A. K., Misra, M. et Drzal, L. (2002). Sustainable bio-composites from renewable resources: opportunities and challenges in the green materials world. *Journal of Polymers and the Environment* 10 (1-2), 19-26.
- Müller, U., Rätzsch, M., Schwanninger, M., Steiner, M. et Zöbl, H. (2003). Yellowing and IR-changes of spruce wood as result of UV-irradiation. *Journal of Photochemistry and Photobiology B: Biology* 69 (2), 97-105.
- Mwaikambo, L. Y. et Ansell, M. P. (2002). Chemical modification of hemp, sisal, jute, and kapok fibers by alkalization. *Journal of Applied Polymer Science* 84 (12), 2222-2234.
- Mwaikambo, L. Y., Martuscelli, E. et Avella, M. (2000). Kapok/cotton fabric-polypropylene composites. *Polymer Testing* 19 (8), 905-918.
- Myers, G. E., Kolosick, P. C., Chahyadi, I. S., Coberly, C. A., Koutsky, J. A. et Ermer, D. S. (1990). Extruded Wood-Flour Polypropylene Composites: Effect of a Maleated Polypropylene Coupling Agent on Filler-Matrix Bonding and Properties. *MRS Online Proceedings Library Archive*.
- Nakagaito, A. et Yano, H. (2004). The effect of morphological changes from pulp fiber towards nano-scale fibrillated cellulose on the mechanical properties of high-strength plant fiber based composites. *Applied Physics A* 78 (4), 547-552.
- Navi, P. et Heger, F. (2005). *Comportement thermo-hydrromécanique du bois: Applications technologiques et dans les structures*, PPUR presses polytechniques. 125 pp.
- Nevell, T. P. et Zeronian, S. H. (1985). Cellulose chemistry and its applications. *Journal of Wood Chemistry and Technology* 6 (3), 412-435.
- Noël, M. (2007). *Elaboration d'un matériau composite innovant à base de bois et de bio-polymère d'acide lactique*. Thèse de doctorat, Nancy 1, 169 pp.
- Nuñez, A. J., Kenny, J. M., Reboredo, M. M., Aranguren, M. I. et Marcovich, N. E. (2002). Thermal and dynamic mechanical characterization of polypropylene-woodflour composites. *Polymer Engineering & Science* 42(4): 733-742.
- Ofomaja, A. et Naidoo, E. (2011). Biosorption of copper from aqueous solution by chemically activated pine cone: a kinetic study. *Chemical engineering journal* 175 (7), 260-270.

- Ohlsson, B., Hassander, H. et Törnell, B. (1998). Improved compatibility between polyamide and polypropylene by the use of maleic anhydride grafted SEBS. *Polymer* 39 (26), 6705-6714.
- Oksman, K. et Clemons, C. (1997). Effects of elastomers and coupling agent on impact performance of wood flour-filled polypropylene. *Proceedings of the Fourth International Conference on Woodfibre-Plastic Composites*. 12-14 July.
- Oksman, K. et Clemons, C. (1998). Mechanical properties and morphology of impact modified polypropylene-wood flour composites. *Journal of Applied Polymer Science* 67 (9), 1503-1513.
- Oksman, K. et Lindberg, H. (1995). Interaction between wood and synthetic polymers. *Holzforschung-International Journal of the Biology, Chemistry, Physics and Technology of Wood* 49 (3), 249-254.
- Oksman, K., Lindberg, H. et Holmgren, A. (1998). The nature and location of SEBS-MA compatibilizer in polyethylene-wood flour composites. *Journal of Applied Polymer Science* 69 (1), 201-209.
- Olsson, A.-M. et Salmén, L. (2004). The association of water to cellulose and hemicellulose in paper examined by FTIR spectroscopy. *Carbohydrate research* 339 (4), 813-818.
- Paglicawan, M. A., Kim, J. K. et Bang, D. S. (2010). Dispersion of multiwalled carbon nanotubes in thermoplastic elastomer gels: morphological, rheological, and electrical properties. *Polymer composites* 31 (2), 210-217.
- Panaitescu, D. M., Vuluga, Z., Radovici, C. et Nicolae, C. (2012). Morphological investigation of PP/nanosilica composites containing SEBS. *Polymer Testing* 31 (2), 355-365.
- Pandey, K. et Pitman, A. (2003). FTIR studies of the changes in wood chemistry following decay by brown-rot and white-rot fungi. *International biodeterioration & biodegradation* 52 (3), 151-160.
- Park, B. D. et Balatinez, J. J. (1997). Mechanical properties of wood-fiber/toughened isotactic polypropylene composites. *Polymer composites* 18 (1), 79-89.
- Paul, D. et Bucknall, C. (2000). Polymer blends: formulations and performance. *Journal of Applied Polymer Science* 62(9): 122-129.

- Pavia, D. L., Lampman, G. M., Kriz, G. S. et Vyvyan, J. A. (2008). Introduction to spectroscopy: Cengage Learning. Belmont. 728 pp.
- Peltola, H., Pääkkönen, E., Jetsu, P. et Heinemann, S. (2014). Wood based PLA and PP composites: Effect of fibre type and matrix polymer on fibre morphology, dispersion and composite properties. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 61 (4), 13-22.
- Petrović, Z. S., Budinski-Simendić, J., Divjaković, V. et Škrbić, Ž. (1996). Effect of addition of polyethylene on properties of polypropylene/ethylene-propylene rubber blends. *Journal of Applied Polymer Science* 59 (2), 301-310.
- Pukánszky, B., Maurer, F. H. et Boode, J. W. (1995). Impact testing of polypropylene blends and composites. *Polymer Engineering & Science* 35(24): 1962-1971.
- Pukansky, B., Tudos, F., Kolarik, J. et Lednický, F. (1989). Ternary composites polypropylene/elastomer/filler: Tensile and impact properties. *Compos. Polym.* 2 (6), 491-511.
- Qiu, W., Endo, T. et Hirotsu, T. (2004). Interfacial interactions of a novel mechanochemical composite of cellulose with maleated polypropylene. *Journal of Applied Polymer Science* 94 (3), 1326-1335.
- Quillin, D. T., Caulfield, D. F. et Koutsky, J. A. (1993). Crystallinity in the polypropylene/cellulose system. I. Nucleation and crystalline morphology. *Journal of Applied Polymer Science* 50 (7), 1187-1194.
- Rahma, F. et Fellahi, S. (2000). Performance evaluation of synthesized acrylic acid grafted polypropylene within CaCO<sub>3</sub>/polypropylene composites. *Polymer composites* 21 (2), 175-186.
- Raj, R., Kokta, B. V., Maldas, D. et Daneault, C. (1989). Use of wood fibers in thermoplastics. VII. The effect of coupling agents in polyethylene-wood fiber composites. *Journal of Applied Polymer Science* 37(4): 1089-1103.
- Ray, D., Sarkar, B. K., Rana, A. et Bose, N. R. (2001). The mechanical properties of vinylester resin matrix composites reinforced with alkali-treated jute fibres. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 32 (1), 119-127.
- Ray, P., Chakravarty, A. et Bandyopadhyaya, S. (1976). Fine structure and mechanical properties of jute differently dried after retting. *Journal of Applied Polymer Science* 20 (7), 1765-1767.

- Raymond, A. et Rodrigue, D. (2014). Effect of surface treatment on the properties of wood-plastics composites produced by rotomolding. *Journal of Applied Polymer Science* 50 (7), 1187-1194.
- Razi, P., Portier, R. et Raman, A. (1999). Studies on polymer-wood interface bonding: effect of coupling agents and surface modification. *Journal of Composite materials* 33 (12), 1064-1079.
- Reed, P. (1992). Falling weight impact testing and design. *Plastics rubber and composites processing and applications* 17(3): 157-163.
- Reddy, S. et Bhaduri, S. (1990). Sorption behavior and crystallinity of jute fiber at higher alkali treatments. *Journal of Applied Polymer Science* 39 (3), 553-559.
- Renner, K., Móczó, J., Vörös, G. et Pukánszky, B. (2010). Quantitative determination of interfacial adhesion in composites with strong bonding. *European Polymer Journal* 46 (10), 2000-2004.
- Richaud, E. (2006). *Durabilité des géotextiles en polypropylène*. Thèse de doctorat, Arts et Métiers ParisTech, 180 pp.
- Rizvi, G., Lin, W., Guo, G., Pop-Iliev, R. et Park, C. (2001). Effect of Moisture on the Cellular Structure of HDPE/Wood Fiber Composite Foams. *SPE Topical Conference, Montreal*.
- Rizvi, G., Lin, W., Park, C. et Guo, G. (2002). Volatile Emissions from Wood-Fibre in Extrusion of Plastic/Wood-Fibre Composite. *Polymer Processing Society Conference*
- Rizvi, G. et Park, C. (2000). A Novel Extrusion System Design for Production of Fine-Celled Plastic/Wood-Fiber Composite Foams. *ASME, IMECE, Porous, Cellular and Microcellular Materials-2000* 29 (4), 83-92.
- Rodrigues, J., Puls, J., Faix, O. et Pereira, H. (2001). Determination of monosaccharide composition of Eucalyptus globulus wood by FTIR spectroscopy. *Holzforschung* 55 (3), 265-269.
- Rosa, M. F., Chiou, B.-s., Medeiros, E. S., Wood, D. F., Williams, T. G., Mattoso, L. H., Orts, W. J. et Imam, S. H. (2009). Effect of fiber treatments on tensile and thermal properties of starch/ethylene vinyl alcohol copolymers/coir biocomposites. *Bioresource technology* 100 (21), 5196-5202.

- Ross, R. J. (2010). *Wood handbook: wood as an engineering material*. Madison, WI: U.S. Department of Agriculture, Forest Service, Forest Products Laboratory, General Technical Report FPL-GTR-113, Madison 509 pp.
- Rowell, R. M. et Rowell, J. (1996). *Paper and composites from agro-based resources*, CRC press 425pp.
- Saheb, D. N. et Jog, J. P. (1999). Natural fiber polymer composites: a review. *Advances in Polymer Technology: Journal of the Polymer Processing Institute* 18 (4), 351-363.
- Sailaja, R., Girija, B., Madras, G. et Balasubramanian, N. (2008). Effect of compatibilization on mechanical and thermal properties of polypropylene–soy flour composites. *Journal of materials science* 43 (1), 64-74.
- Sain, M., Imbert, C. et Kokta, B. (1993). Composites of surface-treated wood fiber and recycled polypropylene. *Macromolecular Materials and Engineering* 210 (1), 33-46.
- Satyanarayana, K., Sukumaran, K., Mukherjee, P. et Pillai, S. (1986). Materials science of some lignocellulosic fibers. *Metallography* 19 (4), 389-400.
- Satyanarayana, K. G., Arizaga, G. G. et Wypych, F. (2009). Biodegradable composites based on lignocellulosic fibers—An overview. *Progress in polymer science* 34 (9), 982-1021.
- Saujanya, C., Sainkar, S. et Radhakrishnan, S. (2001). Structure and properties of PP/SBS/glass fiber hybrid composites. Part I: Crystallization behavior and morphology. *Polymer composites* 22 (2), 221-231.
- Schirp, A. et Wolcott, M. P. (2007). Influence of fungal decay and moisture absorption on mechanical properties of extruded wood-plastic composites. *Wood and fiber science* 37 (4), 643-652.
- Schneider, J., Myers, G., Clemons, C. et English, B. (1995). Biofibers as reinforcing fillers in thermoplastic composites. *Journal of Vinyl and Additive Technology* 1 (2), 103-108.
- Sederoff, R. R., MacKay, J. J., Ralph, J. et Hatfield, R. D. (1999). Unexpected variation in lignin. *Current opinion in plant biology* 2 (2), 145-152.
- Seidler, S. et Grellmann, W. (1995). Application of the instrumented impact test to the toughness characterization of high impact thermoplastics. *Polymer Testing* 14(5): 453-469.

- Seidler, S. et Grellmann, W. (1999). Application of the crack resistance concept to the toughness characterization of high-impact thermoplastics. *Macromolecular Symposia*, Wiley Online Library: 63-71.147
- Shebani, A., Van Reenen, A. et Meincken, M. (2009). The effect of wood species on the mechanical and thermal properties of wood—LLDPE composites. *Journal of Composite materials* 43 (11), 1305-1318.
- Silva de Araújo, M. (2001). *Étude de la modification de la ténacité de composites thermoplastiques de cellulose et de polybutadiène*. Thèse de doctorat, Université du Québec à Trois-Rivières, 197 pp.
- Simpson, W. et TenWolde, A. (1999). *Wood handbook: Wood as an engineering material*. USDA Forest Service General Technical Report FPL-GTR-113, Madison.
- Šmit, I. et Radonjič, G. (2000). Effects of SBS on phase morphology of iPP/aPS blends. *Polymer Engineering & Science* 40 (10), 2144-2160.
- Son, S.-J., Lee, Y.-M. et Im, S.-S. (2000). Transcrystalline morphology and mechanical properties in polypropylene composites containing cellulose treated with sodium hydroxide and cellulase. *Journal of materials science* 35 (22), 5767-5778.
- Srebrenkoska, V., Gaceva, G. B., Avella, M., Errico, M. E. et Gentile, G. (2008). Recycling of polypropylene-based eco-composites. *Polymer International* 57 (11), 1252-1257.
- Stamhuis, J. (1984). Mechanical properties and morphology of polypropylene composites. Talc-filled, elastomer-modified polypropylene. *Polymer composites* 5 (3), 202-207.
- Stark, N. M. et Rowlands, R. E. (2003). Effects of wood fiber characteristics on mechanical properties of wood/polypropylene composites. *Wood and fiber science*. 15 (1), 152-168.
- Steckel, V., Clemons, C. M. et Thoemen, H. (2007). Effects of material parameters on the diffusion and sorption properties of wood-flour/polypropylene composites. *Journal of Applied Polymer Science* 103 (2), 752-763.
- Sudár, A., Burgstaller, C., Renner, K., Móczó, J. et Pukánszky, B. (2014). Wood fiber reinforced multicomponent, multiphase PP composites: structure, properties, failure mechanism. *Composites Science and Technology* 103 (3), 106-112.

- Taib, R. M., Ramarad, S., Ishak, Z. A. M. et Todo, M. (2010). Properties of kenaf fiber/polylactic acid biocomposites plasticized with polyethylene glycol. *Polymer composites* 31 (7), 1213-1222.
- Tam, W., Cheung, T. et Li, R. (1996). An investigation on the impact fracture characteristics of EPR toughened polypropylene. *Polymer Testing* 15(4): 363-380.
- Thwe, M. M. et Liao, K. (2002). Effects of environmental aging on the mechanical properties of bamboo–glass fiber reinforced polymer matrix hybrid composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 33 (1), 43-52.
- Tjong, S., Bao, S. et Liang, G. (2005). Polypropylene/montmorillonite nanocomposites toughened with SEBS-g-MA: Structure–property relationship. *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics* 43 (21), 3112-3126.
- Todd, D. B. (2000). Improving incorporation of fillers in plastics. A special report. *Advances in polymer technology* 19 (1), 54-64.
- Tseng, F.-P., Lin, J.-J., Tseng, C.-R. et Chang, F.-C. (2001). Poly (oxypropylene)-amide grafted polypropylene as novel compatibilizer for PP and PA6 blends. *Polymer* 42 (2), 713-725.
- Tufan, M., Akbaş, S., Yurdakul, S., Güleç, T. et Eryılmaz, H. (2016). Effects of different filler types on decay resistance and thermal, physical, and mechanical properties of recycled high-density polyethylene composites. *Iranian Polymer Journal* 25 (7), 615-622.
- Valadez-Gonzalez, A., Cervantes-Uc, J., Olayo, R. et Herrera-Franco, P. (1999). Effect of fiber surface treatment on the fiber–matrix bond strength of natural fiber reinforced composites. *Composites Part B: Engineering* 30 (3), 309-320.
- Van de Weyenberg, I., Ivens, J., De Coster, A., Kino, B., Baetens, E. et Verpoest, I. (2003). Influence of processing and chemical treatment of flax fibres on their composites. *Composites Science and Technology* 63 (9), 1241-1246.
- Van der Wal, A., Nijhof, R. et Gaymans, R. (1999). Polypropylene–rubber blends: 2. The effect of the rubber content on the deformation and impact behaviour. *Polymer* 40 (22), 6031-6044.
- Verdaguer, A. et Rodrigue, D. (2014). Effect of surface treatment on the mechanical properties of wood-plastics composites produced by dry-blending.

*Proceedings of the 72th Annual Technical Conference & Exhibition, Society of Plastics Engineers Las Vegas NV, 28-30 July*

- Vincent, P. I. (1971). Impact tests and service performance of thermoplastics, *CRC press*, 350 pp.
- Voss, H. et Friedrich, K. (1986). Influence of short-fibre reinforcement on the fracture behaviour of a bulk liquid crystal polymer. *Journal of materials science* 21(8): 2889-2900.
- Wang, Y., Lu, J. et Wang, G. (1997). Toughening and reinforcement of HDPE/CaCO<sub>3</sub> blends by interfacial modification—interfacial interaction. *Journal of Applied Polymer Science* 64 (7), 1275-1281.
- Wielage, B., Lampke, T., Marx, G., Nestler, K. et Starke, D. (1999). Thermogravimetric and differential scanning calorimetric analysis of natural fibres and polypropylene. *Thermochimica Acta* 337 (1-2), 169-177.
- Wilhelm, H. M. et Felisberti, M. I. (2003). Blends of i-PP and SBS. II. Influence of in situ compatibilization on the mechanical properties. *Journal of Applied Polymer Science* 87 (3), 516-522.
- Williams, T., Allen, G. et Kaufman, M. (1973). The impact strength of fibre composites. *Journal of materials science* 8(12): 1765-1787.
- Wolcott, M. P. et Englund, K. (1999). A technology review of wood-plastic composites. *The 33rd international particleboard/composite materials symposium proceedings*.
- Wong, K., Yousif, B. et Low, K. (2010). The effects of alkali treatment on the interfacial adhesion of bamboo fibres. *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part L: Journal of Materials: Design and Applications* 224 (3), 139-148.
- Woodhams, R., Thomas, G. et Rodgers, D. (1984). Wood fibers as reinforcing fillers for polyolefins. *Polymer Engineering & Science* 24 (15), 1166-1171.
- Wu, J., Yu, D., Chan, C. M., Kim, J. et Mai, Y. W. (2000). Effect of fiber pretreatment condition on the interfacial strength and mechanical properties of wood fiber/PP composites. *Journal of Applied Polymer Science* 76(7): 1000-1010.
- Xie, X., Fung, K., Li, R., Tjong, S. et Mai, Y. W. (2002). Structural and mechanical behavior of polypropylene/maleated styrene-(ethylene-co-butylene)

- styrene/sisal fiber composites prepared by injection molding. *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics* 40(12): 1214-1222.
- Xu, Y., Wu, Q., Lei, Y. et Yao, F. (2010). Creep behavior of bagasse fiber reinforced polymer composites. *Bioresource technology* 101 (9), 3280-3286.
- Yang, L. et Liu, S. (2005). Kinetic model for kraft pulping process. *Industrial & engineering chemistry research* 44 (18), 7078-7085.
- Yongfeng, L. (2011). *Wood-Polymer Composites. Advanced in composite materials analysis of natural and Man-Made Materials*. D. P. T. (ED), INTECH Open Access Publisher, 230-284pp.
- Yu, Z. Z., Yang, M. S., Dai, S. C. et Mai, Y. W. (2004). Toughening of recycled poly (ethylene terephthalate) with a maleic anhydride grafted SEBS triblock copolymer. *Journal of Applied Polymer Science* 93 (3), 1462-1472.
- Yucheng, P. (2008). *Effects of high temperatures on adhesive bond durability and toxic chemical production for engineered wood products*. Mémoire de maîtrise, Mississippi State University, 72 pp.
- Zadorecki, P. et Flodin, P. (1985). Surface modification of cellulose fibers. II. The effect of cellulose fiber treatment on the performance of cellulose-polyester composites. *Journal of Applied Polymer Science* 30 (10), 3971-3983.
- Zerhouni, A., Mahmood, T. et Koubaa, A. (2012). The use of paper mill biotreatment residue as furnish or as a bonding agent in the manufacture of fibre-based boards. *J-FOR-JOURNAL OF SCIENCE & TECHNOLOGY FOR FOREST PRODUCTS AND PROCESSES* 2 (2), 19-24.
- Zhang, S. et Koubaa, A. (2009). *Les résineux de l'Est du Canada: Écologie forestière, caractéristiques, transformation et usages*, FPInnovations, 210 pp
- Zhang, S., Rodrigue, D. et Riedl, B. (2005). Preparation and morphology of polypropylene/wood flour composite foams via extrusion. *Polymer composites* 26 (6), 731-738.
- Zhang, Y., Zhang, H., Ni, L., Zhou, Q., Guo, W. et Wu, C. (2010). Crystallization and mechanical properties of recycled poly (ethylene terephthalate) toughened by styrene-ethylene/butylenes-styrene elastomer. *Journal of Polymers and the Environment* 18 (4), 647-653.
- Zou, P., Tang, S., Fu, Z. et Xiong, H. (2009). Isothermal and non-isothermal crystallization kinetics of modified rape straw flour/high-density polyethylene composites. *International Journal of Thermal Sciences* 48 (4), 837-846.

ANNEXES

**Annexe 1: Gain en épaisseur et Gain massique des CBP en fonction du temps**

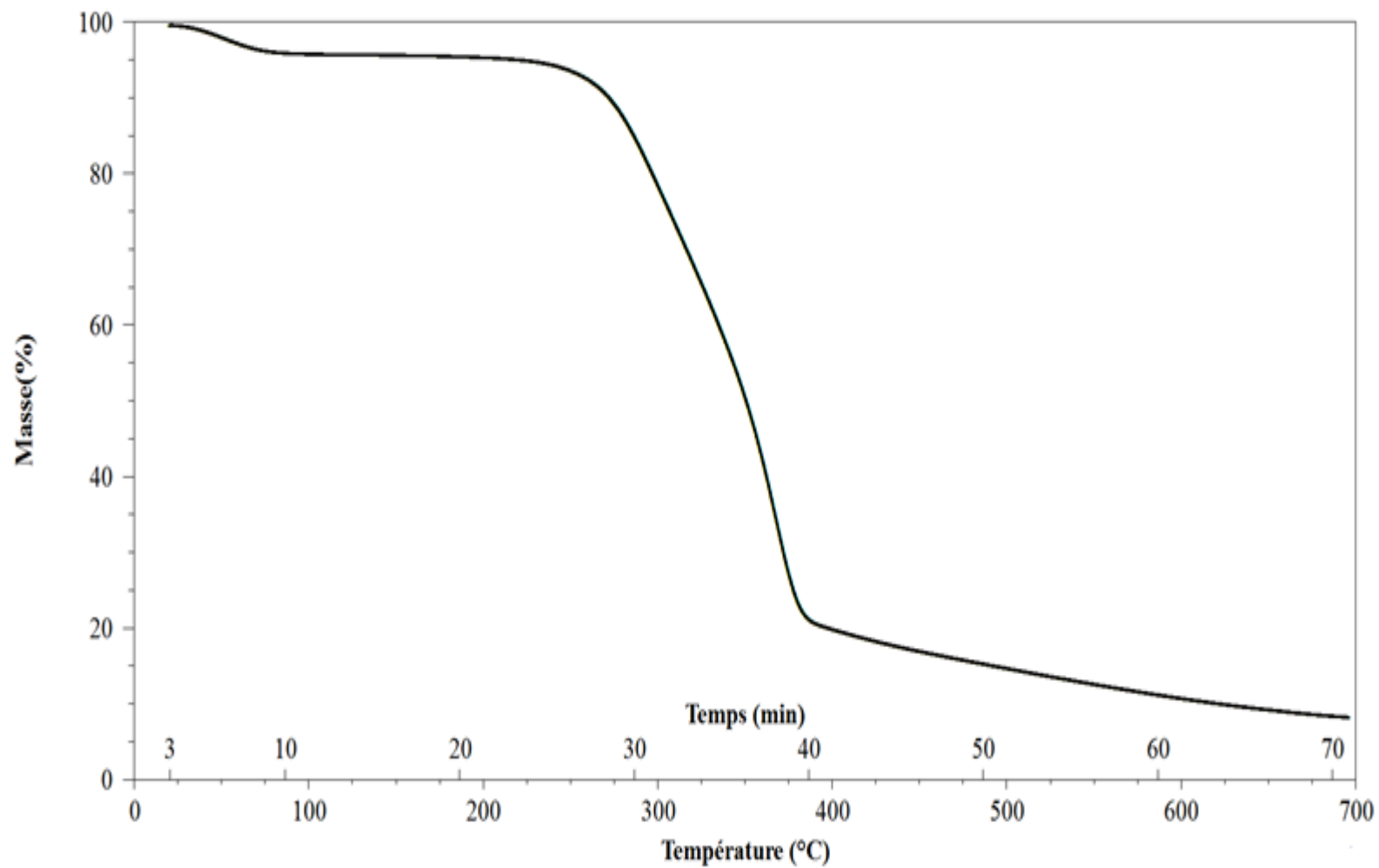
CODE DE COMPOSITE	GAIN EN EPAISSEUR					GAIN MASSIQUE				
	48h	168h	336h	672h	1344h	48h	168h	336h	672h	1344h
<b>CFBOP01</b>	0,25 (0,01)	0,51 (0,07)	0,99 (0,09)	1,62 (0,02)	2,04 (0,05)	0,31 (0,02)	0,61 (0,10)	0,89 (0,5)	1,87 (0,03)	2,75 (0,11)
<b>CFBOP02</b>	0,36 (0,01)	0,65 (0,04)	1,38 (0,05)	2,01 (0,47)	2,35 (0,16)	0,41 (0,04)	0,66 (0,03)	1,038(0,03)	2,5 (0,01)	3,5 (0,3)
<b>CFBOP03</b>	0,55 (0,16)	1,29 (0,16)	1,93 (0,07)	2,98 (0,08)	4,47 (0,09)	0,55 (0,02)	1,03 (0,03)	1,46 (0,01)	3,09 (0,04)	6,01 (0,49)
<b>CFKNTP01</b>	0,11 (0,01)	0,29 (0,01)	0,57 (0,01)	1,14 (0,04)	1,5 (0,16)	0,20 (0,02)	0,42 (0,02)	0,57 (0,01)	1,58 (0,12)	2,5 (0,09)
<b>CFKNTP02</b>	0,21 (0,02)	0,44 (0,02)	0,95 (0,03)	1,31 (0,02)	1,87 (0,15)	0,24 (0,03)	0,4 (0,01)	0,62 (0,06)	1,73 (0,06)	2,9 (0,11)
<b>CFKNTP03</b>	0,43 (0,01)	0,86 (0,01)	1,31 (0,01)	1,92 (0,01)	3,26 (0,47)	0,41 (0,02)	0,74 (0,02)	1,04 (0,05)	1,88 (0,17)	3,72 (0,04)
<b>CFKTP01</b>	0,46 (0,02)	0,71 (0,03)	1,36 (0,02)	2,2 (0,02)	3,18 (0,13)	0,34 (0,02)	0,71 (0,03)	0,95 (0,04)	2,19 (0,05)	3,51 (0,19)
<b>CFKTP02</b>	0,68 (0,01)	1,1 (0,02)	1,77 (0,02)	3,03 (0,01)	3,51 (0,11)	0,96 (0,01)	1,71 (0,04)	2,32 (0,03)	3,17 (0,08)	4,2 (0,24)
<b>CFKTP03</b>	1,08 (0,01)	1,97 (0,01)	2,96 (0,02)	4,31 (0,03)	4,46 (0,3)	2,19 (0,01)	3,67(0,1)	4,62 (0,2)	5,68 (0,11)	9,68 (0,24)
<b>CFKNTEP11</b>	0,07 (0,01)	0,15 (0,01)	0,27 (0,01)	0,9 (0,01)	1,29 (0,08)	0,11 (0,01)	0,21 (0,01)	0,37 (0,02)	0,95 (0,05)	2,2 (0,05)
<b>CFKNTEP12</b>	0,14 (0,01)	0,24 (0,01)	0,45 (0,04)	1,05 (0,03)	1,64 (0,05)	0,14 (0,01)	0,27 (0,03)	0,48 (0,07)	1,17 (0,11)	2,6 (0,12)
<b>CFKNTEP13</b>	0,25 (0,02)	0,59 (0,01)	0,82 (0,02)	1,45 (0,02)	2,17 (0,05)	0,23(0,02)	0,55 (0,03)	0,87 (0,07)	1,46 (0,07)	2,92 (0,17)
<b>CFKNTEP21</b>	0,05 (0,01)	0,11 (0,01)	0,21 (0,01)	0,56 (0,02)	0,99 (0,07)	0,09 (0,01)	0,16 (0,01)	0,27 (0,01)	0,86 (0,08)	1,94 (0,02)
<b>CFKNTEP22</b>	0,09 (0,01)	0,16 (0,01)	0,33 (0,01)	0,82 (0,02)	1,26 (0,04)	0,11 (0,01)	0,22 (0,03)	0,35 (0,04)	0,94 (0,06)	2,16 (0,1)
<b>CFKNTEP23</b>	0,17 (0,01)	0,36 (0,03)	0,69 (0,01)	1,05 (0,01)	1,64 (0,09)	0,15 (0,01)	0,39 (0,05)	0,71 (0,1)	1,15 (0,03)	2,12 (0,08)
<b>CFKTEP31</b>	0,15 (0,01)	0,36 (0,03)	0,67 (0,01)	1,7 (0,04)	2,24 (0,17)	0,22 (0,02)	0,58 (0,03)	0,84 (0,01)	1,88 (0,07)	2,37 (0,34)
<b>CFKTEP32</b>	0,33 (0,01)	0,74 (0,07)	1,16 (0,01)	2,32 (0,07)	2,95 (0,05)	0,61 (0,07)	0,87 (0,13)	1,61 (0,1)	2,57 (0,11)	3,41 (0,09)
<b>CFKTEP33</b>	0,52 (0,01)	1,09 (0,04)	1,67 (0,02)	3,11 (0,1)	3,75 (0,11)	1,33 (0,05)	2,72 (0,13)	3,54 (0,2)	4,24 (0,17)	4,46 (0,08)

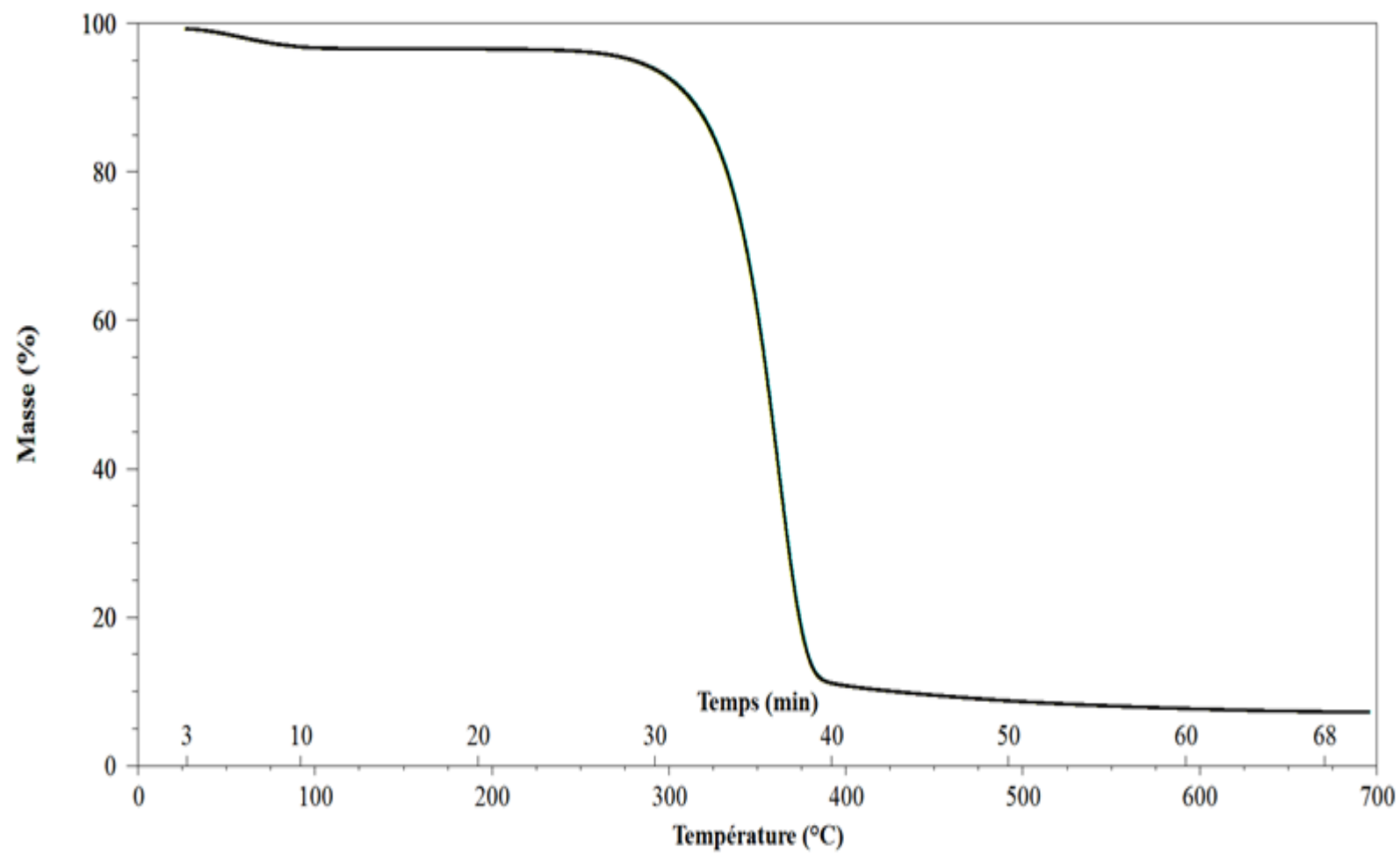
**Annexe 2 : Propriétés mécaniques (Traction, Flexion et résistance à l'impact) des composites élaborés**

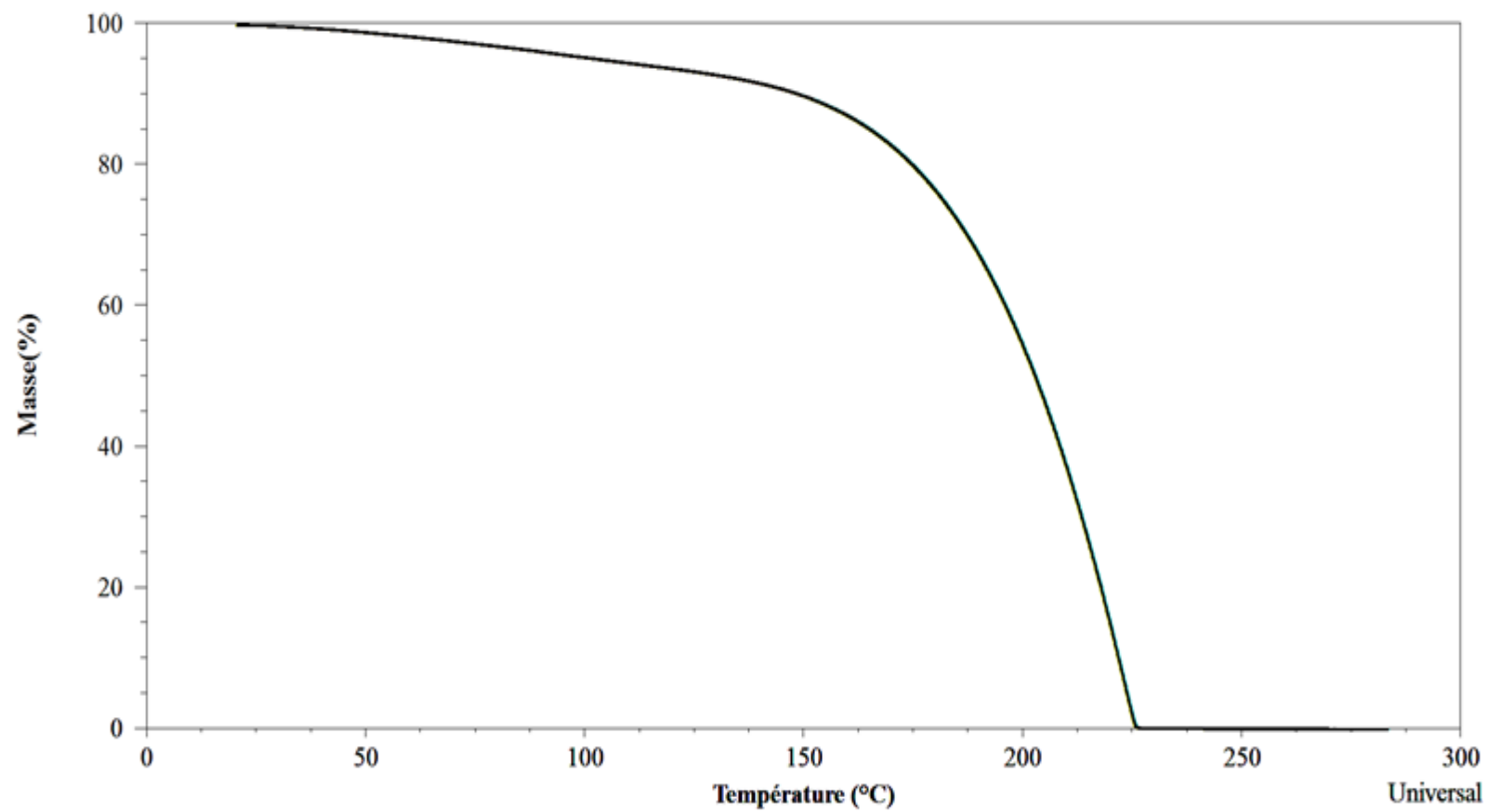
CODE DE COMPOSITE	Traction				Impact		Flexion		
	MOE (GPa)	Rm (MPa)	MOR (MPa)	$\epsilon$ (%)	W (kJ/m <sup>3</sup> )	ak (kJ/m <sup>2</sup> )	MOE (GPa)	Fmax	$\epsilon$ -Fmax (%)
<b>CFBOP01</b>	2,46 (0,1)	27,42 (0,7)	26 (1,2)	5,37 (0,8)	60,89 (10)	3,61 (0,18)	2,59 (0,16)	55,13 (1,4)	4,85 (0,1)
<b>CFBOP02</b>	3,10 (0,3)	30,94 (1,2)	30,6 (1,23)	4,07 (0,6)	51 (7,67)	3,57 (0,21)	3,2 (0,21)	59,9 (2,4)	4,36 (0,1)
<b>CFBOP03</b>	3,80 (0,2)	33,8 (0,98)	33,7 (0,9)	3,18 (0,53)	42,35 (8,8)	3,21 (0,34)	3,6 (0,13)	65,3 (2,2)	4,03 (0,2)
<b>CFKNTP01</b>	1,63 (0,05)	26,8 (0,45)	24,7 (1,6)	12,8 (2,4)	157,8 (3,1)	4,19 (0,51)	2,12 (0,07)	47 (0,9)	5,4 (0,1)
<b>CFKNTP02</b>	2,15 (0,03)	28,6 (0,34)	28 (0,45)	8,06 (1,1)	101 (18,6)	3,71 (0,22)	2,58 (0,05)	51,3 (1,3)	4,54 (0,1)
<b>CFKNTP03</b>	3,34 (0,12)	28,4 (0,89)	27,9 (0,9)	4,43 (0,57)	53,93 (8,5)	3,52 (0,11)	3,4 (0,1)	59,6 (0,9)	4,43 (0,1)
<b>CFKTP01</b>	1,22 (0,06)	16,1 (0,59)	14,3 (0,58)	7,21 (0,57)	53,93 (8,5)	4,19 (0,57)	1,38 (0,04)	31,6 (0,38)	5,27 (0,1)
<b>CFKTP02</b>	1,26 (0,04)	14,6 (0,23)	14,2 (0,26)	3,4 (0,42)	19,06 (3)	2,79 (0,08)	1,36 (0,04)	28,73 (0,2)	4,89 (0,2)
<b>CFKTP03</b>	1,16 (0,04)	28,4 (0,24)	11,9 (0,26)	2,6 (0,25)	11,64 (1,5)	2,61 (0,14)	1,42 (0,03)	24,83 (0,2)	4,66 (0,2)
<b>CFKNTEP11</b>	1,57 (0,03)	19,9 (0,26)	17,2 (0,48)	29,3 (2,8)	271 (2,01)	8,76 (0,46)	1,63 (0,07)	34,03 (2,1)	5,48 (0,1)
<b>CFKNTEP12</b>	1,82 (0,02)	20,2 (0,23)	18,5 (0,38)	24,69 (1,8)	233 (17,8)	8,47 (0,34)	1,71 (0,04)	34,67 (0,5)	5,4 (0,1)
<b>CFKNTEP13</b>	2,32 (0,02)	21,1 (0,24)	20,5 (0,29)	14,99 (2,2)	145 (24,3)	7,93 (0,33)	2,09 (0,07)	37,5 (1,07)	5,43 (0,1)
<b>CFKNTEP21</b>	0,69 (0,03)	14,3 (0,16)	12,1 (0,21)	61,81 (5,9)	422,08 (43)	14,8 (0,31)	1,07 (0,02)	23,41 (0,8)	5,93 (0,06)
<b>CFKNTEP22</b>	0,79 (0,05)	14,2 (0,34)	13,06 (0,4)	33,25 (2,5)	223,2 (19)	12,2 (0,47)	1,34 (0,05)	25,17 (0,6)	5,93 (0,03)
<b>CFKNTEP23</b>	1,17 (0,04)	13,08 (0,4)	11,9 (0,64)	22,14 (1,7)	130,5 (18)	11,72 (0,1)	1,45 (0,03)	23,5 (0,34)	5,93 (0,1)
<b>CFKTEP31</b>	0,49 (0,02)	10,4 (0,12)	8,3 (0,33)	95,09 (7,6)	452 (26,1)	28,72 (1,1)	0,69 (0,02)	17,1 (0,26)	5,98 (0,01)
<b>CFKTEP32</b>	0,43 (0,01)	9,36 (0,04)	7,23 (0,32)	54,6 (5,3)	237,6 (36)	23,4 (1,06)	0,65 (0,2)	15,4 (0,2)	5,95 (0,04)
<b>CFKTEP33</b>	0,37 (0,01)	8,78 (0,1)	5,58 (1,13)	22,01 (2,5)	85,1 (9,5)	18,69 (0,9)	0,65 (0,02)	14,07 (0,3)	6,38 (1,2)

**Annexe 3 : Propriétés mécanique (Traction, Flexion et résistance à l'impact) des mélanges PP/SEBS-MA**

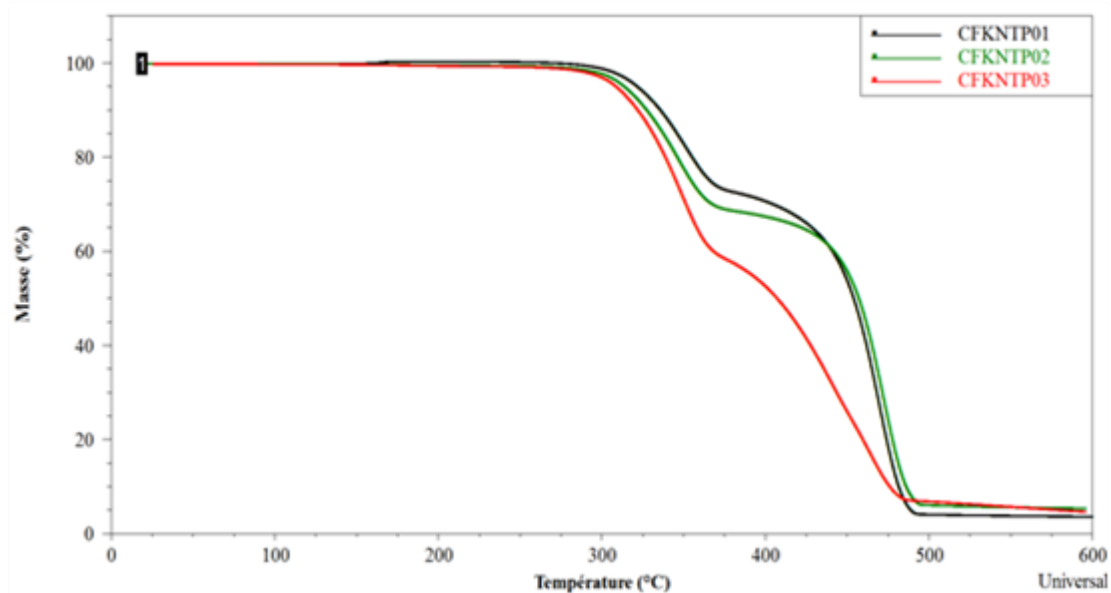
CODE DE COMPOSITE	Traction			Impact	Flexion		
	MOE (GPa)	Rm (MPa)	$\epsilon$ -Fmax (%)	ak (kJ/m <sup>2</sup> )	MOE (GPa)	Fmax (MPa)	$\epsilon$ -Fmax
PP	1,5 (0,1)	23,49 (0,16)	9,28 (0,4)	11,54 (1,2)	0,99 (0,05)	30,65 (0,6)	5,49 (0,01)
TS2	0,75 (0,03)	16,74 (0,4)	11,7 (0,37)	45,41 (1,58)	0,78 (0,05)	24,46 (1,04)	5,494 (0,007)
TS3	0,58 (0,01)	12,99 (0,8)	14,52 (1,23)	48,42 (1,26)	0,68 (0,02)	19,62 (0,67)	5,491 (0,007)

**Annexe 4: Variation de la masse de fibre bouleau blanc en fonction de la température et du temps**

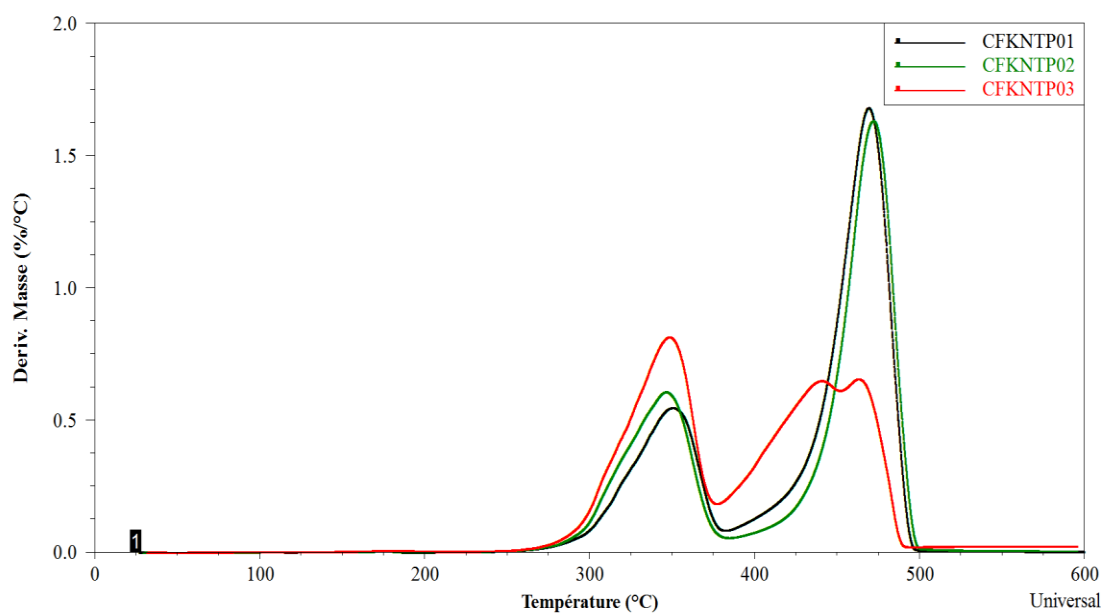
**Annexe 5: Variation de la masse de fibre kraft en fonction de la température et du temps**

**Annexe 6 : Dégradation de glycérol**

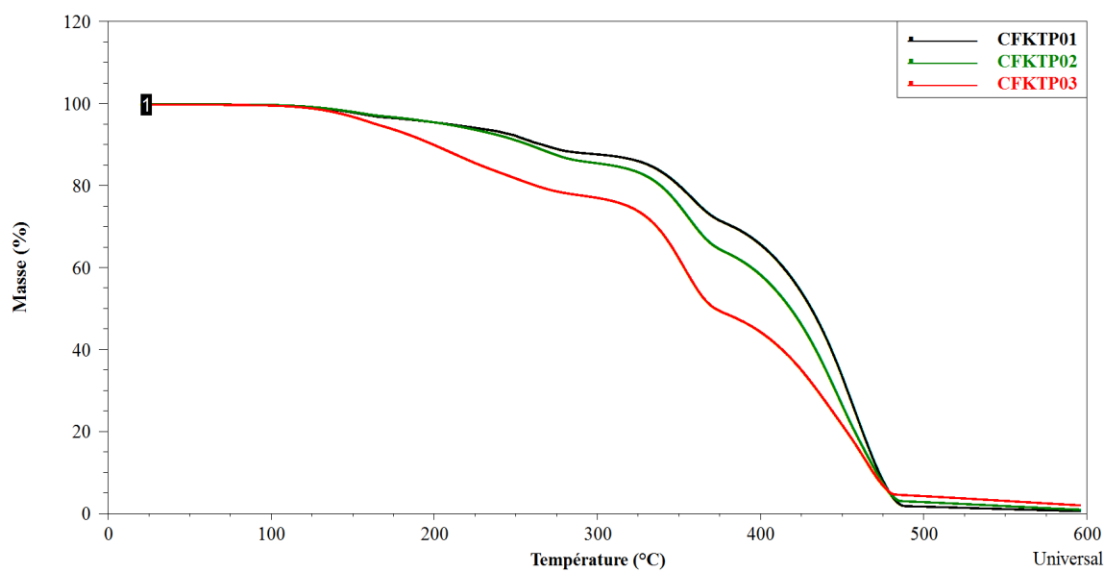
**Annexe 7 : Analyse thermogravimétrique des mélanges PP/Fibre kraft/ MAPP à différentes teneurs en fibre**



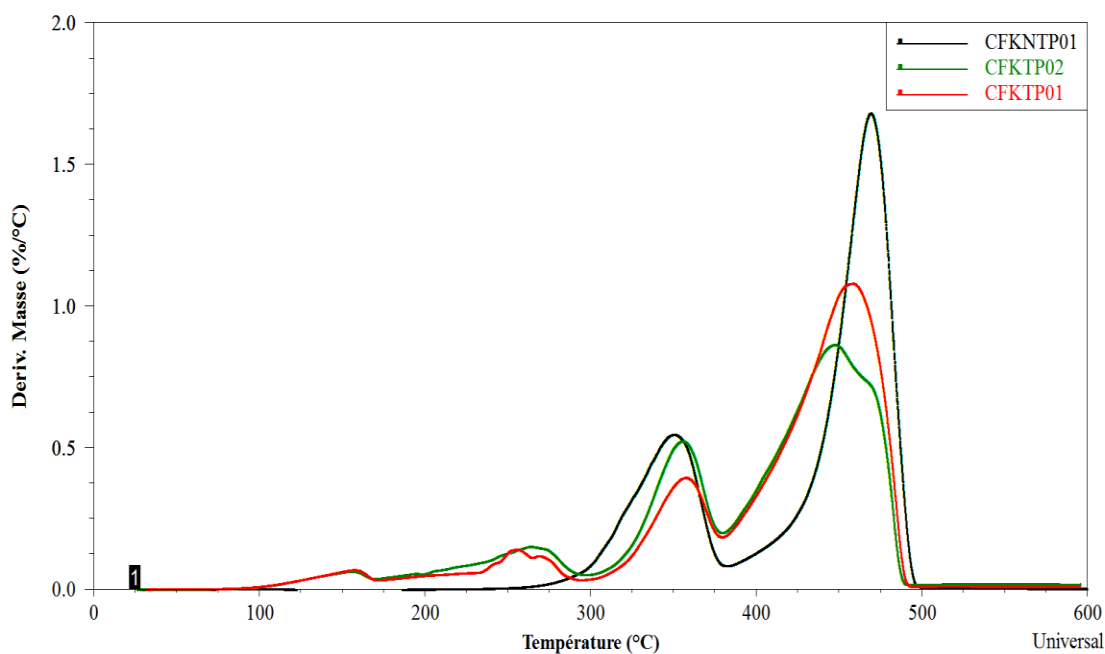
**Annexe 8 : Courbes des dérivées thermogravimétriques (DTG) des mélanges PP/Fibre kraft/MAPP à différentes teneurs en fibre**



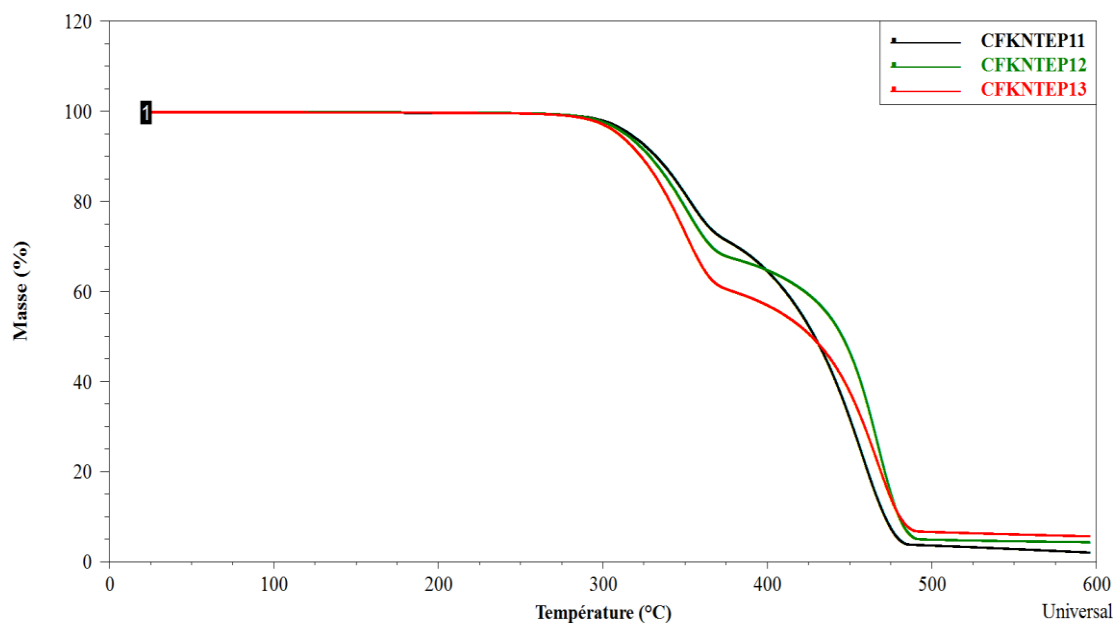
**Annexe 9 : Analyse thermogravimétrique des mélanges PP/Fibre kraft traitée/MAPP à différente teneur en fibre**



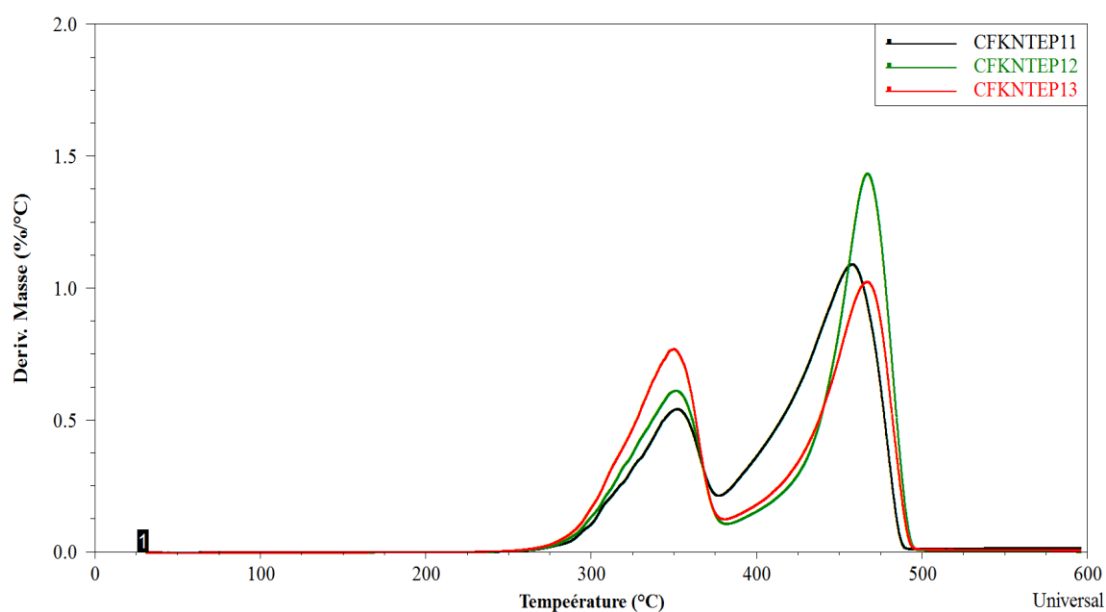
**Annexe 10 : Courbes des dérivées thermogravimétriques (DTG) des mélanges PP/Fibre kraft traitée/MAPP à différente teneur en fibre**



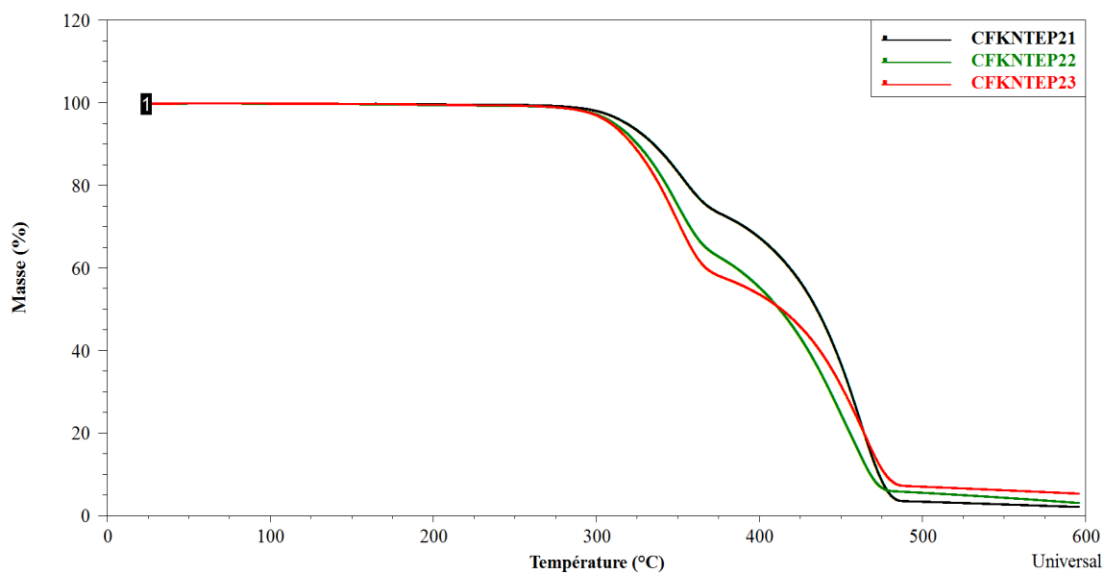
**Annexe 11 : Analyse thermogravimétrique des mélanges PP/SEBS-MA (10%)/Fibre kraft/ MAPP à différentes teneurs en fibre**



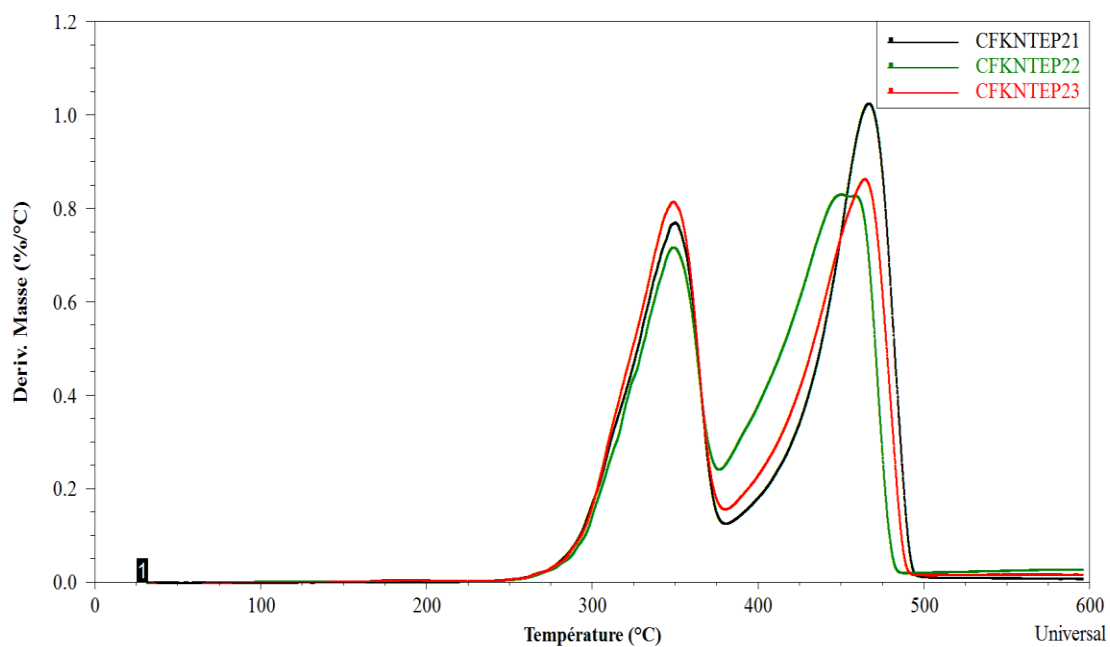
**Annexe 12 : Courbes des dérivées thermogravimétriques (DTG) des mélanges PP/SEBS-MA (10%)/Fibre kraft/MAPP à différentes teneurs en fibre**



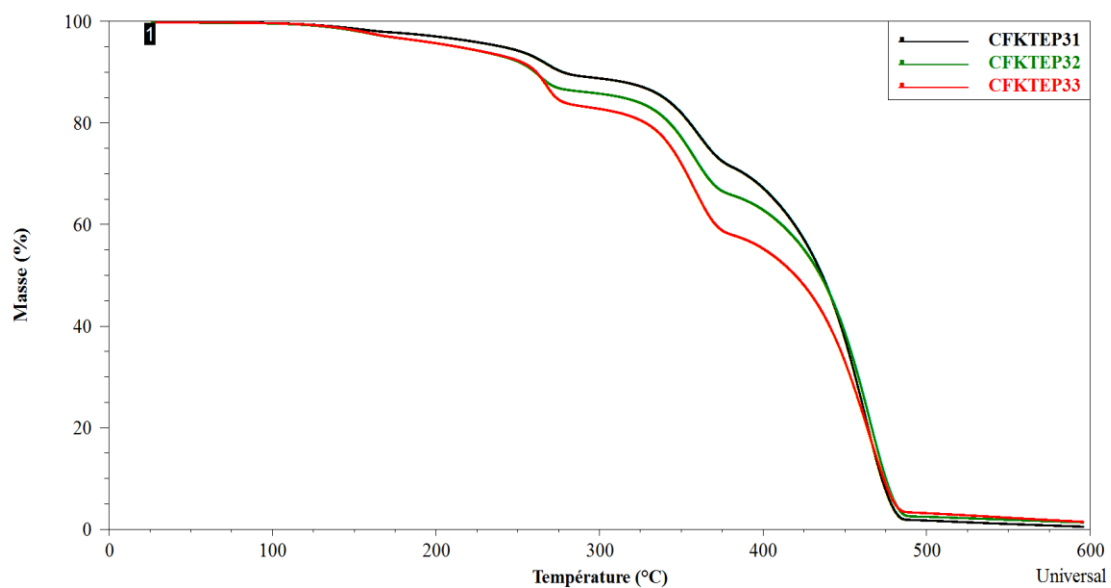
**Annexe 13 : Analyse thermogravimétrique des mélanges PP/SEBS-MA (20%)/Fibre kraft/ MAPP à différentes teneurs en fibre**



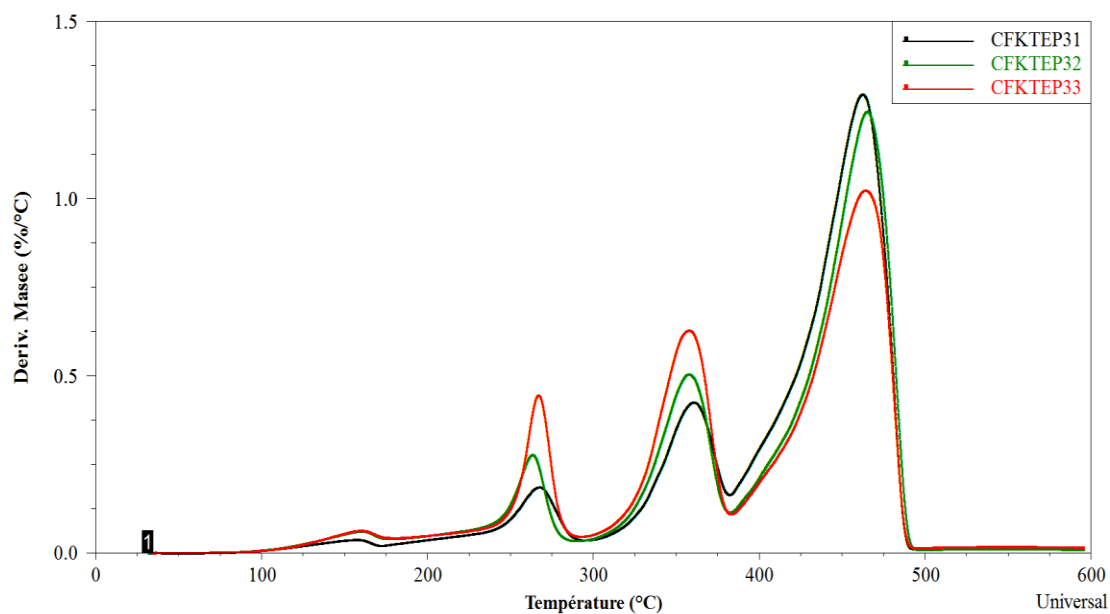
**Annexe 14 : Courbes des dérivées thermogravimétriques (DTG) des mélanges PP/SEBS-MA (20%)/Fibre kraft/MAPP à différentes teneurs en fibre**

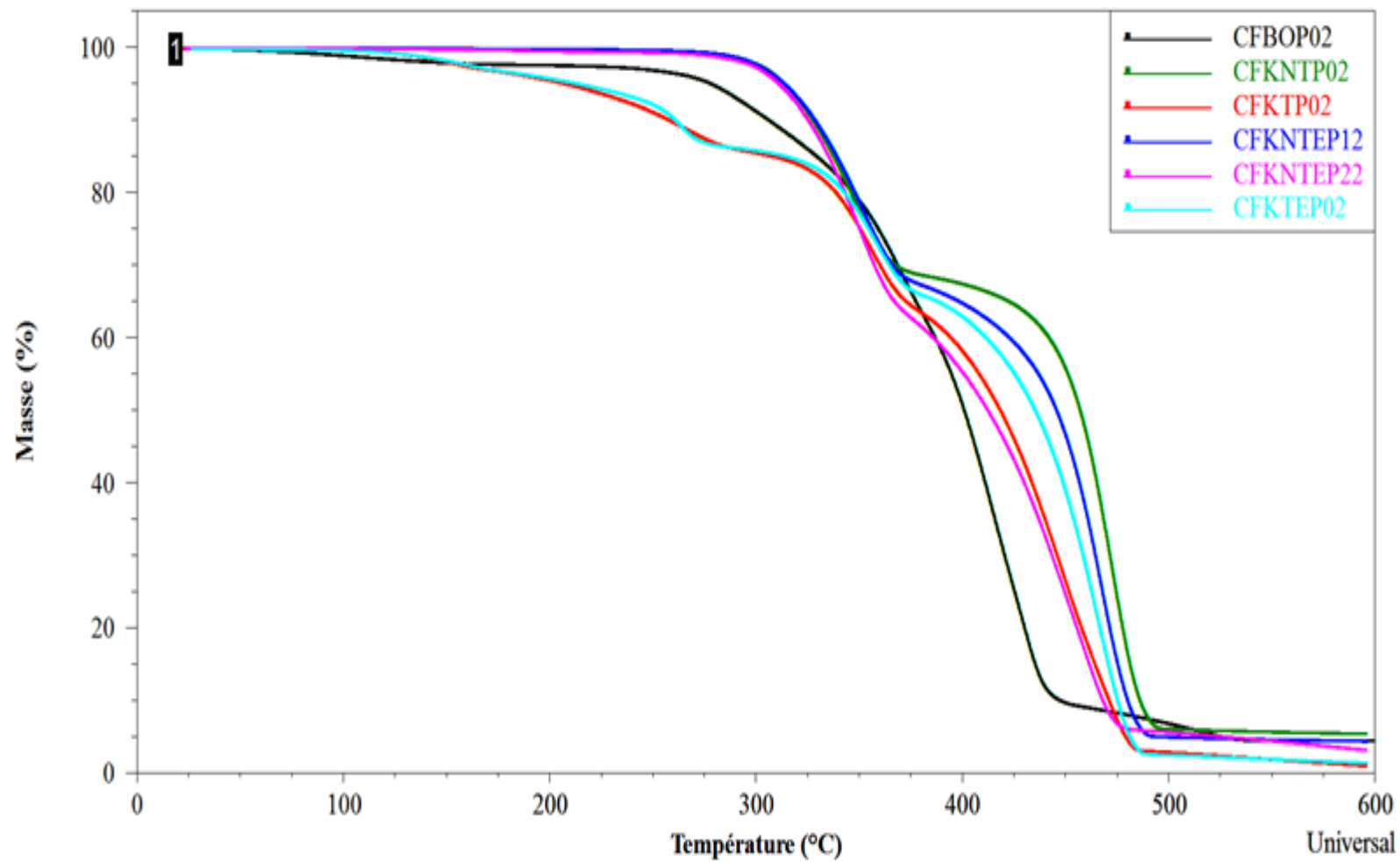


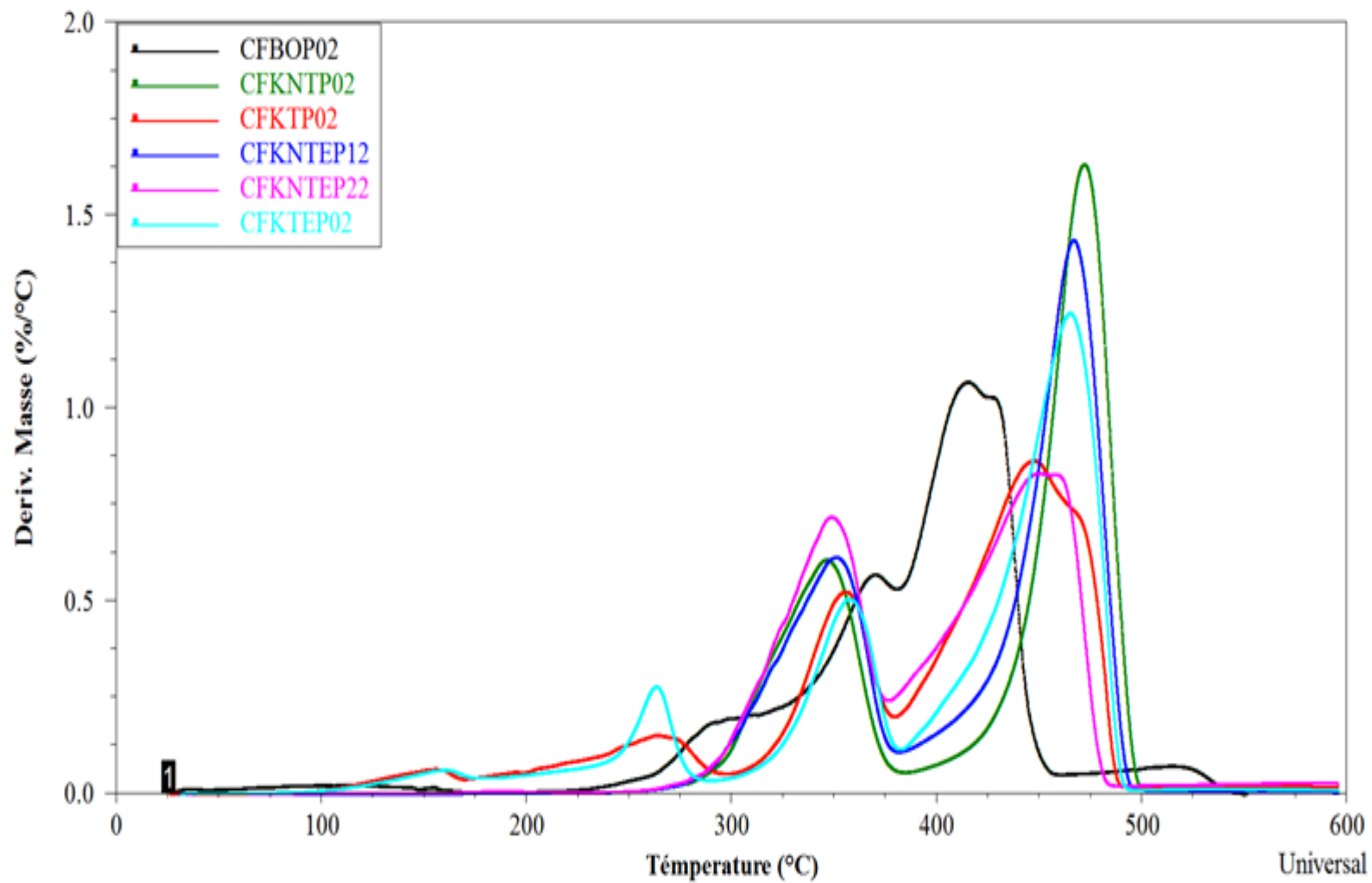
**Annexe 15 : Analyse thermogravimétrique des mélanges PP/SEBS-MA (20%)/Fibre kraft traitée/ MAPP à différentes teneurs en fibre**

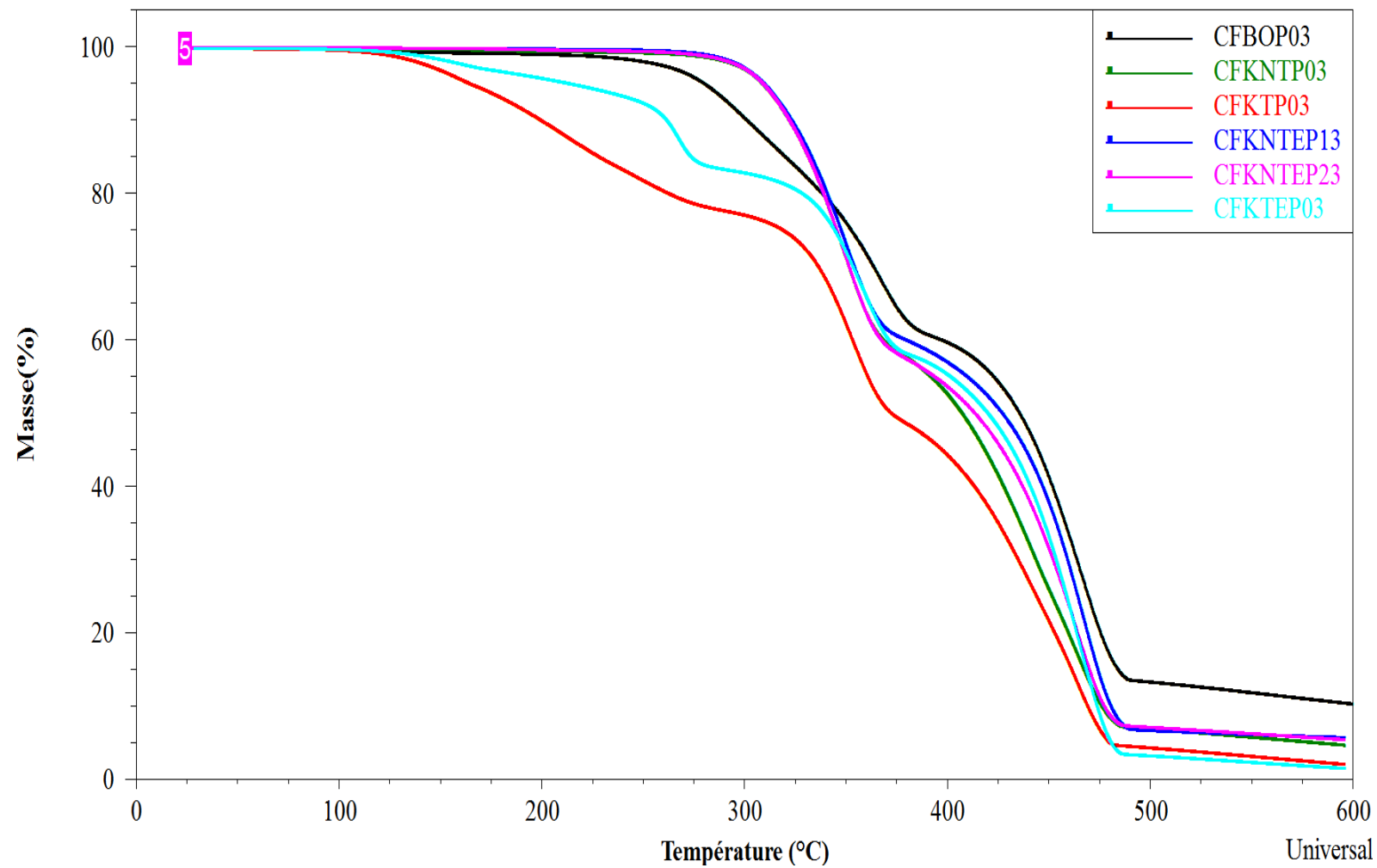


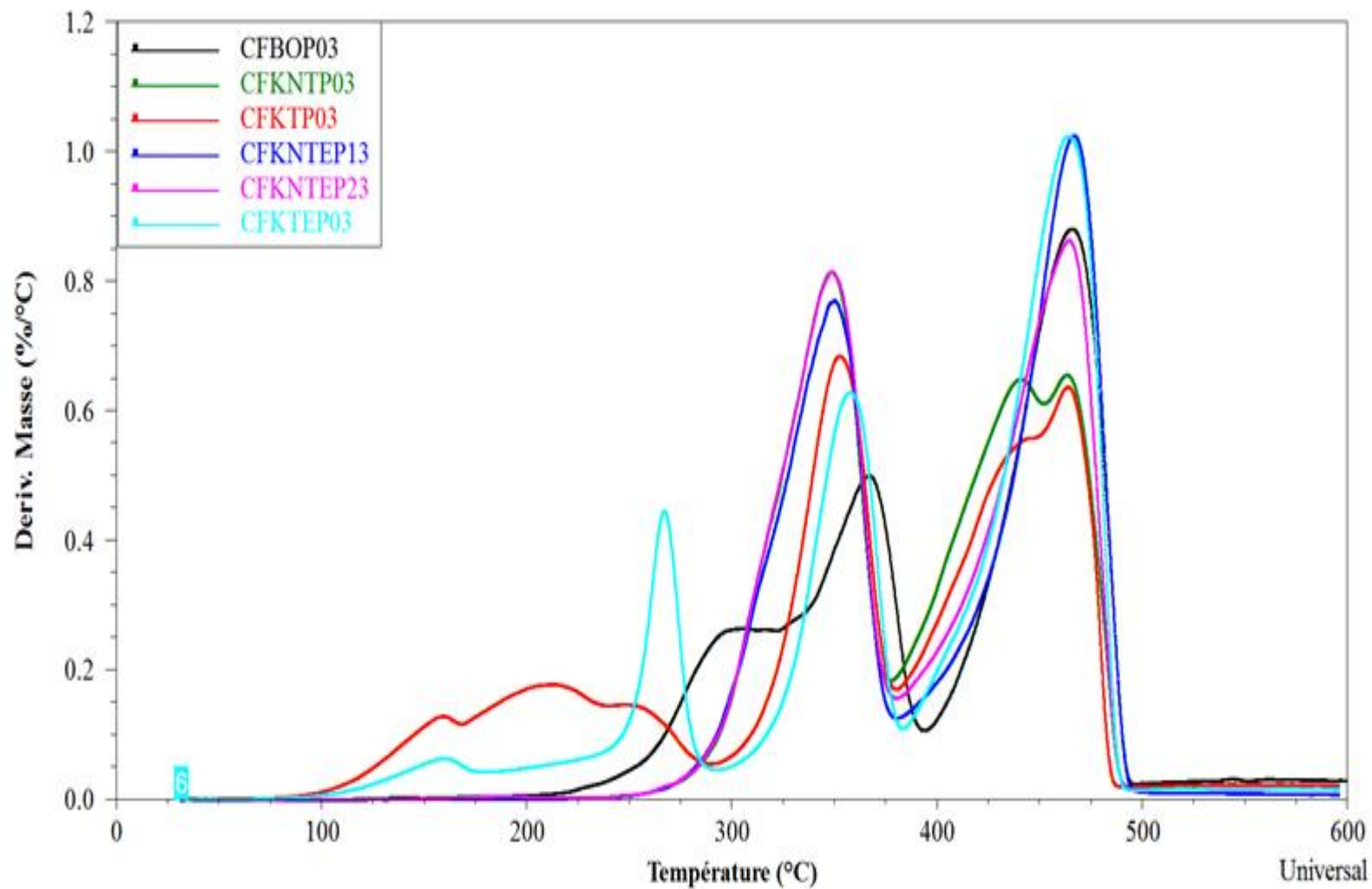
**Annexe 16 : Courbes des dérivées thermogravimétriques (DTG) des mélanges PP/SEBS-MA (20%)/Fibre kraft traitée/MAPP à différente teneur en fibre**



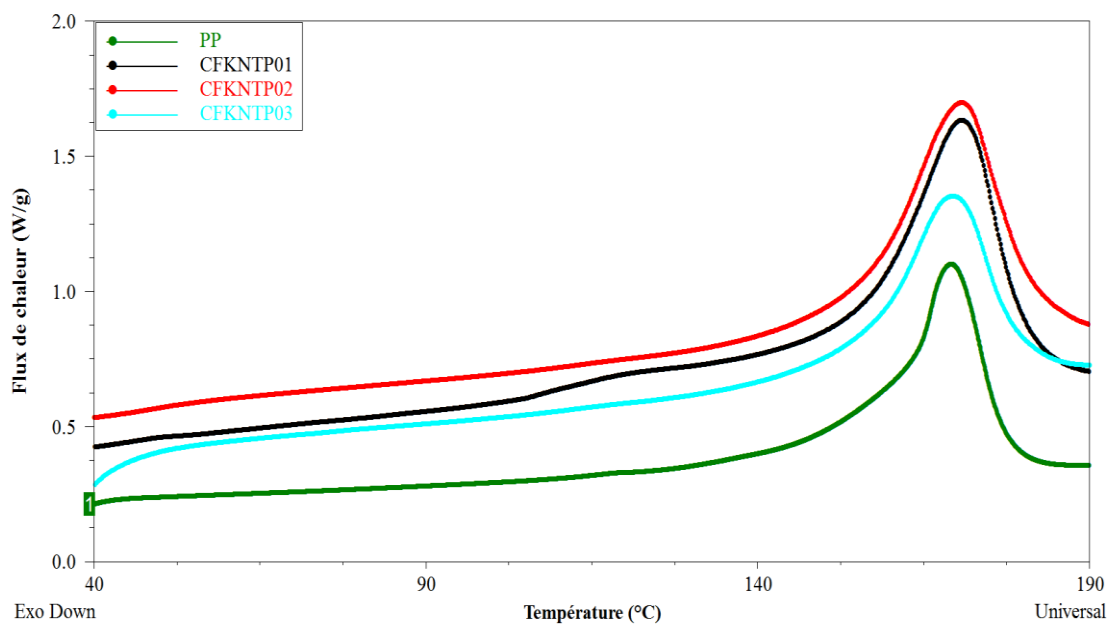
**Annexe 17: Analyse thermogravimétrique des différents types de mélanges à 40% de fibre**

**Annexe 18: Courbes des dérivées thermogravimétriques (DTG) des différents types de mélanges à 40% de fibre**

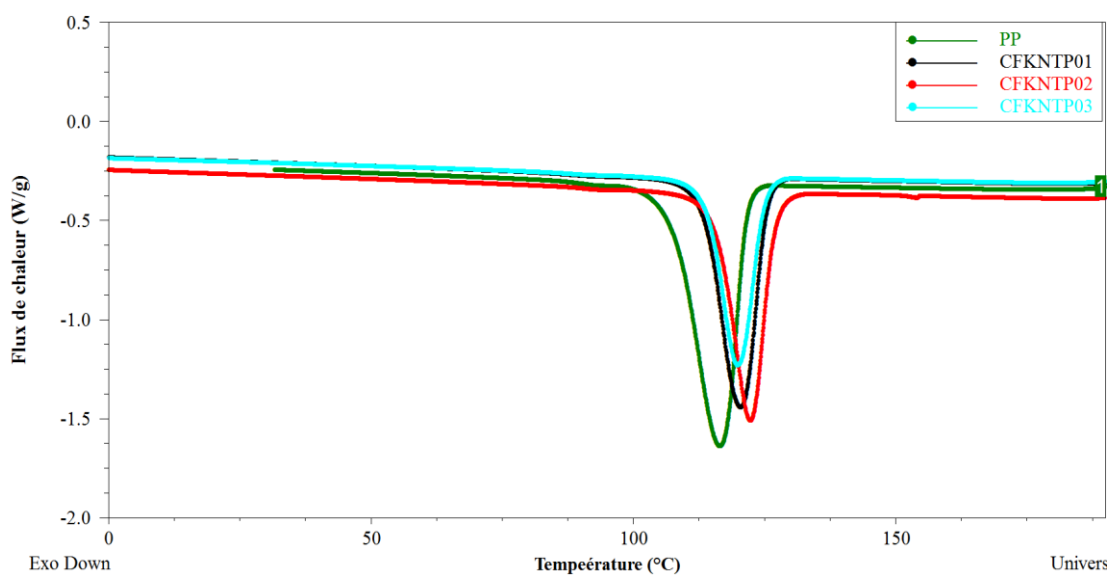
**Annexe 19: Analyse thermogravimétrique des différents types de mélanges à 50% de fibre**

**Annexe 20: Courbes des dérivées thermogravimétriques (DTG) des différents types de mélanges à 50% de fibre**

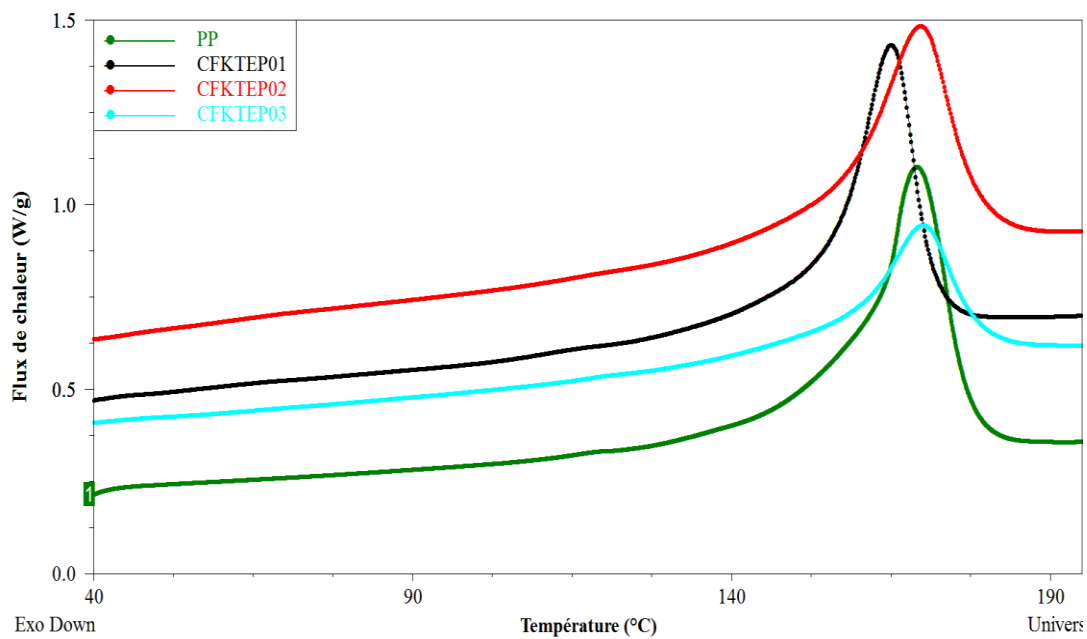
### Annexe 21 : Thermogrammes de premier cycle de fusion des mélanges PP/Fibre kraft/MAPP



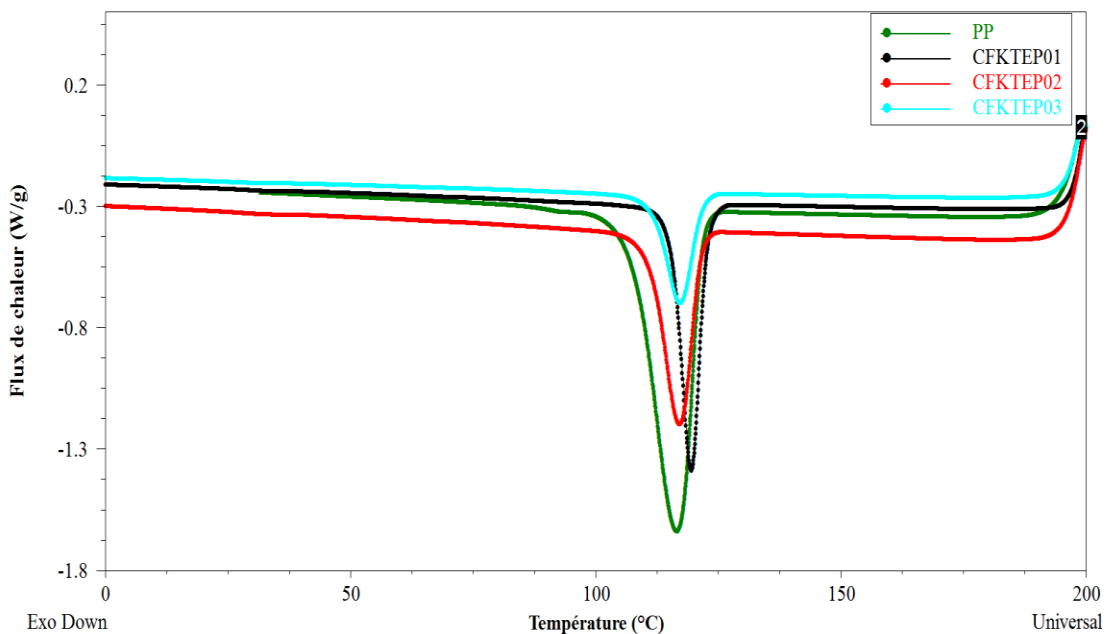
### Annexe 22 : Thermogrammes de refroidissement des mélanges PP/Fibre kraft/MAPP



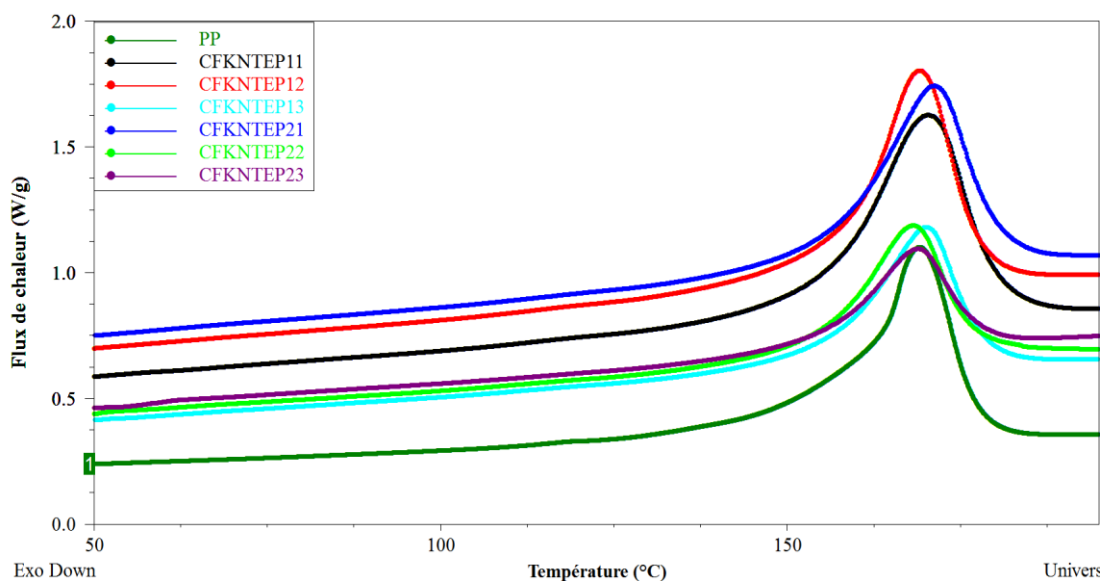
**Annexe 23 : Thermogrammes de premier cycle de fusion des mélanges PP/Fibre kraft traitée par glycérol/MAPP**



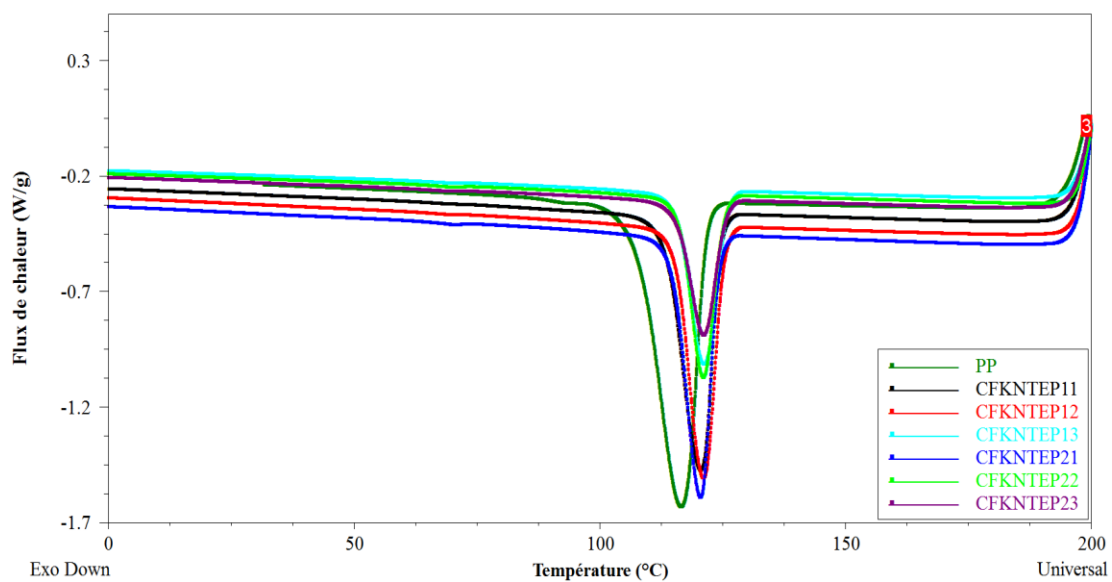
**Annexe 24: Thermogrammes de refroidissement des mélanges PP/Fibre kraft traitée par glycérol/MAPP**



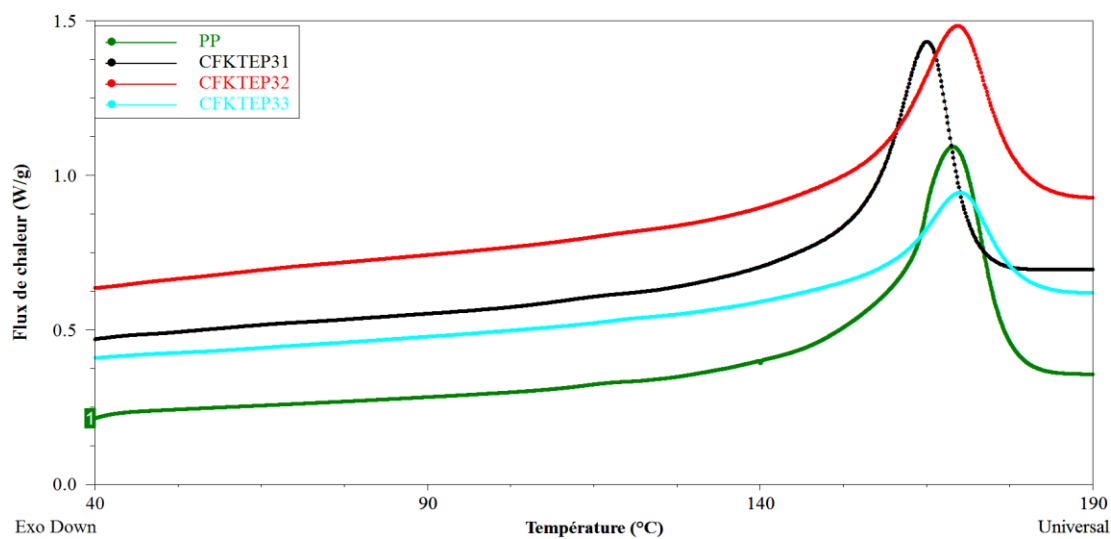
### Annexe 25: Thermogrammes de premier cycle de fusion des mélanges PP/Fibre Kraft/SEBS-MA/MAPP



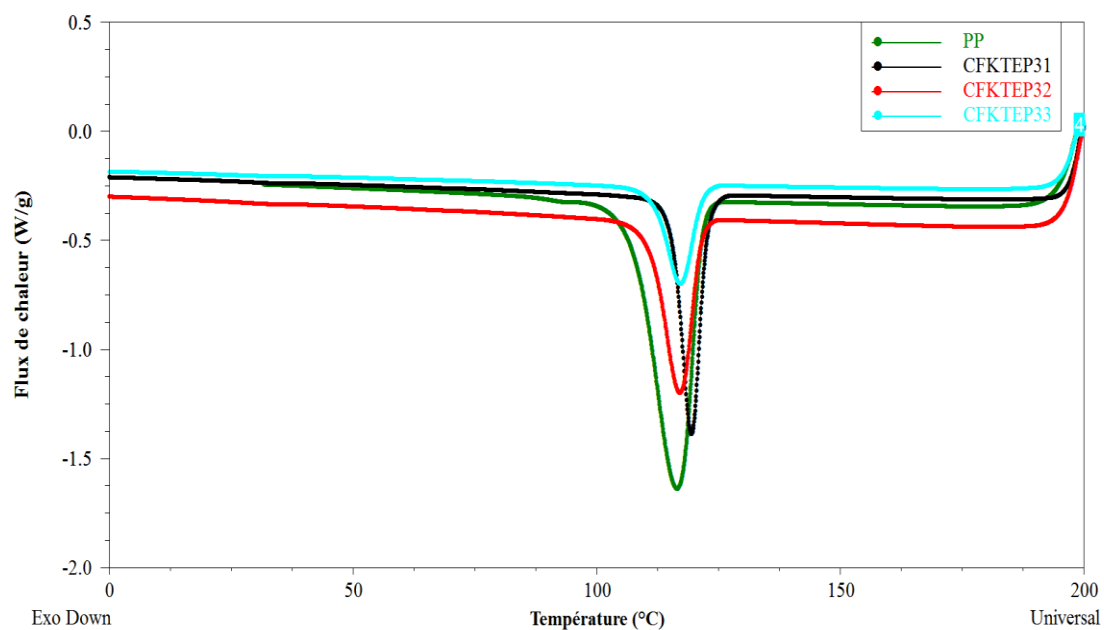
### Annexe 26: Thermogrammes de refroidissement des mélanges PP/Fibre kraft/SEBS-MA/MAPP



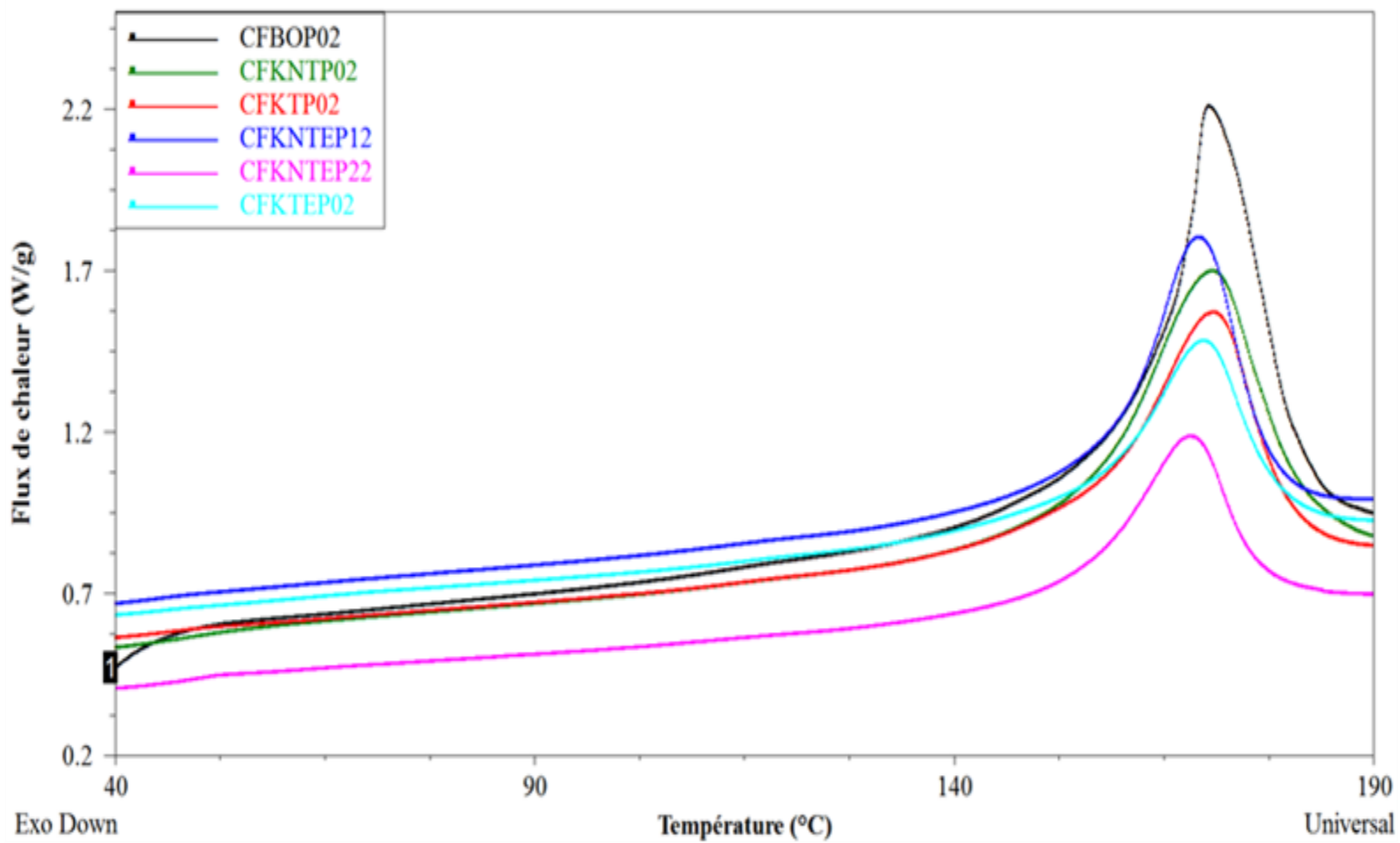
**Annexe 27: Thermogrammes de premier cycle de fusion des mélanges PP/Fibre kraft traitée par glycérol/SEBS-MA/MAPP**

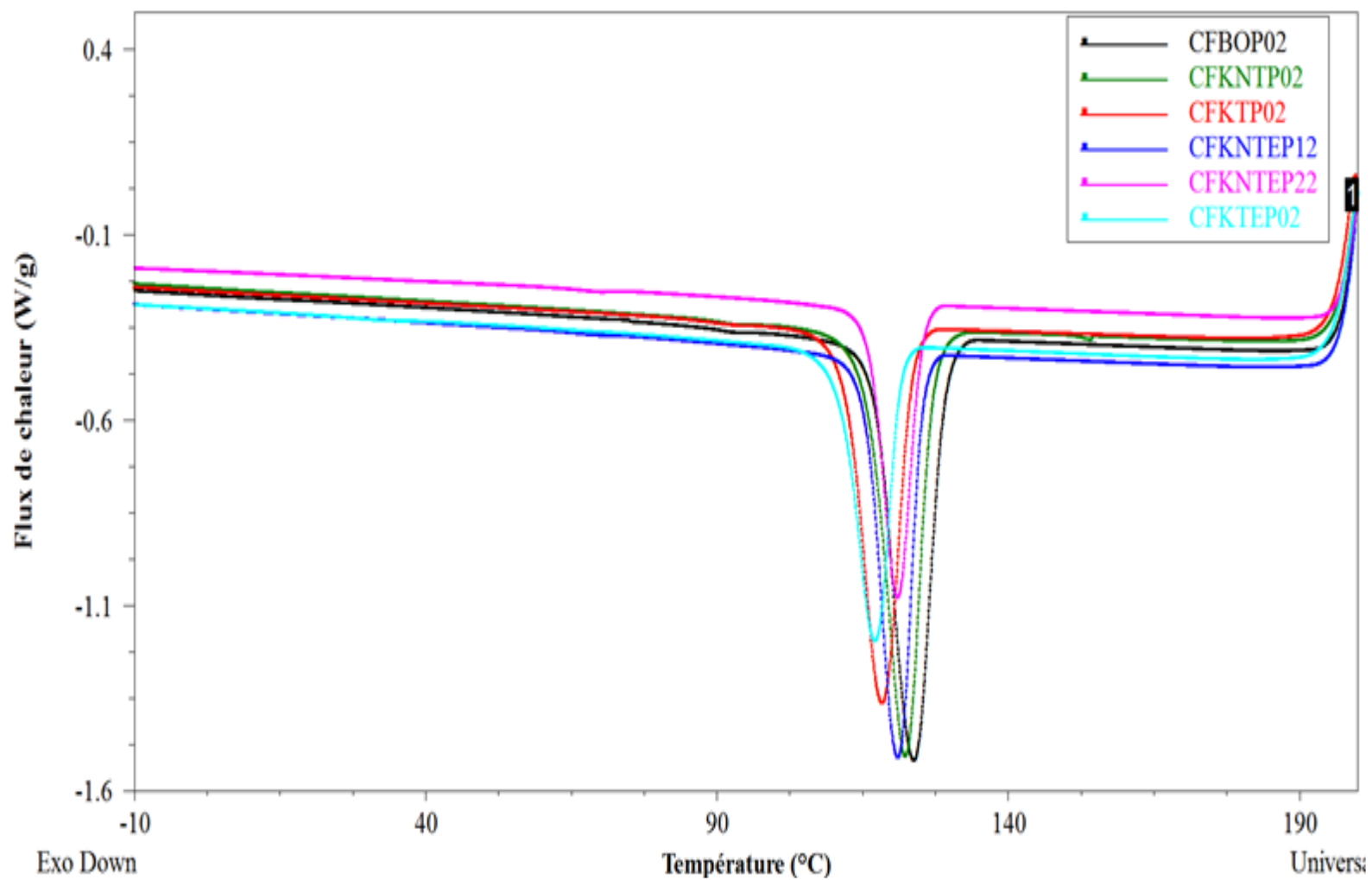


**Annexe 28: Thermogrammes de refroidissement des mélanges PP/Fibre kraft traitée par glycérol/SEBS-MA/MAPP**

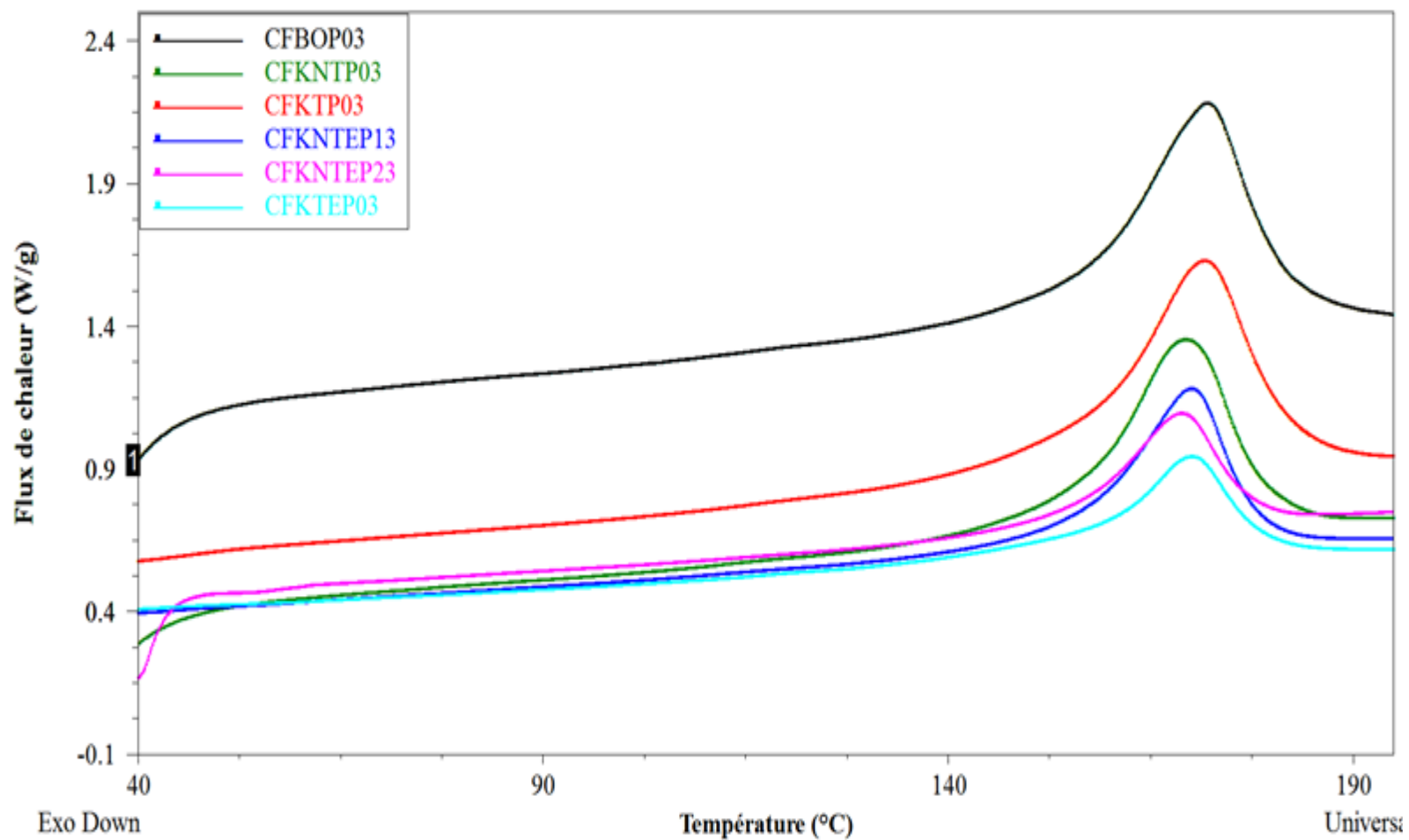


**Annexe 29: Thermogrammes de premier cycle de fusion des diverses catégories de composites chargés par 40% de fibre.**



**Annexe 30: Thermogrammes de refroidissement des diverses catégories de composites chargés par 40% de fibre**

Annexe 31: Thermogrammes de premier cycle de fusion des diverses catégories de composites chargés par 40% de fibre.



Annexe 32: Thermogrammes de refroidissement des diverses catégories de composites chargés par 40% de fibre

